

Femtosekunden-Laserspektroskopie an Fullerenen

Inaugural-Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades

der Freien Universität Berlin

Fachbereich Physik

vorgelegt von

Kay Hoffmann

aus Berlin

Berlin 2000

II

Gutachter dieser Arbeit waren:

1. Gutachter: Prof. Dr. I. V. Hertel
2. Gutachter: Prof. Dr. L. Wöste

Tag der Prüfung: 19.12.2000

Die Arbeit wurde durchgeführt am
Max-Born-Institut für Nichtlineare Optik und Kurzzeitspektroskopie (MBI)

Abstract

The subject of this thesis is the study of the ionization and fragmentation behavior of C_{60} in short laser pulses. The interaction is analyzed here for first time monitoring the resultant photoions and photoelectrons with systematic variation of wavelength, intensity and pulse duration. Furthermore, it was possible to vary the pulse polarization and pulse separation in a pump probe configuration.

Based on the performed experiments, three different ionization mechanisms, depending on the pulse duration were identified.

For pulse durations in the sub-50 fs domain, the ionization mechanism is direct multi-photon ionization shown by clear observation of an ATI structure in the photoelectron spectra.

As the pulse duration is increased beyond 50 fs, the dominant mechanism is statistical ionization due to energy equilibration among the electronic degrees of freedom. Statistical electron emission causes the loss of the ATI structure in the electron spectra. This is the case for pulse durations up to 500 fs.

For pulse durations on the order of one ps, there is time for statistical energy redistribution also among vibrational degrees of freedom. Detailed measurements in this time domain show that the coupling from electronic to vibrational degrees of freedom occurs around 700 fs. This third process is characterized by an onset of delayed ionization on the μs time scale in the ion spectra..

IV

Veröffentlichungen in referierten Journalen

Ein Teil der Ergebnisse dieser Arbeit liegt veröffentlicht vor:

Ionization and Fragmentation of C₆₀ with sub-50fs Laser Pulses

M. Tchapyguine, K. Hoffmann, O. Dühr, H. Hohmann, G. Korn, H. Rottke, M. Wittmann, I. V. Hertel, and E. E. B. Campbell

J. Chem. Phys. **112**, 2781 (2000)

From Above Threshold Ionization to Statistical Electron Emission: The Laser Pulse Duration Dependence of C₆₀ Photoelectron Spectra

E. E. B. Campbell, K. Hansen, K. Hoffmann, G. Korn, M. Tchapyguine, M. Wittmann, and I. V. Hertel

Phys. Rev. Lett. **84**, 2128 (2000)

Sequential Ionization of C₆₀ with Femtosecond Laser Pulses

E. E. B. Campbell, K. Hoffmann, H. Rottke, and I. V. Hertel

J. Chem. Phys. Comm., **114**, 1716 (2001)

The Transition from Direct to Delayed Ionization of C₆₀

E. E. B. Campbell, K. Hoffmann, and I. V. Hertel

Eur. Phys. J. D, angenommen

Excitation of Rydberg States in C₆₀ Fullerenes

E. E. B. Campbell, K. Hoffmann, and I. V. Hertel

Phys. Rev. Lett., eingereicht

Weitere Veröffentlichungen:

Momentum Distributions of Neⁿ⁺ Ions Created by an Intense Ultrashort Laser Pulse

R. Moshhammer, B. Feuerstein, W. Schmitt, A. Dorn, C. D. Schröter, J. Ullrich, H. Rottke, C. Trump, M. Wittmann, G. Korn, K. Hoffmann, and W. Sandner

Phys. Rev. Lett **84**, 447 (2000)

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Grundlagen	5
2.1	Kohlenstoffcluster	5
2.1.1	Die kleinen Kohlenstoffcluster; $C_n : n < 30$	6
2.1.2	Fullerene; $C_n : n > 30$	6
2.2	Direkte und statistische Ionisationsmechanismen	11
2.2.1	Bewegung eines freien Elektrons im Laserfeld	11
2.2.2	Direkte Ionisationsmechanismen	12
2.2.3	Statistisches Ionisationsmodell	27
2.3	Fragmentation	31
2.3.1	Clusterzerfälle und statistische Theorien	31
2.3.2	Fragmentation und Fragmentationsmechanismen von Fullerenen	33
3	Das Experiment	39
3.1	Molekularstrahlerzeugung	40
3.2	Die Laserquellen	41
3.3	Charakterisierung des Reflektron-TOF	44
3.4	Das Elektronenspektrometer	46
3.5	Meßverfahren und Meßelektronik	48
3.5.1	Photoionenspektren	50
3.5.2	Photoelektronenspektren	52
3.6	Intensitätsbestimmung	54

4	Meßergebnisse	59
4.1	C ₆₀ im sub-50-fs-Laserfeld	59
4.1.1	Photoionenspektren	61
4.1.2	Photoelektronenspektren	75
4.2	Die Laserpulslängenabhängigkeit	89
4.3	Resonanzstrukturen in den Elektronenspektren	102
4.4	Verzögerte Fragmentation	114
4.5	Pump-Probe-Messungen	126
5	Zusammenfassung und Ausblick	131
6	Anhang	135
6.1	Theorie des Reflektronflugzeitmassen- spektrometers	135
6.1.1	Die Wiley-McLaren-Anordnung	136
6.1.2	Der Ionenreflektor	139
6.2	Stoßinduzierte Fragmentation	141
6.3	Autokorrelationsfunktionen n-ter Ordnung	142
6.4	Vergleich der Lasersysteme	144

Danksagung

Zum Schluß will ich allen, die zur Entstehung dieser Doktorarbeit beigetragen haben, für ihre Unterstützung danken. Mein besondere Dank gilt:

Prof. I.V. Hertel für die Möglichkeit, die Arbeit am Max-Born-Institut durchzuführen.

Prof. E.E.B Campbell für die Bereitstellung des Themas und die wissenschaftliche Betreuung der Arbeit.

Prof. L. Wöste für die Übernahme des Zweitgutachtens und sein Interesse an der Arbeit.

Dr. H. Rottke für die Übernahme der Betreuung in Fragen zur Wechselwirkung von Molekülen in intensiven Laserfeldern.

Dr. G. Korn für die Betreuung seitens der Erzeugung von kurzen fs-Laserpulslen.

Dr. H. Ritze für die Diskussion der Elektronenspektren.

M. Dammasch für die Unterstützung bei den Simulationen der Ionenausbeuten.

Allen Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern des Bereichs A für die kollegiale Arbeitsatmosphäre und Mithilfe, hier im besonderen Roman Peslin für seine Hilfsbereitschaft und die guten Ideen zur Lösung technischer Probleme, Michael Wittmann für die Unterstützung am sub-50fs-Lasersystem und Harald Hohmann und Maxim Tchapyguine für die gute Zusammenarbeit am Experiment.