

Überblick

Die Absorption von intensiven, ultrakurzen Laserimpulsen durch Moleküle führt zur Anregung und Emission von einem oder mehreren Elektronen und kann darüber hinaus zur Fragmentation der Moleküle führen. Die absorbierte Energiemenge hängt von vielen Faktoren, wie z.B. den Laserparametern und den elektronischen Eigenschaften der Moleküle, ab. In dieser Arbeit wird die Wechselwirkung des Fullerenes C_{60} mit Femtosekunden(fs)-Laserimpulsen mittlerer Intensität (10^{11} - 10^{13} W/cm²) studiert mit dem Ziel, die Absorption und die Umverteilung von Energie in komplexen Systemen zu verstehen.

Die Photoelektronenspektren des C_{60} Fullerenes zeigen interessante Strukturen, die im wesentlichen auf drei Rydberg Serien mit den Drehimpulsen $\ell = 3, 5$ und 7 (f, h bzw. j Orbitale) zurückzuführen sind. Die Anregungsdynamik der Rydberg Linien wurde mit hoher Zeitauflösung durch Kombination der Photoelektronenspektroskopie mit der Femtosekunden Pump-Probe Technik untersucht. Die Anregung der Rydberg Serien kann nur im Bild einer Anregung von vielen aktiven Elektronen (Multiple active electrons - MAE) verstanden werden. Die starken elektrischen Felder der Laserimpulse regen mehrere Elektronen in einen Zwischenzustand an, der durch nicht-adiabatische Übergänge energetisch verbreitert wird. Von diesem "doorway" Zustand wird dann ein Elektron in einen Rydberg Zustand angeregt. Die gemessene zeitliche Dynamik zeigt, dass der angeregte Zwischenzustand eine Lebensdauer größer als 1 ns hat.

Nanosekunden-Laseranregung von C_{60} führt zu einem charakteristischen Fragmentationsmuster, das durch statistische Modelle erklärt wurde. Die Natur der Fragmentation mit Femtosekunden-Laseranregung ist nicht offensichtlich, weil die Absorption auf einer Zeitskala erfolgt, die viel kürzer als die interne Energieumverteilung ist. Zeitaufgelöste Photoionen-Flugzeitspektroskopie in Verbindung mit der Messung der räumlichen Verteilungen der Fragmente ermöglichte die Untersuchung der Fragmentation von C_{60} nach Femtosekunden Laseranregung. Drei Prozesse erklären die Fragmentation des C_{60} Moleküls unter diesen Bedingungen: sequenzielle C_2 Abspaltung, asymmetrische Spaltung und Mehrfach-Fragmentation. Das Gewicht der einzelnen Prozesse hängt vom Ladungszustand und der internen Energie ab. Die Fragmentationsdynamik auf der Femtosekunden- und Picosekunden-Zeitskala und die räumliche Verteilung zeigen, dass die Mehrzahl der Fragmentationsprozesse, die nach Anregung mit fs-Laserimpulsen auftreten, durch statistische Modelle erklärt werden können. Es gibt aber auch Hinweise auf nicht-statistische Fragmentationsprozesse.

In weiteren Experimenten wurde der zeitliche Verlauf des Laserimpulses geändert, um bestimmte Prozesse zu verstärken oder zu optimieren. In einem geschlossenen evolutionären Algorithmus konnte eine optimale Impulsform für die Erhöhung der Fragmentationsrate von C_{60} gefunden werden. Die resultierende Impulsform zeigt, dass zunächst ein Ion gebildet wird, das anschließend durch Absorption weiterer Photonen fragmentiert.