

3 Der experimentelle Aufbau

Der von S. Wolf und S. Rutz vorgenommene Aufbau⁵⁵ der Vakuumanlage und des Lasersystems für die fs-Spektroskopie an Metallclustern wurde für diese Arbeit in den Grundzügen übernommen und erfuhr viele Erweiterungen und Verbesserungen. Die wesentlichste Änderung an der Vakuumanlage war der Einbau der Oktopolfalle. Diese wird im folgenden Kapitel im Detail vorgestellt. Die Beschreibung der Vakuumanlage beschränkt sich auf einen kurzen Überblick und die Darstellung der sich durch den Einbau des Oktopols ergebenden Konsequenzen. Das Lasersystem wurde grundlegend modernisiert durch die Verwendung eines Festkörperpumpasers für den Oszillator und den Aufbau eines Multipass-Nachverstärkers. Daher soll ihm etwas mehr Aufmerksamkeit gewidmet werden. Abschließend wird der Meßablauf für ein typisches Experiment dargestellt.

3.1 Die Vakuumanlage

Das Vakuumsystem besteht aus der Clusterquelle, einer Folge von 5 kolinearen Quadrupol- und Oktopol-Ionenführungssystemen und dem Detektor (siehe Abb. 3.1). Bei der Quelle (a) handelt es sich um eine Sputterquelle vom Typ CORDIS⁵⁶, die durch den Beschuß von Metalltargets (b) mit hochenergetischen Xe-Ionen (13 kV) eine breite Größenverteilung von positiv und negativ geladenen Clustern erzeugt. Die Ausbeute an negativ geladenen Clustern kann durch das Verdampfen von Cäsium im Targetraum erhöht werden⁵³. Eine detaillierte Diskussion der Clustererzeugung, sowie typische Massenspektren finden sich in der Dissertation von S. Wolf⁵⁷. Der divergente Strahl heißer Cluster wird in einem gasgefüllten Quadrupol (c) kollimiert und gleichzeitig

⁵⁵ (Wolf 1997)

⁵⁶ (Keller et al. 1984)

⁵³ (Krohn 1962), (Hortig et al. 1969)

⁵⁷ (Wolf 1997)

gekühlt⁵⁸. Daran schließt sich die Massenselektion in einem weiteren Quadrupol (d) an. Durch einen Transferquadrupol (e) wird die selektierte Clustergröße in die Oktopolfalle (f) übertragen. Die Masse der in der Oktopolfalle nach dem NeNePo-Prozeß entstandenen Kationen kann im letzten Quadrupol (g) analysiert werden, bevor die Ionen durch einen Elektronenvervielfacher mit Konversionsdynode (h) detektiert werden. Die massenselektierenden Quadrupole haben einen Massenbereich von 2 bis 4000 amu. Sie und der Detektor sind Teile eines Triple-Quadrupol-Massenspektrometers der Firma Extrel, welches im Eigenbau erweitert wurde.

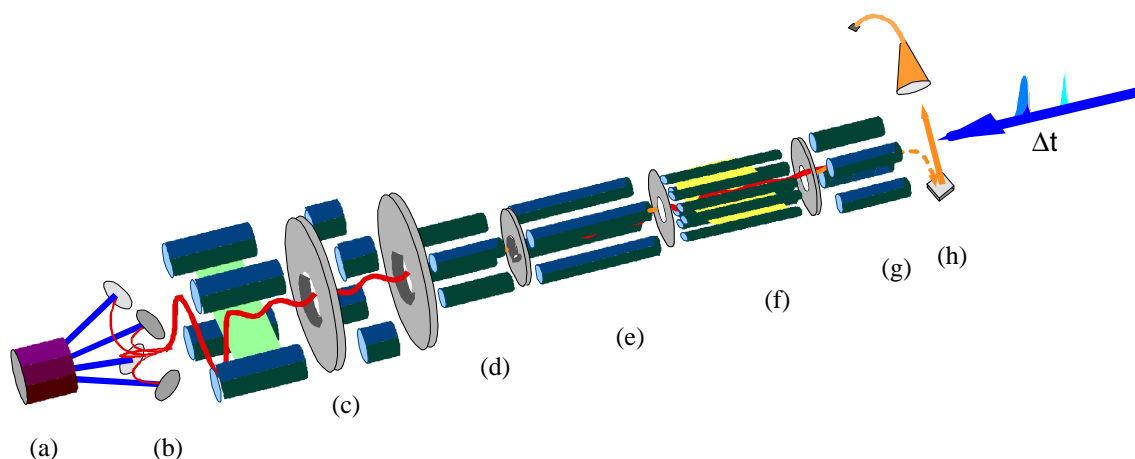


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der Vakuumapparatur. Von links nach rechts: (a) – Primärionenquelle, (b) – Sputtertargets, (c) – gasgefüllter Quadrupol, (d) – massenselektierender Quadrupol, (e) – Transferquadrupol, (f) – Oktopolfalle, (g) – massenselektierender Quadrupol, (h) – Detektor

Die Quelle sowie die ersten 3 Quadrupole sind in einer ersten Einheit von Vakuumkammern installiert, die auf Rollen gelagert ist und verschoben werden kann. Zwei weitere Kammern enthalten den kühlbaren Oktopol, den letzten Quadrupol-Massenfilter und den Detektor. Beide Kammersysteme sind durch ein Ventil voneinander trennbar und werden im Experiment durch Verschieben des ersten Systems aufeinander justiert.

⁵⁸ (Krämer 1993)

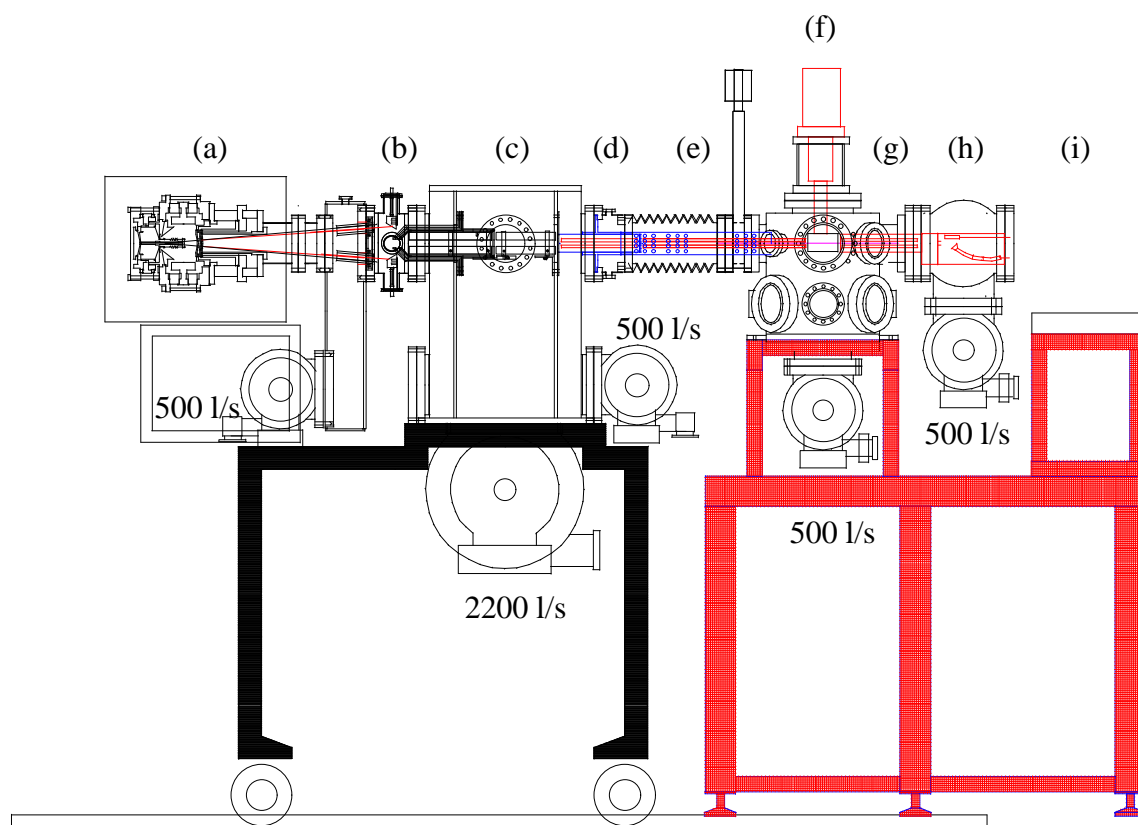


Abbildung 3.2: Die Vakuumapparatur. Von links nach rechts dargestellt sind: (a) – die Primärionenquelle, (b) – die Targetkammer, (c) – die Hauptkammer mit dem Quadrupol, (d) und (e) – der Wellbalg mit dem ersten massenselektierenden Quadrupol und dem Transferquadrupol, (f) – der He-Kryostat mit der angeschlossenen Oktopolfalle, (g) – der zweite massenselektierende Quadrupol, (h) – der Detektor (wahlweise ein Faraday-Becher oder ein Elektronenvervielfacher mit vorgeschalteter Konversionsdynode) und (i) der Lasertisch für die Optik zur Einkopplung des Laserstrahls in die Kammer.

Insgesamt fünf Turbomolekularpumpen sorgen für die Erzeugung eines ausreichenden Hochvakuums in den entsprechenden Kammern. Ihre Positionen und Saugleistungen sind in Abbildung 3.2 dargestellt. Der Enddruck aller Kammern ohne Ausheizen lag zwischen 1 und 4×10^{-7} Torr. Der kühlbare Oktopol mit zusätzlichen Details ist in Abbildung 3.3 nochmals vergrößert zu sehen. Die Transmission der Oktopoleinheit für Ag_3^+ beträgt 30 %.

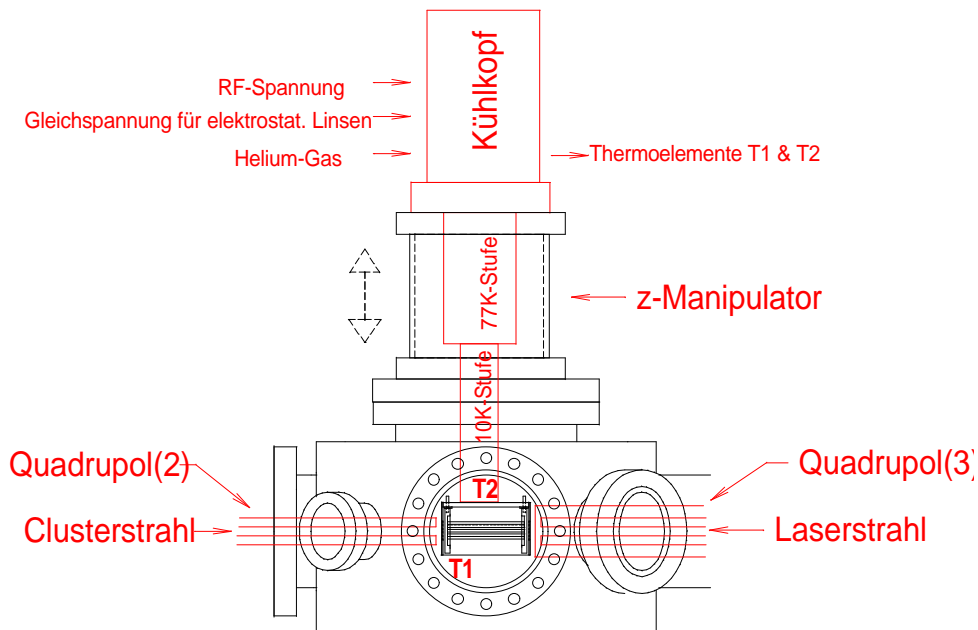


Abbildung 3.3: Der Einbau der Oktopolfalle in die Vakuumapparatur. Zwei Thermoelemente messen die Temperatur an der kältesten und der wärmsten Stelle der Falle.

Die effiziente Erzeugung einer hohen Intensität von massenselektierten Metallclusteranionen bedarf der sorgfältigen Justage vieler elektrostatischer und elektrodynamischer ionenoptischer Elemente. Ein vollständiger Satz von optimierten Parametern für die Erzeugung von Ag_3 -Anionen ist in Tabelle 3.1 angegeben. Die Position der Elemente ist in Abbildung 3.4 markiert.

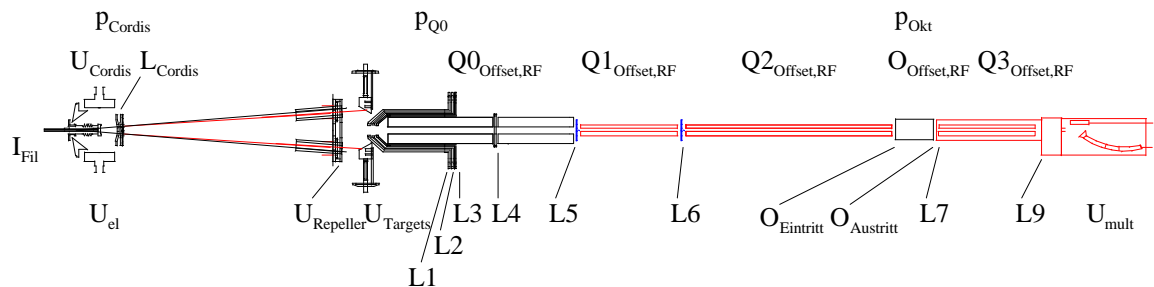


Abbildung 3.4: Die Positionen der in Tabelle 3.1 verzeichneten ionenoptischen Elemente und Parameter in der Vakuumapparatur. Die Benennung der Linsen und Quadrupole ist historisch gewachsen und daher nicht durchgängig.

Element/ Parameter	Funktion	Optimiert auf das Fangen von Ag_3^-	Optimiert auf Detektion von Ag_3^+
I_{Fil}	Filamentstrom	179 A (bei 6.5 V)	
U_{el}	Entladungsspannung	59 V	
p_{Cordis}	Xenon-Gasdruck	0.07 mbar	
U_{Cordis}	Beschleunigungsspannung-Cordis	13.4 kV	
L_{Cordis}	Linsenspannung-Cordis	4.2 kV	
U_{Repeller}	Repellerspannung	-88 V	
U_{Targets}	Targetspannung	-41 V	
L1	Einzellinse	-38 V	
L2	Einzellinse	+150 V	
L3	Einzellinse	-25 V	
L4	Zwischenlinse	-25 V*	
P_{Q0}	Gasdruck im Quadrupol 0	0.025 mbar*	
$Q_{0\text{RF}}$	RF-Spannung am Quadrupol 0 (Monitorausgang)	2.7 V*	
$Q_{0\text{Offset}}$	Gleichspannungsoffset am Quadrupol 0	-27 V*	
L5	Eintrittslinse Quadrupol 1	-18 V	
$Q_{1\text{Offset}}$	Gleichspannungsoffset des Quadrupols 1	+26.4 V	
L6	Austrittslinse Quadrupol 1	-19.9 V	
$Q_{2\text{Offset}}$	Gleichspannungsoffset des Quadrupols 2	-9.8 V	
$Q_{2\text{RF}}$	RF-Spannung am Quadrupol 2 in % der RF-Spannung von Quadrupol 1	30.5	
O_{Eintritt}	Eintrittslinse Oktopol	-16.3 V*	
O_{Offset}	Gleichspannungsoffset des Oktopols	-10.5 V*	
O_{RF}	RF-Spannung des Oktopols (gemessen durch RF-Verstärker-Spannung)	6 V*	
P_{Okt}	He-Druck im Oktopol (Vorvakuumdruck)	0.5 Pa (0.056 torr)	
O_{Austritt}	Austrittslinse Oktopol	-40V/+50 V	-40 V
L7	Eintrittslinse Quadrupol 3	+10 V	-18.9 V*
$Q_{3\text{RF}}$	RF-Spannung am Quadrupol 3 in % der RF-Spannung von Quadrupol 1 (nicht massenselekt.)	70	70
$Q_{3\text{Offset}}$	Gleichspannungsoffset des Quadrupol 3	+67 V	-24.8 V*
L9	Austrittslinse Quadrupol 3	+97 V	-97 V
U_{mult}	Spannung am Elektronenvervielfacher	-	1.3 kV

Tabelle 3.1: Die einstellbaren Werte der Clusterapparatur. Während die Optimierung auf einen maximalen Clusterstrom unkritisch ist, sind für das Fangen der Cluster und den Nachweis der Kationen die Einstellungen bestimmter Elemente (mit Stern gekennzeichnet) nur in einem kleinen Bereich variabel. Alle Parameter müssen bei jedem Experiment von neuem optimiert werden.

Modifiziert wurde das Gehäuse des Detektors, da das aus dem Oktopol austretende Gas zu einem unzulässig hohen Druck am Detektor führte. Das geschlossene Gehäuse wurde mit Löchern versehen und zur Abschirmung von elektromagnetischer Strahlung mit einem feinen Drahtnetz umwickelt. Auf diese Weise wurde eine wesentlich höhere Pumpgeschwindigkeit in dieser Region erreicht.

3.1 Das Lasersystem

Der Aufbau des Lasersystems (Abb. 3.5) wurde stark verändert. Der Ti:Sa-Oszillator („Tsunami“ von Spectra-Physics) wird jetzt durch einen Festkörperlaser („Millenia V“ von Spectra Physics) gepumpt. Die fs-Pulse des Oszillators mit einer Pulslänge von 60 fs, einer Wellenlänge zwischen 765 und 840 nm, einer spektralen Breite von 12 nm, einer Pulsenergie von 5 nJ und einer Repetitionsrate von 82 MHz dienen als Seed-Pulse für ein Verstärkersystem, das auf dem Prinzip der „chirped pulse amplification“ beruht⁵⁹. Dieses Verstärkersystem (Quantronix 4800 Ti:sapphire RGA) reduziert die Repetitionsrate um einen Faktor 80 000 auf 1 kHz und verstärkt die Pulse um einen Faktor 40 000 auf eine Energie von 0.2 mJ. Ein Multi-Pass-Verstärker bildet eine zweite Verstärkungsstufe, die die Leistungsreserven des Nd:YLF-Pumplasers des Verstärkungssystems ausnutzt. Die schließlich zur Verfügung stehenden Pulse haben eine Energie zwischen 0.4 mJ und 1.6 mJ und eine Pulsdauer von 140 fs bei einer Repetitionsrate von 1 kHz.

An das Lasersystem schließt sich der Pump- und Probe-Aufbau an. Er besteht aus Elementen, die die gewünschten Wellenlängen erzeugen, einem System aus Spiegeln und Strahlteilern zum Aufteilen und Überlagern von Pump- und Probestrahl und einer Verzögerungsstrecke, die den Zeitunterschied zwischen Pump- und Probestrahl einstellt. Die minimale Schrittweite der Verzögerungsstrecke beträgt 1 fs und die maximale Verzögerungszeit 1 ns. Die Stabilität des Aufbaus, die für das genaue Einstellen der zeitlichen Verzögerung sehr kritisch ist, wurde stark verbessert.

⁵⁹ (Salin et al. 1993)

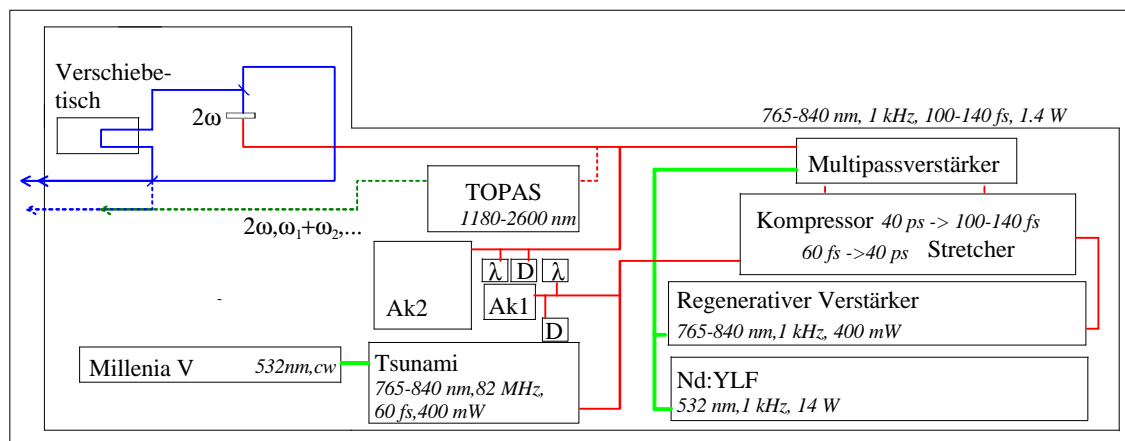


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung des Lasersystems und der Pulsdetektion. Mit „D“ sind schnelle Photodioden bezeichnet, mit „I“ die Lichtleitfasern zum Monochromator/OMA und mit „Ak1“ bzw. „Ak2“ die Autokorrelatoren.

Für die Erzeugung der gewünschten Wellenlängen stand ein optischer parametrischer Verstärker („TOPAS“ von Light Conversion Inc.), dessen Funktion und zugänglichen Wellenlängenbereiche von S. Wolf ausführlich diskutiert wurden⁶⁰, und verschiedene Kristalle zur Frequenzverdopplung (BBO, Typ 1) zur Verfügung.

Die Charakterisierung der Pulse erfolgte routinemäßig durch Messung der Autokorrelationsfunktion (Spectra-Physics Autocorrelator 409, Soliton AM-100⁶¹) und des Spektrums (Monochromator HR 250 von Yvon-Jobin) der Pulse des Oszillators und des Verstärkers (Abb. 3.6). Das Spektrum des Ti:Sa-Oszillators hat eine Breite von 16 nm, die bandbreitenbegrenzte Pulsdauer beträgt 60 fs. Die spektrale Breite der verstärkten Pulse dagegen ist auf 10 nm reduziert und die Pulslänge ist aufgrund der mit dem Kompressor nicht kompensierbaren Dispersionseffekte zweiter und höherer Ordnung auf 140 fs angewachsen. Die Pulslängenbestimmung der verstärkten Pulse wurde mit Hilfe eines FROG-Gerätes (Frequency Resolved Optical Gating) überprüft⁶².

⁶⁰ (Wolf 1997)

⁶¹ (Salin et al. 1987)

⁶² (Lupulescu 1999)

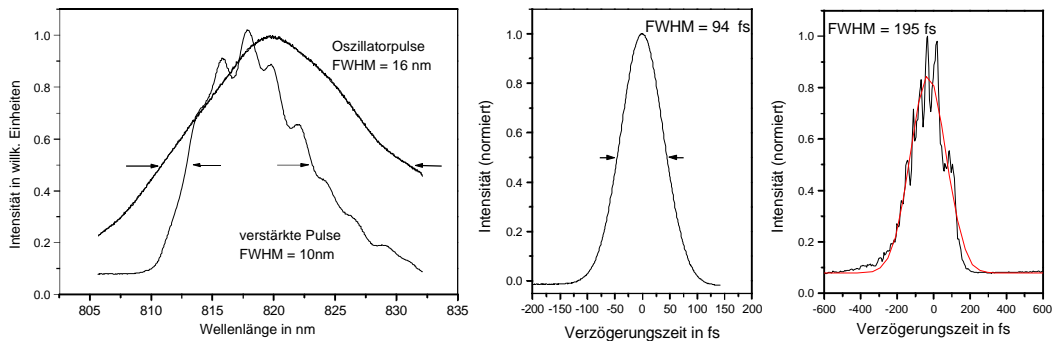


Abbildung 3.6: Die Spektren der Pulse von Oszillator und Verstärker (links), sowie ihre Autokorrelationsfunktionen (mitte – Oszillator, rechts – Verstärker).

Weiterhin wird mit schnellen Photodioden die Puls-zu-Puls-Stabilität und die Justage der Pockelszelle überwacht. Die Länge der frequenzkonvertierten Pulse am Ort des Experiments kann direkt an den Spektren abgelesen werden oder über die Messung des Photostroms an einer in den Strahl gebrachten Metalloberfläche⁶⁰. Auf den Einsatz von Teleskopen zur Kollimierung der Strahlen wurde nach Möglichkeit verzichtet, um die Verlängerung der Pulsdauer durch Dispersion im Linsenmaterial zu vermeiden und die Wellenfronten möglichst wenig zu deformieren.

Im folgenden sollen zwei Teilaspekte des Aufbaus kurz diskutiert werden: Die Stabilität der Pulsenergie und die Frequenzverdopplung in einem nichtlinearen Kristall.

3.2.1 Die Stabilität der Pulsenergie

Während des NeNePo-Prozesses werden typischerweise drei Photonen absorbiert: ein Photon während des Photodetachments und zwei weitere Photonen bei der Ionisation. Eine Schwankung der Pulsenergie geht also in der dritten Potenz in das Signal ein. Bei dem vorhergehenden Frequenzverdopplungsprozeß ist die Intensitätsabhängigkeit quadratisch. Noch drastischer sind die Effekte bei der Benutzung des optischen parametrischen Verstärkers, da es sich hier um einen Schwellenprozeß handelt. Da sich die Intensitätsfluktuationen in der Kette fs-Oszillator - regenerativer Verstärker - Multipassverstärker - Frequenzverdopplung/OPA - Experiment immer weiter fortpflanzen, müssen die Intensitätsfluktuationen von Anfang an minimiert

werden. Eine große Verbesserung bedeutete hier die Einführung des „Millenia V“ als Pump laser für den fs-Oszillator. Wie in Abbildung 3.7 dargestellt, reduziert sich das Intensitätsrauschen des Verstärkersystems drastisch gegenüber einem System, das mit einem Argon-Ionenlaser gepumpt wird.

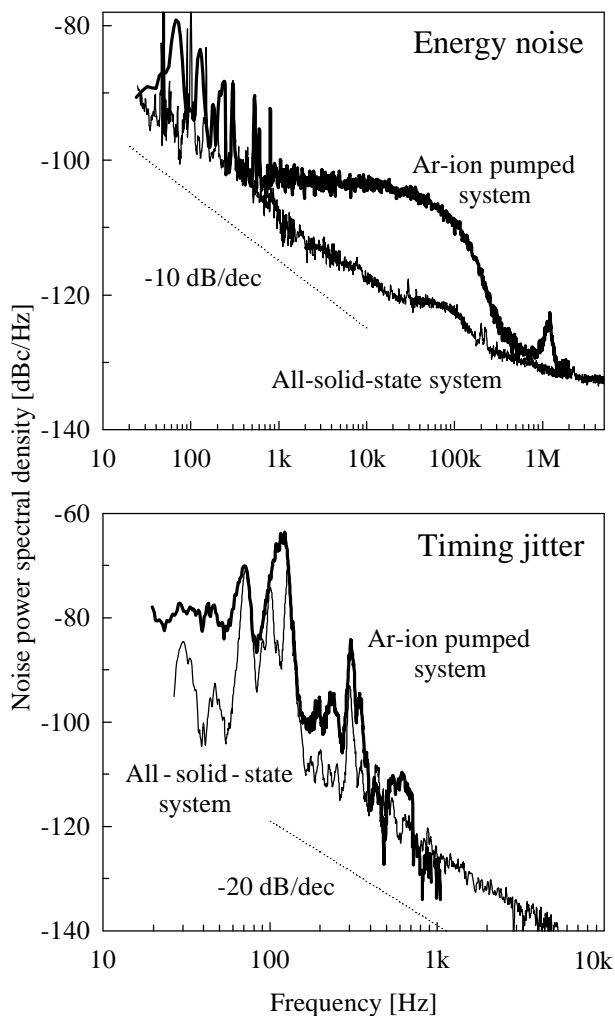


Abbildung 3.7: Das Laserrauschen eines fs-Verstärkersystems wird durch den Einsatz eines Festkörperpumplasers (z.B. „Millenia V“ von Spectra-Physics) anstelle eines Ar⁺-Pumplasers für den Oszillator stark reduziert⁶³.

⁶³ (Poppe et al. 1998)

3.2.2 Die Frequenzverdopplung

Die Effizienz von nichtlinearen Effekten in Kristallen kann durch die hohen Intensitäten der fs-Pulse (bis 10^{11} W/cm² unfokussiert) bis zu 20% betragen. Aufgrund der kurzen Pulslängen und des breiten Spektrums komplizieren jedoch die Gruppengeschwindigkeitsdispersion und die Wellenlängenabhängigkeit der Phasenanpassungsbedingung die Erzeugung der zweiten Harmonischen und begrenzen die Effizienz.

Bei verschwindender Gruppengeschwindigkeitsdispersion verkürzt der Frequenzverdopplungsprozeß einen gaußförmigen Puls auf 70% seiner Pulslänge. Diese Situation läßt sich experimentell durch sehr dünne Kristalle auf Kosten der Effizienz realisieren. Um eine akzeptable Effizienz zu erhalten, muß eine Pulsverbreiterung durch Dispersion im Kristall in Kauf genommen werden. Die Dispersionseffekte nehmen mit abnehmender Wellenlänge stark zu (siehe Abb. 3.8) und sind natürlich abhängig von der spektralen Breite des Pulses. Als Maß für die zulässige Kristalldicke kann die Strecke dienen, nach der die Gruppengeschwindigkeitsdispersion die Pulsverkürzung wieder zunichte gemacht hat.

Für diese Dicke gilt:

$$D = (1 - 0.7) c / (\delta n / \delta \lambda) \cdot t / \Delta \lambda$$

wobei t die Pulslänge und $\Delta \lambda$ die spektrale Breite bezeichnet.

Setzt man die Daten von Beta-Bariumborat⁶⁴ und eine Pulslänge von 100 fs bei spektralen Breiten von 6 nm und 3 nm für mittlere Wellenlängen von 400 nm und 200 nm und außerordentliche Polarisation (Typ 1 Phasenanpassung) ein, erhält man für die maximale Kristalldicke bei der Erzeugung der 2. Harmonischen von 800 nm einen Wert von 1 cm und bei der Erzeugung der 2. Harmonischen von 400 nm einen Wert von 4 mm. Da die in unseren Experimenten verwendeten Kristalle eine Dicke von maximal 1 mm hatten, fand keine merkliche Pulsverlängerung durch Gruppengeschwindigkeitsdispersion statt.

⁶⁴ (BW-Tek 1999)

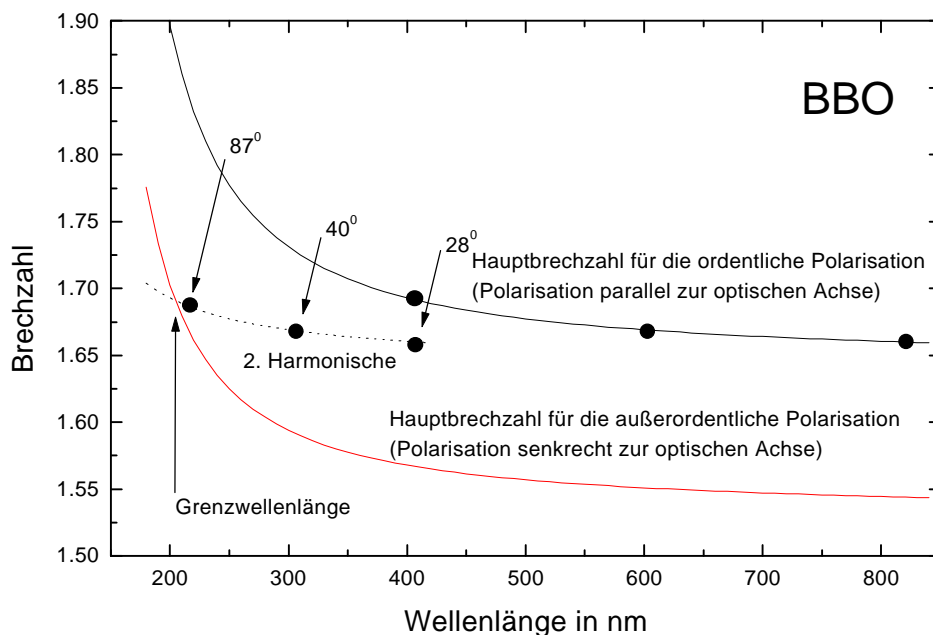


Abbildung 3.8: Typ1-Phasenanpassung im BBO-Kristall. Die Brechzahl der außerordentlich polarisierten 2. Harmonischen kann durch geeignete Wahl des Kristallwinkels der Brechzahl der ordentlich polarisierten Grundwelle angepaßt werden. Da die kleinste erreichbare Brechzahl die Hauptbrechzahl der außerordentlich polarisierten Welle ist, kann Phasenanpassung nicht für Grundwellenlängen kleiner als 410 nm erreicht werden.

Kritischer, so stellt sich heraus, ist die Erfüllung der Phasenanpassungsbedingung über das gesamte Spektrum des Pulses. Zur Illustration ist in Abbildung 3.8 die Hauptbrechzahl für die ordentliche und die außerordentliche Polarisationsrichtung von BBO als Funktion der Wellenlänge dargestellt. Typ1-Phasenanpassung bedeutet, daß durch einen geeigneten Kristallwinkel die Brechzahl der außerordentlich polarisierten 2. Harmonischen der Brechzahl der ordentlich polarisierten Grundwelle angepaßt wird. Die Brechzahl der außerordentlich polarisierten Welle ist minimal die Hauptbrechzahl für außerordentliche Polarisation und maximal die Hauptbrechzahl für ordentliche Polarisation. Aus diesen Grenzen ergibt sich eine minimale Wellenlänge für die phasengepaßte 2. Harmonische von 205 nm.

Für eine Wellenlänge von 800 nm ist für einen BBO-Kristall ein Winkel zwischen Strahl und Kristallachse von 59 Grad gefordert. Für diesen Winkel hat die Wellenlänge 403 nm bereits nach 0.5 mm einen Unterschied im optischen Weg von 200 nm bezüglich ihrer Grundwellenlänge von 806 nm akkumuliert und wird auf den folgenden 0.5 mm Laufstrecke wieder abgeschwächt. Ein Kristall zu großer Länge führt also zu einer Einschnürung des Spektrums und damit zu einer Pulsverlängerung, im Extremfall zum Auftreten von Satellitenpulsen. Die Leistung der verdoppelten Pulse kann trotzdem durch einen längeren Kristall zunehmen, da die Verluste an den Flanken des Spektrums durch die größere Effizienz für die mittlere Wellenlänge kompensiert wird. Für die Erzeugung von Pulsen mit einer Mittenwellenlänge von 207 nm muß der Kristall sogar noch deutlich dünner sein, denn bereits nach 50 µm ist der Phasenunterschied zwischen den Wellenlängen 206 nm und 412 nm auf $\lambda/2$ angewachsen.

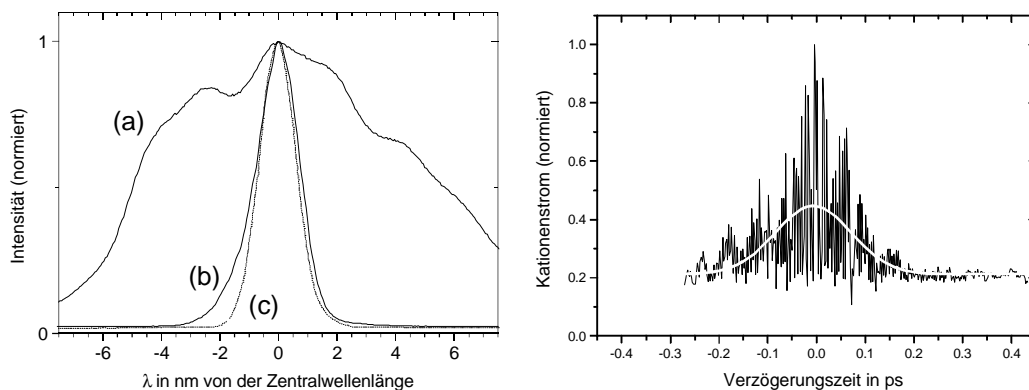


Abbildung 3.9: Spektren (links) des Pulses bei (a) 830 nm und der 2. Harmonischen bei 415 nm, erzeugt mit einem 0.5 mm BBO-Kristall (b) bzw. mit einem 1 mm BBO – Kristall (c), sowie die Autokorrelationsfunktion (rechts) des 415 nm-Pulses (b) gemessen über den Kationenstrom des NeNePo-Experiments am kalten Ag_5 . Ein mittelnder Fit mit einer Gaussfunktion ergibt eine Halbwertsbreite der Autokorrelation von 184 fs.

Die Wahl der Kristalldicke ist also ein entscheidender Parameter für die Qualität des frequenzverdoppelten Pulses. Wie berechnet, zeigten sich bei der Messung des Spektrums des verdoppelten Pulses bei einer Kristalldicke von 1 mm bereits leichte Einschnürungseffekte (Abb. 3.9 (b,c)). Die Breite des blauen Spektrums ist gegenüber dem Spektrum mit 0.5 mm Kristalldicke auf 80% abgefallen und das Spektrum läßt sich durch Drehen des Kristalls verschieben.

Eine Dicke von 0.5 mm ist dagegen unkritisch, lediglich eine Verringerung der Leistung um 50% muß in Kauf genommen werden.

Aus der Autokorrelationsfunktion, die hier nur für den dünnen Kristall dargestellt wurde, ergibt sich eine Pulslänge von 130 fs. Diese ist im Rahmen der Fehler identisch mit der durch die Bandbreite gegebenen minimalen Pulslänge von 140 fs. Der verdoppelte Puls ist also im Gegensatz zum Puls mit der Grundwellenlänge bandbreitenbegrenzt. Offensichtlich werden die Flanken des Spektrums, auf die sich die nichtlineare Dispersion besonders auswirkt, nicht verdoppelt.

3.3 Ablauf der NeNePo-Experimente

Ein NeNePo-Experiment beginnt typischerweise mit der Erzeugung und Speicherung der Anionen. Hierzu wird die Clusterquelle in Betrieb genommen und die Linsen, Offsetspannungen und Helium-Gasdrücke auf einen maximalen Anionenstrom justiert. Die Einstellungen des Vortages sind dabei in der Regel in der Nähe des Optimums. Eine etwa 30 minütige Aufwärmphase ist nötig, bis die Frequenzgeneratoren ihre Betriebstemperatur erreicht haben und nicht mehr in der Frequenz driften. Bei Abkühlung des Oktopols mit Hilfe des Kryostaten muß dieser drei Stunden vor Beginn des Experiments eingeschaltet werden. Anschließend ist eine mechanische Neujustage des Oktopols auf die Strahlachse nötig, um die Verkürzung des Kühlfingers zu kompensieren.

Durch langsames Aufheizen eines Cäsium-Ofens auf 70 °C wird ein dünner Cs-Film auf den Sputtertargets erzeugt. Hierdurch kann der Clusterstrom nochmals gesteigert werden. Die Messung des Stroms der massenselektierten Cluster-Anionen in der Größenordnung von einigen zehn bis einigen hundert pA erfolgt über den Faraday-Detektor und ein Picoamperemeter. Der Clusterstrom bleibt dann recht konstant und muß für mehrere Stunden nicht kontrolliert werden. Im nächsten Schritt wird die Oktopolfalle auf das Speichern von Clustern optimiert und die folgenden Elemente auf die Transmission der gespeicherten Ionen. Dies wird überprüft, indem die Austrittslinse der Oktopolfalle nach einer Füllzeit von 100 ms bis 400 ms für 10 ms geöffnet wird und der Schwall der gespeicherten Ionen mit dem Faraday-

Detektor und einem Strom-Spannungs-Wandler mit einer Verstärkung zwischen $10^6 \Omega$ und $10^8 \Omega$ auf einem Oszilloskop detektiert wird (siehe Abb. 4.6).

Als nächstes erfolgt die Justage des Lasersystems. Es wurde bereits eingeschaltet, um im Laserlabor eine stabile Temperatur zu erreichen. Jetzt werden die Leistung und die Pulslänge optimiert, die Wellenlängen und Pulsbreiten gemessen und Pump- und Probestrahl kollinear justiert. Gleichzeitig wird der ungefähre zeitliche Nullpunkt bestimmt, indem visuell Interferenzen zwischen dem Pump- und dem Probepuls gesucht werden, während die Verzögerungsstrecke bewegt wird. Die Lage des zeitlichen Nullpunkts verschiebt sich von Tag zu Tag um wenige Pikosekunden. Das Intensitätsverhältnis zwischen Pump- und Probepuls kann durch die Wahl verschiedener Strahlteiler beeinflusst werden. In den vorgestellten Experimenten betrug das Verhältnis entweder 1:2 oder 1:3, wenn nicht speziell ein Puls durch Graugläser abgeschwächt wurde. Die Pulsenergie lag zwischen $5 \mu\text{J}$ und $80 \mu\text{J}$. Der Strahldurchmesser betrug 4 mm vor der Fokussierung durch eine Linse mit einer Brennweite von 1 m . Der Fokus der Linse lag in der Mitte der Oktopolfalle.

Der Laserstrahl wird dann mit Hilfe von Farbstoffküvetten, die sich in der Vakuumkammer auf die Achse des Clusterstrahls schieben lassen, auf die Clusterstrahlachse justiert. Die Feinjustage erfolgt, indem die Abnahme des Anionensignals aufgrund des Photodetachments maximiert wird. Für eine maximale Sensitivität der Methode kann der Anionenfüllstrom reduziert werden. Die Justage des Laserstrahls anhand der erzeugten Kationen muß mit Vorsicht erfolgen, da bei falscher Justage Photoelektronen von beleuchteten Metalloberflächen zu einem scheinbar großen Signal führen können. Bewährt hat es sich jedoch, den Überlapp zwischen beiden Strahlen anhand des Kationensignals abschließend zu optimieren.

Die Oktopolfalle wird dann permanent geschlossen, indem die Austrittslinse auf ein hohes, negatives Potential (-70 V) gelegt wird. Dieses Potential extrahiert gleichzeitig die neugebildeten Kationen. Bei einer Verzögerungszeit von einigen Pikosekunden wird jetzt mit Hilfe des Elektronenvervielfachers mit Konversionsdynode nach einem positiven Ionensignal gesucht. Die Potentiale der Eintrittslinse und des Gleichspannungsoffsets des letzten Quadrupols sind dabei sehr kritische Größen. Bei einer Spannung von 1.3 kV am

Elektronenvervielfacher (Channeltron), die einer Verstärkung von 10^4 entspricht, mißt das Pikoamperemeter einen Strom von etwa 20 pA, d.h. pro Laserschuß werden etwa 10 Kationen erzeugt. Es werden jedoch 10^5 Anionen pro Pulspar durch Photodetachment zerstört.

Nach einer Zeit zur Inbetriebnahme von etwa 6 Stunden kann jetzt das erste NeNePo-Spektrum gemessen werden.

Ein von S. Rutz entwickeltes LabView-Meßprogramm steuert die Verzögerungsstrecke und liest die vom Pikoamperemeter gemessenen Werte ein. Pro Meßpunkt wird eine Zeit von einer Sekunde zum Anfahren einer neuen Verzögerungszeit und zum anschließenden Aufnehmen eines Strommeßwerts benötigt. Ein Meßpunkt entspricht einer Mittelung über etwa 100 Laserschüsse. Die Aufnahme eines typischen Spektrums von -3 ps bis +3 ps mit einer Schrittweite von 10 fs dauert daher 10 Minuten. Das Experiment läuft dann über einige Stunden stabil, bis die ungenügende Klimatisierung des Laserlabors zu Temperaturänderungen führt, die eine komplette Neujustage des Lasers erfordert.