

---

# Konstruktion und Charakterisierung einer lasersynchronisierten Pikosekunden- Ionenquelle zur Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse im keV-Bereich

---

DISSERTATION

zur Erlangung des akademischen Grades

**Doctor rerum naturalium**

(Dr. rer. nat.)

vorgelegt von

**Alexander Golombek**

geboren in Moers

---

- |                 |                                |
|-----------------|--------------------------------|
| 1. Gutachter:   | Prof. Dr. Andreas Wucher       |
| 2. Gutachter:   | Ass.-Prof. Dr. Richard Wilhelm |
| 3. Gutachterin: | Prof. Dr. Marika Schleberger   |

Datum der Abgabe: 03.09.2021

Datum der Disputation: 13.12.2021



## Abstract

Ion beams represent a powerful tool within the field of solid-state physics and industrial applications alike, as they facilitate the analysis and manipulation of matter on the atomic scale. However, the dynamics triggered by an ion impact impinging onto a solid surface are accessible by means of computer simulations exclusively due to the lack of sufficiently short ion pulses, particularly for ions with kinetic energies in the keV range. A laser-synchronized ion source providing ion pulses on the temporal order of picoseconds is required for the experimental analysis of these ultrafast dynamics in real time within the frame of time-resolved pump-probe measurements. Therefore, this thesis delves into the construction and characterization of a laser-synchronized picosecond ion source for the generation of ultra-short ion pulses in the keV regime. For this purpose, an experimental setup is designed for the allocation of neutral rare gas atoms entrained in a pulsed supersonic jet expansion within ultra-high vacuum conditions, collimated by skimmers further downstream its expansion axis. Consequently, the characterization of these gas pulses regarding their spatial extension, number density and temperature via time-of-flight mass spectrometry is incorporated within this thesis. The gas expansion is then intersected perpendicularly by an ultrashort intense laser pulse to produce highly localized cold ions of variable charge state via strong-field tunnel ionization. An arrangement of three electrodes forming an ion buncher allows an extraction of these ions perpendicular to the expansion and laser beam axis respectively. An appropriate choice of the electrostatic potentials at each electrode separately defines the kinetic energy and ensures first-order flight-time focussing conditions for the ions passing the second electrode through a small hole and hitting the third target electrode, mimicked by an ultrafast MCP detector. The top two electrodes are designed for an *in situ*-alignment against the gas and laser beam axis via linear piezo stages, rendering the extension of the whole ion buncher along its extraction axis to a few millimeters possible. This strong miniaturization reduces the total ion flight time to the order of tens of nanoseconds and minimizes their flight time dispersion due to their spatial and velocity distribution at the moment of ionization, respectively. A characterization of the ion buncher with inserted Argon gas at room temperature unfolds the exact spatial location of the individual electrodes as well as the particular laser position along the extraction axis where flight time focussing occurs. The detected flight time distributions of  $\text{Ar}^+$  ions generated in the immediate vicinity of the flight time focus reveal a temporal resolution of 180 ps, essentially limited by the initial thermal velocity spread of the neutral particles. This demonstrates the necessity for a cooling of the neutral gas atoms, consequentially the ion buncher and laser focus are aligned to the gas expansion axis. The supersonic jet expansion is then operated with Neon due to immense clustering and subsequent fragmentation for Argon, yielding a minimal pulse width for  $\text{Ne}^+$  ions of 130 ps due to the resolution of the measurement methodology. The actual temporal resolution of the ion flight time distribution is extrapolated by reduction of the extraction field, rendering a presumed pulse width of 18 ps and therefore the experimental realization for the generation of ultrashort ion pulses appears successful.





## Kurzfassung

Ionenstrahlen stellen sowohl innerhalb der Festkörperphysik als auch im Bereich industrieller Anwendungen ein leistungsfähiges Werkzeug dar, da sie eine Analyse und Manipulation von Materie auf atomarer Skala ermöglichen. Dennoch ist die Dynamik, welche ein Ioneneinschlag auf einer Festkörperoberfläche auslöst, ausschließlich mithilfe von Computersimulationen zugänglich, da es an hinreichend kurzen Ionenpulsen mangelt, insbesondere für Ionen mit kinetischen Energien im keV-Regime. Es bedarf einer lasersynchronisierten Ionenquelle, welche Ionenpulse einer zeitlichen Dauer in der Größenordnung von Pikosekunden liefert, um diese ultraschnelle Dynamik im Rahmen zeitaufgelöster Anrege-Abfrage-Messungen in Echtzeit experimentell analysieren zu können. Daher behandelt diese Arbeit die Konstruktion und Charakterisierung einer lasersynchronisierten Pikosekunden-Ionenquelle zur Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse im keV-Bereich. Dazu wird ein experimenteller Aufbau für den Betrieb einer gepulsten Überschall-Düsenstrahlexpansion mit neutralen Edelgas-Atomen unter Ultrahochvakuum-Bedingungen konzipiert, welche stromabwärts entlang der Expansionsachse durch Skimmer kollimiert wird. Eine Charakterisierung dieser Gaspulse hinsichtlich ihrer räumlichen Ausdehnung, Teilchendichte und Temperatur mittels Flugzeit-Massenspektrometrie ist in diese Arbeit eingebunden. Die Gasexpansion wird daraufhin senkrecht von einem ultrakurzen intensiven Laserpuls gekreuzt, um stark lokalisierte kalte Ionen unterschiedlicher Ladungszustände mithilfe von Tunnelionisation bei hohen Feldstärken zu erzeugen. Eine als Ionenbuncher fungierende Anordnung dreier Elektroden erlaubt eine Extraktion der Ionen senkrecht zur Expansions- und Laserstrahlachse. Eine geeignete Wahl elektrostatischer Potentiale an den einzelnen Elektroden legt dabei die kinetische Energie fest und gewährleistet eine Flugzeitfokussierung erster Ordnung für die Ionen, welche die zweite Elektrode durch ein kleines Loch passieren und auf die dritte Target-Elektrode treffen, repräsentiert durch einen ultraschnellen MCP-Detektor. Die oberen beiden Elektroden sind für eine *in situ*-Ausrichtung gegenüber der Gas- bzw. Laserstrahlachse mithilfe linearer Piezo-Schrittmotoren konzipiert, was eine Ausdehnung des Ionenbunchers entlang seiner Extraktionsachse von wenigen Millimetern ermöglicht. Diese extreme Miniaturisierung reduziert die absolute Flugzeit der Ionen auf die Größenordnung einiger zehn Nanosekunden und minimiert die durch ihre Startort- und Startgeschwindigkeitsverteilung bedingte Flugzeitdispersion zum Zeitpunkt der Ionisation. Eine Charakterisierung des Ionenbunchers an eingelassenem Argon-Gas bei Raumtemperatur offenbart sowohl die exakte räumliche Lage der einzelnen Elektroden als auch diejenige Laserposition entlang der Extraktionsachse, bei der Flugzeitfokussierung erfolgt. Die gemessenen Flugzeitverteilungen von in unmittelbarer Umgebung des Flugzeitfokus erzeugten  $\text{Ar}^+$ -Ionen weisen eine Zeitauflösung von 180 ps auf, welche im Wesentlichen aus der ursprünglichen, thermisch bedingten Verbreiterung der Geschwindigkeitsverteilung der Neutralteilchen resultiert. Dies zeigt die Notwendigkeit der Kühlung der neutralen Gasatome auf, infolgedessen der Ionenbuncher mitsamt des Laserfokus an der Expansionsachse ausgerichtet wird. Aufgrund immenser Clusterbildung und anschließender Fragmentierung mit Argon wird der Überschall-Gasexpansion mit Neon betrieben, woraus eine minimale Pulsbreite für  $\text{Ne}^+$  von 130 ps aufgrund der Messmethodik resultiert. Die tatsächliche Zeitauflösung der Flugzeitverteilung der Ionen wird unter Reduktion des Extraktionsfeldes extrapoliert, weshalb mutmaßlich eine Pulsbreite von 18 ps erzeugt und damit die experimentelle Umsetzung zur Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse als erfolgreich angesehen werden kann.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>3</b>
<b>2</b>	<b>Theoretische Grundlagen</b>	<b>7</b>
2.1	Theoretische Beschreibung einer Überschall-Düsenstrahllexpansion . . . . .	7
2.1.1	Kontinuumstheorie für Überschall-Gasstrahlen . . . . .	8
2.1.2	Das Sudden-Freeze-Modell . . . . .	10
2.1.3	Einfluss von Düsenform und Skimmern im Strahlengang . . . . .	13
2.1.3.1	Einfluss der Form der Düse . . . . .	13
2.1.3.2	Einfluss von Skimmern im Strahlengang . . . . .	16
2.2	Ionisation neutraler Teilchen durch einen Laser . . . . .	17
2.2.1	Ionisationsprozesse . . . . .	18
2.2.2	Ionisierungswahrscheinlichkeit . . . . .	21
2.2.3	Laserstrahlprofil . . . . .	23
2.3	Flugzeitfokussierung . . . . .	26
2.3.1	Allgemeine Überlegungen und Flugzeitfokussierung 1. Ordnung . . . . .	26
2.3.2	Flugzeitfokus für das lineare Flugzeit-Massenspektrometer . . . . .	29
2.3.3	Flugzeitfokus für die Buncher-Geometrie . . . . .	29
<b>3</b>	<b>Experimenteller Aufbau</b>	<b>31</b>
3.1	Das Konzept der Düsenstrahlkammer . . . . .	31
3.2	Die Vakuumkammer für die Überschall-Expansion . . . . .	33
3.2.1	Das Piezo-Ventil und die Düse . . . . .	35
3.2.2	Die Skimmer . . . . .	35
3.3	Experimenteller Aufbau zur Vermessung des Überschall-Gasstrahls . . . . .	36
3.3.1	Der Excimer-Laser . . . . .	37
3.3.2	Das Flugzeit-Massenspektrometer . . . . .	37
3.3.3	Der MCP-Detektor . . . . .	38
3.3.4	Zeitliche Abfolge des Experimentes und Timingschema . . . . .	39
3.4	Experimenteller Aufbau mit der Ionisationskammer . . . . .	42
3.4.1	Die Ionisationskammer . . . . .	43
3.4.2	Der Titan:Saphir-Laser . . . . .	44
3.4.2.1	Der Time-to-Digital-Converter . . . . .	46
3.4.2.2	Der Constant-Fraction-Diskriminator . . . . .	47
3.4.3	Der Ionenbuncher . . . . .	48
3.4.4	Der ultraschnelle MCP-Detektor . . . . .	51
<b>4</b>	<b>Charakterisierung des Überschall-Düsenstrahls</b>	<b>55</b>
4.1	Ausrichten der Düse an den Skimmern . . . . .	55
4.1.1	Druckverlauf unter Strahlbetrieb in den einzelnen Kammern . . . . .	57

4.2 Funktionsweise des Flugzeit-Massenspektrometers und Massenspektren . . .	60
4.2.1 Photoelektronen als mögliche Ursache für Ionenerzeugung . . . . .	62
4.3 Bestimmung des Strahlprofils . . . . .	64
4.3.1 Scan entlang der Strahlrichtung . . . . .	64
4.3.2 Scan senkrecht zur Strahlrichtung . . . . .	67
4.4 Zentrale Gasstrahldichte . . . . .	70
4.4.1 SIMION-Modellierung des Flugzeit-Massenspektrometers . . . . .	71
4.4.2 Bestimmung der zentralen Gasstrahldichte . . . . .	72
<b>5 Funktionsweise des Ionenbunchers</b>	<b>77</b>
5.1 Messung des Laserstrahlprofils im Nahfeld . . . . .	77
5.1.1 Kalibrierung der Laserstrahlintensität über den Polarisationsfilter . . .	79
5.2 Einzelionensignal und erstes Flugzeitspektrum . . . . .	81
5.3 Räumlicher Parameterraum des Ionenbunchers . . . . .	84
5.3.1 Laser-Scan entlang der x-Achse . . . . .	84
5.3.2 Laser-Scan entlang der y-Achse . . . . .	85
5.3.3 Laser-Scan entlang der z-Achse . . . . .	86
5.4 Flugzeitminimum und kürzester Ionenpuls bei Raumtemperatur . . . . .	87
5.4.1 Energieverteilung der nachgewiesenen Ionenpulse . . . . .	91
5.4.2 Limitierung der Zeitauflösung der Ionenpulse . . . . .	92
5.5 Mögliche Ladungszustände . . . . .	93
5.6 Anzahl der Ionen pro Puls . . . . .	97
<b>6 Ausrichten von Ionenbuncher und Laser am Gasstrahl</b>	<b>99</b>
6.1 Ausrichten des Strahlengangs der Überschall-Gasexpansion . . . . .	99
6.1.1 Ausrichten des Beam Dumps . . . . .	100
6.1.2 Ausrichten des Ionenbunchers . . . . .	102
6.2 Ionensignal aus dem Ionenbuncher mit dem Gasstrahl . . . . .	103
<b>7 Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse mit Neon</b>	<b>109</b>
7.1 Parameterraum der Düse für Neon . . . . .	109
7.1.1 Flugzeitspektrum für Neon . . . . .	110
7.1.2 Kalibrierung der Laserintensität für Neon . . . . .	111
7.1.3 Variation von Betriebsdruck und Öffnungszeit der Düse . . . . .	112
7.2 Parameterraum des Lasers für Neon . . . . .	115
7.2.1 Laser-Scan entlang der x-Achse . . . . .	115
7.2.2 Laser-Scan entlang der y-Achse . . . . .	116
7.2.3 Laser-Scan entlang der z-Achse und Zentralstrahldichte . . . . .	117
7.3 Kalibrierung der Winkel aller drei Elektroden . . . . .	119
7.4 Flugzeitminimum und kürzester Ionenpuls aus dem Neon-Gasstrahl . . .	123
7.5 Einfluss von Extraktionsfeld und Temperatur auf die Ionenpulsbreite . . .	125
<b>8 Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>129</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>133</b>
<b>Anhang</b>	<b>141</b>

# 1 Einleitung

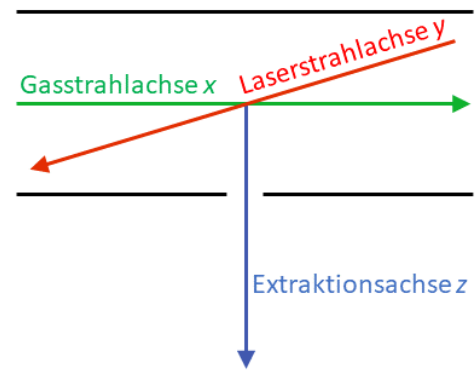
Ionen ermöglichen vielfältige Anwendungen – sowohl im wissenschaftlichen als auch im industriellen Sektor – aufgrund ihrer Wechselwirkung mit Materie auf atomarer Skala [1]. So werden Ionenstrahlen industriell zur Modifikation der Struktur eines Festkörpers verwendet, beispielsweise zur Dotierung von Halbleitern durch Ionenimplantation [2, 3] oder bei der Lithographie von Nanostrukturen mit einem fokussierten Ionenstrahl [4, 5]. Auf wissenschaftlicher Seite erlauben sie beispielsweise die Erzeugung nanoskaliger Defekte in zweidimensionalen Proben wie  $\text{MoS}_2$  [6, 7] oder Stickstoff-Fehlstellen in Diamant [8], welche daraufhin als Qubits verwendet werden können [9]. Ferner können unter Ionenbestrahlung sowohl schwere Teilchen wie neutrale Atome [10] und Ionen [11] als auch Elektronen [12] oder Photonen [13] zunächst angeregt und aus dem Festkörper emittiert werden. Dabei wird – abhängig von der (kinetischen) Energie des Projektilions und unter Vernachlässigung seines Ladungszustandes – zwischen zwei unterschiedlichen Anregungsmechanismen unterschieden. Im Bereich geringer Energien von wenigen Kilo-Elektronenvolt (keV-Regime) wechselwirkt das Ion elastisch mit den Festkörperatomen und gibt seine Energie primär an diese ab, bis es im Festkörper zum Stillstand kommt. Diese Wechselwirkung wird als *Nuclear Stopping* bezeichnet und lässt sich als coulomb-artige Stöße zwischen Projektilion und Rumpffionen verstehen [14]. Im Bereich hoher Energien (MeV-Regime) nimmt die Stoßrate hingegen rapide ab und das Projektil wechselwirkt vorwiegend mit dem elektronischen System des Festkörpers, weshalb dieser Prozess als *Electronic Stopping* bezeichnet wird [15]. Aufgrunddessen ist die Eindringtiefe des Projektils wesentlich größer [16] und es regt entlang seiner Spur Festkörperelektronen an [17], welche ihrerseits ihre Anregungsenergie diffusiv mittels Elektron-Phonon-Kopplung an das atomare System übergeben können [18]. In beiden Fällen verursacht ein Ioneneinschlag ein stark lokalisiertes Nichtgleichgewicht an der Festkörperoberfläche, was zu der Emission von Sekundärteilchen führen kann. Deren Detektion und Charakterisierung erlaubt daher eine Analyse der chemischen Zusammensetzung der Oberfläche mit einer räumlichen Auflösung im Bereich weniger Nanometer [19]. Etablierte experimentelle Verfahren in der Analytik der schweren Sekundärteilchen sind die Sekundärionen-Massenspektrometrie (SIMS) [20, 21] sowie dessen Erweiterung auf die Sekundärneutralteilchen-Massenspektrometrie (SNMS) [22] durch Nachionisation zerstäubter Neutralteilchen mit einem Laser [23]. Zudem lässt sich die Verteilung emittierter Elektronen nach einem Ioneneinschlag mithilfe von Messungen der Elektronenemissionsstatistik untersuchen [24, 25]. Anhand der präsentierten Messmethoden, welche auf der Detektion emittierter Teilchen beruhen, können jedoch nur die sich asymptotisch einstellenden Zustände – lange nach der tatsächlichen ioneninduzierten Anregung – beobachtet werden. Eine solche zeitintegrierte Messung kann zwar mit Observablen einer Computersimulation verglichen werden, lässt aber nur indirekt Rückschlüsse auf die Dynamik innerhalb eines Festkörpers nach einem Ioneneinschlag zu. Simulationen mithilfe von zeitabhängiger Dichtefunktionaltheorie (TD-DFT [26]) legen beispielsweise nahe, dass die Dynamik angeregter Elektronen auf extrem kurzen Zeitskalen von  $10^{-15}$  s stattfindet [27] und im Bereich von  $10^{-14}$  –  $10^{-11}$  s an

das atomare System koppelt [28]. Molekulardynamik-(MD)-Simulationen deuten zwar im keV-Regime auf eine ioneninduzierte Dynamik in der Größenordnung von  $10^{-12}$  s hin [29, 30], aber auch diese Zeitskalen sind bisher experimentell nicht zu erreichen. Um eine solch schnelle Dynamik in Echtzeit beobachten zu können, bedarf es der Standard-Technik eines Anrege-Abfrage-Experimentes (*Pump-Probe Experiment* [31]). Dabei wird ein System zunächst durch einen kurzen, externen Stimulus (Puls) in einen Nichtgleichgewichtszustand angeregt und der Zustand des Systems daraufhin nach einer bestimmten Zeit mit einem zweiten kurzen Puls abgefragt. Unter Variation der Verzögerungszeit zwischen Anrege- und Abfrage-Puls lässt sich daraufhin die Relaxationsdynamik des Systems beobachten. Dabei lässt sich diese Dynamik nur auf derjenigen Zeitskala auflösen, die sowohl der Anrege- als auch der Abfrage-Puls selbst mindestens aufweisen. Aus diesem Grund werden Anrege-Abfrage-Experimente mit Kurzpuls-Lasern durchgeführt, deren Pulsbreite typischerweise in der Größenordnung einiger Femtosekunden liegt. Auf diese Weise lassen sich beispielsweise die laserinduzierte Elektronen- bzw. Gitteranregung mithilfe von Elektronen- [32, 33] bzw. Röntgenbeugung [34, 35] untersuchen. Aufgrund der Entdeckung immer schnellerer laserinduzierter Phänomene bedarf es stetig kürzerer Laserpulse, sodass bereits Pulsbreiten unterhalb von 100 as erzeugt werden können [36, 37]. Im eklatanten Kontrast dazu weisen Ionenquellen im keV-Bereich zeitliche Pulsbreiten in der Größenordnung von etwa 1 ns auf [38, 39]. Zwar lassen sich im MeV-Bereich prinzipiell kürzere Pulse erzeugen [40, 41], die daraus resultierende Anregung des elektronischen Systems ist jedoch nur bedingt mit der stoßbestimmten Anregung bei niedrigen Projektilenergien vergleichbar. Daher bedarf es einer Pikosekunden-Ionenquelle im keV-Bereich, um bezüglich des fundamentalen Verständnisses der Relaxationsdynamik unter Ionen-Festkörper-Wechselwirkung einen signifikanten Fortschritt machen zu können [42].

Im Rahmen des Teilprojektes C05 des Sonderforschungsbereichs 1242 „Nichtgleichgewichtsdynamik in der Zeitdomäne“ wird daher eine solche Kurzpuls-Ionenquelle konzipiert, konstruiert und charakterisiert, welche anschließend in ein Anrege-Abfrage-Schema eingebettet wird. Das Konzept sieht vor, eine Überschall-Gasexpansion [43, 44] als Neutralteilchenquelle mit einem kurzen [45], scharf fokussierten und infolgedessen intensiven Laserpuls [46] zwischen zwei planparallel ausgerichteten Elektroden zu kreuzen. Die daraus resultierenden Photoionen [47] werden mittels geeigneter elektrischer Felder auf eine dritte Elektrode (das *Target*) beschleunigt und dabei in ihrer Flugzeit fokussiert. Die Verwendung eines Kurzpuls-Lasers zur Ionisation neutraler Teilchen als Primärionen ermöglicht es inhärent, die Ionenquelle mit dem Laser als Abfrage-Puls zu synchronisieren. Um die dafür notwendige optische Verzögerung gering zu halten, wird die im Rahmen dieser Arbeit als *Ionenbuncher* bezeichnete Anordnung der drei Elektroden stark miniaturisiert. Auf diese Weise wird sowohl die absolute Flugzeit der Ionen in der Größenordnung einiger 10 ns als auch eine mögliche resultierende Aufweitung der Pulsbreite minimiert. Deren größter Beitrag wird jedoch durch die Geschwindigkeitsverteilung der Neutralteilchen zum Zeitpunkt der Photoionisation bestimmt, weshalb eine drastische Verminderung ihrer Temperatur notwendig ist. Dies lässt sich beispielsweise durch magneto-optische Fallen erreichen [48], im Rahmen dieser Arbeit wird die Reduktion der (relevanten) Temperatur der Neutralteilchen in den Sub-Kelvin-Bereich [49] hingegen durch die Düsenstrahl-Expansion realisiert. Diese bildet dabei ferner ein Reservoir an Neutralteilchen geeigneter Dichte, um die Anzahl erzeugter Photoionen variieren zu können. Detaillierte Simulationen der Ionentrajektorien in einem solchen Ionenbuncher [50] legen nahe, dass auf diese Weise Ionenpulse mit einer Zeitauflösung

von 1 ps generiert werden können. Daher werden innerhalb dieser Arbeit zuerst die elementaren Komponenten Gasstrahl, Laser und Ionenbuncher separat voneinander charakterisiert, um in Kombination möglichst kurze Ionenpulse im keV-Bereich erzeugen und experimentell nachweisen zu können. Unter Ausnutzung der Synchronisation mit dem Kurzpuls-Laser wird erstmalig ein experimenteller Zugang zur Dynamik an Festkörperoberflächen unter Ionenbeschuss mit Ionenenergien im keV-Bereich eröffnet. Der strukturelle Aufbau dieser Arbeit umfasst zunächst die theoretischen Grundlagen in Kapitel 2 hinsichtlich des Überschall-Gasstrahls, der Photoionisation neutraler Teilchen durch einen Laser sowie der Flugzeitfokussierung geladener Teilchen in äußeren Feldern. In Kapitel 3 wird der experimentelle Aufbau einer im Rahmen dieser Arbeit konstruierten Ultrahochvakuumkammer im Allgemeinen sowie zur Charakterisierung des Gasstrahls und des Ionenbunchers im Speziellen beschrieben, wobei insbesondere einzelne Komponenten detailliert beleuchtet werden. Kapitel 4 befasst sich vollständig mit der experimentellen Charakterisierung des Überschall-Düsenstrahls unter dem Betrieb mit Argon als Neutralteilchenquelle mit einem VUV-Laser. In Kapitel 5 wird daraufhin die Funktionsweise des Ionenbunchers anhand von Argon-Gas bei Raumtemperatur untersucht, dies umfasst insbesondere die Charakterisierung des verwendeten Kurzpuls-Lasers zur Photoionisation. Im anschließenden Kapitel 6 zeigt die Kombination der beiden Komponenten Gasstrahl und Ionenbuncher, dass Argon aufgrund massiver Clusterbildung innerhalb der Gasexpansion zur Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse mit der hier implementierten Düsenstrahlmethode ungeeignet ist. Daraufhin wird der Gasstrahl in Kapitel 7 mit Neon betrieben und charakterisiert, der kürzeste auf diese Weise gemessene Ionenpuls präsentiert und das Ergebnis unter verschiedenen Gesichtspunkten diskutiert. Abschließend wird in Kapitel 8 die Arbeit zusammengefasst und ein Ausblick gegeben, wie die Kurzpuls-Ionenquelle weiter verbessert und verwendet werden kann. Überdies wird im Rahmen dieser Arbeit ein Koordinatensystem folgender Struktur verwendet:

- Die  $x$ -Achse stellt die Expansionsachse des Gasstrahls dar und wird grün koloriert.
- Die  $y$ -Achse stellt die Strahlachse des Lasers dar und wird rot koloriert.
- Die  $z$ -Achse stellt die Extraktionsachse der Ionen dar und wird blau koloriert.



**Abbildung 1.1:** Exemplarische Skizze des verwendeten Koordinatensystems im Ionenbuncher. Die einzelnen Achsen werden jeweils mit einer Farbe assoziiert.

Des Weiteren wird die Konfiguration des Ionenbunchers – insbesondere in den Kapiteln 5 und 7 – bezüglich der Abstände und angelegten Potentiale häufig variiert. Aus diesem Grund wird die entsprechende Konfiguration der Übersichtlichkeit halber in den entsprechenden Abschnitten schematisch skizziert. Eine solche Skizze ist unter Verwendung des definierten Koordinatensystems exemplarisch in Abbildung 1.1 dargestellt.





# 2 Theoretische Grundlagen

Dieses Kapitel umfasst die theoretische Beschreibung der drei wichtigen Komponenten Überschall-Düsenstrahlexpansion, Photoionisation neutraler Teilchen durch einen Laser sowie die Flugzeitfokussierung von Ionen durch äußere elektrische Felder. Dabei wird zur Beschreibung der Gasexpansion der Einfluss der Düsenform und der Skimmer berücksichtigt, hinsichtlich der Photoionisation der neutralen Gasatome werden verschiedene Ionisationsschemata beleuchtet, der Keldysh-Parameter eingeführt sowie die Intensitätsverteilung entlang der Laserstrahlprofile in axialer und radialer Richtung betrachtet. Abschließend wird die Flugzeitfokussierung erster Ordnung erläutert, welche einerseits zum Nachweis erzeugter Ionen herangezogen wird und andererseits eine effektive Methode zur Kompression erzeugter Ionenpulse bietet.

---

2.1	Theoretische Beschreibung einer Überschall-Düsenstrahlexpansion . . . . .	7
2.1.1	Kontinuumstheorie für Überschall-Gasstrahlen . . . . .	8
2.1.2	Das Sudden-Freeze-Modell . . . . .	10
2.1.3	Einfluss von Düsenform und Skimmern im Strahlengang . . . . .	13
2.2	Ionisation neutraler Teilchen durch einen Laser . . . . .	17
2.2.1	Ionisationsprozesse . . . . .	18
2.2.2	Ionisierungswahrscheinlichkeit . . . . .	21
2.2.3	Laserstrahlprofil . . . . .	23
2.3	Flugzeitfokussierung . . . . .	26
2.3.1	Allgemeine Überlegungen und Flugzeitfokussierung 1. Ordnung . . . . .	26
2.3.2	Flugzeitfokus für das lineare Flugzeit-Massenspektrometer . . . . .	29
2.3.3	Flugzeitfokus für die Buncher-Geometrie . . . . .	29

---

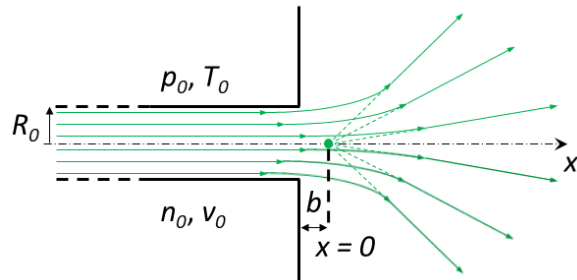
## 2.1 Theoretische Beschreibung einer Überschall-Düsenstrahlexpansion

Wird Gas unter einem hohen Druck durch eine schmale Öffnung (Düse) in einen leeren Raum gelassen, so wird die ungerichtete, statistisch verteilte Bewegung der einzelnen Gasatome oder -moleküle umgesetzt in eine gerichtete Expansion der Teilchen. Eine solche Expansion formt einen Gasstrahl, dessen Ausbreitungsrichtung senkrecht zur Öffnung steht. Ist die sich dabei einstellende Geschwindigkeit der Teilchen parallel zur Ausbreitungsrichtung,  $v_{\parallel, \infty}$ , größer als die Schallgeschwindigkeit in Luft ( $\approx 330 \text{ m s}^{-1}$ ), so spricht man auch von einer Überschall-Gasexpansion [51]. Ferner besitzt ein solcher Gasstrahl charakteristische Eigenschaften, wovon speziell dessen Verhalten hinsichtlich der Teilchendichte im Strahl sowie dessen Temperaturverhalten für das in dieser Arbeit angestrebte Ziel nützlich ist. Die nachfolgende Betrachtung umfasst dabei Überschall-Molekularstrahlen im Allgemeinen, wovon nur der Spezialfall einatomiger Edelgase innerhalb dieser Arbeit Verwendung findet, und wird unterteilt in drei Unterkapitel: Die Kontinuumstheorie des Gasstrahls am Austritt der Öffnung wird in Kapitel 2.1.1

behandelt, das *Sudden-Freeze-Modell* wird in Kapitel 2.1.2 eingeführt und erläutert und in Kapitel 2.1.3 wird der Einfluss von Düsenform und Skimmern im Strahlengang diskutiert.

### 2.1.1 Kontinuumstheorie für Überschall-Gasstrahlen

Die einfachste Form einer Düse zur Erzeugung eines Überschall-Gasstrahls ist eine Öffnung mit einem Radius  $R_0$ , welche in einen halbumendlichen Raum führt. Abbildung 2.1 skizziert eine solche idealisierte Düse, welche *Sonic Nozzle* genannt wird und aufgrund der Rotationssymmetrie eine zweidimensionale Beschreibung der resultierenden Expansion erlaubt. Wird nun ein Gas aus einem Reservoir bei einem Druck  $p_0$  und einer Temperatur  $T_0$  durch diese Düse geleitet, so expandiert dieses Gas nach der Öffnung entlang der grün skizzierten Strömungslinien. Diese scheinen dabei einem einzelnen Punkt in einem Abstand  $b = 0,15 R_0$  [52] von der Düsenöffnung zu entstammen, welcher *Virtual Source Point* genannt wird. Die dazugehörige Ebene, welche diesen virtuellen Quellpunkt enthält, wird daher auch als *Virtual Source Plane* bezeichnet und definiert  $x = 0$ . Mithilfe der Parameter Druck und Temperatur lässt sich so einerseits die Teilchendichte



**Abbildung 2.1:** Schematische Darstellung einer einfachen Düsenform (Sonic Nozzle). Die Strömungslinien sind grün skizziert und scheinen einem einzelnen Punkt zu entspringen, dem Virtual Source Point.

$$n_0 = \frac{p_0}{k_B T_0} \quad (2.1)$$

entsprechend der idealen Gasgleichung im Düsenzulauf errechnen. Andererseits lässt sich den Gasteilchen durch Vergleich ihrer thermischen Energie mit der mittleren kinetischen Energie pro Teilchen die mittlere Geschwindigkeit in eine Richtung

$$v_0 = \sqrt{\frac{2k_B T_0}{m}} \quad (2.2)$$

als charakteristische Geschwindigkeit bei  $T_0$  im Reservoir zuordnen.  $k_B$  bezeichnet hierbei die Boltzmann-Konstante und  $m$  die Masse eines einzelnen Gasteilchens. Unter Berücksichtigung der Ausdrücke aus den Gleichungen 2.1 und 2.2 lässt sich die Flussrate  $\dot{N}$  des Gases durch die Düse schreiben als

$$\dot{N} = f(\gamma) n_0 v_0 \pi R_0^2, \quad (2.3)$$

wobei der Faktor  $f(\gamma) = \sqrt{\frac{\gamma}{\gamma+1}} \left( \frac{2}{\gamma+1} \right)^{1/(\gamma-1)}$  [53] (2.4)

die Teilchendichte  $(2/\gamma + 1)^{1/(\gamma-1)} n_0$  und -geschwindigkeit  $\sqrt{\gamma/\gamma + 1} v_0$  am Ausgang der Düse berücksichtigt [54]. Diese stellen sich aufgrund der adiabatischen Expansion und der damit verbundenen gerichteten Teilchenbewegung ein und hängen von dem

Isentropenexponenten  $\gamma = c_p/c_V$  als Verhältnis der spezifischen Wärmekapazitäten des Gases bei konstantem Druck ( $c_p$ ) bzw. Volumen ( $c_V$ ) ab. Nach der Expansion konvergiert die Schwerpunktschwindigkeit der Gasteilchen entlang der Parallelkomponente des Gasstrahls für  $x \rightarrow \infty$  zu

$$\begin{aligned} v_{\parallel, \infty} &= \sqrt{\frac{\gamma}{\gamma - 1}} v_0 \quad [53] \\ &= \sqrt{\frac{5k_B T_0}{m}} \quad \text{für } \gamma = 5/3 \end{aligned} \quad (2.5)$$

und wird bereits nach einem Abstand weniger  $R_0$  von dem Virtual Source Point erreicht. Mithilfe der Schwerpunktschwindigkeit lässt sich die zentrale Strahlintensität  $I(\vartheta = 0)$  (in  $\text{s}^{-1} \text{sr}^{-1}$ ) entlang der Ausbreitungsrichtung des Gasstrahls bestimmen zu

$$I(\vartheta = 0) = n_0 v_{\parallel, \infty} x_{\text{ref}}^2 \quad [54], \quad (2.6)$$

wobei  $x_{\text{ref}} = R_0 a(\gamma)$  ein vom Öffnungsradius  $R_0$  abhängiger Referenzwert und  $a(\gamma)$  ein Parameter ist, der sich aus der numerischen Berechnung des Gasflusses ergibt [55]. Der Vergleich der Strahlintensität aus Gleichung 2.6 mit der Flussrate aus Gleichung 2.3 erlaubt das Einführen eines dimensionslosen *Peaking Factor*  $\kappa$  als Maß für die Abweichung der Winkelverteilung der Gasteilchen in Abhängigkeit von  $\gamma$  gemäß

$$\begin{aligned} \kappa &= \pi \frac{I(\vartheta = 0)}{\dot{N}} \quad [56], \quad (2.7) \\ &= \frac{a^2(\gamma)}{f(\gamma)} \sqrt{\frac{\gamma}{\gamma - 1}} = a^2(\gamma) \sqrt{\frac{\gamma + 1}{\gamma - 1}} \left( \frac{2}{\gamma + 1} \right)^{1/(1-\gamma)} \\ &= 2 \quad \text{für } \gamma = 5/3 \quad \text{und } a(\gamma) = 0,802 \quad [57] \end{aligned}$$

und beschreibt daher einen präferierten Teilchenfluss entlang der Ausbreitungsrichtung. Der Faktor  $\pi$  in Gleichung 2.7 ist dabei der Tatsache geschuldet, dass die Strahlintensität einer effusiven Quelle über

$$I_{\text{eff}}(\vartheta) = \frac{\dot{N}}{\pi} \cos \vartheta, \quad \text{und im Speziellen } I_{\text{eff}}(\vartheta = 0) = \frac{\dot{N}}{\pi}, \quad (2.8)$$

beschrieben und durch  $\kappa = 1$  charakterisiert wird. Wie in Kapitel 2.1.3.1 gezeigt wird, hat die Form der Düse maßgeblichen Einfluss auf den Peaking Factor und damit direkt auf die Strahlintensität. Zunächst werden die wesentlichen Eigenschaften Dichte und Temperatur der Gasexpansion illustriert, welche beide mit steigendem axisymmetrischen Abstand  $x$  von der Düse abnehmen. Die Dichte verringert sich dabei nach Verlassen der Düse gemäß

$$n(x) = n_0 \left( \frac{x_{\text{ref}}}{x} \right)^2 \quad [58], \quad (2.9)$$

sodass sich das Verhalten der Teilchendichte als Funktion des Abstandes allein aus den Eingangsparametern beschreiben lässt. Ähnlich dazu verhält sich auch die rapide

Abnahme der Temperatur des Gasstrahls mit wachsendem Abstand von der Düse. Dazu wird angenommen, dass bei hohen Teilchendichten nahe der Düse viele Stöße der Gasteilchen untereinander stattfinden, was ein volles thermisches Gleichgewicht während der Expansion sicherstellt. Dadurch kann dem Gasstrahl eine Temperatur  $T(x)$  zugeordnet werden, welche gemäß

$$\begin{aligned} T(x) &= T_0 \left( \frac{x_{\text{ref}}}{x} \right)^{2(\gamma-1)} \quad [57] \\ &= T_0 \left( \frac{x_{\text{ref}}}{x} \right)^{4/3} \quad \text{für } \gamma = 5/3 \end{aligned} \quad (2.10)$$

mit  $x$  abnimmt. Dementsprechend lässt sich die Geschwindigkeitsverteilung der Gasteilchen durch eine einzelne Maxwell-Boltzmann-Verteilung der Form

$$p(\vec{v}) d^3v = \left( \frac{m}{2\pi k_B T} \right)^{3/2} \exp \left( -\frac{m}{2k_B T} \left( (v_{\parallel} - v_{\parallel, \infty})^2 + v_{\perp}^2 \right) \right) d^3v \quad (2.11)$$

beschreiben, wobei die Geschwindigkeitskomponenten von  $\vec{v}$  in parallel ( $v_{\parallel}$ ) und senkrecht ( $v_{\perp}$ ) zur Ausbreitungsrichtung zerlegt werden. Diese Aufteilung wird insbesondere im nächsten Kapitel 2.1.2 wichtig, welches das Regime der freien Molekularströmung nach dem Kontinuumsregime behandelt.

### 2.1.2 Das Sudden-Freeze-Modell

Das thermische Gleichgewicht im Gasstrahl im Kontinuumsregime wird durch die hohe Stoßrate der Teilchen untereinander sichergestellt. Der ständige Energieaustausch aufgrund dieser Stöße führt dabei dazu, dass die statistisch ungeordnete Bewegung der Gasatome zu einer gerichteten Expansion führt. Da dabei die Strahldichte gemäß Gleichung 2.9 abnimmt, fällt die Stoßrate ebenfalls rapide, bis sie vernachlässigbar klein wird und kein thermisches Gleichgewicht mehr vorliegt. Dann verlaufen die Trajektorien einzelner Gasteilchen geradlinig und ohne weitere Wechselwirkung mit anderen Teilchen im Strahl; sie werden instantan „ausgefroren“, weshalb das Modell als *Sudden-Freeze-Modell* bezeichnet wird. Die Ebene entlang der Expansionsachse, ab der die Gasteilchen nur noch geradlinige Bewegung ausführen, wird *Freezing Plane* genannt und liegt im Abstand  $x_F$  von der Virtual Source Plane. Bildet man nun die geradlinigen Trajektorien hinter der Freezing Plane auf die Virtual Source Plane ab, so ergibt sich eine radialsymmetrische Verteilungsfunktion für die Startorte der Gasatome

$$f(y, z) dy dz = \frac{1}{\pi R^2} \exp \left( -\frac{y^2 + z^2}{R^2} \right) dy dz \quad [54], \quad (2.12)$$

welche als *Virtual Source* bezeichnet wird [59]. Der Radius  $R$  dieser Verteilungsfunktion wird entsprechend *Virtual Source Radius* genannt und ist für den Fall freier Gasströmung konstant. Dann ist die senkrechte Komponente der Geschwindigkeit  $v_{\perp}(x)$  im Abstand  $x \geq x_F$  geometrisch festgelegt über

$$\frac{v_{\perp}(x)}{v_{\perp}(x_F)} = \frac{x_F}{x}. \quad (2.13)$$

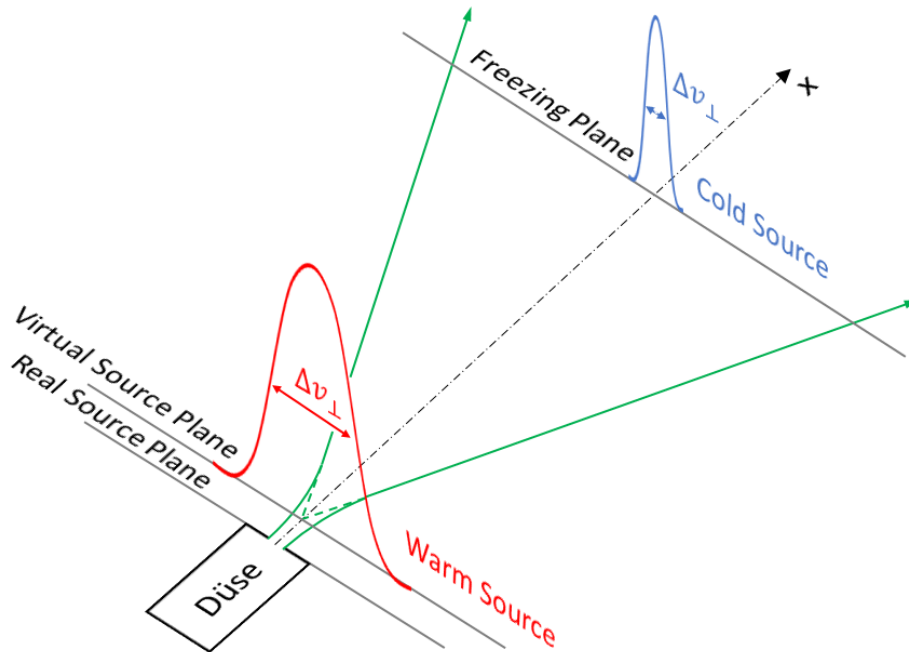
Diese senkrechte Geschwindigkeitskomponente lässt sich ferner mit einer Temperatur  $T_{\perp}$  charakterisieren gemäß

$$v_{\perp}(x) = \sqrt{\frac{2k_{\text{B}}T_{\perp}(x)}{m}}, \quad \text{und insbesondere} \quad v_{\perp}(x_{\text{F}}) = \sqrt{\frac{2k_{\text{B}}T_{\perp}(x_{\text{F}})}{m}} \quad [54]. \quad (2.14)$$

In Kombination mit der geometrischen Relation aus Gleichung 2.13 folgt damit für den Verlauf der Senkrechttemperatur eine quadratische Abnahme mit dem Abstand  $x$  entsprechend

$$T_{\perp}(x) = T_{\perp}(x_{\text{F}}) \left(\frac{x_{\text{F}}}{x}\right)^2 \quad [54], \quad (2.15)$$

Zwar versagt für  $x \geq x_{\text{F}}$  die Standarddefinition von Temperatur, dennoch lassen sich der Gasexpansion zwei Temperaturen  $T_{\parallel}$  und  $T_{\perp}$  zuordnen, welche die Teilchenbewegung senkrecht und parallel zu den Strömungslinien des Strahles beschreiben.



**Abbildung 2.2:** Schematische Darstellung des Sudden-Freeze-Modells mit der Virtual Source Plane in kurzem sowie der Freezing Plane in etwas größerem Abstand zur Düse (Real Source Plane) sowie der äußeren Strömungslinien (grün). In jeder dieser beiden Ebenen stellt sich eine Geschwindigkeitsverteilung einer Breite  $\Delta v_{\perp}$  ein, welche entsprechend der dort vorliegenden lokalen Temperatur als Warm Source (rot) in der Virtual Source Plane bzw. als Cold Source (blau) in der Freezing Plane bezeichnet wird [59, 60].

Die Abnahme von  $T_{\perp}$  ist dabei ein rein geometrischer Effekt, welcher durch die feste Boltzmann-Verteilung für  $v_{\perp}$  bei  $x_{\text{F}}$  und die daraus resultierende Skalierung von  $T_{\perp}$  mit  $x$  zustande kommt. Daher wird dieser Effekt auch als *Geometric Cooling* bezeichnet, da im Gegensatz zum Kontinuumsregime kein Energieaustausch stattfindet (vgl. Kapitel 2.1.1). Die Aufteilung der Temperatur  $T$  in  $T_{\parallel}$  und  $T_{\perp}$  erfordert daher, die Maxwell-Boltzmann-Verteilung aus Gleichung 2.11 gemäß

$$p(\vec{v}) d^3v = \left( \frac{m}{2\pi k_B} \right)^{3/2} \frac{1}{T_{\parallel}^{1/2} T_{\perp}} \exp \left( -\frac{m}{2k_B T_{\parallel}} (v_{\parallel} - v_{\parallel, \infty})^2 - \frac{m}{2k_B T_{\perp}} v_{\perp}^2 \right) d^3v \quad (2.16)$$

zu erweitern [61]. Dabei wird im Sudden-Freeze-Modell angenommen, dass die Paralleltemperatur konstant bleibt und der Temperatur an der Freezing Plane entspricht, sodass

$$T_{\parallel}(x) = T_{\parallel}(x_F) \quad \text{und damit} \quad v_{\parallel}(x) = v_{\parallel}(x_F) = \sqrt{\frac{2k_B T_{\parallel}(x_F)}{m}} \quad (2.17)$$

für  $x \geq x_F$  gilt. Relativ zur Virtual Source Plane veranschaulicht Abbildung 2.2 die Lage der Freezing Plane und die sich dort ergebende Breite der senkrechten Geschwindigkeitskomponente  $\Delta v_{\perp}$ . Da auch innerhalb der Virtual Source Plane eine Verteilung der senkrechten Geschwindigkeitskomponenten entsprechend der dortigen Temperatur vorliegt, lassen sich zwei Beiträge zur gesamten senkrechten Geschwindigkeitsverteilung identifizieren: einen Beitrag aus dem Kontinuumsregime mit einer breiten Verteilung, welche als *Warm Source* bezeichnet wird (rot), sowie einen schmalen Beitrag aus dem Bereich der freien Molekularströmung, welche im Gegensatz dazu *Cold Source* genannt wird (blau). Beide Beiträge sind ebenfalls in Abbildung 2.2 skizziert. Um beurteilen zu können, welche der beiden Quellen am Ort der Ionisation  $x_I$  einen Beitrag liefert, muss dessen Position mit der Position der Freezing Plane  $x_F$  relativ zur Virtual Source Plane verglichen werden. Diese lässt sich dabei mit dem Durchmesser der Düse  $D_0 = 2R_0$  abschätzen zu

$$x_F \approx D_0 \left( \sqrt{\frac{2}{\gamma}} \frac{S}{C_1} \right)^{1/(\gamma-1)}, \quad (2.18)$$

mit der sogenannten *Speed Ratio*  $S$  und einer Konstanten  $C_1 = 3,232$  [62]. Die Speed Ratio beschreibt dabei das Verhältnis der Schwerpunktschwindigkeit des Gasstrahls zu seiner thermischen Verbreiterung und ist damit nach den Gleichungen 2.5 und 2.17 gemäß

$$S = \frac{v_{\parallel, \infty}}{v_{\parallel}(x_F)} = \sqrt{\frac{\gamma}{\gamma-1}} \sqrt{\frac{T_0}{T_{\parallel}}} \quad [54] \quad (2.19)$$

direkt von der Paralleltemperatur abhängig. Zwar lässt sich die ideale Speed Ratio  $S_{\infty}$  aus den Eingangsparametern und mit den Konstanten  $A = 0,527$ ,  $B = 0,545$  und  $C_6 = 57 \cdot 10^{-78} \text{ J m}^6$  der Konstante für den attraktiven Teil des Lennard-Jones-Potentials berechnen zu

$$S_{\infty} = A \left[ \sqrt{2} n_0 D_0^3 \sqrt{\frac{53 C_6}{k_B T_0}} \right]^B \quad [62], \quad (2.20)$$

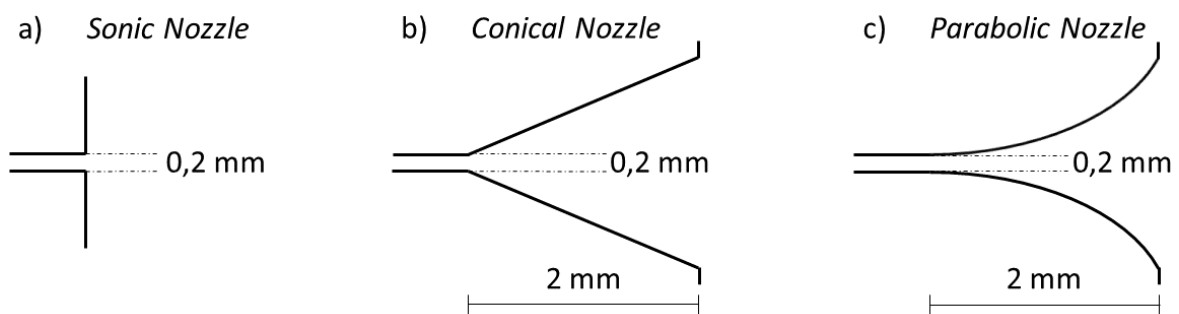
diese wird aber z.B. aufgrund von Clusterbildung im Gasstrahl oder Kondensation [63] selten erreicht. Da die Speed Ratio als Maß für die Qualität der Gasexpansion maßgeblich von der Form der Düse und den gewählten Reservoirparametern abhängt, wird im folgenden Kapitel 2.1.3 der Einfluss der Düsenform sowie speziell geformter Blenden (sogenannter *Skimmer*) auf die Strahleigenschaften diskutiert.

### 2.1.3 Einfluss von Düsenform und Skimmern im Strahlengang

Die im vorangegangenen Kapitel diskutierte Beschreibung des Überschall-Düsenstrahls gilt für eine freie Expansion einer Sonic Nozzle. Die Form der Düse sowie in den Strahlengang eingesetzte Skimmer können die Eigenschaften der Gasexpansion hinsichtlich Intensität, Teilchendichte und Temperatur enorm beeinflussen. Daher werden im folgenden Kapitel verschiedene Düsenformen sowie der Effekt der Skimmer beleuchtet.

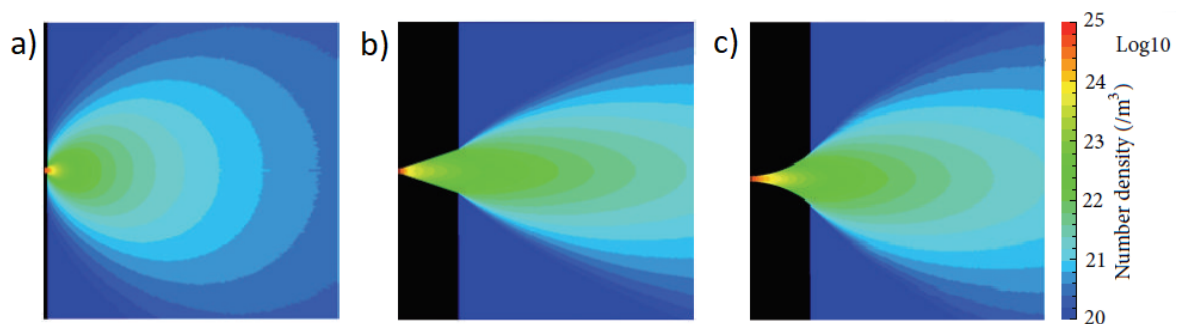
#### 2.1.3.1 Einfluss der Form der Düse

Im Vergleich zu der einfachen Form der Sonic Nozzle kann die Form des Düsenausgangs die Strömungslinien vorgeben und somit die Strahlqualität maßgeblich verbessern. Daher werden zwei weitere Düsenformen, eine *Conical Nozzle* mit einem Öffnungswinkel von  $40^\circ$  und eine *Parabolic Nozzle*, entsprechend Abbildung 2.3 hinsichtlich der Charakteristika Teilchendichte und Temperatur mit der Sonic Nozzle verglichen.



**Abbildung 2.3:** Schematische Darstellung der drei Düsenformen: Sonic (a), Conical (b) und Parabolic Nozzle (c). Der Öffnungsdurchmesser aller drei Düsen liegt bei 0,2 mm, die Tiefe der Conical und Parabolic Nozzle beträgt jeweils 2 mm.

Alle drei Düsen besitzen den gleichen Durchmesser von 0,2 mm am Ausgang, die Tiefe für die Conical Nozzle und die Parabolic Nozzle beträgt jeweils 2 mm. Die Teilchendichte für die drei Düsenformen ist dabei als Kontur-Diagramm entlang der Expansion in Abbildung 2.4 dargestellt.

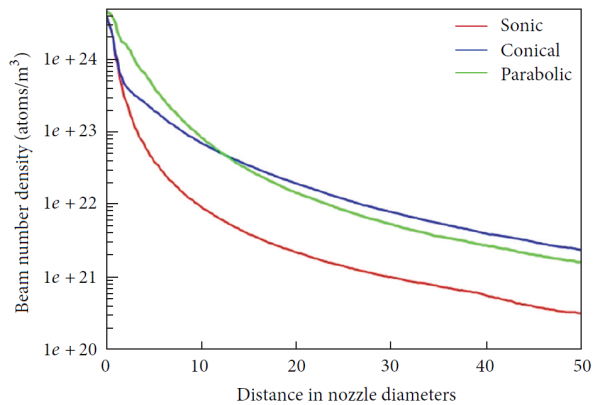


**Abbildung 2.4:** Dichteverteilung einer Gasexpansion für drei verschiedene Düsenformen: Sonic (a), Conical (b) und Parabolic Nozzle (c). Die Teilchendichte am Ausgang liegt in einer Größenordnung von  $10^{25} \text{ m}^{-3}$ , ihr Verlauf wird entlang einer Länge von 10 mm simuliert [64]. Entnommen aus [65].

Es ist dabei direkt ersichtlich, dass die beiden speziell geformten Düsenformen die Dichteverteilung gegenüber der Sonic Nozzle enorm beeinflussen. Die konische bzw.

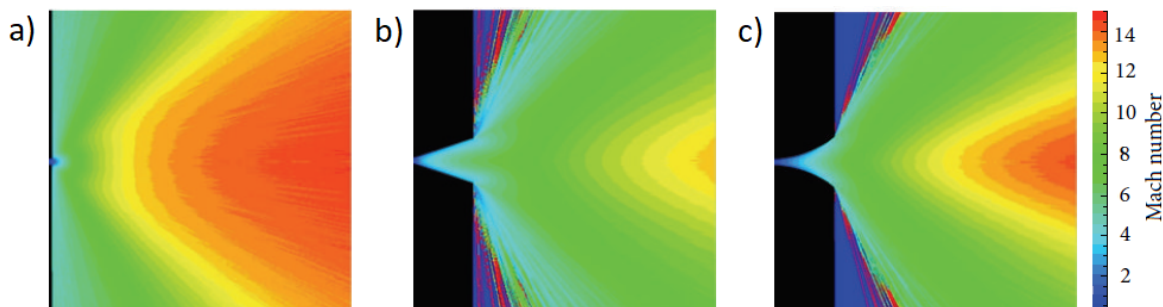
paraboloide Düsenform weisen eine axiale Vorzugsrichtung des Gasstrahles auf und führen somit dazu, dass die Teilchendichte nicht so rapide abfällt wie im Falle der

Sonic Nozzle, wo die Strahlausdehnung vergleichsweise breit ist. Entlang der Expansionsachse liegt daher die Teilchendichte für die unteren beiden Düsenformen um bis zu einer Größenordnung über derjenigen der Sonic Nozzle, wie Abbildung 2.5 belegt. Die Verläufe zwischen der Conical Nozzle und der Parabolic Nozzle unterscheiden sich dabei allerdings kaum, weshalb anhand der Betrachtung der Dichteverteilung allein keine signifikante Präferenz einer dieser Düsenformen vorliegt. Daneben bilden sich für die drei Düsenformen auch verschiedene Geschwindigkeitsverteilungen aus, wie Abbildung 2.6 als Kontur-Diagramm entlang der Ausbreitung der Gasexpansion zeigt. Hier werden grundlegende Unterschiede zwischen allen drei Düsenformen untereinander sichtbar. Zwar weist die Sonic Nozzle auch hier die breiteste und der Düse am nächsten liegende Verteilung auf, allerdings unterscheiden sich auch die Verteilungen der beiden anderen Düsenformen deutlicher. Während sich bei der Parabolic Nozzle eine maximale Ausbreitungsgeschwindigkeit in größerer Entfernung von der Düsenöffnung einstellt als bei der Sonic Nozzle, wird das Maximum bei der Conical Nozzle deutlich später erreicht und ist innerhalb der Simulationslänge von 10 mm nicht ersichtlich. Dies indiziert, dass der Kühlungseffekt der Expansion für die konisch geformte Düse effizienter verläuft als für die paraboloide Düsenform, was auch anhand der in Abbildung 2.7 a dargestellten Temperaturverläufe entlang der Expansionsachse ersichtlich ist. Während die Strahltemperatur bei der Sonic und der Conical Nozzle kurz nach dem Düsenaustritt zunächst rapide abfällt, nimmt die Temperatur bei der Parabolic Nozzle langsamer ab aufgrund der länger bestehenden Kollisionsrate durch die axiale Vorzugsrichtung der Expansion. Dies begünstigt im Fall der Parabolic Nozzle die Bildung von schwach gebundenen Clustern im Gasstrahl,



**Abbildung 2.5:** Zentralstrahldichte für die drei Düsenformen in Abhängigkeit vom Abstand zum Düsenausgang in Einheiten von Düsendurchmessern, entnommen aus [66].

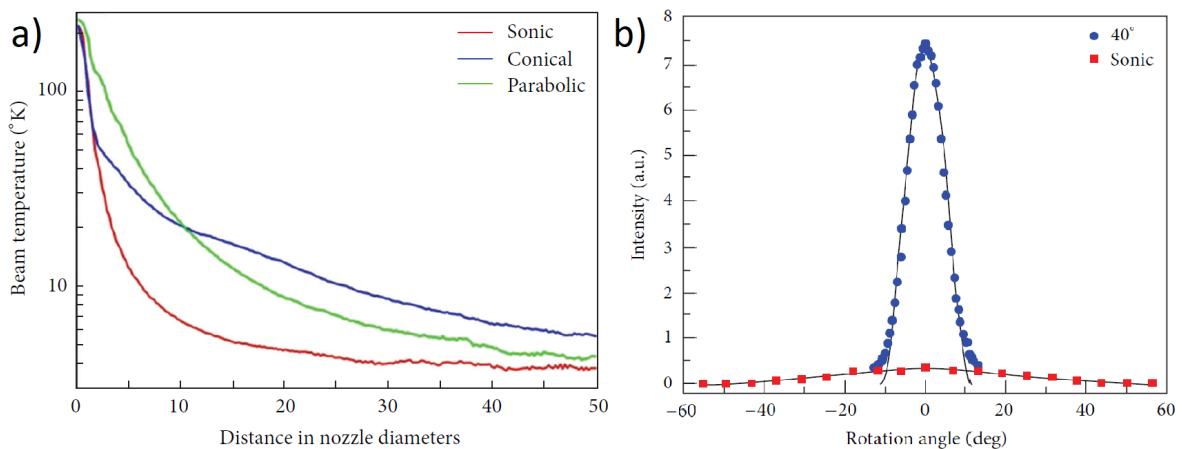
Während sich bei der Parabolic Nozzle eine maximale Ausbreitungsgeschwindigkeit in größerer Entfernung von der Düsenöffnung einstellt als bei der Sonic Nozzle, wird das Maximum bei der Conical Nozzle deutlich später erreicht und ist innerhalb der Simulationslänge von 10 mm nicht ersichtlich. Dies indiziert, dass der Kühlungseffekt der Expansion für die konisch geformte Düse effizienter verläuft als für die paraboloide Düsenform, was auch anhand der in Abbildung 2.7 a dargestellten Temperaturverläufe entlang der Expansionsachse ersichtlich ist. Während die Strahltemperatur bei der Sonic und der Conical Nozzle kurz nach dem Düsenaustritt zunächst rapide abfällt, nimmt die Temperatur bei der Parabolic Nozzle langsamer ab aufgrund der länger bestehenden Kollisionsrate durch die axiale Vorzugsrichtung der Expansion. Dies begünstigt im Fall der Parabolic Nozzle die Bildung von schwach gebundenen Clustern im Gasstrahl,



**Abbildung 2.6:** Geschwindigkeitsverteilung einer Gasexpansion für drei verschiedene Düsenformen: Sonic (a), Conical (b) und Parabolic Nozzle (c), in Einheiten der Mach-Zahl. Analog zur Dichteverteilung beträgt die Simulationslänge ebenfalls 10 mm. Entnommen aus [65].



da diese Kollisionen bei geringerer Temperatur stattfinden und die so gebildeten Cluster seltener wieder dissoziieren. Im Rahmen dieser Arbeit ist Clusterbildung jedoch nicht wünschenswert, da unter Photoionisation erzeugte Clusterionen thermisch instabil sind und daher leicht fragmentieren können. Von diesen Fragmenten könnten ionisierte Monomere die Pulsbreite der eigentlich photoionisierten Gasatome überdecken und deren Flugzeitverteilung dabei deutlich verbreitern, was eine paraboloid geformte Düsenöffnung ausschließt. Zwar flacht der Temperaturverlauf der Conical Nozzle mit zunehmendem Abstand langsamer ab als bei der Parabolic Nozzle, jedoch ist die Strahltemperatur für beide Fälle am Ort der Ionisation maßgeblich durch das Geometric Cooling aufgrund der Skimmer bestimmt. In Kombination mit der Tatsache, dass die Strahleigenschaften hinsichtlich Strahldichte sowie Strahltemperatur der Conical Nozzle eine deutliche Verbesserung gegenüber der Sonic Nozzle darstellen, wird in dieser Arbeit eine konisch geformte Düsenöffnung verwendet.

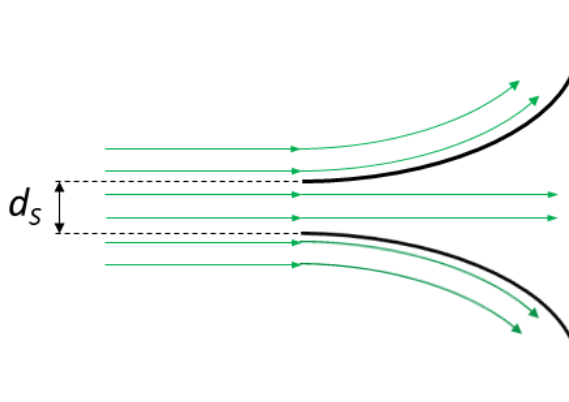


**Abbildung 2.7:** a) Strahltemperatur für die drei Düsenformen in Abhängigkeit vom Abstand zum Düsenausgang in Einheiten von Düsendurchmessern, entnommen aus [66]. b) Winkelverteilung für eine Conical Nozzle mit einem Öffnungswinkel von  $40^\circ$  (blau) im Vergleich zu einer Sonic Nozzle (rot), entnommen aus [67].

Abschließend ist in Abbildung 2.7 b die Winkelverteilung der emittierten Teilchen einer konischen Düse relativ zu einer Sonic Nozzle dargestellt. Dabei ist ersichtlich, dass alle Teilchen sogar innerhalb eines Winkelintervalls emittiert werden, welches kleiner als der nominelle Öffnungswinkel von  $40^\circ$  ist. Bei der Sonic Nozzle hingegen erstreckt sich die Verteilung über einen großen Bereich von  $120^\circ$  und verläuft daher bei gleichem Teilchenfluss wesentlich flacher. Aus der starken Einschränkung der Winkelverteilung für die Conical Nozzle folgt direkt, dass ihre zentrale Strahlintensität  $I_0$  gegenüber der Sonic Nozzle um ein  $\kappa \gtrsim 10$  erhöht ist, was eine Verbesserung der Strahlintensität um eine Größenordnung allein durch die Form der Düse darstellt. Aus diesem Grund lässt sich ebenfalls eine um eine Größenordnung höhere Dichte im Gasstrahl für eine freie Expansion erwarten als Gleichung 2.9 vorhersagt, weshalb innerhalb dieser Arbeit eine konische Düse mit einem Öffnungswinkel von  $40^\circ$  verwendet wird, da bei diesem Winkel eine maximale Strahlintensität zu erwarten ist [67]. Jedoch wird die Gasexpansion durch Skimmer im Strahlengang geometrisch begrenzt, deren Effekt hinsichtlich der Strahldichte wird mitunter im folgenden Kapitel diskutiert.

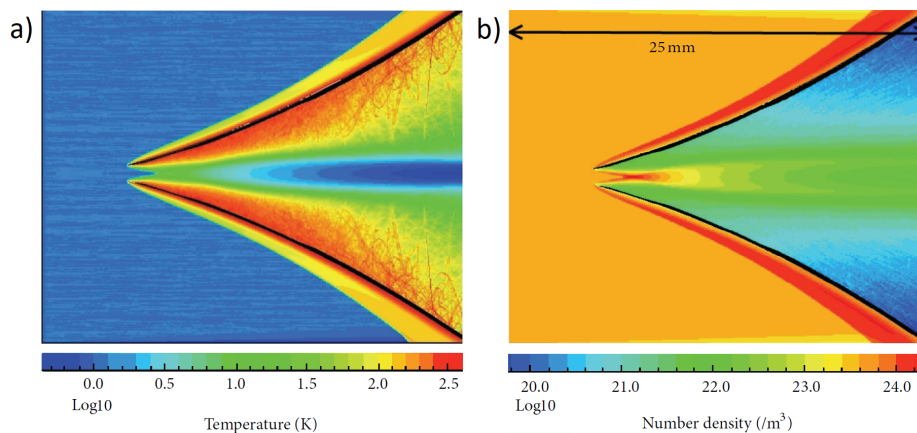
### 2.1.3.2 Einfluss von Skimmern im Strahlengang

Eine ähnliche Betrachtung wie für den Einfluss der Düsenform wird für die Skimmer vorgenommen, welche in den Strahlengang des Düsenstrahls installiert werden, um diesen geometrisch einzuschränken. Sie sind entsprechend Abbildung 2.8 konisch geformt mit einer Öffnung eines festen Durchmessers an der Spitze, welche in Richtung des Strahls orientiert wird. Ihre spezifische Form stellt dabei sicher, dass Teilchen aus dem Gasstrahl, welche von der Skimmerwand geblockt werden, nicht in den Strahl zurückgestreut werden und diesen somit aufheizen können. Stattdessen werden die äußeren Teilchentrajektorien aufgrund der konischen Form vom Zentralstrahl weggeführt. Durch die geometrische Einschränkung wird der Strahl daher in seiner Geschwindigkeitskomponente senkrecht zur Expansionsachse begrenzt, was die Gasexpansion geometrisch kühlt. Anhand von Abbildung



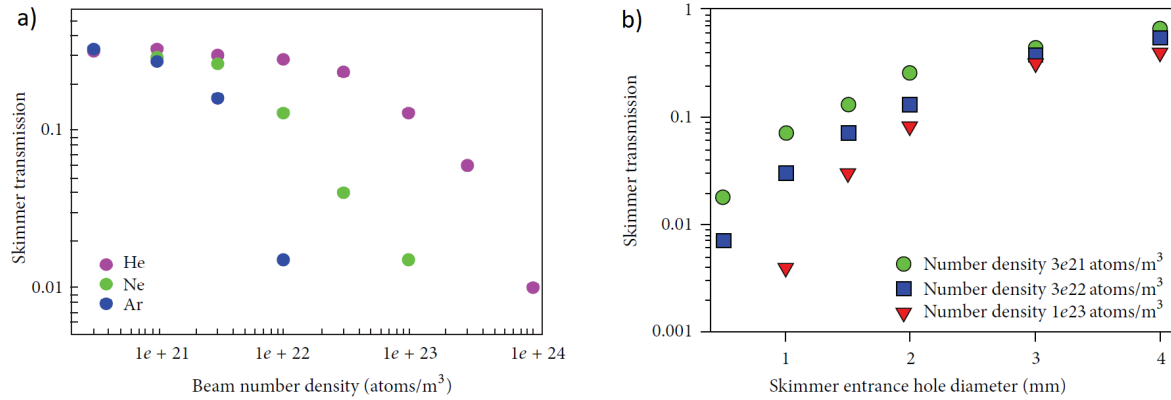
**Abbildung 2.8:** Schematische Darstellung eines Skimmers mit Durchmesser  $d_s$ . Die grün skizzierten Strömungslinien innerhalb des Skimmerdurchmessers werden transmittiert, die achsenfernen Trajektorien hingegen vom Strahlzentrum weggeführt.

2.9 a ist ersichtlich, dass die Strahltemperatur nach dem Skimmereingang eine Verteilung innerhalb der Ebene annimmt, welche senkrecht auf der Expansionsachse steht. Die Temperatur wird dabei zwar an den Skimmerwänden innen wie außen drastisch erhöht, die Temperatur entlang der Strahlachse bleibt jedoch niedrig. Dieser Effekt der geometrischen Kühlung durch den Skimmer geschieht dabei auf Kosten einer reduzierten Teilchendichte im Gasstrahl, wie Abbildung 2.9 b zu entnehmen ist. Die homogen einstrahlende Teilchendichte wird durch den Einfluss des Skimmers einerseits zu einem Gasstrahl definierter Breite entsprechend der Skimmeröffnung kollimiert. Andererseits kommt es kurz hinter der Öffnung im Zentrum zu einem Anstieg der Dichte, aufgrund



**Abbildung 2.9:** Temperaturverteilung (a) und Dichteverteilung (b) eines von links einfallenden, kalten Gasstrahls mit einer Temperatur von 1 K bei einer homogenen Dichte von  $10^{24} \text{ m}^{-3}$ , entnommen aus [65].

dessen dort die Kollisionsrate lokal ansteigt, was mit der Temperaturerhöhung in Abbildung 2.9 a einhergeht. Schließlich bildet sich hinter dem Skimmer eine Dichteverteilung der Gasteilchen entlang der Expansionsachse, welche um bis zu zwei Größenordnungen niedriger liegen kann als diejenige vor dem Skimmereingang. Diese Transmission ist in Abbildung 2.10 in Abhängigkeit von der Teilchendichte am Skimmereingang für verschiedene Edelgase (a) sowie unter Variation des Skimmerdurchmessers am Eingang für verschiedene Teilchendichten (b) dargestellt.



**Abbildung 2.10:** Transmission eines Skimmers als Funktion der Teilchendichte für verschiedene Edelgase (a), entnommen aus [66], sowie in Abhängigkeit des Eingangsdurchmessers für verschiedene Teilchendichten (b), entnommen aus [67].

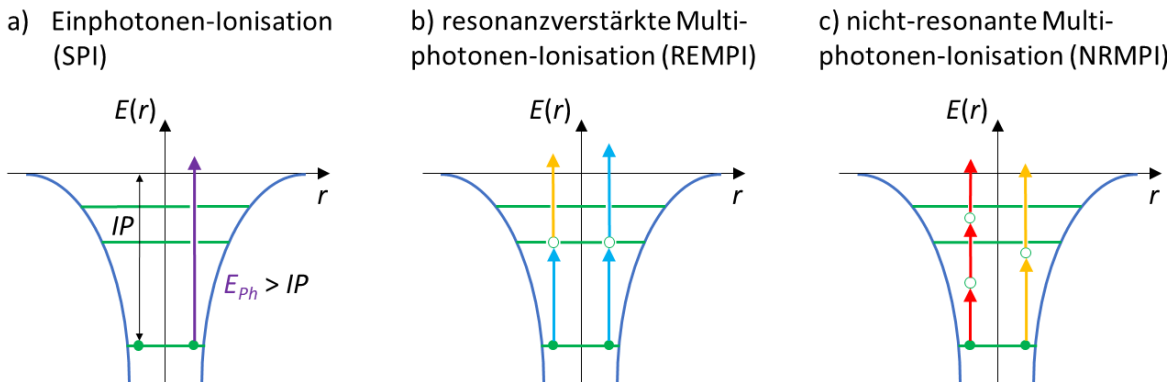
Für schwere Gase bei hohen Dichten und kleinen Skimmerdurchmessern kann die Transmission unter 1% betragen und die Flussrate daher erheblich verringern. Im Kontrast zur Intensitätserhöhung durch die Düsenform kann die Strahldichte dadurch um mehr als zwei Größenordnungen reduziert werden als Gleichung 2.9 vorhersagt. Im Rahmen dieser Arbeit ist es jedoch notwendig, dass die Gasexpansion einerseits räumlich kollimiert wird, ohne die geometrische Kühlung zu zerstören, und andererseits am Ort der Ionisation eine Ultrahochvakuum-Umgebung herrscht, welche durch entsprechend voneinander getrennte, differenziell gepumpte Druckstufen realisiert wird (vgl. Abbildung 3.1 in Kapitel 3.1). Daher werden insgesamt bis zu drei Skimmer in den Strahlengang eingebaut, um einen räumlich definierten und kalten Überschall-Gasstrahl gegenüber UHV-Bedingungen zu produzieren. Abschließend ist zu erwähnen, dass sich aufgrund der begrenzenden und kühlenden Eigenschaften Skimmer auch als eigene Gasstrahlquelle auffassen und beschreiben lassen.

## 2.2 Ionisation neutraler Teilchen durch einen Laser

Zur Erzeugung der Ionen aus dem Überschall-Gasstrahl dient sowohl im Fall der Gasstrahlcharakterisierung als auch im Fall der Ionenpulserzeugung jeweils ein Laser, dessen Strahlengang senkrecht zur Strahlrichtung des Gasstrahles orientiert ist. Aus diesem Grund werden in Kapitel 2.2.1 verschiedene Ionisationsprozesse beleuchtet, welche zur Erzeugung von Ionen aus dem Gasstrahl führen können. Anschließend wird in Kapitel 2.2.2 die Ionisierungswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit von der Intensität eines (fokussierten) Laserstrahls beschrieben. Ferner werden die Intensitätsverteilungen eines Excimer-Lasers und eines Titan:Saphir-Lasers in Kapitel 2.2.3 sowie die damit verbundenen Ionisationsprofile diskutiert.

## 2.2.1 Ionisationsprozesse

Trifft ein Photon der Frequenz  $\nu$  auf ein neutrales Atom, so kann es unter Aufnahme seiner über das Plancksche Wirkungsquantum  $h$  verknüpften Energie absorbiert werden. Übersteigt dabei die Photonenenergie  $E_{\text{Ph}} = h\nu$  das Ionisationspotential  $IP$  des Atoms, so kann das äußerste Elektron aus dem Potential des Atoms ins Vakuum emittiert werden. Das verbleibende Atom ist nun nach außen hin nicht mehr elektrisch neutral und wird als (positiv geladenes) Ion bezeichnet. Ein solcher Übergang ist schematisch in Abbildung 2.11 a dargestellt und aufgrund der Beteiligung von einem einzelnen Photon als Einphotonen-Ionisation (*Single Photon Ionization*, SPI) bezeichnet.



**Abbildung 2.11:** Verschiedene Ionisationsschemata unter Absorption von Photonen: Einphotonen-Ionisation (SPI, a), resonanzverstärkte Multiphotonen-Ionisation (REMPI, b) sowie nicht-resonante Multiphotonen-Ionisation (NRMPI, c). Ein Elektron (grüner Punkt), welches unter Absorption von genügend Photonen das Ionisationspotential ( $IP$ ) überwindet, kann das verbleibende Ion verlassen und sich im Vakuum frei bewegen. Die grünen Linien stellen Energiezustände im Atom dar, die Farben der Pfeile indizieren die Energie der beteiligten Photonen [23].

Reicht ein einzelnes Photon nicht aus, sondern bedarf es mehrerer Photonen zur Ionisation eines Atoms, so spricht man hingegen von einer Multiphotonen-Ionisation (*Multi Photon Ionization*, MPI). Dabei wird aufgrund verschiedener möglicher Übergangsschemata ferner unterschieden zwischen der resonanzverstärkten Multiphotonen-Ionisation (*Resonance Enhanced Multi Photon Ionization*, REMPI [68]) und der nicht-resonanten Multiphotonen-Ionisation (*Non-Resonant Multi Photon Ionization*, NRMPI [69]). Dabei regt im REMPI-Schema ein Photon den resonanten Übergang des Elektrons auf einen erlaubten Zustand innerhalb des atomaren Potentials an, wie in Abbildung 2.11 b durch eine grüne Linie skizziert ist. Dabei muss die Energie des Photons  $E_{\text{Ph}}$  mit der Energiedifferenz zwischen dem Grundzustand und dem Zwischenzustand übereinstimmen, weshalb das REMPI-Schema im Allgemeinen nur selektiv für bestimmte Atomsorten wirksam verläuft. Im Falle einer vergleichbaren Lebensdauer des Zwischenzustandes mit der typischen Pulsdauer eines Laserpulses kann ein weiteres Photon das Elektron effizient von dort ins Kontinuum überführen. Dabei muss dieser Übergang nicht unbedingt mit der gleichen Photonenenergie angeregt werden, sondern kann auch durch Photonen anderer Energie  $E'_{\text{Ph}} = h\nu'$  erfolgen. In beiden Fällen ist ein REMPI-Schema dann zu bevorzugen, wenn die nachzuweisende Atomsorte bekannt ist, da deren Ionisation durch angepasste Photonenenergien besonders effizient verläuft. Im NRMPI-Schema hingegen wird das Elektron im Atompotential durch ein Photon nur auf einen

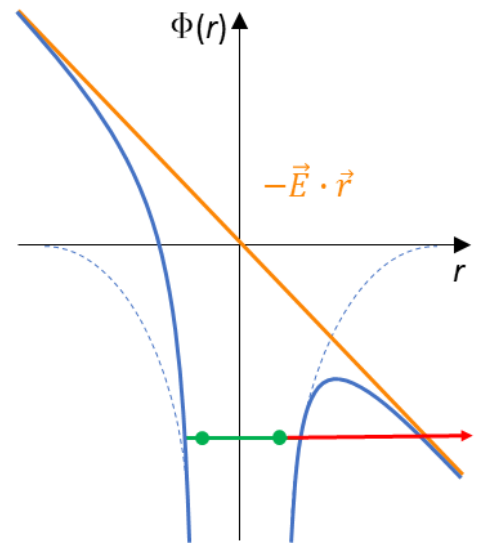
virtuellen Zwischenzustand und anschließend durch ein weiteres Photon ins Kontinuum angeregt. Dies ist gezeigt in Abbildung 2.11c und stellt den allgemeinen Fall einer MPI dar, da die Photonenenergie nicht zwangsläufig auf einen Übergang einer bestimmte Atomsorte angepasst ist. Zwar ist die Spezies der zu ionisierenden Atome in dieser Arbeit bekannt (Argon bzw. Neon), sie können aber nur im Rahmen des NRMPI-Schemas unter Absorption mehrerer Photonen ionisiert werden. Dies liegt an dem vergleichsweise hohen Ionisationspotential für Argon mit  $IP_{\text{Ar}} = 15,76 \text{ eV}$  [70] bzw. für Neon mit  $IP_{\text{Ne}} = 21,56 \text{ eV}$  [71]. Die Möglichkeit dieses Schemas verfällt daher, Atome unbekannter Spezies ionisieren und beispielsweise massenaufgelöst nachweisen zu können. Stattdessen wirkt sich die relativ kurze Lebensdauer des virtuellen Zwischenzustandes sogar nachteilig aus, was sich prinzipiell durch hohe Photonenflussdichten kompensieren lässt. Dies zieht jedoch den Effekt der Feldionisation nach sich: Werden die Photonenflussdichten derart groß, dass die entsprechende elektrische Feldstärke der Strahlung vergleichbar mit der Coulomb-Wechselwirkung zwischen dem Elektron und dem Ionenrumpf ist, so kann der Prozess der Ionisation nicht mehr als Absorption von Photonen im Teilchenbild durch das Atom verstanden werden. Vielmehr muss nun das Elektron im Atompotential, überlagert mit dem zeitabhängigen Potential des Photons im Wellenbild, behandelt werden. Dieses Potential  $\Phi(\vec{r}, t)$  resultiert in

$$\Phi(\vec{r}, t) = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Ze}{|\vec{r}|} - \vec{E}(t) \cdot \vec{r}, \quad (2.21)$$

mit der dielektrischen Feldkonstante  $\epsilon_0$  im Vakuum, der Kernladungszahl  $Z$  des Ionenrumpfes und der Elementarladung  $e$ . Es ist exemplarisch als Funktion der Radialkomponente  $r$  entlang der Polarisationsachse des zeitabhängigen elektrischen Feldes

$$\vec{E}(t) = \vec{E}_0 \mathcal{F}(t) e^{i\omega t}, \quad (2.22)$$

für den Fall maximaler Feldstärke  $E_0$  in Abbildung 2.12 skizziert.  $\mathcal{F}(t)$  bezeichnet dabei die einhüllende Funktion des elektrischen Feldes und  $\omega = 2\pi\nu$  die Kreisfrequenz, mit der die Feldstärke oszilliert. Dieses äußere Feld (orange) verbiegt das Coulomb-Potential (blau) dabei derart, dass sich eine Barriere endlicher Breite ausbilden kann. Durch diese Barriere kann das Elektron (grün) auf einem Zustand in der Nähe des Vakuumniveaus hindurch tunneln (roter Pfeil), weshalb dieser Prozess als Tunnelionisation bezeichnet wird [72]. Die Wahrscheinlichkeit des Tunnelprozesses ist dabei abhängig von der Barrierenbreite und steigt mit zunehmender Feldstärke, und daher mit zunehmender Intensität. Der Grenzfall verschwindender Barriere (*Barrier Suppression Ionization*, BSI) erlaubt es dem Elektron, das Potential des Ionenrumpfes ohne Tunneln zu verlassen. Die dafür erforderlichen Intensitäten führen stattdessen sukzessive zu höheren Ladungszuständen des Ions.



**Abbildung 2.12:** Schematische Darstellung der Tunnelionisation. Ein Elektron (grüner Punkt) erfährt durch die Überlagerung eines elektrischen Feldes (orange) ein verbogenes atomares Potential (blau), sodass es durch die entstehende Potentialbarriere hindurch tunneln kann (roter Pfeil).

Um beurteilen zu können, ob es sich bei dem vorhandenen Ionisationsprozess um eine Multiphotonen- oder eine Tunnelionisation handelt, wird die Tunnelzeit mit der Periodendauer des elektrischen Feldes verglichen. Die Tunnelzeit wird dabei abgeschätzt als die Dauer, die ein Elektron mit mittlerer Orbitalgeschwindigkeit benötigen würde, die Potentialbarriere zu überwinden, und ist im Wesentlichen proportional zu  $\sqrt{IP}$  [23]. Dem gegenüber steht die Periodendauer des elektrischen Feldes, welche über die entsprechende Kreisfrequenz  $\omega$  in das ponderomotive Potential der Form

$$U_P = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega^2} \quad [73] \quad (2.23)$$

einfließt, wobei  $m_e$  die Elektronenmasse bezeichnet. Diese beiden Größen werden nun über den Keldysh-Parameter gemäß der Relation

$$\gamma_K = \sqrt{\frac{IP}{2U_P}} \quad [74]. \quad (2.24)$$

ins Verhältnis zueinander gesetzt. Es lassen sich nun zwei Grenzfälle für diesen dimensionslosen Parameter ableiten, welche den beiden Ionisationsbereichen entsprechen:

- Im Bereich großer Periodendauern sowie hoher Intensitäten folgt  $\gamma_K \ll 1$ . In diesem Fall ist die Potentialverbiegung durch das äußere Feld sehr groß sowie die Tunnelzeit gegenüber der Periodendauer sehr klein, sodass das Elektron während einer Oszillation effizient durch die resultierende Barriere tunneln kann. Aus diesem Grund dominiert in diesem Bereich die Tunnelionisation.
- Im Bereich hoher Photonenenergien  $E_{Ph} = h\omega/2\pi$  sowie niedriger Feldstärken folgt hingegen  $\gamma_K \gg 1$ . In diesem Fall hat das Elektron aufgrund der schnellen Feldänderung und der hohen Barrierenbreite keine Zeit, durch die Barriere zu tunneln, sodass es innerhalb der Dauer einer Periode des äußeren Feldes im Coulomb-Potential verbleibt. Das Elektron kann in diesem Bereich nur durch Multiphotonen-Ionisation aus dem Potential ins Kontinuum überführt werden.

Für ein  $\gamma_K \approx 1$  liegt dementsprechend ein Bereich vor, in dem beide Ionisationsmechanismen koexistieren. Eindeutig unterscheiden lassen sich beide Prozesse durch die Impulsverteilung des ionisierten Elektrons: Während es bei der Multiphotonen-Ionisation isotrop verteilt emittiert wird, existiert bei der Tunnelionisation eine Vorzugsrichtung der Impulsverteilung durch die Polarisationsachse des elektrischen Feldes [75]. Da nach Impulserhaltung die Ionen den (betragsmäßig) gleichen Impuls bei ihrer Ionisation aufnehmen und somit ebenfalls eine ausgezeichnete Orientierung der Impulsverteilung ausbilden, ist es wichtig, die Polarisationsachse in Richtung der Expansionsachse des Gasstrahls auszurichten. Auf diese Weise wird sichergestellt, dass der Prozess der Ionisation die Geschwindigkeitsverteilung der Ionen entlang der Extraktionsachse am wenigsten verbreitert. Diese Impulsverteilung lässt sich mit einer Temperatur identifizieren, welche für Argon bzw. Neon in einer Größenordnung von 0,1 – 1 K liegt [76] und aufgrunddessen mit der Temperatur des Gasstrahls vergleichbar ist.

In diesem Kapitel wurden unterschiedliche Prozesse zur Ionisation neutraler Atome dargestellt. Daran anknüpfend behandelt das nachfolgende Kapitel 2.2.2 die Wahrscheinlichkeit, bei einer gegebenen Intensität Atome einer festen Teilchendichte tatsächlich zu ionisieren. Dazu wird insbesondere die Ionisierungswahrscheinlichkeit bei einer gegebenen Intensitätsverteilung untersucht.

## 2.2.2 Ionisierungswahrscheinlichkeit

Für den Bereich kleiner Laserintensitäten dominiert die Multiphotonen-Ionisation. Die Wahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit  $w(I)$ , durch Absorption von  $N$  Photonen ein Elektron aus dem Potential eines Atoms zu entfernen, ist dabei in der Näherung der Störungstheorie

$$w(I) = \sigma_N I^N \quad [23]. \quad (2.25)$$

$\sigma_N$  bezeichnet dabei den generalisierten Wirkungsquerschnitt zur Absorption von  $N$  Photonen und variiert stark mit  $N$ , sowohl hinsichtlich der physikalischen Dimension als auch bezogen auf dessen Größenordnung. In Tabelle 2.1 sind exemplarisch typische Werte für  $\sigma_N$  als Funktion von  $N$  im Allgemeinen gezeigt.  $I$  bezeichnet dabei die Photonenflussdichte des einstrahlenden Lasers und steht synonym für dessen Intensität. Die Übergangsrate  $w(I)$  muss nun über das zeitliche Profil des Laserpulses  $\mathcal{F}(t)$  integriert werden, um die Ionisierungswahrscheinlichkeit  $p(I)$  zu erhalten. Der Einfachheit halber wird die Intensität jedoch über eine effektive Interaktionszeit

$$\tau = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{F}^N(t) dt \quad [23] \quad (2.26)$$

als konstant angenommen, sodass sich für einen Bereich kleiner Intensitäten der lineare Zusammenhang

$$p(I) = \sigma_N I^N \tau \quad [23] \quad (2.27)$$

ergibt. Der Fall für  $N = 1$  stellt dabei die Einphotonen-Ionisation als Spezialfall der nicht-resonanten Multiphotonen-Ionisation dar. Im Bereich hoher Laserintensitäten hingegen dominiert die Tunnelionisation. Da hierbei das Atom im Wechselfeld des Lasers betrachtet werden muss, reicht die Beschreibung über einen Wirkungsquerschnitt nicht aus. Stattdessen müssen Ratengleichungen für die Tunnelwahrscheinlichkeit einzelner Elektronen im atomaren Potential, überlagert mit dem zeitlich oszillierenden Wechselfeld, aufgestellt werden. Die hierbei verwendete Theorie zur Bestimmung dieser Übergangswahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit ist die Ammosov-Delone-Krainov-Theorie (ADK-Theorie, [78]), welche den Ionisationsprozess der Tunnelionisation für Edelgase, insbesondere im sequenziellen Fall, gut beschreibt [72]. Dazu wird ein Elektron in einem gebundenen Zustand, charakterisiert durch (effektive) Quantenzahlen  $n^*$ ,  $l^{(*)}$  und  $m$ , sowie mit einer Bindungsenergie  $E_B$  betrachtet, welches einem äußeren elektrischen Feld gemäß Gleichung 2.22 ausgesetzt wird. Die Übergangsrate ergibt sich unter Verwendung einer effektiven Bindungsenergie  $\mathcal{E}_0 = \sqrt{(2E_B)^3}$  als Funktion der Feldstärke  $E_0$  in atomaren Einheiten zu



$$w_{\text{ADK}}(E_0) = C^2(n^*l^*) \cdot f(l,m) \cdot E_{\text{B}} \sqrt{\frac{3E_0}{\pi\mathcal{E}_0}} \exp\left(-\frac{2\mathcal{E}_0}{3E_0}\right) \cdot \left(\frac{2\mathcal{E}_0}{E_0}\right)^{2n^* - |m| - 1}. \quad (2.28)$$

Der Term  $\sqrt{3E_0/\pi\mathcal{E}_0}$  berücksichtigt die zeitliche Mittelung über die Dauer des Laserpulses, der restliche Teil das langreichweitige Coulomb-Potential im Vergleich zum äußeren Feld. Die Koeffizienten  $C^2(n^*l^*)$  und  $f(l,m)$  sind hingegen von den Quantenzahlen des Zustandes entsprechend

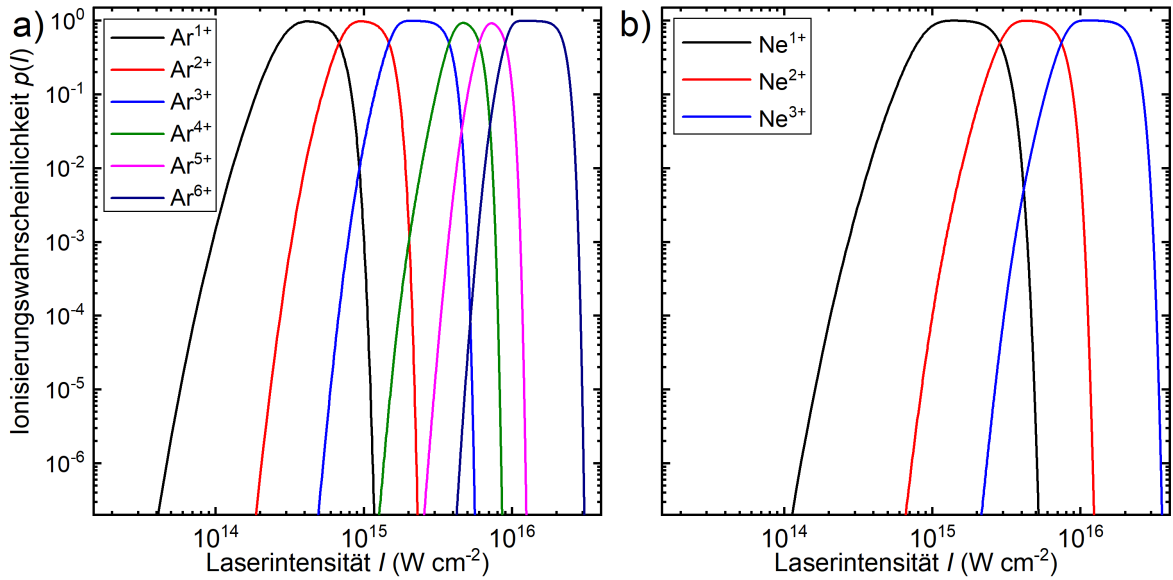
$$C^2(n^*l^*) = \frac{2^{2n^*}}{n^*\Gamma(n^* + l^* + 1)\Gamma(n^* - l^*)} \quad \text{und} \quad f(l,m) = \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|}(|m|)!(l-|m|)!} \quad (2.29)$$

abhängig, mit den effektiven Quantenzahlen  $n^* = Z\sqrt{R_y/E_{\text{B}}}$  und  $l^* \leq n^* - 1$ .  $Z$  beschreibt hierbei den Ladungszustand des verbleibenden Ionenrumpfes und ist beispielsweise für den Fall der einfachen Ionisation eines neutralen Atoms gleich 1. Ist nun ferner die Bindungsenergie  $E_{\text{B}}$ , welche dann dem Ionisationspotential  $IP$  entspricht, vergleichbar mit der Rydbergenergie  $R_y$ , so folgt in diesem Fall für die effektive Hauptquantenzahl  $n^* \approx 1$  sowie für die (effektive) Drehimpulsquantenzahl  $l^{(*)} \simeq 0$ . Aus diesem Grund ist es ausreichend, die Übergangsrate für  $m = 0$  zu betrachten. Lässt man ferner den Term der zeitlichen Mittelung außen vor, um die Ionisierungswahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit für ein stationäres äußeres Feld zu berechnen, so vereinfacht sich Gleichung 2.28 zu einer stationären Übergangsrate der Form

$$w_{\text{ADK}}^{\text{stat}}(E_0) = \frac{2^{2n^*}}{n^*\Gamma(n^* + 1)\Gamma(n^*)} E_{\text{B}} \exp\left(-\frac{2\mathcal{E}_0}{3E_0}\right) \cdot \left(\frac{2\mathcal{E}_0}{E_0}\right)^{2n^* - 1}. \quad (2.30)$$

Eine numerische Integration dieser Übergangsrate über die Dauer des Laserpulses erlaubt dann das Aufstellen der Ionisierungswahrscheinlichkeit als Funktion der Laserintensität, analog zu Gleichung 2.27. Unter Verwendung der Relation  $I \propto E_0^2$  ist in Abbildung 2.13 a die Ionisierungswahrscheinlichkeit als Funktion der Laserintensität für  $\text{Ar}^{q+}$  mit Ladungszuständen  $q = 1 - 6$  dargestellt. Abbildung 2.13 b zeigt  $p(I)$  für Neon über den gleichen Bereich der Laserintensität, welches aufgrund des höheren Ionisationspotentials zu höheren Laserintensitäten verschoben ist und daher nur die Ladungszustände  $q = 1 - 3$  aufweist. Es sind in beiden Fällen unterschiedlich breite Plateaus zu erkennen, welche dabei jeweils die Abstände der Energieniveaus zwischen den entsprechenden Ladungszuständen widerspiegeln. Der Verlauf der Wahrscheinlichkeit ist dabei sequenziell berechnet, d.h. für  $\text{Ar}^{2+}$  wird beispielsweise als Quantenzahl und atomarem Ladungszustand jeweils  $n^*$  und  $Z$  von  $\text{Ar}^{1+}$  als Basis verwendet. Somit werden Mehrelektroneneffekte und nicht-sequenzielle Ionisationsprozesse hierbei nicht berücksichtigt, ebenso wird die räumliche Intensität als homogen angenommen. Aufgrund des starken nichtlinearen Verhaltens mit steigender Laserintensität ist es daher wichtig, auch die räumliche Intensitätsverteilung eines Laserpulses zu berücksichtigen, um die damit verbundene gesamte Ionisierungswahrscheinlichkeit zu kennen. Daher wird im nachfolgenden Kapitel 2.2.3 das axiale sowie das radiale Strahlprofil des Lasers behandelt und die sich daraus ergebende lokale Ionisierungswahrscheinlichkeit diskutiert.





**Abbildung 2.13:** Ionisierungswahrscheinlichkeit als Funktion der Laserintensität im Rahmen der ADK-Theorie für Argon (a), entnommen aus [50], sowie für Neon (b, P. Kucharczyk, unveröffentlichte Daten). Die Laserintensität umfasst dabei den in dieser Arbeit zu realisierenden Bereich (vgl. Abbildung 5.3 in Kapitel 5.1.1).

### 2.2.3 Laserstrahlprofil

Die axial verlaufenden Laserstrahlen lassen sich durch geeignete Linsen oder Parabolspiegel in eine Fokusebene fokussieren, um dort die Photonendichte maßgeblich zu erhöhen. Die sich ergebende Intensitätsverteilung unterscheidet sich je nach Strahlprofil am Resonatorausgang und wird daher für die beiden verwendeten Lasersysteme separat voneinander betrachtet.

#### Excimer-Laser

Das Laserstrahlprofil eines Excimer-Lasers ist typischerweise durch eine Blende am Ausgang des Resonators bestimmt, welche bei dem verwendeten Laser eine Rechteckform mit einer vertikalen (V) sowie einer horizontalen (H) Seite im Bereich weniger mm aufweist. Innerhalb dieses Rechteckprofils ist die Photonendichte idealerweise konstant, sodass eine Fokussierung ein ebenfalls rechteckiges Profil mit einer homogenen Intensitätsverteilung in der Transversalebene ergibt. Da die senkrecht zu dieser Ebene stehende Laserstrahlachse als  $y$ -Achse bezeichnet wird, werden die Seitenlängen  $d_{x,z}$  des Rechtecks in der  $xz$ -Ebene durch die Divergenz des Strahles entsprechend

$$\theta_x = \frac{d_x}{f} \quad \text{und} \quad \theta_z = \frac{d_z}{f} \quad [79], \quad (2.31)$$

mit dem Linsenfokus  $f$ , limitiert. Typische Strahldivergenzen liegen hierbei in der Größenordnung von mrad, sind ein Maß für die Strahlqualität gegenüber einem ideal fokussierten Strahl und können die Intensität im Fokus aufgrund unterschiedlicher Ausprägungen in  $x$ - und  $z$ -Richtung verzerren. Daher ergibt sich näherungsweise ein Intensitätsprofil in der  $xz$ -Ebene gemäß

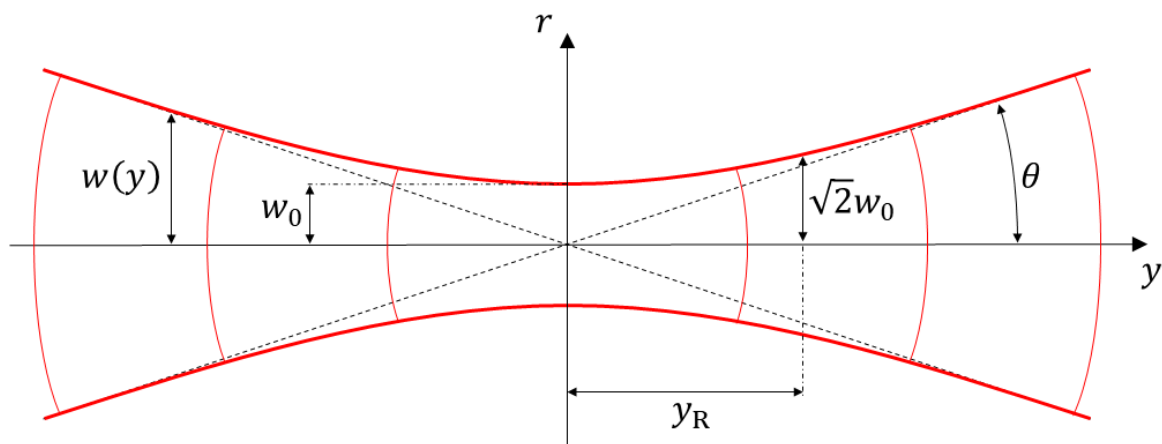
$$I(x,z) = \begin{cases} I_0 & \text{für } |x| \leq \frac{d_x}{2} \quad \text{und} \quad |z| \leq \frac{d_z}{2} \\ 0 & \text{sonst.} \end{cases} \quad (2.32)$$

### Titan:Saphir-Laser

Das Laserstrahlprofil am Ausgang eines Titan:Saphir-Lasers ist maßgeblich durch die fundamentale TEM<sub>00</sub>-Mode des Laserresonators bestimmt. Daraus resultiert in der Transversalebene ein rotationssymmetrisches, gaußförmiges Strahlenbündel. Wird dieses Strahlenbündel nun fokussiert, lässt sich die Intensitätsverteilung  $I(r,y)$  in Zylinderkoordinaten um den Fokus herum gemäß

$$I(r,y) = I_0 \frac{w_0^2}{w^2(y)} \exp\left(-\frac{2r^2}{w^2(y)}\right) \quad [80] \quad (2.33)$$

beschreiben, dessen axial verlaufendes Profil ist in Abbildung 2.14 im Schnitt der  $ry$ -Ebene skizziert.



**Abbildung 2.14:** Schematische Darstellung des gaußförmigen Laserstrahlprofils um den Fokus in der  $ry$ -Ebene. Die geometrischen Größen Strahlweite ( $w_0$ ), Strahlradius ( $w(y)$ ), Rayleigh-Länge ( $y_R$ ) sowie die Strahldivergenz ( $\theta$ ) sind eingezeichnet, ebenso sind die Wellenfronten konstanter Phase skizziert [80].

Dabei bezeichnen  $r$  die Radial- und  $y$  die Axialkoordinate,  $I_0$  die maximale Intensität im Ursprung und

$$w^2(y) = w_0^2 \left(1 + \frac{y^2}{y_R^2}\right) \quad [80] \quad (2.34)$$

das von  $y$  abhängige Quadrat des Laserstrahlradius. Das gaußförmige Profil in radialer Richtung bleibt somit entlang der Laserstrahlachse bei der Breite  $w(y)$  erhalten und weist im Ursprung eine Strahlweite  $w_0$  als minimalen Strahlradius auf. In axialer Richtung bildet sich hingegen ein Lorentzprofil, welches durch diejenige Breite  $y_R$  charakterisiert wird, bei welcher die Strahlweite um den Faktor  $\sqrt{2}$  angewachsen ist.  $y_R$  wird dabei als Rayleigh-Länge bezeichnet und lässt sich mit der Wellenlänge  $\lambda$  des Lasers entsprechend

$$y_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad [80] \quad (2.35)$$

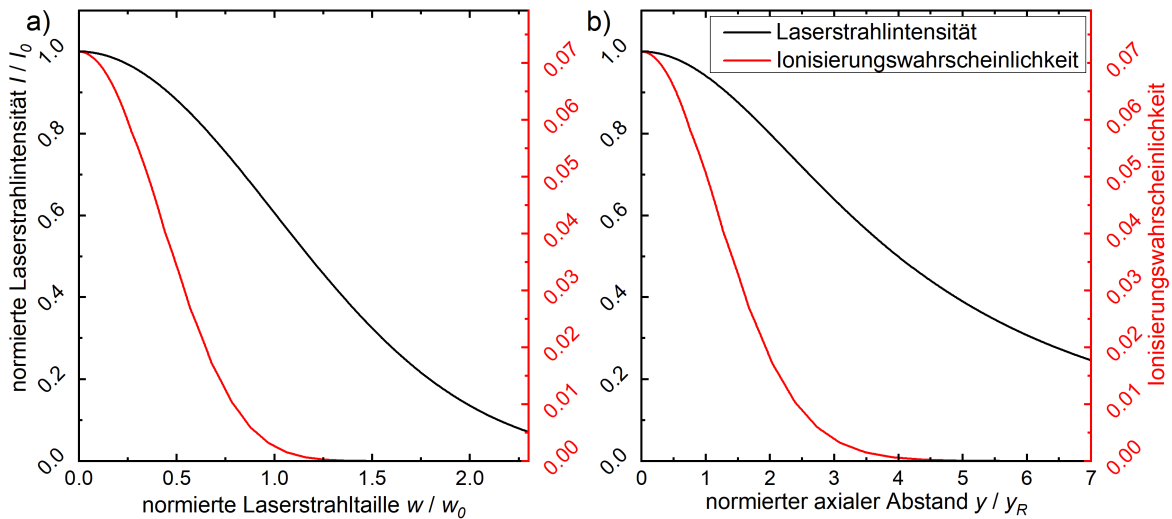
bestimmen. Die Divergenz eines gaußförmigen Strahlenbündels ist dann näherungsweise gegeben durch

$$\theta = \arctan\left(\frac{w(y)}{y}\right) \approx \frac{w_0}{y_R}. \quad [80] \quad (2.36)$$

Mit den Gleichungen 2.33 - 2.36 ist die Intensitätsverteilung im Nahfeld vollständig charakterisiert. Mithilfe der Strahltaile und der Rayleigh-Länge als Maß für die Ausdehnung des Laserprofils kann ein Ionisationsvolumen definiert werden als

$$V_I = \pi w_0^2 y_R, \quad (2.37)$$

welches innerhalb des Ionenbunchers geometrisch auf ein effektives Ionisationsvolumen  $V_I^{\text{eff}}$  reduziert wird (vgl. Gleichung 5.1 in Kapitel 5.1). Anhand der räumlichen Intensitätsverteilung lässt sich nun unter Verwendung der Beziehung von Ionisationswahrscheinlichkeit und Laserintensität aus Abbildung 2.13 eine entsprechende räumliche Verteilung für die Ionisierungswahrscheinlichkeit ableiten. Diese ist exemplarisch (rot) zusammen mit dem entsprechenden Laserprofil (schwarz) in Abbildung 2.15 entlang der Radialkomponente bei  $y = 0$  (a) sowie entlang der Axialkomponente bei  $r = 0$  (b) im Profil skizziert.



**Abbildung 2.15:** Laserstrahlprofile (schwarz) sowie die damit verbundene Ionisationswahrscheinlichkeit (rot) entlang des normierten Laserstrahlradius bei  $y = 0$  (a) sowie entlang der Laserstrahlachse bei  $r = 0$  (b). Die Profile wurden errechnet mit einer Strahltaile von  $w_0 = 4,25 \mu\text{m}$ , einer Wellenlänge von  $\lambda = 800 \text{ nm}$ , einer daraus resultierenden Rayleigh-Länge von  $y_R = 71 \mu\text{m}$  sowie einer maximalen Laserstrahlintensität von  $I_0 = 1,8 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  [50].

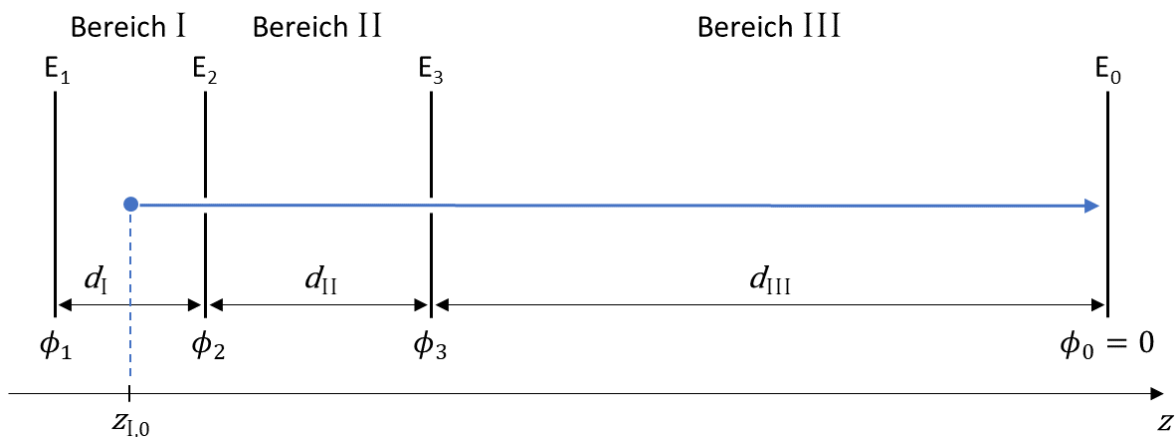
In beiden Fällen ist erkennbar, dass die Ionisationswahrscheinlichkeit deutlich schneller abfällt als das jeweilige Intensitätsprofil, was das damit verbundene Ionisationsvolumen aus Gleichung 2.37 erheblich einschränkt.

## 2.3 Flugzeitfokussierung

Für den Nachweis der durch den Laser ionisierten Teilchen in der Gasphase existieren mehrere Methoden, wie z.B. mithilfe eines Quadrupol-Massenspektrometers [81]. Die meisten dieser Methoden erlauben die eindeutige Differenzierung der verschiedenen Teilchensorten anhand ihres Masse-zu-Ladungsverhältnis  $m/q$ . Dabei unterscheidet man prinzipiell zwischen einem Massensfilter, bei dem nur ein bestimmtes Verhältnis selektiv untersucht wird, und der Massenspektrometrie, bei der alle Spezies nach ihrem  $m/q$ -Verhältnis aufgelöst werden können. Eine etablierte Methode ist dabei die Flugzeit-Massenspektrometrie [82], bei welcher die Ionen mithilfe von elektrischen Feldern um die gleiche kinetische Energie beschleunigt werden und die Selektion der einzelnen Spezies aufgrund der unterschiedlichen Flugzeiten erfolgt. Dazu müssen die elektrischen Felder unter Berücksichtigung der Geometrie derart gewählt werden, dass das Massenspektrometer flugzeitfokussierende Eigenschaften am Ort der Ionisation für alle  $m/q$  besitzt. Dabei soll die Flugzeitfokusbedingung unter kleiner Variation der Startortverteilung erhalten bleiben. Da die Flugzeitfokussierung auch entscheidend für die Erzeugung der ultrakurzen Ionenpulse ist, wird in diesem Kapitel die theoretische Beschreibung der Flugzeitfokussierung nach Wiley und McLaren [83] zuerst allgemein in Kapitel 2.3.1 beleuchtet und anschließend in Kapitel 2.3.2 für das Massenspektrometer und in Kapitel 2.3.3 für den Ionenbuncher separat diskutiert.

### 2.3.1 Allgemeine Überlegungen und Flugzeitfokussierung 1. Ordnung

Betrachtet wird der allgemeine Fall eines linearen, eindimensionalen Flugzeit-Massenspektrometers, dargestellt in Abbildung 2.16.



**Abbildung 2.16:** Schematische Darstellung der Geometrie eines linearen Flugzeit-Massenspektrometers, welches im allgemeinen Fall aus drei Bereichen I, II und III besteht. Die Ionentrajektorie eines im Bereich I erzeugten Ions wird in Abhängigkeit vom Startort  $z_{1,0}$  für die drei Bereiche zunächst separat behandelt und sukzessive auf eine Target-Elektrode  $E_0$  beschleunigt.

Das Spektrometer bestehe aus drei Bereichen, I, II und III, welche durch Elektroden  $E_i$  ( $i = 0 - 3$ ) in den Abständen  $d_j$  ( $j = I - III$ ), voneinander getrennt werden. Sie können dabei jeweils auf ein elektrostatisches Potential  $\phi_i$  gelegt werden, sodass die resultie-

renden elektrischen Felder der Beschleunigung der Ionen dienen. Ort, Geschwindigkeit sowie Beschleunigung lassen sich dabei durch die Bewegungsgleichungen

$$z_j(t) = z_{j,0} + v_{j,0}t + \frac{1}{2}a_j t^2 \quad (2.38)$$

$$v_j(t) = v_{j,0} + a_j t \quad (2.39)$$

$$a_j(t) = a_j = \frac{qe\Delta\phi_j}{md_j} \quad (2.40)$$

beschreiben, mit  $e$  der Elementarladung und  $q$  dem Ladungszustand des Ions. Dadurch lassen sich die jeweiligen Flugzeiten in den drei Bereichen separat berechnen, die Größen  $z$ ,  $v$  und  $a$  werden dabei mit dem jeweils assoziierten Bereich indiziert.

### Bereich I

In Bereich I werden die Ionen durch Photoionisation generiert, wobei zwei Annahmen getroffen werden: Zum einen erfolgt die Erzeugung an einem Startort  $z_{1,0}$  um den Nullpunkt der  $z$ -Achse in der Mitte zwischen den beiden Elektroden  $E_1$  und  $E_2$ . Zum anderen wird die Startgeschwindigkeit der Ionen zunächst vernachlässigt, sodass  $v_{1,0} = 0$ . Daher ergibt sich für die Flugzeit in Bereich I gemäß Gleichung 2.38

$$z_1(t) = z_{1,0} + \frac{1}{2}a_1 t_1^2 \stackrel{!}{=} \frac{d_1}{2}$$

$$t_1 = \sqrt{\frac{d_1 - 2z_{1,0}}{a_1}}. \quad (2.41)$$

### Bereich II

Die Startgeschwindigkeit in Bereich II lässt sich mithilfe von Gleichung 2.39 mit der Flugzeit  $t_1$  aus Gleichung 2.41 bestimmen zu

$$v_{11,0} = v_1(t_1) = a_1 t_1 = \sqrt{(d_1 - 2z_{1,0})a_1}. \quad (2.42)$$

Die Flugzeit  $t_{II}$  lässt sich dann nach Gleichung 2.38 aus der Forderung

$$z_{II}(t) = v_{11,0}t_{II} + \frac{1}{2}a_{II}t_{II}^2 \stackrel{!}{=} d_{II}$$

$$t_{II} = \pm \sqrt{\frac{v_{11,0}^2}{a_{II}^2} + 2\frac{d_{II}}{a_{II}} - \frac{v_{11,0}}{a_{II}}} \quad (2.43)$$

ableiten, wobei von der sich ergebenden quadratischen Gleichung nur der positive Teil eine physikalisch sinnvolle Lösung liefert. Mit  $v_{11,0}$  aus Gleichung 2.42 eingesetzt folgt

$$t_{II} = \frac{1}{a_{II}} \left( \sqrt{(d_1 - 2z_{1,0})a_1 + 2d_{II}a_{II}} - \sqrt{(d_1 - 2z_{1,0})a_1} \right). \quad (2.44)$$

Im Fall eines verschwindenden elektrischen Feldes in Bereich II liegt nur eine gleichförmige Bewegung der Ionen vor, weshalb für die Flugzeit im Grenzfall  $a_{\text{II}} \rightarrow 0$  der Zusammenhang

$$t_{\text{II}} = \frac{d_{\text{II}}}{\sqrt{(d_{\text{I}} - 2z)a_{\text{I}}}} \quad (2.45)$$

resultiert, welcher in Kapitel 5.4 benötigt wird.

### Bereich III

Der dritte Bereich wird hierbei feldfrei gewählt, sodass für die Ionen eine gleichförmige Bewegung vorliegt. Unter erneuter Ausnutzung von Gleichung 2.39 lässt sich die Startgeschwindigkeit  $v_{\text{III}}$  berechnen:

$$v_{\text{III},0} = v_{\text{II},0} + a_{\text{II}}t_{\text{II}} = \sqrt{(d_{\text{I}} - 2z_{\text{I},0})a_{\text{I}} + 2d_{\text{II}}a_{\text{II}}}. \quad (2.46)$$

Damit ergibt sich für den Bereich III eine Flugzeit von

$$t_{\text{III}} = \frac{d_{\text{III}}}{v_{\text{III},0}} = \frac{d_{\text{III}}}{\sqrt{(d_{\text{I}} - 2z_{\text{I},0})a_{\text{I}} + 2d_{\text{II}}a_{\text{II}}}}, \quad (2.47)$$

bis sie die letzte Elektrode  $E_0$  treffen. Da der dritte Bereich feldfrei ist, kann der Abstand prinzipiell beliebig gewählt werden.

Die Gesamtflugzeit  $t$  ergibt sich dann aus der Summe der Flugzeiten in allen drei Bereichen:

$$t = t_{\text{I}} + t_{\text{II}} + t_{\text{III}}. \quad (2.48)$$

Sie lässt sich anhand von Gleichung 2.48 als Funktion der Abstände und Potentiale berechnen. Damit sich die Flugzeit für eine Spezies mit festem  $m/q$  unter kleiner Variation des Startortes  $z_{\text{I},0}$  um den Flugzeitfokus bei  $z_{\text{I},0} = 0$  nicht ändert, wird gefordert:

$$\left. \frac{dt}{dz_{\text{I},0}} \right|_{z_{\text{I},0}=0} \stackrel{!}{=} 0. \quad (2.49)$$

Diese sogenannte Flugzeitfokussierung 1. Ordnung führt zu einer Bedingung für die Parameter  $d_j$  sowie  $\phi_i$  (eine Herleitung ist im Anhang zu finden) der Form

$$(1 + \xi) \cdot d_{\text{I}} - 2\xi^2 \cdot d_{\text{II}} - (1 + \xi)\xi^3 \cdot d_{\text{III}} = 0, \quad \text{mit} \quad \xi := \sqrt{\frac{\Delta\phi_{\text{I}}}{\Delta\phi_{\text{I}} + 2\Delta\phi_{\text{II}}}} \quad (2.50)$$

und den Potentialdifferenzen  $\Delta\phi_{\text{I}} = \phi_1 - \phi_2$  sowie  $\Delta\phi_{\text{II}} = \phi_2 - \phi_3$ . Zwar lässt sich aus jeder der  $n$ -ten Ableitung mit der entsprechenden Forderung

$$\left. \frac{d^n t}{dz_{\text{I},0}^n} \right|_{z_{\text{I},0}=0} \stackrel{!}{=} 0. \quad (2.51)$$

eine Bedingung für  $n+1$  unabhängige Parameter aufstellen und so die Flugzeitfokussierung auf die  $n$ -te Ordnung erweitern, in der Praxis ist dies allerdings selten zweckmäßig aufgrund von schon bestehenden geometrischen Einschränkungen für die Abstände  $d_j$ . Daher wird die Flugzeitfokussierung 1. Ordnung im Folgenden für zwei unterschiedliche Fälle diskutiert, welche in den Kapiteln 3.3.2 und 3.4.3 verwendet werden.

### 2.3.2 Flugzeitfokus für das lineare Flugzeit-Massenspektrometer

An das lineare Flugzeit-Massenspektrometer werden folgende geometrische Anforderungen gestellt:

- Der Abstand  $d_I$  soll groß genug sein, damit der senkrecht einfallende Gasstrahl in seiner vollen Breite durch den Bereich I geführt und dort vermessen werden kann.
- Der Abstand  $d_{II}$  soll eine vergleichbare Größe wie  $d_I$  aufweisen, da so in Kombination mit einer hohen Potentialdifferenz in Bereich II die flugzeitfokussierenden Eigenschaften gewährleistet werden.
- Der Abstand  $d_{III}$  soll wesentlich größer als  $d_{II}$  sein, damit Ionen mit gleichem Masse-zu-Ladungsverhältnis möglichst lange fliegen und Ionen mit verschiedenem  $m/q$  leichter voneinander getrennt werden können. Der Bereich III fungiert somit als feldfreie Driftstrecke.

Aus einer geometrischen Abschätzung ergibt sich ein Strahldurchmesser am Ionisationspunkt von  $\lesssim 5$  mm (FWHM), sodass mit  $d_I = 10$  mm die erste Bedingung sichergestellt ist. Der Abstand  $d_{II}$  wird zu 15 mm gewählt und ist auch den Möglichkeiten hinsichtlich des physischen Aufbaus geschuldet (vgl. Kapitel 3.3.2). Der Abstand  $d_{III}$  ergibt sich aus der absoluten Flugstrecke vom Ionisationspunkt bis zum Detektor in der Vakuumkammer, abzüglich der Abstände für die Bereiche I und II, zu

$$d_{III} = 280 \text{ mm} - d_I/2 - d_{II} = 260 \text{ mm}. \quad (2.52)$$

Nach Einsetzen dieser Werte in Gleichung 2.50 lässt sich  $\xi$  numerisch berechnen zu 0,3 und für die Potentialdifferenzen  $\Delta\phi_I$  und  $\Delta\phi_{II}$  resultiert daraus die Beziehung  $\Delta\phi_{II} = 5 \cdot \Delta\phi_I$ . Unter der Bedingung  $\phi_3 = 0$ , damit der Bereich III feldfrei ist, ist somit eine Relation für die beiden Potentiale  $\phi_1$  und  $\phi_2$  zueinander gefunden:

$$\phi_1 = \frac{6}{5}\phi_2. \quad (2.53)$$

### 2.3.3 Flugzeitfokus für die Buncher-Geometrie

Für den Fall des Bunchers, welcher nur aus den Bereichen I und II besteht, vereinfacht sich Gleichung 2.50 wegen  $d_{III} = 0$  zu

$$(1 + \xi)d_I - 2\xi^2 d_{II} = 0. \quad (2.54)$$

Innerhalb des Buncher-Aufbaus soll einerseits die Flugstrecke der Ionen möglichst kurz und andererseits der Potentialabfall in Bereich I möglichst groß sein, um deren absolute Flugzeit zu minimieren. Für den einfachsten Fall, dass das komplette Beschleunigungsfeld im Bereich I mit  $\Delta\phi_I$  vorliegt und in Bereich II  $\Delta\phi_{II} = 0$  ist (d.h.  $\xi = 1$ ), folgt aus Gleichung 2.54, dass

$$d_I = d_{II}. \quad (2.55)$$

## *2 Theoretische Grundlagen*

Damit schließt das Kapitel über die theoretischen Grundlagen. Eine Beschreibung der Überschall-Gasexpansion, insbesondere unter Einfluss von Düsenform und Skimmern, wurde eingangs dargelegt. Daraufhin wurden unterschiedliche laserinduzierte Ionisationsprozesse und die damit verbundene, räumlich verteilte Ionisierungswahrscheinlichkeit illustriert. Die Flugzeitfokussierung 1. Ordnung zur Charakterisierung bzw. zeitlichen Komprimierung der so erzeugten Ionen(-pulse) wurde abschließend ebenfalls diskutiert. Anhand dieser theoretischen Überlegungen wird die experimentelle Umsetzung dieser drei elementaren Komponenten im anschließenden Kapitel 3 realisiert.



# 3 Experimenteller Aufbau

In diesem Kapitel wird der komplette experimentelle Aufbau beschrieben, welcher zur Generierung des kalten Überschall-Gasstrahls mit Argon, der sukzessiven Erzeugung von Argon-Ionen sowie deren Extraktion bzw. Kompression in einen kurzen Ionenpuls verwendet wird. Dabei sind sowohl für die Expansion des Gasstrahls als auch für den stoßfreien Flug der Ionen eine geringe Teilchendichte der Umgebung vonnöten. Aus diesem Grund wird zunächst das Konzept der Düsenstrahlkammer skizziert, welches innerhalb einer Ionisationskammer Ultrahochvakuum-(UHV)-Konditionen sicherstellt. Ferner wird grundlegend zwischen dem experimentellen Aufbau zur Charakterisierung des Gasstrahls und dessen Verwendung in nachfolgenden Experimenten unterschieden. Aus diesem Grund ist das Kapitel dreigeteilt: der erste Teil beschreibt den Aufbau der Vakuumanlage zur Erzeugung des gepulsten Gasstrahls, der zweite Teil befasst sich mit dem experimentellen Aufbau zur Charakterisierung des Gasstrahls und im dritten Teil wird der Aufbau zur Erzeugung der kurzen Ionenpulse erläutert.

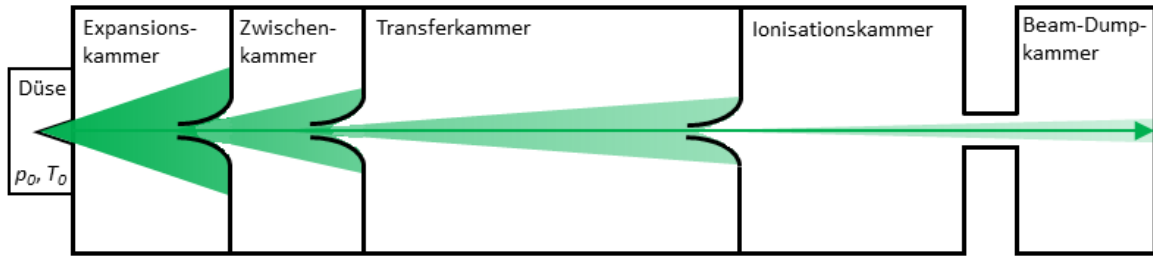
---

3.1	Das Konzept der Düsenstrahlkammer . . . . .	31
3.2	Die Vakuumkammer für die Überschall-Expansion . . . . .	33
3.2.1	Das Piezo-Ventil und die Düse . . . . .	35
3.2.2	Die Skimmer . . . . .	35
3.3	Experimenteller Aufbau zur Vermessung des Überschall-Gasstrahls . . . . .	36
3.3.1	Der Excimer-Laser . . . . .	37
3.3.2	Das Flugzeit-Massenspektrometer . . . . .	37
3.3.3	Der MCP-Detektor . . . . .	38
3.3.4	Zeitliche Abfolge des Experimentes und Timingschema . . . . .	39
3.4	Experimenteller Aufbau mit der Ionisationskammer . . . . .	42
3.4.1	Die Ionisationskammer . . . . .	43
3.4.2	Der Titan:Saphir-Laser . . . . .	44
3.4.3	Der Ionenbuncher . . . . .	48
3.4.4	Der ultraschnelle MCP-Detektor . . . . .	51

---

## 3.1 Das Konzept der Düsenstrahlkammer

Das experimentelle Konzept zur Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse sieht vor, eine Gasexpansion mit einem intensiven Laserstrahl zu kreuzen, um auf diese Weise Ionen mit schmaler Geschwindigkeitsverteilung zu generieren. Die Düse zur Erzeugung des Gasstrahls wird dabei typischerweise bei  $p_0 = 5$  bar betrieben (vgl. Kapitel 3.2.1), was nach Gleichung 2.1 einer Teilchendichte von  $n_0 = 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  entspricht, die im Rahmen dieser Arbeit maximale Laserpeakintensität liegt in einer Größenordnung von  $10^{16} \text{ W cm}^{-2}$  (vgl. Kapitel 5.1.1). Bei dieser Intensität bedarf es eines Teilchendrucks im Gasstrahl im Bereich von  $5 \cdot 10^{-6}$  mbar, um beispielsweise  $10^3$  Argon-Ionen pro Laserschuss im Ionisationsvolumen zu generieren [47], was einer Teilchendichte in der Größenordnung von  $n(x_I) = 10^{11} \text{ cm}^{-3}$  am Ort der Ionisation  $x_I$  entspricht. Anhand von Gleichung 2.9

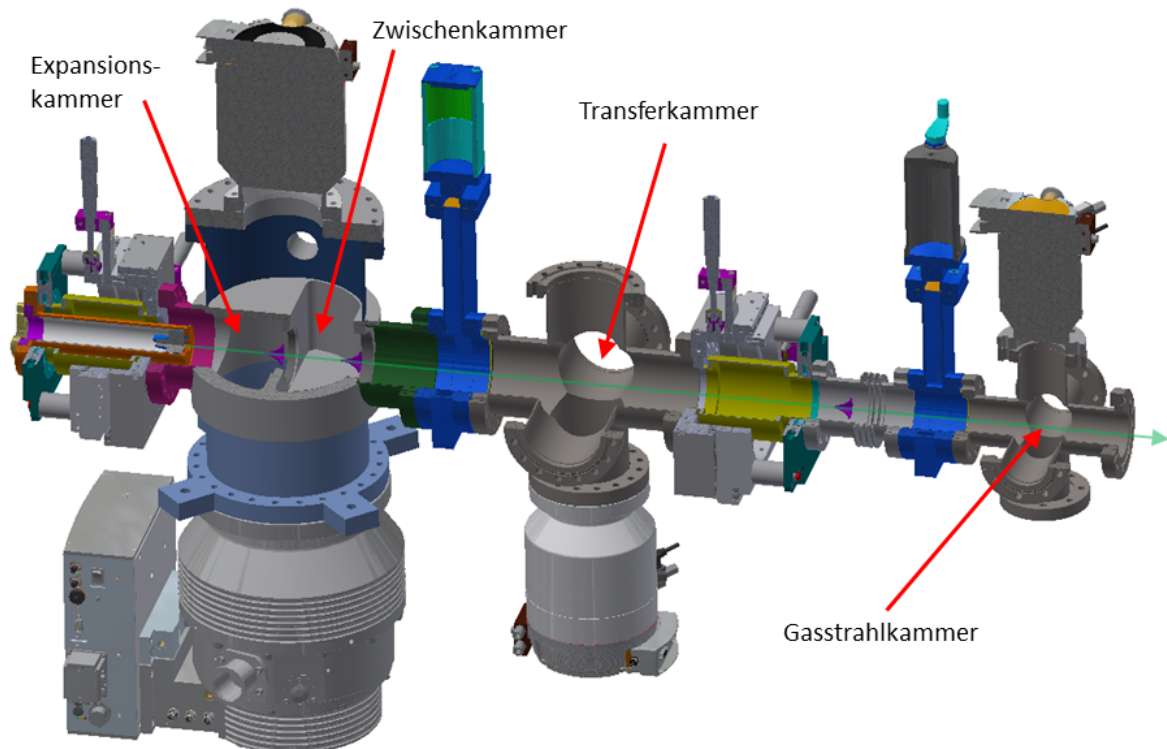


**Abbildung 3.1:** Schematisches Konzept der Vakuumkanern für die Umsetzung des Überschall-Gasstrahls. Die Expansions-, Zwischen- und Transferkammer werden jeweils durch einen Skimmer voneinander getrennt und differenziell gepumpt, sodass die Gaslast der Düsenstrahlexpansion in der ersten Kammer stufenweise reduziert wird (grün skizziert). Der Gasstrahl wird daraufhin über einen weiteren Skimmer in der Ionisationskammer unter UHV-Bedingungen definiert und wird abschließend in einer Beam-Dump-Kammer aufgefangen.

lässt sich für ein  $x_{\text{ref}}$  in der Größenordnung des Düsendurchmessers von einigen  $10 \mu\text{m}$  ein Abstand von  $\Delta x_{\text{I}} \approx 1000 \text{mm}$  zur Düse abschätzen, um diese Teilchendichte bei der Expansion des Gasstrahls zu erreichen. Gleichzeitig müssen am Ort der Ionisation Ultrahochvakuum-Bedingungen ( $\leq 10^{-8} \text{mbar}$ ) vorliegen, damit das Ionensignal aus der Gasexpansion nicht von einem thermisch bedingten Hintergrundsignal überlagert wird und die Zeitauflösung der Ionenpulse zerstört. Um also einerseits den Teilchendruck unter Strahlbetrieb aufzufangen und andererseits UHV-Konditionen am Ort der Ionisation zu gewährleisten, wird ein dreistufiger, differenziell gepumpter experimenteller Aufbau konzipiert, welcher die Gaslast durch die Düse stufenweise auffängt. Abbildung 3.1 skizziert das Schema des Experimentes mit insgesamt fünf Vakuumkanern. Der Gasstrahl expandiert dabei aus einem Reservoir mit den Bedingungen  $p_0$  und  $T_0$  durch die Düse in eine erste Vakuumkaner, welche als Expansionskammer bezeichnet wird und dementsprechend den größten Teil der Gaslast auffängt. Ein erster Skimmer trennt diese Kammer von einer dahinter liegenden Zwischenkammer, welche als zweite differenzielle Druckstufe fungiert. Der Gasstrahl wird daran anschließend durch einen zweiten Skimmer in eine dritte Vakuumkaner geführt. Diese wird als Transferkammer bezeichnet und dient aufgrund ihrer relativ großen Ausdehnung entlang der Expansionsachse der Reduktion von Teilchendichte und Senkrechttemperatur des Gasstrahls entsprechend Gleichungen 2.9 bzw. 2.15. Ein dritter Skimmer definiert daraufhin das Strahlprofil senkrecht zur Ausbreitungsrichtung in der daran anschließenden Vakuumkaner, welche aufgrund der dort stattfindenden laserinduzierten Ionisation der Neutralteilchen und anschließender Extraktion der Ionen als Ionisationskammer bezeichnet wird. Der Strahlengang wird daraufhin durch eine möglichst schmale Öffnung geführt, sodass der Gasstrahl die Ionisationskammer ungehindert passieren kann. Eine abschließende, finale Vakuumkaner wird als Beam-Dump-Kammer bezeichnet und fängt die Gaslast der Expansion auf, sodass keine aus dem Gasstrahl rückgestreuten Neutralteilchen zu einem Hintergrundsignal beitragen können. Die ersten drei Vakuumkanern ermöglichen somit, die Gaslast der Expansion stufenweise zu reduzieren, wohingegen die Beam-Dump-Kammer rückgestreute Neutralteilchen unterbindet. Auf diese Weise können in der Ionisationskammer UHV-Konditionen unter Strahlbetrieb aufrecht erhalten werden. Das anschließende Kapitel beleuchtet die experimentelle Umsetzung des Konzeptes zum Betrieb des Düsenstrahls.

## 3.2 Die Vakuumkammer für die Überschall-Expansion

Der experimentelle Aufbau für den Betrieb des Gasstrahls ist als 3D-Modell im Zeichenprogramm AutoCAD Inventor in Abbildung 3.2 dargestellt.



**Abbildung 3.2:** 3D-CAD-Modell des gesamten experimentellen Aufbaus zur Charakterisierung des Überschall-Düsenstrahls. Die bezeichneten Vakuumkammern entsprechen bis zur Transferkammer dem Konzept aus Abbildung 3.1 und werden um eine Gasstrahlkammer erweitert. Der Strahlengang der Expansion (grün) verläuft von links nach rechts.

Er besteht prinzipiell aus drei Vakuumkammern, welche differenziell gepumpt und durch jeweils ein Plattenventil voneinander getrennt werden können. Die erste Kammer ist zylindrisch gefertigt und zweigeteilt durch eine stufenförmige Trennung, welcher ein Innengewinde der Größe M 70 einbeschrieben ist. Am rechten Rand der Kammer ist in der Kammerwand ebenfalls ein Innengewinde gleicher Größe angebracht. Beide Gewinde liegen dabei zentriert auf einer Achse und erlauben das konzentrische Einschrauben von je einem Skimmer auf Tellern mit passendem Außengewinde. Die Eingänge beider Skimmer legen somit die optische Achse fest, welche im Folgenden Expansionsachse genannt wird. Zentriert zu dieser Achse sind zwei Flansche der Größe DN 100 angeschweißt, welche linksseitig (magenta) den Einlass für ein Piezo-Ventil samt Düse und rechtsseitig (grün) die Verbindung zur zweiten Vakuumkammer ermöglicht. Das Piezo-Ventil zur Erzeugung der Gasexpansion ist in einem Rohr versenkt (orange), welches auf einem zweiachsigen Manipulator (Hositrad HMC 1500-2.3) montiert ist. Dieser erlaubt das Ausrichten der Düse an der Expansionsachse in einem Abstand von etwa 100 mm vor einem ersten Skimmer (lila), sodass dieser den kalten Gasstrahl kollimiert, ohne ihn dabei signifikant aufzuheizen. Ferner ist die Verkipfung zwischen Ebene der Expansion und Ebene des ersten Skimmers einstellbar. Dieser Teil der zylindrischen

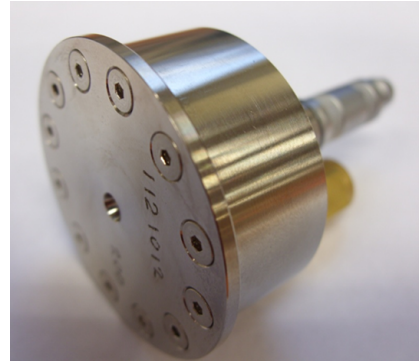
Kammer stellt die Expansionskammer dar. Die eingebauten Komponenten Piezo-Ventil und Skimmer werden jeweils in den Kapiteln 3.2.1 und 3.2.2 näher beschrieben. Der Zylinder ist unten und oben jeweils mit einem Flansch der Größe DN 200 versehen, welche das differenzielle Pumpen beider Kammernteile ermöglicht. Am unteren Flansch (hellblau) ist eine magnetgelagerte Turbomolekularpumpe (Leybold MAG Integra) mit einem Saugvermögen von  $S^{\text{Ex}} = 1000 \text{ l s}^{-1}$  montiert. Sie erlaubt das Abpumpen der Gaslast in der Expansionskammer, welche sich durch den nicht-transmittierten Teil der Gasexpansion am ersten Skimmer ergibt. Am oberen Flansch (dunkelblau) ist eine Turbomolekularpumpe (Leybold TurboVac 350 iX) mit einem Saugvermögen von  $S^{\text{ZK}} = 350 \text{ l s}^{-1}$  befestigt, welche die Gaslast zwischen dem ersten und einem zweiten Skimmer (lila) aufnimmt. Diese beiden Skimmer sind aufgrund der Symmetrie zur Expansionskammer ebenfalls in einem Abstand von etwa 100 mm installiert und begrenzen denjenigen Teil der zylindrischen Kammer, welcher die Zwischenkammer darstellt.

Ein erstes Plattenventil (blau) erlaubt es, die Zwischenkammer von der anschließenden Transferkammer zu trennen, welche aus einem dreiachsigen Kreuzstück besteht. Eine weitere Turbomolekularpumpe (Leybold TurboVac 350 iX) stellt ebenfalls eine differenzielle Pumpstufe mit  $S^{\text{TK}} = 350 \text{ l s}^{-1}$  im laufenden Strahlbetrieb sicher. Abgeschlossen wird die Transferkammer durch einen weiteren zweiachsigen Manipulator (Hositrad HMC 1500-2.3), welcher eine Verschiebung eines dritten Skimmers gegenüber der Expansionsachse ermöglicht. Der Skimmer lässt sich in einem Abstand von 870 mm entfernt von der Düse in den Strahlengang einsetzen und wird für ein Telexperiment komplett entfernt, ein dahinter liegendes zweites Plattenventil (blau) bildet den Abschluss der Transferkammer.

Der Aufbau der dritten Vakuumkammer unterscheidet sich je nach Telexperiment grundlegend. Für die Charakterisierung der Überschall-Gasexpansion wird diese Kammer als Gasstrahlkammer bezeichnet und ebenfalls ein dreiachsiges Kreuzstück verwendet, wie in Abbildung 3.2 gezeigt. Dabei stellt eine Achse die Expansionsachse dar, senkrecht und horizontal dazu wird der Strahlengang eines Excimer-Lasers durch die Gasstrahlkammer geführt. Entlang der dritten Achse wird ein Flugzeit-Massenspektrometer aufgebaut, welches dem Nachweis der durch den Laser ionisierten Neutralteilchen aus dem Gasstrahl dient. Die Funktionsweise des Excimerlasers wird in Kapitel 3.3.1 behandelt, eine detaillierte Beschreibung des eingebauten Flugzeit-Massenspektrometers erfolgt in Kapitel 3.3.2 und der zeitliche Ablauf des Experimentes wird in Kapitel 3.3.4 ausführlich dargestellt. Durch eine Turbomolekularpumpe (Leybold TurboVac 90 iX) mit einem Saugvermögen von  $S^{\text{GK}} = 90 \text{ l s}^{-1}$  wird diese Vakuumkammer ebenfalls differenziell gepumpt und gewährleistet somit UHV-Bedingungen in der Gasstrahlkammer. Für die Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse wird eine zu diesem Zweck gebaute Vakuumkammer verwendet, welche die Ionisationskammer darstellt. Diese Kammer muss speziellen geometrischen Anforderungen genügen, ähnelt jedoch dem prinzipiellen Aufbau der Gasstrahlkammer hinsichtlich der Achsen. Der gesamte Aufbau ist bis zum zweiten Plattenventil identisch und wird anhand von Abbildung 3.9 in Kapitel 3.4.1 detailliert erläutert. Die Gasstrahlkammer wird lediglich durch die Ionisationskammer ersetzt und daran anschließend an dieser Kammer montiert, sie fungiert dann im Rahmen jener Experimente als Beam-Dump-Kammer für den Gasstrahl (vgl. Abbildung 3.1).

### 3.2.1 Das Piezo-Ventil und die Düse

Die Düse (Amsterdam Piezo Valve, MassSpecpecD BV) ist in Abbildung 3.3 gezeigt und lässt sich mithilfe des zweiachsigen Manipulators in der  $yz$ -Ebene verfahren. Sie besitzt einen Durchmesser von  $2R_0 = 150 \mu\text{m}$ , einen konischen Öffnungswinkel von  $40^\circ$  und kann mit jedem atomar oder molekular vorliegenden Gas in einem Druckbereich  $p_0$  von typischerweise 1-15 bar betrieben werden. Ferner ist sie mit einem piezo-gesteuerten Ventil mit einer maximalen Wiederholrate von 5 kHz ausgestattet, welche die Synchronisation mit dem Titan:Saphir-Laser bei einer vergleichsweise hohen Wiederholrate von 1 kHz ermöglicht (vgl. Kapitel 3.4.2). Dies reduziert die von den Turbomolekularpumpen zu verarbeitende Gaslast enorm, ohne die physikalischen Eigenschaften der Überschall-Gasexpansion zu verändern. Nichtsdestotrotz kann das Ventil auch dauerhaft geöffnet werden, um eine stationären Gasstrahl bereit zu stellen. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente sind jedoch alle im gepulsten Modus durchgeführt, um die Gaslast für die Turbomolekularpumpen im laufenden Strahlbetrieb zu reduzieren, ohne die Strahlintensität zu verringern [84]. Ferner lässt sich im gepulsten Modus die Schwerpunktschwindigkeit  $v_{\parallel, \infty}$  experimentell bestimmen (vgl. Kapitel 4.3.1). Die Funktionsweise für das Piezoventil ist detailliert in [85] beschrieben. Das Piezo-Element wird hierbei als freistehender Arm (*Cantilever*) durch Anlegen einer (positiven) Spannung auf die Düse gepresst und blockiert so den Gasfluss. Wird die Spannung entfernt, relaxiert das Piezo-Ventil in seine Ruhelage und der Cantilever öffnet so die Düse; das Gas kann expandieren. Wird nun die Spannung wieder angelegt, klappt das Element wieder nach vorne und blockiert erneut den Eingang zur Düse. Typische Betriebsspannungen liegen dabei in einer Größenordnung von einigen hundert Volt, die hierbei minimal benötigte Blockierungsspannung beträgt  $U_{\text{bl}} = 140 \text{ V}$ . Ein 10-Gang-Potentiometer am *Controller* für das Piezoventil erlaubt das Einstellen der Öffnungsdauer  $\Delta t_{\text{Op}}$  im Bereich von 5-200  $\mu\text{s}$ , das Öffnen des Ventils wird durch einen negativen TTL-Puls von mindestens 5  $\mu\text{s}$  Dauer am Controller ausgelöst. Dieser *Trigger* erfolgt von einem externen Pulsgenerator, welcher die gepulste Expansion mit dem restlichen zeitlichen Ablauf des Experimentes synchronisiert. In Kapitel 3.3.4 wird die Einbettung der Düsenöffnung zur Erzeugung der Gaspulse in den zeitlichen Verlauf des Experimentes behandelt.

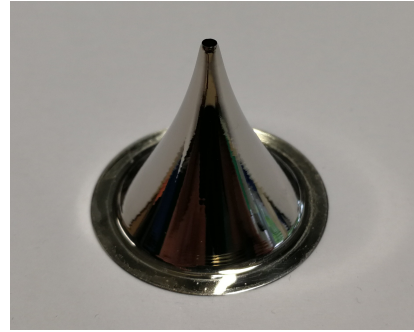


**Abbildung 3.3:** Amsterdam Piezo Valve von MassSpecpecD BV zur Erzeugung einer gepulsten Überschall-Gasexpansion.

### 3.2.2 Die Skimmer

Skimmer sind massive, zylindersymmetrische und annähernd konisch geformte Objekte aus Nickel mit einer Öffnung an ihrer Spitze. Sie werden verwendet, um Gasstrahlen entlang ihrer Ausbreitungsrichtung geometrisch zu beschränken [86, 87]. Wesentliche Parameter sind die Länge eines Skimmers, die Dicke des Materials an seiner Öffnung, der Öffnungswinkel des Profils an Eingang und Basis sowie der Öffnungsdurchmesser. Entsprechend den Überlegungen aus Kapitel 2.1.3.2 ist ein solcher Skimmer (Beam Dynamics) in Abbildung 3.4 exemplarisch dargestellt. Ihre Länge beträgt 25 mm, die

Materialdicke am Eingang  $3\ \mu\text{m}$ , der Öffnungswinkel am Eingang liegt bei  $25^\circ$  und an der Basis bei  $70^\circ$ . Auf diese Weise lässt sich der Gasstrahl ausblenden, ohne dessen Eigenschaften durch Streuung der nicht-transmitierten Teilchen an Eingang oder äußerer Skimmerwand zu zerstören. Lediglich der Durchmesser der drei Skimmer unterscheidet sich: der erste Skimmer besitzt einen Durchmesser von  $d_{S,1} = 1,5\ \text{mm}$ , wohingegen der zweite und dritte Skimmer jeweils einen Durchmesser von  $d_{S,2} = d_{S,3} = 1\ \text{mm}$  aufweisen. Die ersten beiden Skimmer werden auf zylindersymmetrische Teller mit einer konzentrischen Vertiefung zentriert und durch eine Klemme fixiert. Diese Teller sind mit einem Außengewinde der Größe M 70 versehen, um sie in die entsprechenden Gewinde in der Expansionskammer zu schrauben. Die Fassung mit der Klemmvorrichtung ist ebenfalls in einen Flansch eingeschweißt, welcher die Halterung für den dritten Skimmer bildet. In Kombination mit dem zweiachsigen Manipulator und einem Membranbalg-Flansch kann der letzte Skimmer in der  $yz$ -Ebene verfahren werden. Zunächst wird im folgenden Kapitel 3.3 der experimentelle Aufbau zur Vermessung des Gasstrahls beleuchtet, welcher durch den zweiten Skimmer hervorgerufen wird, weshalb der letzte Skimmer zunächst entfernt wird.



**Abbildung 3.4:** Skimmer zur geometrischen Einschränkung einer Überschall-Gasexpansion.

### 3.3 Experimenteller Aufbau zur Vermessung des Überschall-Gasstrahls

Die Konstruktion des Vakuumsystems erfolgt zunächst in einem separaten Labor, da die in dem ausgewiesenen Laserlabor bestehenden und empfindlichen Experimente sowie entsprechende Sicherheitsvorschriften einen Aufbau des Experimentes in diesem Labor unmöglich machen. Dies erlaubt es jedoch, den Gasstrahl zu charakterisieren, indem der Aufbau der Vakuumkammer aus dem vorherigen Kapitel 3.2 um einen gepulsten Laser zur Ionisation der neutralen Gasatome sowie um ein einfaches Flugzeit-Massenspektrometer zum Nachweis der dadurch erzeugten Ionen erweitert wird. Die Laserstrahlachse verläuft dabei horizontal und senkrecht zur Expansionsachse, die Extraktionsachse des Massenspektrometers steht senkrecht auf diesen beiden Achsen und verläuft nach unten. Beide Komponenten werden in den beiden nachfolgenden Kapiteln 3.3.1 und 3.3.2 einzeln erklärt. Die Synchronisation des Experimentes wird anschließend in Kapitel 3.3.4 beleuchtet.



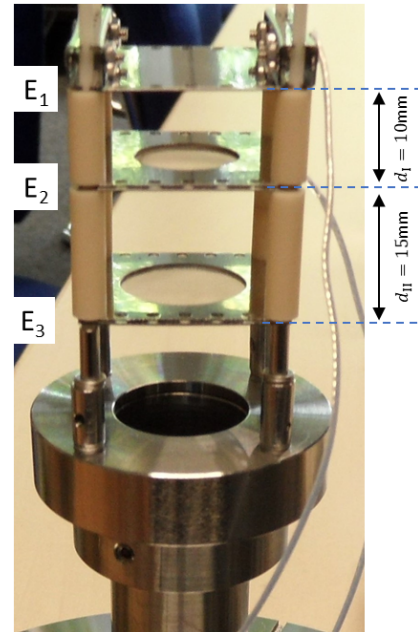
### 3.3.1 Der Excimer-Laser

Der Laser, welcher in diesem Experiment zur Charakterisierung der Teilchendichte im Gasstrahl verwendet wird, ist ein Excimer-Laser von Coherent (ExciStar XS-200). Er wird mit einer Gasmischung aus Fluor (0,11 %) und Helium betrieben, wobei letzteres als Buffergas fungiert. Es erlaubt das Zünden einer Gasentladung innerhalb des Resonators, welches die Bildung eines metastabilen, angeregten  $F_2^*$ -Moleküls bewirkt. Dieses angeregte Molekül relaxiert unter Aussendung von UV-Strahlung in seinen Grundzustand  $F_2$ . Die für die Lasingbedingung notwendige Besetzungsinversion ist nun dadurch gegeben, dass dieses Molekül in seinem Grundzustand schneller zerfällt als die mittlere Lebensdauer des angeregten Moleküls beträgt. In Kombination mit dem Resonator, welcher aus einem reflektierenden und einem teildurchlässigen Spiegel aus beschichtetem  $CaF_2$  besteht, lässt sich somit kohärentes Laserlicht im UV-Bereich erzeugen. Bedingt durch die Gasentladung, welche die notwendigen Energiedichten zur Erzeugung ausreichend vieler  $F_2^*$ -Moleküle ermöglicht, kann ein Excimer-Laser nur inhärent in einem gepulsten Modus betrieben werden. Die Wiederholrate ist hierbei limitiert auf 200 Hz, eine einzelne Entladung kann dabei durch einen externen TTL-Puls von mindestens 5  $\mu s$  Dauer ausgelöst werden. Die mit dem Übergang  $F_2^* \rightarrow F_2$  verbundene Energiedifferenz beträgt 7,9 eV, was einer Wellenlänge von 157 nm im VUV-Spektralbereich entspricht. Die Pulsdauer liegt typischerweise bei 5 ns bei einer Pulsenergie von maximal 3 mJ, das Ausgangsprofil wird durch den Ausgang am Resonator auf 6 mm  $\times$  3 mm (V  $\times$  H) spezifiziert (Herstellerangaben). Es lässt sich mithilfe einer plankonkaven  $CaF_2$ -Linse mit einem Fokus von  $f = 357$  mm anhand der Gleichungen 2.31 auf ein Profil von etwa 800  $\mu m \times$  400  $\mu m$  in der Fokalebene fokussieren, was einer errechneten Laserpeakintensität von  $2 \cdot 10^8$  W  $cm^{-2}$  entspricht. Somit ist das Profil senkrecht zur Gasstrahlachse kleiner als der zu erwartende Durchmesser des Gasstrahls, weshalb ein Rastern des Strahlfokus entlang der vertikalen (Extraktions-)Achse Informationen über das Profil der Strahldichte liefern sollte. Aus diesem Grund ist die  $CaF_2$ -Linse in einen Flansch auf einem dreiachsigen UHV-Manipulator montiert, welcher zum einen das Verfahren des Laserfokus erlaubt und zum anderen die Vakuumkammer von der Atmosphäre trennt. Da nun Sauerstoff in der Umgebungsluft die VUV-Strahlung unter Erzeugung von Ozon absorbieren würde, wird der Strahlengang zwischen Laser und Linse mit Stickstoff gespült.

### 3.3.2 Das Flugzeit-Massenspektrometer

Das Flugzeit-Massenspektrometer wird entsprechend den Berechnungen in Kapitel 2.3.2 und dem damit verbundenen schematischen Aufbau in Abbildung 2.16 aus Bauteilen von *Kimball Physics* im Rahmen einer Bachelor-Arbeit [88] konstruiert. In ein Edelstahlrohr von 210 mm Länge und mit beidseitigen Flanschen der Größe DN 63 wird daher eine Haltevorrichtung installiert, worauf vier Keramikstifte in quadratischer Anordnung montiert werden. Diese stellen das Gerüst für die Elektroden dar, welche das lineare Massenspektrometer bilden. Die unterste Elektrode  $E_3$  besteht aus zwei quadratischen, dünnen Platten mit je einem Loch von 16 mm Durchmesser in der Mitte, zwischen die ein feinmaschiges Netz mit einer Transmission von 0,9 gespannt wird. Diese Kombination wird auf die Stifte gesteckt, wobei Abstandshalter aus Edelstahl einerseits die richtige Höhe gewährleisten und die Elektrode andererseits auf Erdpotential liegt. Der Abstand  $d_{II}$  zu der nächsten Elektrode  $E_2$  wird durch vier Abstandshalter aus Keramik der Länge 15 mm festgelegt. Die Elektrode besteht aus einer weiteren Kombi-

nation von zwei dünnen Platten mit eingespanntem Netz identischer Transmission, der Durchmesser des Loches in dieser Elektrode beträgt 11 mm. Vier weitere Abstandshalter aus Keramik der Länge 10 mm legen den entsprechenden Abstand für den Bereich  $d_I$  fest, in welchem die oberste Elektrode  $E_1$  montiert wird. Auf diese Weise werden die Abstände des Flugzeit-Massenspektrometers entsprechend den Überlegungen aus Kapitel 2.3.2 fixiert.  $E_1$  ist im Gegensatz zu den anderen beiden Elektroden massiv und wird durch abschließende Klammern fixiert, ferner werden die beiden oberen Elektroden  $E_1$  und  $E_2$  getrennt voneinander kontaktiert. Die entsprechenden Kabel werden an dem so aufgebauten linearen Massenspektrometer vorbeigeführt und an zwei UHV-Durchführungen im unteren Teil der Vakuumkammer kontaktiert. Somit lassen sich diese beiden Elektroden separat auf ein definiertes Potential legen. Das so aufgebaute Flugzeit-Massenspektrometer ist in Abbildung 3.5 gezeigt und wird von unten in die Gasstrahlkammer eingebaut. Damit die Ionen auf ihrem Weg zum Detektor nicht durch etwaige Felder, welche durch die Kabel hervorgerufen werden, abgelenkt werden, wird vom Halter der Elektroden bis auf die Höhe der Durchführungen in dem Edelstahlrohr ein weiteres, dünneres Rohr der Länge 160 mm mit einem Durchmesser von 12 mm eingelassen. Dieses Rohr in Kombination mit dem Gitter über dem Detektor stellt dabei sicher, dass die Driftstrecke  $d_{III}$  für die Ionen feldfrei bleibt und vor allem nicht durch diejenigen Potentiale beeinflusst werden, welche durch die Kontaktierungen der Elektroden hervorgerufen werden. Auf der anderen Seite dieses Rohres wird der MCP-Detektor in einem Abstand von 280 mm vom Ort der Ionisation auf einem Flansch (DN 63) montiert. Ein darüber installiertes Gitter dient dem Schutz der aktiven Fläche des Detektors, dessen Funktionsweise nachfolgend dargelegt wird.



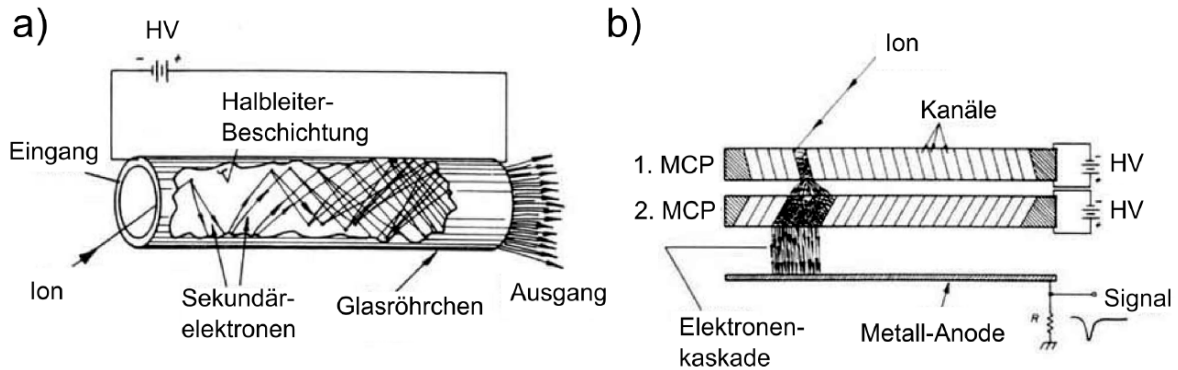
**Abbildung 3.5:** Flugzeit-Massenspektrometer zum Nachweis der Ionen aus dem Gasstrahl, konstruiert aus drei Elektroden  $E_1 - E_3$  im Abstand  $d_I$  bzw.  $d_{II}$  zueinander.

#### 3.3.3 Der MCP-Detektor

Ein MCP-Detektor eignet sich zum Nachweis einzelner geladener Teilchen (Ionen und Elektronen) sowie Photonen, es kann aber auch als Verstärker für Pulse mit mehreren Ionen dienen. MCP steht dabei für Multi-Channel-Plate (Vielkanalplatte) und besteht aus vielen dünnen Kanälen mit Durchmessern in der Größenordnung von  $10\ \mu\text{m}$  aus Bleiglas, welche in einem Winkel zur Oberflächennormalen von  $10^\circ$  und in einem Abstand von  $\gtrsim 10\ \mu\text{m}$  angeordnet sind. Die beiden Seiten des MCPs sind mit einer dünnen metallischen Schicht zur Kontaktierung versehen, sodass eine Spannung zwischen den Kanaleingängen und -ausgängen angelegt werden kann. Eine resistive Beschichtung der Kanalwände stellt dann ein Potentialgefälle zwischen Eingang und Ausgang sicher. Trifft nun ein Teilchen auf einen Kanal, so werden in diesem Kanal freie Elektronen ausgeschlagen, welche durch die anliegende Spannung in Vorwärtsrichtung beschleunigt werden.



nigt werden. Diese Sekundärelektronen können nun ihrerseits wiederum Elektronen in dem Kanal erzeugen. Somit fungiert jeder einzelne Kanal als Elektronenvervielfacher, wie in Abbildung 3.6 a schematisch gezeigt ist.



**Abbildung 3.6:** Schematische Darstellung eines MCP-Detektors: Prinzip der Elektronenvervielfachung eines einzelnen Kanals (a), Chevron-Anordnung zweier MCPs zur drastischen Verstärkung eines einzeln auftreffenden Ions (b). Die auf einer Metall-Anode auftreffende Elektronenkaskade kann über einen geeigneten Widerstand als Spannungssignal gemessen werden. Entnommen aus [89, 90].

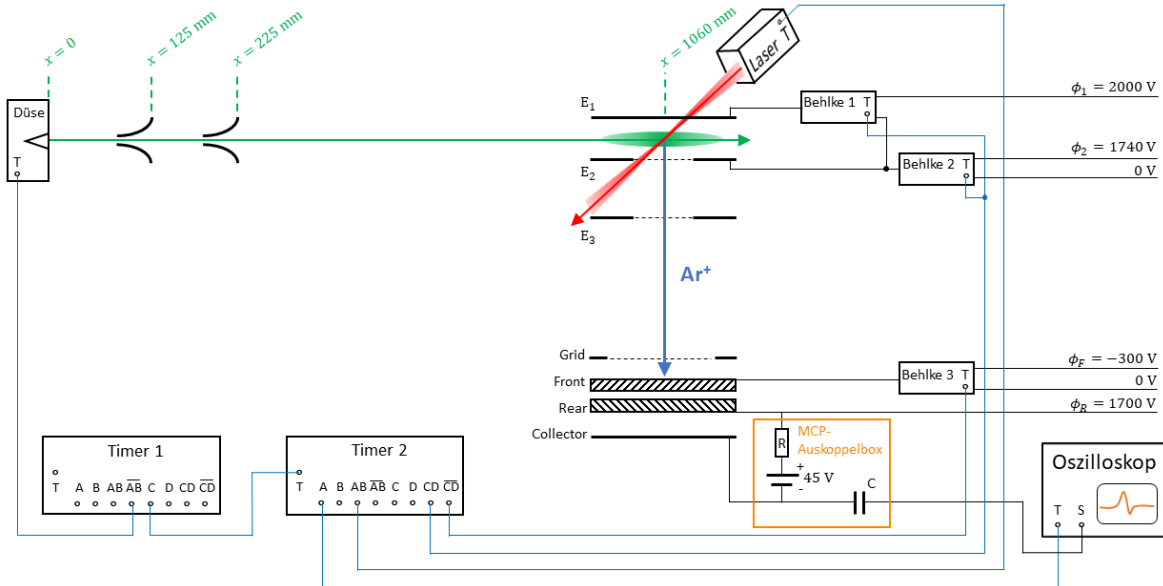
Die Anzahl der letztlich am Ausgang emittierten Sekundärelektronen – und damit die Verstärkung – ist abhängig von der angelegten Spannung, welche in der Größenordnung von 1 kV liegt. Abbildung 3.6 b zeigt schematisch einen MCP-Detektor in Chevron-Anordnung, d.h. mit zwei einzelnen Multi-Channel-Plates hintereinander. Da jedes einzelne MCP mit einer Betriebsspannung von ca.  $-1\text{ kV}$  betrieben werden kann, erlaubt diese Chevron-Anordnung sehr hohe Verstärkungen bei einer gesamten am Detektor angelegten Spannung von  $U_{\text{MCP}} = -2\text{ kV}$  zwischen der mit *Front* bezeichneten Vorderseite und der mit *Rear* bezeichneten Rückseite. Die Orientierung der Kanäle zueinander ist dabei um  $180^\circ$  gegeneinander verdreht, um die Durchschlagsfestigkeit dieser Chevron-Anordnung zu erhöhen. Für die Flugzeit-Massenspektrometrie ist der Zeitpunkt des Ioneneinschlags relevant, daher werden die zuletzt emittierten Elektronen auf einer Metall-Anode eingesammelt, welche daher im Folgenden als *Collector* bezeichnet wird. Dieser so generierte Strompuls kann nun mit geeigneter Messelektronik ausgewertet werden, welche im folgenden Kapitel 3.3.4 skizziert wird.

#### 3.3.4 Zeitliche Abfolge des Experimentes und Timingschema

Da der Excimer-Laser einen hohen Anteil an Streulicht im UV-Bereich aufweist, kann der MCP-Detektor beim Feuern des Lasers großflächig ausgeleuchtet werden. Dabei werden sehr viele Kanäle des MCPs gleichzeitig angesprochen, welche daraufhin für eine vergleichsweise lange Dauer ( $\sim\text{ ms}$ ) kurzgeschlossen und somit aufgrund der zusammenbrechenden Verstärkung nicht sensitiv für auftreffende Teilchen sind. Dieser als Sättigung bezeichnete Effekt erschwert daher den Nachweis von laserinduzierten Ionen, welche eine Flugzeit im Bereich von  $\mu\text{s}$  aufweisen, oder verhindert ihn sogar gänzlich. Aus diesem Grund wird das Experiment derart betrieben, dass die volle Betriebsspannung  $U_{\text{MCP}}$  am MCP zeitlich erst nach Feuern des Lasers anliegt. Dies verhindert die Sättigung des Detektors aufgrund des Lasers und garantiert damit ausreichend hohe Signale durch Ioneneinschläge. Ferner werden auch das Anlegen der Potentiale an den

### 3 Experimenteller Aufbau

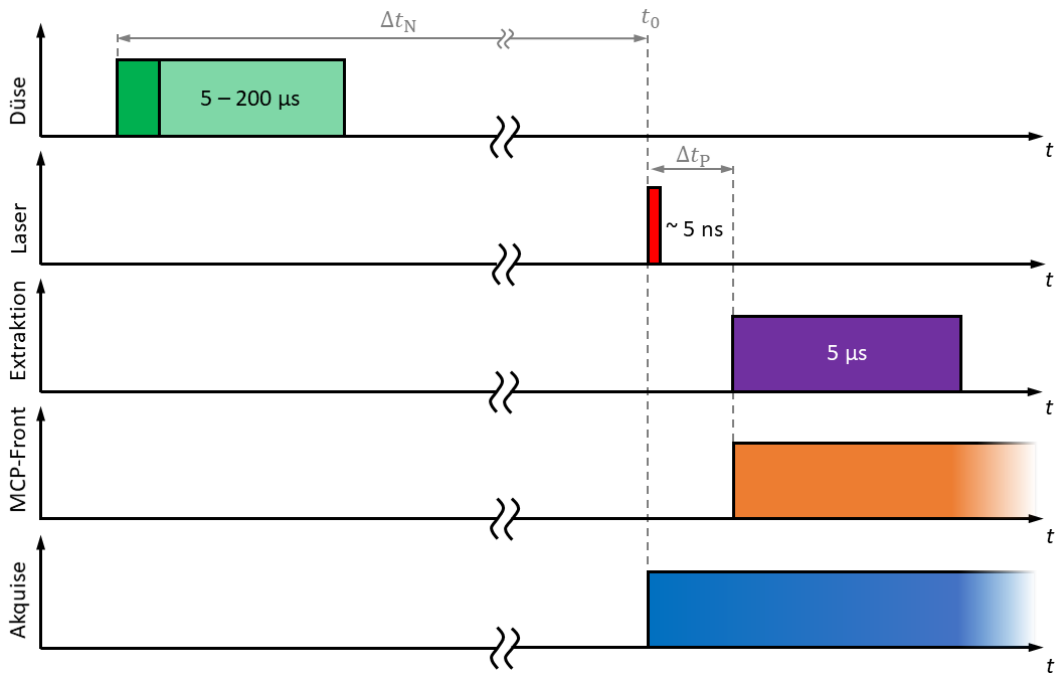
Elektroden sowie das Öffnen der Gasdüse zeitlich aufeinander abgestimmt. Deren Synchronisation im Experiment wird technisch durch zwei digitale Pulsgeneratoren (*Timer*, Stanford DG 535 Digital Delay Pulse Generator) umgesetzt. Diese Timer besitzen jeweils vier einzelne Ausgänge (A, B, C, D) und einen Eingang (externer Trigger) und werden entsprechend Abbildung 3.7 beschaltet.



**Abbildung 3.7:** Schematische Darstellung der Beschaltung der experimentell verwendeten Komponenten, insbesondere hinsichtlich des Timings (blau) und der Hochspannung (schwarz). Zwei Timer garantieren das präzise Schalten der experimentellen Komponenten Düse, Laser sowie der elektrostatischen Potentiale. Erzeugte Ionen können auf den Detektor beschleunigt und anhand ihrer Flugzeit separiert werden, über die Auskoppelbox lässt sich das verstärkte Ionensignal mithilfe eines Oszilloskops auslesen.

Zudem lassen sich über zwei benachbarte Kanäle positive (beispielsweise über Kanal AB) bzw. negative ( $\overline{AB}$ ) TTL-Pulse definierter Dauer generieren, indem die Verzögerung zwischen den einzelnen Kanälen A und B entsprechend eingestellt wird. So wird beispielsweise sichergestellt, dass die Düse einen Triggerpuls von mindestens  $5 \mu\text{s}$  Dauer erhält, um ausgelöst zu werden. Der erste Timer löst daher über den Kanal  $\overline{AB}$  die Düse aus und erlaubt das Regulieren einer Zeitverzögerung (*Delay*)  $\Delta t_N$  (N für *Nozzle*) zwischen diesem Kanal und Kanal C. Dessen Triggerpuls wiederum startet die Logik des zweiten Timers, an welchem das Feuern des Lasers über Kanal AB und das damit verbundene Erzeugen der Ionen den Referenzzeitpunkt  $t_0$  markiert. Ferner lässt sich nun ein weiteres Delay  $\Delta t_P$  (P für *Potentials*) zum Triggern der Potentiale einstellen. Über den CD-Kanal schaltet ein positiver TTL-Puls die beiden Potentiale an den beiden Elektroden dabei durch zwei Hochspannungsschalter (Behlke HTS 31), welche innerhalb einer Schaltzeit von  $< 200 \text{ ns}$  die gewünschte Hochspannung bereit stellen. Das Potential  $\phi_2 = 1740 \text{ V}$  an dem Hochspannungsschalter für die zweite Elektrode  $E_2$  wird dabei von einem Netzteil (FuG HCN 7E-2000) mit  $+2 \text{ kV}$  Maximalspannung geliefert, das entsprechend höher liegende Potential  $\phi_1 = 2000 \text{ V}$  an  $E_1$  wird über ein erdfreies Netzteil (FuG HCN 14M-3500) mit maximal  $\pm 3,5 \text{ kV}$  Ausgangsspannung zur Verfügung gestellt. Dabei wird diesem Netzteil das Potential  $\phi_2$  als Eingangsspannung übergeben und am Ausgang zuzüglich der eingestellten Spannung an diesem Netzteil als

Potential  $\phi_1$  an den Hochspannungsschalter übergeben. Dies erlaubt, die beiden Potentialdifferenzen  $\Delta\phi_I$  und  $\Delta\phi_{II}$  übersichtlich und unabhängig voneinander einzustellen. Analog dazu wird über einen negativen TTL-Puls aus dem  $\overline{CD}$ -Kanal der Hochspannungsschalter (Behlke HTS 31-03-GSM Push-Pull) ausgelöst, welcher dann ein Potential von  $\phi_F = -300$  V für eine einstellbare Dauer (typischerweise  $5 \mu\text{s}$ ) an die Front-Seite des MCP-Detektors gegen Masse schaltet. Das Potential wird von einem Netzteil (FuG HCN 7E-2000) geliefert und bildet mit einer festen Spannung von  $\phi_R = 1700$  V auf der Rear-Seite, bereit gestellt von einem weiteren Netzteil (Heinzinger PNChp 3500), die nötige Betriebsspannung  $U_{MCP} = -2000$  V. Unter entsprechender Anpassung von  $\Delta t_P$  ist der Detektor für ein einstellbares Zeitfenster somit sensitiv für ankommende Ionen und wird nicht durch das Streulicht des Lasers gesättigt, da bei  $\phi_F = 0$  die herrschende Betriebsspannung von  $U_{MCP} = -1700$  V nicht für eine Elektronenkaskade ausreicht. Zeitgleich mit dem Feuern des Lasers wird der Start der Datenakquise über den Kanal A derart gestartet, dass das verstärkte Signal der auftreffenden Ionen auf dem MCP-Collector ausgelesen werden kann. In Abbildung 3.7 ist dazu auch das Schema zur Auskopplung dieses Signals abgebildet (oranger Kasten). Ein *Battery Pack*, welches eine Spannung von  $45$  V liefert, begünstigt das Einsammeln der Elektronen auf dem Collector, welcher wie das Battery Pack auf dem Potential  $\phi_R$  liegt. Der Kondensator  $C = 100$  nF erlaubt das Auskoppeln der Elektronenpulse, wenn ein Ion auf den Collector trifft und daher eine Potentialänderung als Funktion der Zeit hervorruft, welche durch einen Widerstand  $R = 1$  k $\Omega$  gegen die Hochspannung stabilisiert wird. Der so erzeugte Strompuls kann dann über einen  $50 \Omega$ -Abschluss als Spannungssignal über der Zeit ausgelesen werden, was in diesem Experiment über ein Digitaloszilloskop (Rigol DS1204B Digital Oscilloscope) mit einer Bandbreite von  $200$  MHz erfolgt. Damit ist die minimal aufzulösende Pulsbreite auf  $\sim 5$  ns limitiert, welche ein einzelner Ioneneinschlag hervorrufen kann, und wird mit einer Abtastrate von  $1$  GSa  $s^{-1}$  digitalisiert.

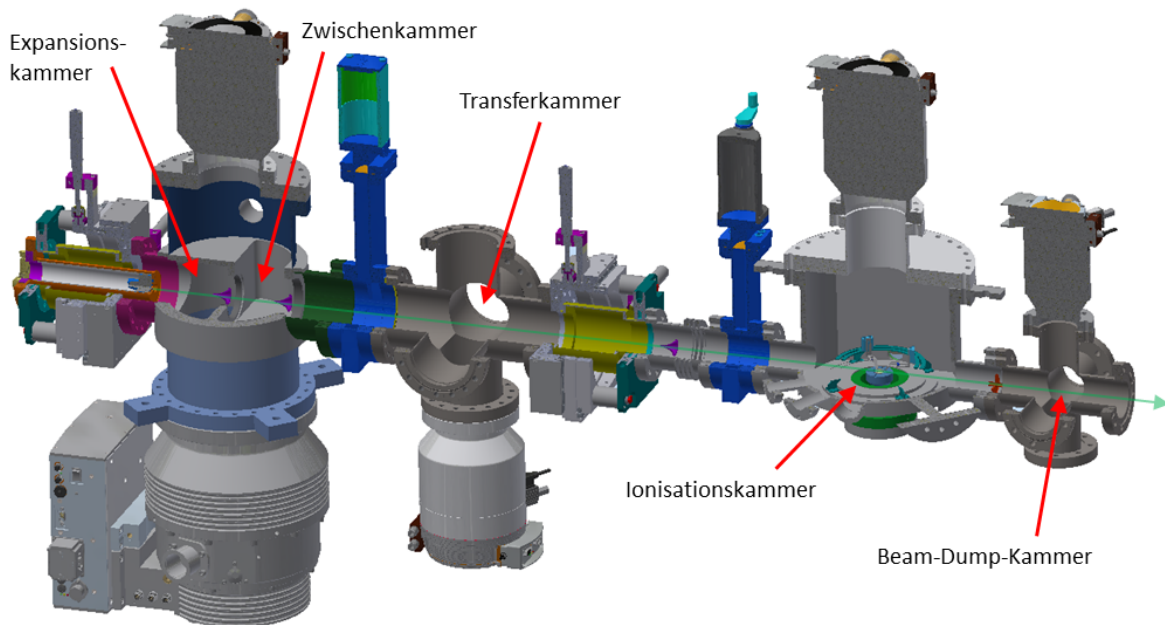


**Abbildung 3.8:** Timingschema zur Vermessung des Gasstrahls. Jede Zeile beschreibt dabei eine Komponente sowie deren Dauer im zeitlichen Ablauf des Experiments, die relevanten Verzögerungszeiten  $\Delta t_N$  und  $\Delta t_P$  sind ebenfalls skizziert.

Um einen Überblick über die Abfolge der verschiedenen Trigger und den damit verbundenen Delays zu erhalten, ist es empfehlenswert, den zeitlichen Ablauf für die Dauer einer Wiederholung des Experimentes zu visualisieren. Dieses *Timingschema* ist in Abbildung 3.8 gezeigt, jede Zeile steht dabei für eine Komponente entlang der Zeitachse  $t$  und  $t_0$  für das laserinduzierte Erzeugen der Ionen als Referenzzeitpunkt. Das Rastern von  $\Delta t_N$  gegenüber  $t_0$  erfolgt dabei in einer Größenordnung einiger  $100 \mu\text{s}$  und offenbart dabei Informationen über die Form eines Gaspulses. Die Größenordnung von  $\Delta t_P$  relativ zu  $t_0$  hingegen liegt im Bereich weniger  $100 \text{ ns}$  und gibt Aufschluss darüber, wie sich die Ionen im Extraktionsvolumen mit der Zeit nach dem Feuern des Lasers verhalten. Beide Effekte werden jeweils in den Kapiteln 4.2.1 und 4.3.1 diskutiert.

## 3.4 Experimenteller Aufbau mit der Ionisationskammer

Der endgültige experimentelle Aufbau, welcher die Ionisationskammer mit einbezieht, ist ebenfalls als 3D-Modell in Abbildung 3.9 gezeigt, welches mit AutoCAD Inventor erstellt wurde. Es stellt denjenigen Aufbau dar, welcher nach der Charakterisierung des Gasstrahls in ein dafür ausgezeichnetes Laserlabor transferiert wird, sodass mithilfe des dort installierten Kurzpuls-Lasers die nötigen Laserpeakintensitäten unter scharfer Fokussierung innerhalb des miniaturisierten Ionenbunchers erreicht werden können.



**Abbildung 3.9:** 3D-CAD-Modell des gesamten experimentellen Aufbaus zur Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse. Dieser ist unterteilt in die bezeichneten Vakuummokammern, wobei die Ionisationskammer im Speziellen beleuchtet wird. Der Strahlengang der Expansion (grün) verläuft von links nach rechts.

Senkrecht zur Expansionsachse wird der Strahlengang des Titan:Saphir-Lasers durch die Ionisationskammer geführt. Beide Achsen verlaufen dabei durch den miniaturisierten Ionenbuncher, welcher der Kompression der Ionenpulse dient und dessen senkrecht zu den Strahlengängen von Gasstrahl und Laser ausgerichtete Symmetrieachse die Extraktionsrichtung vorgibt. Als differenzielle Pumpstufe wird ebenfalls eine Turbomolekularpumpe (Leybold TurboVac 350 iX) an der Ionisationskammer montiert, welche bei

einem Saugvermögen von  $S^{\text{IK}} = 350 \text{ l s}^{-1}$  UHV-Konditionen in dieser Kammer garantiert. Ferner wird in diesem Aufbau das dreiachsige Kreuzstück als letzte Kammer nach der Ionisationskammer installiert, durch ein dünnes Röhrchen ( $\varnothing$  5 mm, rot) von ihr getrennt und fungiert damit als Beam-Dump-Kammer für den Gasstrahl. Dazu ist das Röhrchen, welches aufgrund seiner Funktion im Folgenden als *Beam Dump* bezeichnet wird, mit einer ringförmigen Klemme befestigt, sodass sich dessen optische Achse auf die Expansionsachse anpassen lässt. Diese Kammer wird ebenfalls differenziell mit einer Turbomolekularpumpe (Leybold TurboVac 90 iX) entsprechend mit  $S^{\text{BD}} = 90 \text{ l s}^{-1}$  gepumpt.

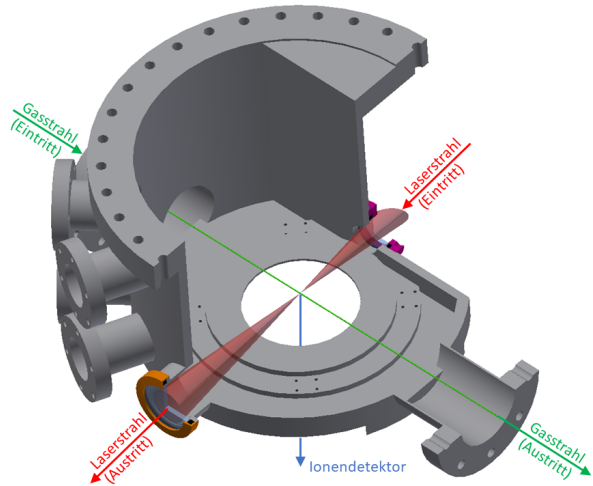
Der Aufbau der Ionisationskammer mit ihren geometrischen Anforderungen wird ausführlich in Kapitel 3.4.1 dargestellt. Anschließend wird die Funktionsweise des Titan:Saphir-Lasers in Kapitel 3.4.2 beschrieben, wobei auch der optische Aufbau zur Einstellung der Laserbedingungen sowie der Aufbau eines Parabolspiegels skizziert wird. Daraufhin wird der Aufbau des Ionenbunchers, und insbesondere der ultraschnelle MCP-Detektor zum Nachweis der Ionenpulse, in Kapitel 3.4.3 detailliert erklärt.

### 3.4.1 Die Ionisationskammer

Das hier vorgestellte Konzept zur Generierung ultrakurzer Ionenpulse ermöglicht es, Ionenpulse mit Pulsdauern in einer Größenordnung von 1 ps zu erzeugen [91]. Da die Zeitauflösung herkömmlicher MCP-Detektoren beispielsweise in einer Größenordnung von  $\sim 0,5 \text{ ns}$  liegt [89], bedarf es indirekter Messmethoden, solche kurzen Ionenpulse letztlich detektieren zu können. Aus diesem Grund wird die Ionisationskammer mit einer optionalen Montage einer Streak-Kamera an die Vakuumkammer konzipiert, sodass ultrakurze Ionenpulse mithilfe einer opto-elektronischen Streaking-Technik in nachgewiesen werden können. Der Flansch einer solchen Streak-Kamera wird mit einem O-Ring gedichtet und weist dabei einen Durchmesser von 140 mm auf, weshalb dessen Ausmaße eine äußere Rahmenbedingung beim Design der Ionisationskammer festlegen. Im Rahmen dieser Arbeit wird jedoch ausschließlich ein ultraschneller MCP-Detektor zum direkten Nachweis der Ionenpulse für die Charakterisierung der Ionenquelle verwendet. Des Weiteren soll die Flugzeit der Ionen möglichst kurz gehalten werden, um einerseits eine mögliche Flugzeitdispersion und andererseits die optische Verzögerung für spätere Anrege-Abfrage-Experimente zu minimieren. Zudem muss der Laser zum einen möglichst scharf fokussiert ( $\sim 10 \mu\text{m}$ ) werden, um die für die Ionisation nötigen Intensitäten erreichen zu können (vgl. Abbildung 2.13 in Kapitel 2.2.2), zum anderen muss der Fokus präzise innerhalb des Ionenbunchers ( $\sim 5 \mu\text{m}$ ) einzustellen sein, um dessen räumlichen Parameterraum charakterisieren zu können (vgl. Kapitel 5.3). Diese drei Faktoren werden daher bei dem Design der Ionisationskammer berücksichtigt, deren Konstruktion im Anschluss detailliert beschrieben wird.

Ein 3D-CAD-Modell in Abbildung 3.10 zeigt die prinzipiell zylindersymmetrisch konzipierte Ionisationskammer mit vier Flanschen der Größe DN 40 für Durchführungen, eine Druckmessröhre sowie einen Gaseinlass mit einem Feindosierventil und einem vergleichsweise großen Durchmesser von 250 mm. Ein Flansch der Größe DN 250 schließt daher die Ionisationskammer als abnehmbarer Deckel oben ab, ein nach unten orientierter Flansch ( $\varnothing$  140 mm) erlaubt eine Montage der Streak-Kamera. Zudem ist die Kammer auf der Eingangsseite des Lasers zu einer „D“-Form abgeflacht, um das Eintrittsfenster für den Laser möglichst nah am Ionisationspunkt im Zentrum der Kammer zu befestigen. Diese laserseitige Kammerwand liegt in einem Abstand von 72 mm von

der Kammermitte und ermöglicht den Aufbau eines Off-Axis-Parabolspiegels mit einer Brennweite von etwa 100 mm auf einem dreiachsigen Manipulator außerhalb der Kammer zur präzisen Einstellung des Laserfokus im Ionenbuncher. Dieser Wand ist ein Loch mit einem Durchmesser von 25 mm einbeschrieben, welches als Eintrittsöffnung für den Laserstrahl dient. Dort lässt sich ein Flansch (lila) mit einem Lasereintrittsfenster befestigen, wobei ein O-Ring aus Fluorkautschuk (Viton, schwarz) die Kombination aus Fenster und Flansch gegen die Ionisationskammer dichtet. Auf der gegenüberliegenden Seite der Kammer ist ein weiterer Flansch (orange) angebracht, an welchem das Laseraustrittsfenster ( $\varnothing$  40 mm) ebenfalls mit einem O-Ring (Viton, schwarz) dichtend befestigt werden kann. Beide Fenster bestehen aus Borosilikatglas (BK7), sind für eine Transmission von 800 nm beidseitig beschichtet und bilden die optische Achse für den Laserstrahlengang. Senkrecht zu dieser Achse sind zu beiden Seiten jeweils ein Flansch für den Gasstrahl an der Kammer angebracht. Diese sind leicht abgesenkt an die Kammer geschweißt, damit die Gasstrahlachse zentriert durch beide Flansche und auf gleicher Höhe wie die Laserstrahlachse verläuft. Beide Achsen sind schematisch in Abbildung 3.10 skizziert, die in deren Schnittpunkt erzeugten Ionen werden nach unten in Richtung des Ionendetektors extrahiert. Dazu wird ein zylindersymmetrischer Flansch von 140 mm – analog zum Flansch der Streak-Kamera – mit einem O-Ring aus Viton gedichtet und von außen mit einem Klemmring an der Kammer befestigt. Dessen andere Seite wird über einen Membranbalg mit einem Flansch der Größe DN 63 abgeschlossen, an welchem der Flansch des MCP-Detektors montiert wird, sodass er möglichst nah von unten an den Ionisationspunkt bewegt werden kann. Die beiden übrigen Elektroden des Ionenbunchers können auf einem Gestell innerhalb der Ionisationskammer montiert werden. Das Design und die Konstruktion des Ionenbunchers wird in Kapitel 3.4.3 behandelt und umfasst dabei die Funktion des ultraschnellen MCP-Detektors im Speziellen. Zunächst wird allerdings der Titan:Saphir-Laser und der damit verbundene optische Aufbau beschrieben.



**Abbildung 3.10:** 3D-CAD-Modell der Ionisationskammer. Die Flansche für das Eintritts- (lila) bzw. Austrittsfenster (orange) legen die optische Achse für den Strahlengang des Lasers fest (rot), die Expansionsachse verläuft von oben links nach unten rechts (grün).

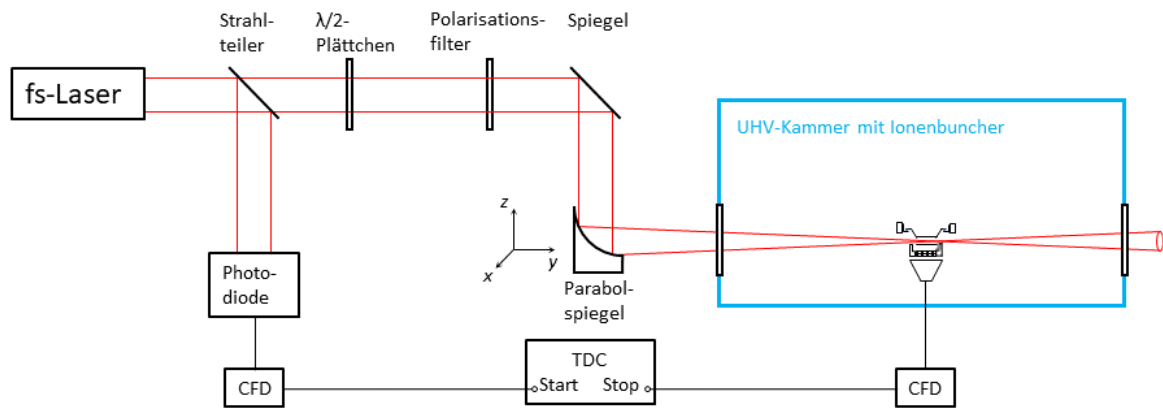
Diese sind leicht abgesenkt an die Kammer geschweißt, damit die Gasstrahlachse zentriert durch beide Flansche und auf gleicher Höhe wie die Laserstrahlachse verläuft. Beide Achsen sind schematisch in Abbildung 3.10 skizziert, die in deren Schnittpunkt erzeugten Ionen werden nach unten in Richtung des Ionendetektors extrahiert. Dazu wird ein zylindersymmetrischer Flansch von 140 mm – analog zum Flansch der Streak-Kamera – mit einem O-Ring aus Viton gedichtet und von außen mit einem Klemmring an der Kammer befestigt. Dessen andere Seite wird über einen Membranbalg mit einem Flansch der Größe DN 63 abgeschlossen, an welchem der Flansch des MCP-Detektors montiert wird, sodass er möglichst nah von unten an den Ionisationspunkt bewegt werden kann. Die beiden übrigen Elektroden des Ionenbunchers können auf einem Gestell innerhalb der Ionisationskammer montiert werden. Das Design und die Konstruktion des Ionenbunchers wird in Kapitel 3.4.3 behandelt und umfasst dabei die Funktion des ultraschnellen MCP-Detektors im Speziellen. Zunächst wird allerdings der Titan:Saphir-Laser und der damit verbundene optische Aufbau beschrieben.

#### 3.4.2 Der Titan:Saphir-Laser

Die Anforderungen an den Laser zur Ionisation der Teilchen im Gasstrahl umfassen eine Pulsenergie von 1 mJ pro Puls bei einer Pulsdauer von  $\sim 50$  fs, um bei dem bereits erwähnten schmalen Fokus von  $\sim 10 \mu\text{m}$  eine entsprechend hohe Laserintensität von  $\sim 10^{16} \text{ W/cm}^2$  bei einer Wiederholrate von 1 kHz zu erreichen. Dazu wird ein Titan:Saphir-Laser von Coherent in einem dafür vorgesehenen Laserlabor verwendet,



welcher aus drei Elementen besteht. Ein Dauerstrich-Laser (Verdi G-Series G2) dient mit einer Ausgangsleistung von 2 W bei einer Wellenlänge von 532 nm als Pump-laser für einen Oszillator (Vitara-T). Dieser beinhaltet einen mit Titan-Ionen dotierten  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Kristall als laseraktives Medium und emittiert breitbandig um eine zentrale Wellenlänge von 800 nm, was einer Energie von 1,55 eV entspricht. Die durch eine Kerr-Linse bedingte Modenkopplung führt dabei dazu, dass der Laser gepulst mit einer Wiederholrate von 80 MHz, einer Pulsdauer von  $\leq 15$  fs und mit einer mittleren Ausgangsleistung von typischerweise 450 mW läuft. Diese Pulse werden abschließend durch einen *Amplifier* (Legend Elite HE+) mit einem integrierten Pump-laser (Revolution-20) bei einer Wiederholrate von 1 kHz verstärkt. So lässt sich eine mittlere Ausgangsleistung von bis zu 3,5 W erzielen, was einer Energie von 3,5 mJ pro Puls bei einer Pulsdauer von 50 fs entspricht. Davon steht für dieses Experiment etwa die Hälfte zur Verfügung, die andere Hälfte teilt sich auf zwei weitere Experimente in dem Laserlabor auf.



**Abbildung 3.11:** Schematische Darstellung des Laserstrahlengangs und den verwendeten (elektro-)optischen Komponenten. Der Strahl lässt sich durch die optischen Elemente  $\lambda/2$ -Plättchen und Polarisationsfilter in seiner Intensität regulieren, ein Parabolspiegel erlaubt das präzise Fokussieren des Lasers zwischen die oberen beiden Elektroden des Ionenbunchers in der UHV-Kammer.

Am Ausgang des Lasersystems ergibt sich ein rotationssymmetrisches, gaußförmiges Strahlprofil mit einem Durchmesser von  $\sim 10$  mm (FWHM) senkrecht zur Ausbreitungsrichtung. Die optischen Komponenten, welche im Strahlengang dieses Gaußstrahles stehen, um diesen schlussendlich in die Ionisationskammer zu fokussieren, werden im Folgenden anhand von Abbildung 3.11 erläutert. Ein Strahlteiler reflektiert etwa 1 % der Intensität auf eine Photodiode (BPW-28), deren Funktion am Ende dieses Kapitels erläutert wird. Der restliche Teil des Strahles passiert ein  $\lambda/2$ -Plättchen, welches die Polarisations-ebene des Strahles parallel zur Expansionsachse definiert. Ein dahinter liegender Polarisator erlaubt nun das Einstellen der transmittierten Intensität als Funktion des eingestellten Drehwinkels zur Polarisations-ebene. Daraufhin wird der Laserstrahl durch einen Spiegel parallel zur Kammerwand auf einen Off-Axis-Parabolspiegel der Fokuslänge  $f = 101,6$  mm reflektiert, welcher ihn in die Ionisationskammer fokussiert. Um den Fokuspunkt präzise innerhalb der Kammer justieren zu können, ist der Parabolspiegel auf einem dreiachsigen Manipulator (Newport 562F-XYZ ULTRAlign) montiert, welcher sich durch passende Schrittmotoren (Newport TRA12PPD) mit einer Genauigkeit von  $\pm 4$   $\mu\text{m}$  entlang aller drei Achsen  $x$ ,  $y$  und  $z$  auf einem Verfahrensweg

von jeweils 12 mm einstellen lässt. Ferner ermöglicht der Halter des Parabolspiegels die Verkippung des Strahlprofils in der Transversalebene. Somit lässt sich der Strahl auf einen Durchmesser in der Größenordnung von  $10\ \mu\text{m}$  (FWHM) fokussieren, was in Kombination mit der angegebenen Ausgangsleistung und Pulsdauer einer maximalen Intensität in einer Größenordnung von  $10^{16}\ \text{W}/\text{cm}^2$  entspricht (vgl. Kapitel 5.1). Diese lässt sich nun entweder durch die bereits erwähnte Kombination aus  $\lambda/2$ -Plättchen und Polarisator oder durch geeignete Abschwächer im Strahlengang reduzieren, um beispielsweise die Ionisierungswahrscheinlichkeit als Funktion der Laserintensität einstellen zu können (vgl. Abbildung 2.13 in Kapitel 2.2.2).

Der eingangs erwähnte kleine Anteil der Strahlintensität, welcher durch einen Strahlteiler auf die Photodiode geleitet wird, löst dort einen Spannungspuls mit einer Dauer von wenigen 10 ps aus, welcher in der Folge als zeitliches Referenzsignal für die Ionenerzeugung genutzt wird. Damit dieses Referenzsignal eine möglichst scharfe Timing-Information liefert, wird es mit einem *Constant-Fraction-Diskriminator* (CFD) prozessiert und auf den Start-Eingang eines *Time-to-Digital-Converters* (TDC) für die Messung der Ionenflugzeit gelegt. Diese beiden Komponenten des experimentellen Aufbaus werden daher nachfolgend kurz erläutert.

#### 3.4.2.1 Der Time-to-Digital-Converter

Der in dieser Arbeit verwendete TDC (Surface Concept TDC-1000, Abbildung 3.12) dient der Messung der Zeitspanne von der Ionenerzeugung durch den Laser bis zu ihrem Auftreffen auf einem geeigneten Detektor (vgl. Kapitel 3.4.4). Der TDC fungiert dabei als schnelle Stoppuhr, welche nach einem Trigger am Start-Eingang mit einer festen Zeitdiskretisierung abfragt, ob ein Stop-Puls am Stop-Eingang registriert wird. Ein solcher Stop-Puls wird dabei durch den Einschlag eines Ions auf der MCP-Oberfläche generiert, sodass der TDC die Flugzeit eines Ions von seiner Erzeugung im Laserfokus bis hin zu seinem Auftreffen registriert. Dabei kann er nicht zwischen einem oder mehreren Ionen unterscheiden, welche zeitgleich den Detektor erreichen, was



**Abbildung 3.12:** TDC von Surface Concepts mit einem Start- und zwei Stop-Eingängen, betrieben im Stop-Stop-Modus. Der erste Stop-Eingang ist für den Start-, der zweite Stop-Eingang hingegen für den Stop-Trigger reserviert.

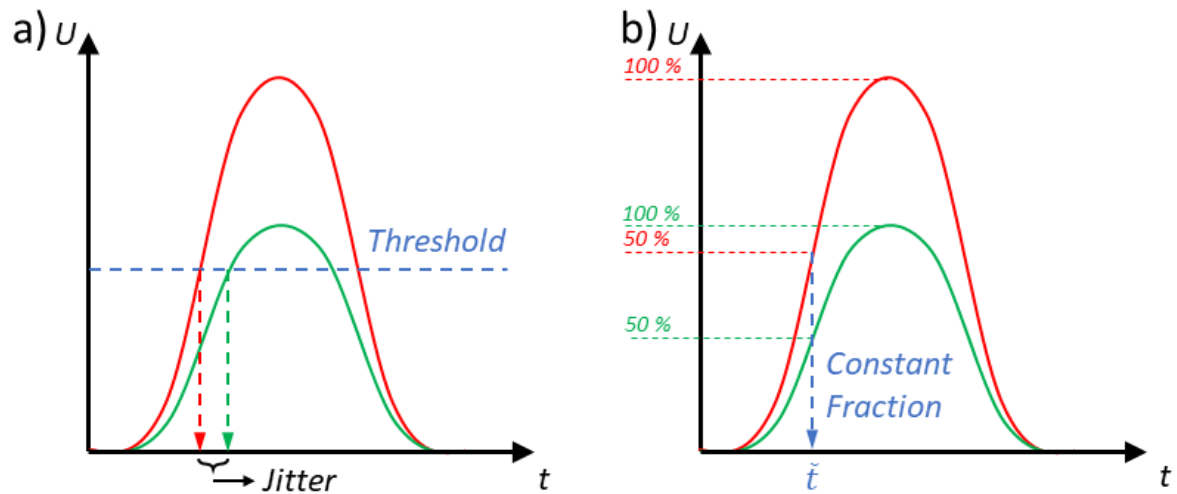
deren Nachweis auf maximal 1 Ion einer Spezies pro Laserpuls limitiert. Durch vielfache Wiederholung einer solchen Messung kann allerdings ein Histogramm über die Flugzeitverteilung einzelner Ionen gemessen werden, welches dann einem Flugzeitspektrum entspricht. Dabei wird dessen Struktur durch zwei messtechnische Faktoren limitiert: Einerseits wird die minimal aufzulösende Flugzeitverteilung von Ionen gleicher Spezies durch die Binbreite im Standard-Modus von 27,4 ps des TDCs festgelegt, eine kürzere Pulsbreite ist mit dieser Messmethodik nur im sogenannten *Burst-Modus* nachzuweisen. Die minimale Auflösung der Pulsbreite wird jedoch durch andere Faktoren festgelegt (vgl. Abbildung 3.19 in Kapitel 3.4.4), weshalb der TDC nur im Standard-Modus betrieben wird. Andererseits wird das Registrieren von Ionen unterschiedlicher Masse-zu-Ladungsverhältnisse – und damit unterschiedlicher Flugzeiten – durch die Totzeit des TDCs begrenzt, welche vom Hersteller auf 2 ns spezifiziert wird. Aus die-



sem Grund reduzieren auf den Detektor treffende  $\text{H}_2\text{O}^+$  die Nachweisempfindlichkeit für  $\text{Ar}^{2+}$ -Ionen (vgl. Kapitel 5.6) bzw.  $\text{Ne}^+$ -Ionen (vgl. Kapitel 7.1.1), welche innerhalb dieser relativ langen Totzeit den Detektor ebenfalls erreichen. Zwar lässt sich das zeitliche Inkrement der Flugzeit zweier Ionen mit aufeinanderfolgendem  $m/q$ -Verhältnis durch geeignete Reduktion des Extraktionsfeldes einstellen. Dies steht allerdings in starkem Kontrast zu der Pulskompression durch ein hohes elektrisches Feld. Da die nachzuweisende Spezies der Ionen ohnehin bekannt ist, fällt der erste Faktor kritischer ins Gewicht im Hinblick auf die Auflösung der Flugzeitverteilung. Dies erfordert allerdings auch, dass der Jitter der Triggerpulse für Start und Stop in einer vergleichbaren Größenordnung liegt, damit die Zeitauflösung erhalten bleibt. Daher wird in beiden Fällen ein CFD verwendet, dessen Funktionsweise kurz skizziert wird.

### 3.4.2.2 Der Constant-Fraction-Diskriminator

Üblicherweise wird die Ankunftszeit von Spannungspulsen, welche als Trigger genutzt werden, durch einen Schwellwertparameter (*Threshold*) abgefragt. Dabei wird derjenige Zeitpunkt registriert, zu dem ein gewisser Spannungswert überschritten wird. Dieser wird daher im Wesentlichen durch die steigende Flanke des ankommenden Pulses definiert. Da sich die Pulsform unter Wiederholung stark unterscheiden kann, beispielsweise durch Intensitätsschwankungen im Laser zwischen einzelnen Pulsen, kann auch der zu registrierende Zeitpunkt fluktuieren. Dieser Effekt wird daher als zeitlicher *Jitter* bezeichnet und ist in Abbildung 3.13 a illustriert.



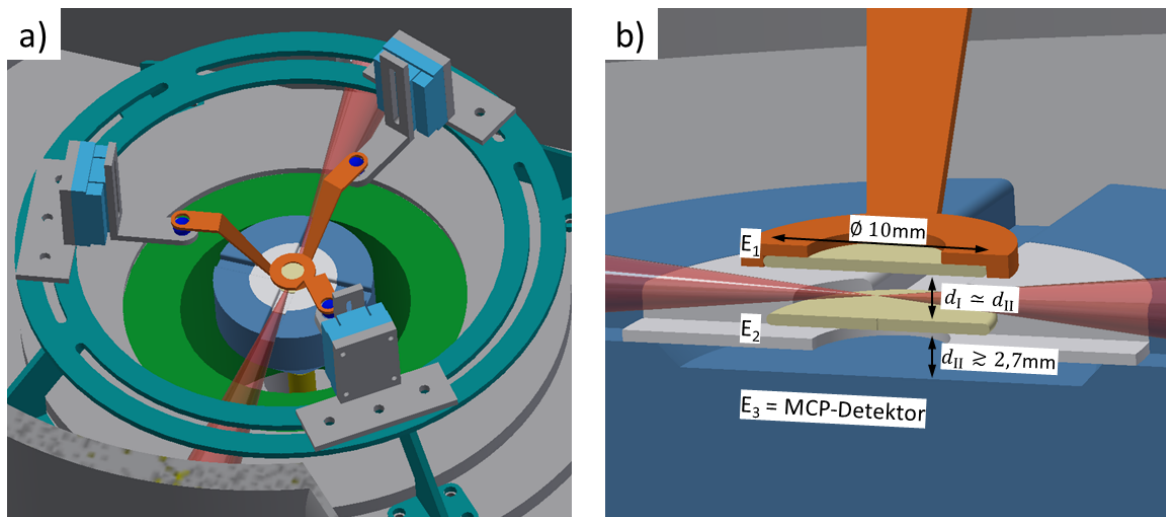
**Abbildung 3.13:** Schematische Darstellung der Ursache eines zeitlichen Jitters durch unterschiedlich hohe Eingangspulse (a). Indem ein Zeitpunkt  $\tilde{t}$  registriert wird, welcher einem festen Anteil der maximalen Signalhöhe entspricht (beispielsweise 50 %), kann das Timing schärfer bestimmt werden (b).

Um diesem Jitter entgegenzuwirken, wird ein CFD benutzt, welcher den Zeitpunkt eines ankommenden Signals über das Verhältnis zu der maximalen Signalhöhe festlegt. Dazu wird beispielsweise das Eingangssignal zuerst aufgeteilt, wobei der eine Teil um eine festgelegte Zeitspanne verzögert wird. Der andere Teil wird hingegen invertiert, in seiner Amplitude mit einem bestimmten Faktor multipliziert und daraufhin zu dem ersten Teil summiert. Der Nulldurchgang des so überlagerten Signals dient dann als Referenzzeitpunkt  $\tilde{t}$ , wie Abbildung 3.13 b für zwei Pulse skizziert, unabhängig von ihrer

ursprünglichen Signalhöhe. Auf diese Weise lässt sich der zeitliche Jitter beispielsweise mit dem für die Photodiode verwendeten CFD (Ortec Model 935 Quad 200-MHz CFD) auf  $\leq 25$  ps reduzieren (Herstellerangabe). Schlussendlich übergibt der CFD einen NIM-Puls auf den Start- bzw.- Stop-Eingang des TDC und startet somit die Zeitmessung.

#### 3.4.3 Der Ionenbuncher

Der Ionenbuncher wird entsprechend den Überlegungen aus Kapitel 2.3.3 aus 3 planparallel angeordneten Elektroden mit möglichst kleinem Abstand zueinander konzipiert, um die Flugzeit der Ionen zu minimieren. Limitiert werden diese Abstände im Wesentlichen von der Durchschlagsfestigkeit der Hochspannung im UHV, welche bei den hier verwendeten Potentialen von  $\leq 5$  kV in der Größenordnung von wenigen mm liegt. Daher wird der Ionenbuncher derart konstruiert, dass diese beiden Elektroden nominell einen Abstand von 2 – 3 mm zueinander bei einem Durchmesser von jeweils 10 mm aufweisen. Diese Miniaturisierung hat mehrere Problematiken zur Folge, welche bei dem Design des Ionenbunchers berücksichtigt werden: Zum einen können bei dieser Dimensionierung der Elektroden(-abstände) prinzipiell homogene elektrische Beschleunigungsfelder zur Extraktion der Ionen gewährleistet werden. Dies erfordert allerdings, alle drei Elektroden separat voneinander mit einer Genauigkeit von  $\sim 1$   $\mu\text{m}$  in ihrer Position bzw.  $\sim 0,1^\circ$  in ihrer Verkippung zueinander *in situ*, d.h. im laufenden Betrieb des Experimentes, einstellen zu können. Zum anderen müssen Gas- und Laserstrahl im Ionenbuncher den Bereich zwischen  $E_1$  und  $E_2$  ungehindert passieren können. Dazu wird eine erste Version des Ionenbunchers konstruiert, welche für die Experimente zu dessen prinzipieller Funktionsweise in Kapitel 5 verwendet wird und in Abbildung 3.14 a in einem 3D-CAD-Modell dargestellt ist.



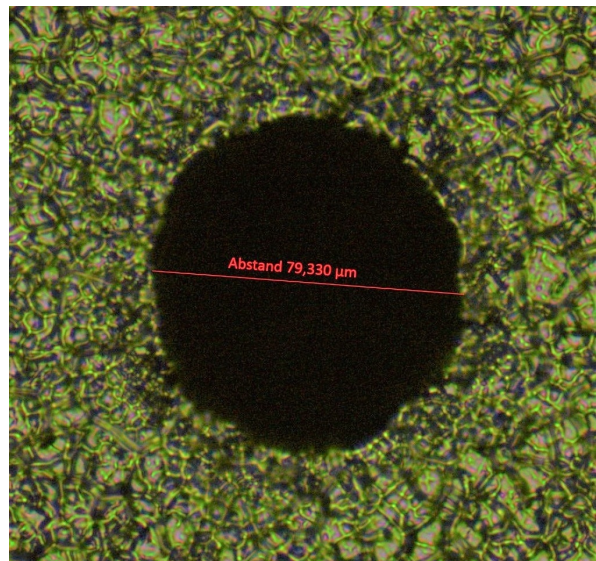
**Abbildung 3.14:** a) Vergrößerter Ausschnitt des Ionenbunchers in der Ionisationskammer. Der Elektrodenhalter für  $E_1$  (orange) liegt über Saphirkugeln (dunkelblau) getrennt auf drei L-förmigen Haltern, jeweils montiert an einem Piezoschrittmotor (hellblau). Der Ionendetektor (blau) fungiert in diesem Aufbau als Elektrode  $E_3$ . b) Detaillierter Schnitt des Ionenbunchers. Der Laserstrahl (rot) wird zwischen  $E_1$  und  $E_2$  (gelb) geführt, eine Macor-Keramik (weiß) fixiert  $E_2$  oberhalb von  $E_3$ .

Dabei werden 3 Piezo-Schrittmotoren (SmarAct SLC-1720, hellblau) jeweils auf einem Halter montiert, welche sich entlang des Gestells (türkis) auf einen beliebigen Winkel fixieren lassen. Auf diese Weise kann die absolute Höhe  $h_1$  der Elektrode  $E_1$ , und damit der Abstand  $d_1$  zu  $E_2$ , präzise (mit  $\leq 1 \mu\text{m}$  Genauigkeit) eingestellt werden. Ferner sind sie jeweils mit einem weiteren, L-förmigen Halter versehen, auf die jeweils eine isolierende Saphirkugel (dunkelblau) in eine Bohrung gelegt werden kann. Die Schrittmotoren für die obere Elektrode sind dabei rotationssymmetrisch in einem Winkel von  $120^\circ$  gegeneinander angeordnet, sodass ein dreiarmer Halter (orange) für  $E_1$  auf die Saphirkugeln gesetzt werden kann. So lässt sich diese Elektrode gegenüber der Gasstrahl- und Laserstrahlachse präzise (mit  $\leq 0,1^\circ$  Genauigkeit) einstellen, wobei sichergestellt ist, dass der Halter unter einer Verkippung  $\leq \pm 5^\circ$  nicht herunter fällt. In diesen Halter wird dann eine planparallele Elektrode mit einem Durchmesser von 10 mm geklebt, um ein leichtes Austauschen im Falle einer Beschädigung zu ermöglichen. An Halter und Elektrode kann dann zusammen ein Potential  $\phi_1$  angelegt werden.

Abbildung 3.14 b zeigt den Ionenbuncher detailliert im Schnitt und insbesondere die Lage der Elektrode  $E_2$  relativ zu  $E_1$  (beide gelb), welche mechanisch fest durch eine Macor-Keramik (weiß) oberhalb der Detektoroberfläche (blau) fixiert wird. Diese Keramik weist dabei eine Dicke von 1 mm auf, unter Berücksichtigung des Abstands zum Detektor von  $\approx 1,2 \text{ mm}$  und der Dicke von  $E_2$  von  $0,5 \text{ mm}$  ergibt sich damit ein fester Abstand für  $d_{II}$  von etwa  $\gtrsim 2,7 \text{ mm}$ . In diese Elektrode  $E_2$  ist dabei ein zentriertes Loch mit einem Durchmesser von  $d = 80 \mu\text{m}$  lasergebohrt (MeKo Laser Materialbearbeitung). Dieses Loch fungiert einerseits als Transmissionskanal für die im Laserfokus erzeugten Ionen und andererseits als Blende für die weit weg von diesem Fokus gebil-

deten Ionen. Abbildung 3.15 zeigt eine Aufnahme eines solchen Loches mit einem Lichtmikroskop, welches eine Quantifizierung des Lochdurchmessers zu etwa  $80 \mu\text{m}$  erlaubt. Des Weiteren verdeutlicht Abbildung 3.14 b die Problematik, den Laserfokus mittig zwischen  $E_1$  und  $E_2$  zu positionieren, sodass das Laserprofil den gesamten Ionenbuncher ungehindert passieren kann. Daher wird sowohl der Ionendetektor als auch die Keramik mit rechtwinklig orientierten Aussparungen versehen, um diese geometrische Anforderung sicherzustellen. Die Elektrode  $E_2$  wird dabei seitlich mit einem Kabel durch Punktschweißen kontaktiert, welches über einen der Kanäle zu einer Durchführung geführt wird. Auf diese Weise kann an  $E_2$  ein Potential  $\phi_2$  angelegt werden.

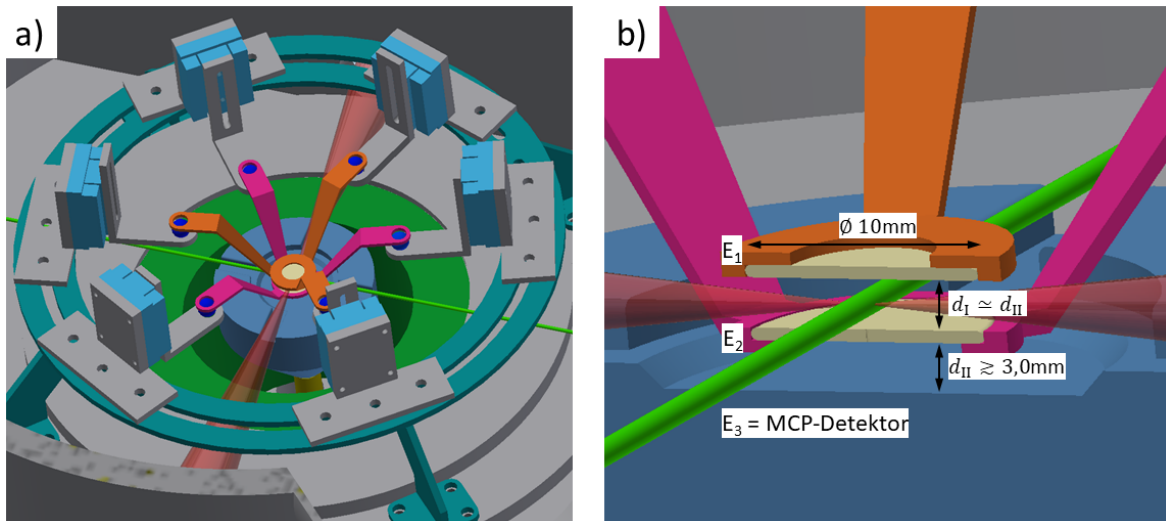
Für den experimentellen Nachweis kurzer Ionenpulse in Kapitel 7 unter Verwendung des Gasstrahls müssen sich alle drei Elektroden in ihrer Position und Verkippung separat variieren lassen. Dazu wird entsprechend Abbildung 3.16 a die Elektrode  $E_2$  (pink) ebenfalls auf 3 Piezo-Schrittmotoren (SmarAct SLC-1720) derart aufgebaut, dass ihre absolute Höhe  $h_2$  sowie Verkippung gegenüber Gasstrahl- und Laserstrahlachse einstell-



**Abbildung 3.15:** Aufnahme des Loches mit einem Durchmesser von  $80 \mu\text{m}$  in der Elektrode  $E_2$  mit einem Lichtmikroskop.

### 3 Experimenteller Aufbau

bar ist. Die Konstruktion für den zweiten Elektrodenhalter verläuft prinzipiell identisch, es muss jedoch berücksichtigt werden, dass die Streben des dreiarmigen Halters weder den Strahlengang des Gasstrahls noch denjenigen des Lasers behindern, wie Abbildung 3.16 b verdeutlicht.



**Abbildung 3.16:** a) Vergrößerter Ausschnitt des Ionenbunchers mit den drei autark beweglichen Elektroden in der Ionisationskammer. Der Ionenbuncher wird um einen Elektrodenhalter für  $E_2$  (pink) mit drei weiteren Piezo-Schrittmotoren analog zu dem Aufbau von  $E_1$  erweitert. b) Neben dem Laserstrahl muss der Gasstrahl (grün) ebenfalls zwischen  $E_1$  und  $E_2$  hindurch geführt werden.

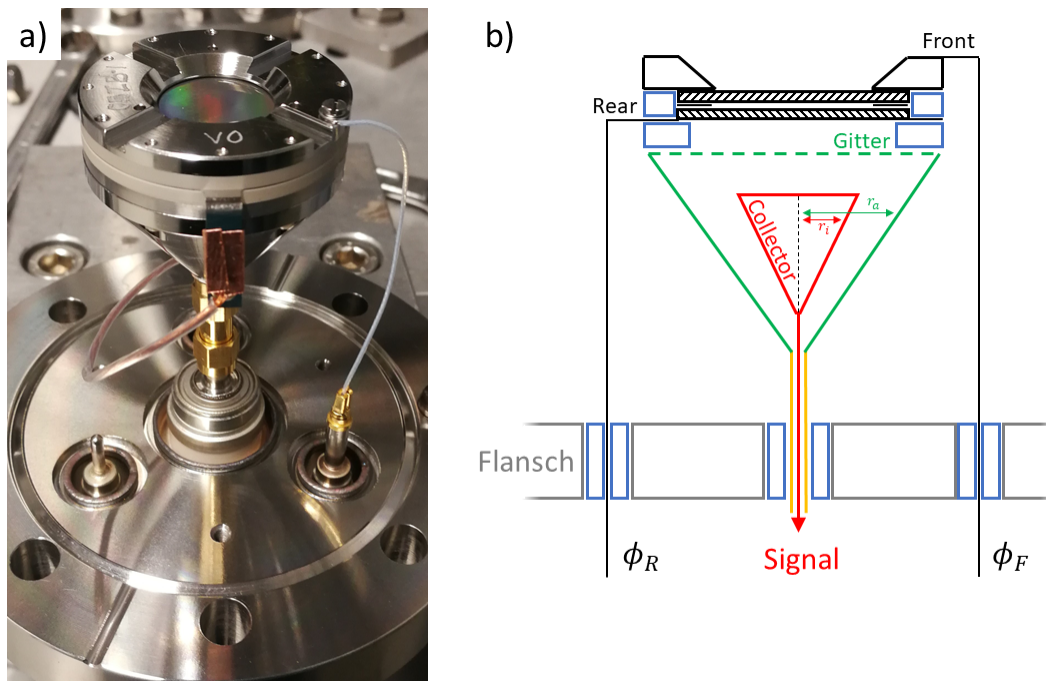
Daher wird dieser Halter spiegelsymmetrisch mit zwei Armen in einem Winkel von  $110^\circ$  zu dem dritten Arm gefertigt. In diesen Halter wird dann die Elektrode  $E_2$  geklebt, welche ebenfalls ein zentriertes, lasergebohrtes Loch mit Durchmesser  $d = 80 \mu\text{m}$  enthält. Oberhalb dieses Loches müssen dann sowohl der Laser- als auch der Gasstrahl geführt werden. Zur mechanischen Absicherung wird in diesem Aufbau eine Keramik aus Macor der Dicke 1 mm gelegt (nicht eingezeichnet, damit die empfindliche aktive Detektorfläche nicht versehentlich durch ein Verfahren der Elektrode  $E_2$  zerstört wird. Der minimale Abstand für  $d_{II}$  erhöht sich damit zu etwa  $\gtrsim 3,0$ , auch bedingt durch die endliche Dicke des Elektrodenhalters von 1 mm für  $E_2$ . Aufgrund dessen Asymmetrie wird dieser Halter in einer festen Orientierung entsprechend Abbildung 3.16 a auf die Saphirkugeln gelegt. Versetzt dazu wird dann der obere Elektrodenhalter orientiert, damit alle sechs Schrittmotoren nahezu äquidistant zueinander auf dem Gestell aufgebaut werden können. Beide Halter werden jeweils an einem ihrer Arme für das Anlegen der Potentiale  $\phi_1$  und  $\phi_2$  kontaktiert, das entsprechende Kabel wird jeweils an einer Hochspannungs-Vakuumdurchführung befestigt. In beiden Versionen des Ionenbunchers können diese beiden Potentiale jeweils durch ein Hochspannungsnetzteil (Heinzinger PNChp 30000) bis zu  $\pm 30 \text{ kV}$  individuell eingestellt werden, aufgrund der geringen Abstände der Elektroden im Buncher zueinander werden jedoch maximale Spannungen von  $\pm 4 \text{ kV}$  verwendet.



Die dritte Elektrode stellt innerhalb des Ionenbunchers das Target dar, auf welches die Ionen beschleunigt und in ihrer Flugzeit fokussiert werden sollen. Im Rahmen dieser Arbeit bildet ein ultraschneller MCP-Detektor die dritte Elektrode, welcher auf einem Flansch in Kombination mit einem Membranbalg montiert ist. Dies erlaubt es mithilfe dreier weiterer Schrittmotoren,  $E_3$  ebenfalls autark in Höhe und Verkipfung einzustellen. Der ultraschnelle Detektor dient hierbei zum einen der Charakterisierung des Ionenbunchers (und damit – in Kombination mit dem Gasstrahl – der gesamten Ionenquelle) und zum anderen dem Nachweis ultrakurzer Ionenpulse. Daher wird dessen Funktionsweise nachfolgend insbesondere hinsichtlich der möglichen Zeitauflösung beleuchtet.

### 3.4.4 Der ultraschnelle MCP-Detektor

Der verwendete ultraschnelle MCP-Detektor (Photonis Gen2 Ultrafast MCP Detector) ist in Abbildung 3.17 real (a) und schematisch (b) dargestellt und unterscheidet sich deutlich zum MCP-Detektor in Kapitel 3.3.3.



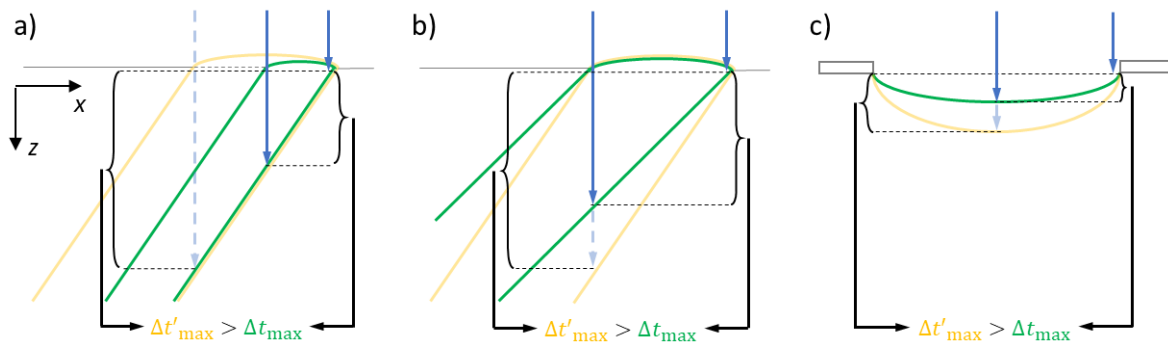
**Abbildung 3.17:** a) Ultraschneller MCP-Detektor zum Nachweis ultrakurzer Ionenpulse. Die Aussparungen ermöglichen es ferner, die Strahlengänge von Gas- und Laserstrahl nahe der aktiven Fläche entlangzuführen. b) Schematische Darstellung des Detektors. Die Front- und Rear-Seite können separat beschaltet werden und erlaubt eine Nachbeschleunigung der Sekundärelektronen zwischen Rear und Gitter (grün) auf den Collector (rot). Isolierende Elemente sind blau skizziert, das Signal kann direkt über ein Koaxialkabel ausgekoppelt werden.

Er wird mit einer SMA-Verbindung auf eine entsprechende Durchführung in einem Flansch der Größe DN 63 montiert, in welchen drei weitere Hochspannungsdurchführungen zur Kontaktierung des Detektors eingeschweißt sind. In diesem Setup werden die Front- sowie die Rear-Seite derart separat beschaltet, dass das Potential an der Rear-Seite als Referenzpotential für die Front-Seite fungiert. Dazu liefert ein Netzteil (Heinzinger PNChp 3500) ein Potential von bis zu  $\phi_R = -3,0 \text{ kV}$  zur Nachbeschleunigung der

### 3 Experimenteller Aufbau

Elektronen, welches ferner als Eingangsspannung an ein erdfreies Netzteil (FuG HCN 14M-3500) übergeben wird. Dieses Netzteil liefert dann eine zusätzliche Potentialdifferenz von  $\phi_F = -2,0\text{ kV}$  gegenüber  $\phi_R$  und bildet so die Versorgungsspannung  $U_{MCP}$  für den MCP-Detektor. Des Weiteren erlaubt ein dahinter liegendes Gitter auf Erdpotential eine Nachbeschleunigung der Elektronen durch Anlegen einer Potentialdifferenz zwischen Rear und Gitter. Diese Beschaltung ermöglicht es somit, die Betriebsspannung und die Nachbeschleunigung des Detektors übersichtlich und unabhängig voneinander einzustellen. Ferner ist der Collector durch eine geometrische Form für ein effektives Auskoppeln kurzer Pulse über die SMA-Verbindung optimiert. Dazu ist das Verhältnis der Radien  $r_i/r_a$  von Collector zur äußeren Abschirmung unter Verjüngung zum Signalangabe konstant (vgl. Abbildung 3.17 b) und auf einen Wellenwiderstand von  $50\ \Omega$  angepasst, sodass das Signal direkt über die SMA-Durchführung auf ein Koaxialkabel ausgekoppelt werden kann. Auf diese Weise können Pulse mit einer Anstiegsflanke von  $94\text{ ps}$  (*rise time*) und einer Abstiegsflanke von  $120\text{ ps}$  (*fall time*) bei einer Breite von  $179\text{ ps}$  (FWHM) generiert werden (Herstellerangaben). Dennoch können einzelne Teilcheneinschläge aufgrund ihrer unterschiedlichen Auftrefforte innerhalb eines Kanals einerseits einen Jitter und andererseits Pulse unterschiedlicher Pulshöhe verursachen, weshalb diese Pulse mithilfe eines weiteren Constant-Fraction-Diskriminators in Kombination mit einem Vorverstärker (Surface Concept 1 Channel Preampflifier/CFD) wie in Kapitel 3.4.2.2 prozessiert werden. Mit diesem CFD lässt sich der Jitter typischerweise ebenfalls auf  $\leq 25\text{ ps}$  reduzieren (Herstellerangabe) und die Zeitauflösung wesentlich verbessern. Der am Ausgang des CFD generierte NIM-Puls ist einige  $100\text{ ps}$  lang und wird auf den Stop-Eingang des TDCs gelegt.

In Bezug auf die generelle Funktionsweise unterscheidet sich der ultraschnelle MCP-Detektor zwar nicht von dem in Kapitel 3.3.3 eingeführten Detektor, er ist jedoch optimiert in Bezug auf die Zeitauflösung des Elektronenpulses in relativ zu einem einzelnen Ioneneinschlag auf dessen aktiver Fläche. Dies wird durch drei Faktoren bei der Fertigung der Kanäle bedingt, deren Effekt anhand von Abbildung 3.18 verdeutlicht wird.



**Abbildung 3.18:** Schematische Darstellung der Optimierung des ultraschnellen MCP-Detektors (grün) gegenüber einem herkömmlichen MCP-Detektor (orange). Zum einen ist der Kanaldurchmesser verkleinert (a), zum anderen der Anstellwinkel erhöht (b). Ferner ist die Beschaffenheit der Oberfläche über der gesamten Detektorfläche für kurze Pulse modifiziert (c), sodass insgesamt die Pulsbreite  $\Delta t$  gegenüber derjenigen Breite  $\Delta t'$  eines herkömmlichen Detektors verkürzt wird.

Zum einen besitzt jeder einzelne Kanal einen verkleinerten Durchmesser von  $3\ \mu\text{m}$ , wodurch der maximal mögliche Zeitversatz  $\Delta t$  zwischen zwei auftreffenden Teilchen links und rechts in einem Kanal gegenüber der herkömmlichen Verbreiterung  $\Delta t'$  minimiert wird (a). Zum anderen ist der Winkel der Kanäle zur Oberflächennormale auf  $\alpha = 12^\circ$  vergrößert, was die Pulsbreite durch einen verringerten Zeitversatz beim Auftreffen in einem einzelnen Kanal weiter reduziert (b). Zusätzlich ist die Beschaffenheit der Oberfläche des Detektors derart präpariert, dass sich deren Höhe über der gesamten Fläche um nicht mehr als  $\pm 2\ \mu\text{m}$  ändert. Dies reduziert die maximal mögliche zeitliche Abweichung der Flugzeiten zwischen zwei Ionen unterschiedlicher Auftrefforte am Detektor (c). Anhand des Durchmessers und Winkels lässt sich ferner die minimal aufzulösende Pulsbreite des Detektors abschätzen. Dazu wird einerseits der Auftreffort der Ionen auf einen einzelnen Kanal als gleichverteilt und andererseits die Krümmung des Kanals entlang der  $y$ -Achse als vernachlässigbar angenommen. Die Wahrscheinlichkeit, dass ein Ion entlang der  $x$ -Achse einen Kanal mit Radius  $r_D$  trifft, ist dann gegeben durch

$$f(x) dx = \frac{2}{\pi r_D^2} \cdot y(x) dx = \frac{2}{\pi r_D^2} \cdot \sqrt{r_D^2 - x^2} dx \quad \text{für} \quad -r_D \leq x \leq r_D. \quad (3.1)$$

Diese Verteilung lässt sich mithilfe von  $x = z \tan \alpha = v_0 \tan \alpha \cdot t$  in eine Verteilung der Flugzeiten  $t$  umrechnen. Unter Verwendung der Teilchenzahlerhaltung folgt daher aus Gleichung 3.1 als Verteilung für die Flugzeiten

$$\begin{aligned} f(t) dt &= f(x) dx = f(x(t)) \left| \frac{dx}{dt} \right| dt, \quad \text{mit} \quad \frac{dx}{dt} = v_0 \tan \alpha \\ &= \frac{2}{\pi r_D^2} \sqrt{r_D^2 - (v_0 \tan \alpha \cdot t)^2} \cdot v_0 \tan \alpha \cdot t dt \\ &= \frac{2}{\pi t_D^2} \sqrt{t_D^2 - t^2}, \quad \text{mit} \quad t_D = \frac{r_D}{v_0 \tan \alpha}. \end{aligned} \quad (3.2)$$

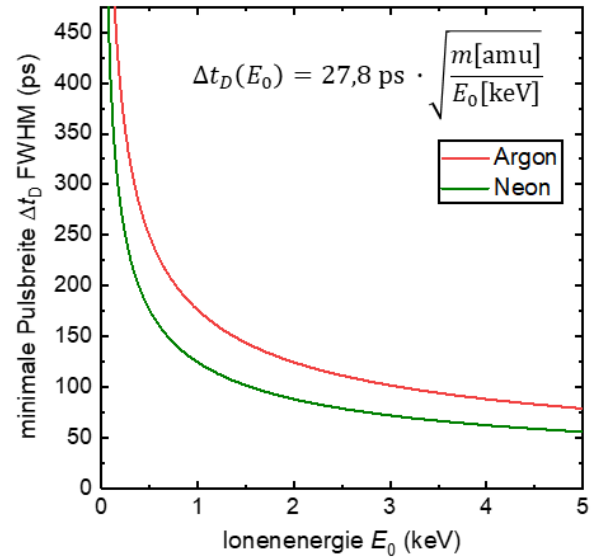
Diese halbkreisförmige Verteilung der Flugzeiten mit Radius  $t_D$  weist geometrisch eine Halbwertsbreite von  $\Delta t_D = \sqrt{3} t_D$  auf, welche wegen  $r_D = 1,5\ \mu\text{m}$  und  $\alpha = 12^\circ$  nur von der Ionenenergie  $E_0$  gemäß  $v_0 = \sqrt{2E_0/m}$  abhängt. Daher kann die Halbwertsbreite der Flugzeitverteilung angegeben werden als

$$\begin{aligned} \Delta t_D &= \sqrt{\frac{3m}{2E_0}} \cdot \frac{r_D}{\tan \alpha} \\ &= 27,8 \text{ ps} \sqrt{\frac{m}{E_0}}, \end{aligned} \quad (3.3)$$

wobei  $m$  in amu und  $E_0$  in keV bemessen werden. Diese minimal aufzulösende Pulsbreite ist in Abbildung 3.19 als Funktion der Ionenenergie für die verwendeten Edelgase

### 3 Experimenteller Aufbau

Argon ( $m_{\text{Ar}} = 40 \text{ amu}$ ) und Neon ( $m_{\text{Ne}} = 20 \text{ amu}$ ) dargestellt. Daran ist ersichtlich, dass sich die Nachweisgrenze des Detektors für  $E_0 \geq 1 \text{ keV}$  nicht drastisch ändert, so dass Flugzeitverteilungen von Ionen in diesem Energiebereich im Rahmen dieser Arbeit nachgewiesen werden. Darüber hinaus wird gezeigt, dass deren Breiten von anderen Faktoren wie der Starttemperatur der Ionen (vgl. Kapitel 5.4) bzw. anderer messtechnischer Limitierung (vgl. Kapitel 7.5) dominiert wird. Für die gemessenen Flugzeitverteilungen stellt diese berechnete minimal aufzulösende Pulsbreite damit zwar eine untere Grenze dar, sie wird aber in keiner der hier präsentierten Messungen für die jeweilige Ionenenergie  $E_0$  erreicht. Insbesondere für kleine Ionenenergien kann die Auflösung des Detektors jedoch einen nicht zu vernachlässigenden Anteil zur gemessenen Pulsbreite ausmachen.



**Abbildung 3.19:** Minimal aufzulösende Pulsbreite  $\Delta t_D$  des Detektors als Funktion der Ionenenergie  $E_0$  für Argon (rot) und Neon (grün).

In diesem Kapitel wurde zunächst der prinzipielle experimentelle Aufbau der ersten drei Vakuumkammern beleuchtet, welcher einen gepulsten Betrieb des Gasstrahls sicherstellt. Daran anschließend wurde der Aufbau des Flugzeit-Massenspektrometers gezeigt, welcher eine Charakterisierung des Überschall-Gasstrahls ermöglicht. Den Abschluss dieses Kapitels bildete der experimentelle Aufbau des Ionenbunchers innerhalb der Ionisationskammer mit dem Titan:Saphir-Laser, insbesondere wurden die messmethodischen Komponenten zum Nachweis ultrakurzer Ionenpulse präsentiert. Das anschließende Kapitel 4 umfasst jedoch zunächst die Charakterisierung des gepulsten Überschall-Düsenstrahls mithilfe des Excimer-Lasers und des Flugzeit-Massenspektrometers.



# 4 Charakterisierung des Überschall-Düsenstrahls

Ein Kernaspekt für die Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse ist ein kaltes Reservoir von neutralen Gasteilchen, welche im Rahmen dieser Arbeit durch eine Überschall-Gasquelle realisiert wird. Neben der (Senkrecht-)Temperatur dieser Gasexpansion sind die räumliche Verteilung und Anzahl der Neutralteilchen kritische Parameter für die Startortverteilung der Ionen sowie deren Anzahl pro Puls. Aus diesem Grund wird zunächst die Funktionsweise des Massenspektrometers entsprechend des Aufbaus in Kapitel 3.3 dargestellt. Daraufhin wird der Überschall-Gasstrahl hinsichtlich seiner räumlichen Ausdehnung mithilfe des Excimer-Lasers charakterisiert. Daran anschließend wird die zentrale Gasstrahldichte als entscheidendes Teilergebnis dieses Kapitels bestimmt.

---

4.1 Ausrichten der Düse an den Skimmern . . . . .	55
4.1.1 Druckverlauf unter Strahlbetrieb in den einzelnen Kammern . . . . .	57
4.2 Funktionsweise des Flugzeit-Massenspektrometers und Massenspektren . . . . .	60
4.2.1 Photoelektronen als mögliche Ursache für Ionenerzeugung . . . . .	62
4.3 Bestimmung des Strahlprofils . . . . .	64
4.3.1 Scan entlang der Strahlrichtung . . . . .	64
4.3.2 Scan senkrecht zur Strahlrichtung . . . . .	67
4.4 Zentrale Gasstrahldichte . . . . .	70
4.4.1 SIMION-Modellierung des Flugzeit-Massenspektrometers . . . . .	71
4.4.2 Bestimmung der zentralen Gasstrahldichte . . . . .	72

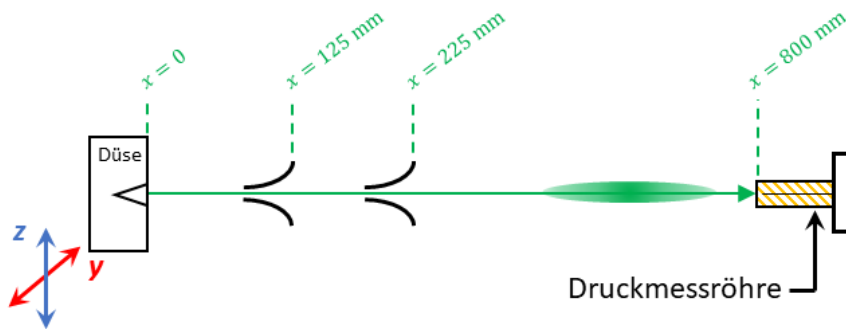
---

## 4.1 Ausrichten der Düse an den Skimmern

Gemäß Abbildung 3.2 sind die Teller mit den beiden Skimmern fest in dem ersten Teil des experimentellen Aufbaus verschraubt und trennen somit die Expansions-, Zwischen- und Transferkammer voneinander. Als Folge davon wird durch die Lage ihrer Öffnungen die Expansionsachse für den Gasstrahl definiert, an welcher die optische Achse der Düsenöffnung über den ersten zweiachsigen Manipulator angeglichen werden kann. Dazu wird die Düse unter Atmosphärenbedingungen zunächst durch eine Laserdiode ersetzt, welche den Strahlengang grob abbildet. Über den Manipulator wird der Halter der Düse dann derart verfahren und verkippt, bis der Laserstrahl beide Skimmeröffnungen passieren und am Ausgang der Transferkammer beobachtet werden kann. Danach wird die Diode wieder durch die Düse ausgetauscht, eine Druckmessröhre mit einer Heißkathode (Leybold IoniVac ITR 90) in den Strahlengang positioniert und der experimentelle Aufbau auf UHV-Bedingungen abgepumpt. Der Druck in Expansions- und Zwischenkammer erreicht dabei die Auflösungsgrenze der Druckmessröhren bei  $5 \cdot 10^{-10}$  mbar, der Druck innerhalb der Transferkammer beläuft sich auf  $< 1 \cdot 10^{-9}$  mbar. Unter gepulstem Betrieb des Gasstrahles mit  $p_0 = 10$  bar, einer Öffnungszeit  $\Delta t_{\text{Op}} = 100 \mu\text{s}$  und einer Wiederholrate von 500 Hz kann anhand der

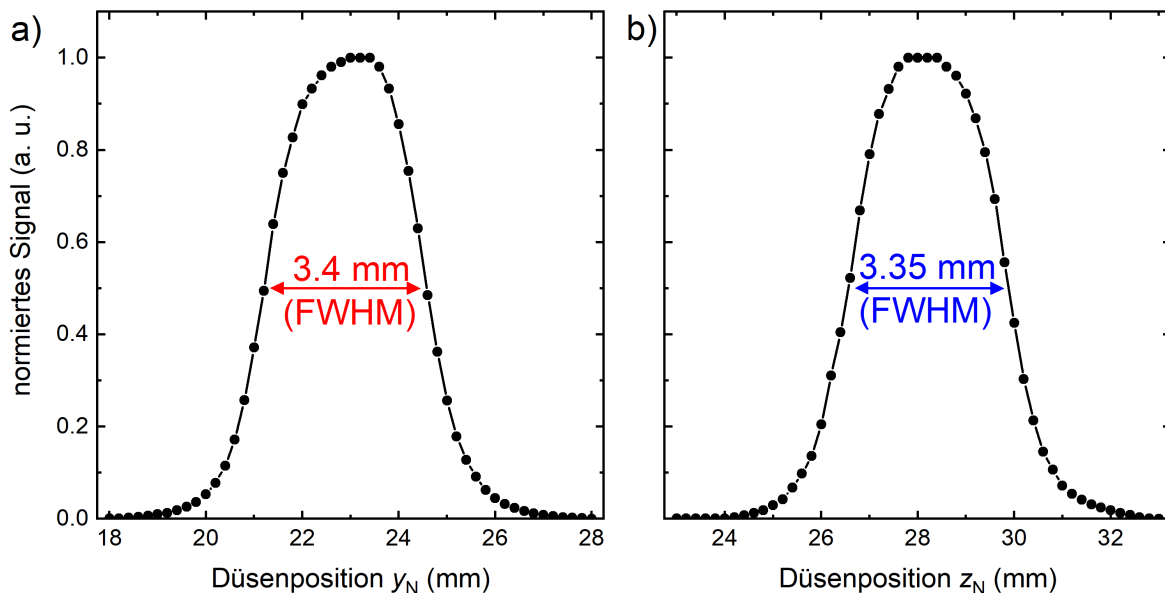
#### 4 Charakterisierung des Überschall-Düsenstrahls

Druckmessröhre am Ende des Strahlengangs in der Transferkammer ein Druckanstieg beobachtet werden. Dieser ist abhängig von dem Transmissionsvermögen als Funktion der Düsenposition in der Expansionskammer, was die experimentelle Bestimmung des Strahlprofils entsprechend des schematischen Aufbaus in Abbildung 4.1 erlaubt.



**Abbildung 4.1:** Schematischer Versuchsaufbau zur Vermessung des Strahlprofils (grün) entlang der  $y$ - (rot) und  $z$ -Achse (blau).

Die Düse lässt sich dabei mithilfe des Manipulators in der  $yz$ -Ebene gegen die Skimmer verfahren, der Druckanstieg der Heißkathoden-Druckmessröhre im Abstand von  $\Delta x_D = 800$  mm wird infolgedessen maximiert. Dazu wird der in der Transferkammer herrschende Restgasdruck zuerst subtrahiert und daraufhin das Messsignal auf das jeweilige Maximum normiert. Abbildung 4.2 zeigt den resultierenden Verlauf entlang der  $y$ -Achse der Düse bei  $z_{N,0} = 28,2$  mm (a) sowie entlang der  $z$ -Achse der Düse bei  $y_{N,0} = 23,0$  mm (b) des Manipulators.



**Abbildung 4.2:** Normiertes Signal der Druckmessröhre unter Variation der Düsenposition entlang der  $y$ - (a) bzw.  $z$ -Achse (b). Der Gasstrahl wird bei  $p_0 = 10$  bar, einer Öffnungszeit  $\Delta t_{Op} = 100$   $\mu$ s sowie einer Wiederholrate von 500 Hz betrieben. In beiden Fällen lässt sich den gemessenen Profilen eine Breite (FWHM) um den Schwerpunkt der Verteilungen bei  $y_{N,0} = 23,0$  mm und  $z_{N,0} = 28,2$  mm als Position maximaler Intensität der Gasexpansion zuordnen.

Es ist erwartungsgemäß ein annähernd symmetrisches Profil um das Strahlzentrum entlang beider Achsen zu beobachten, welches je eine ansteigende und abfallende Flanke aufweist. Dabei ist um das Strahlzentrum jeweils ein kleines Plateau in der Signalhöhe des Profils zu erkennen, welches aus der Faltung des Strahlprofils mit dem endlichen Durchmesser des zweiten Skimmers von  $d_{S,2} = 1$  mm resultiert. Aus den gemessenen Halbwertsbreiten  $\Delta y_N = 3,4$  mm bzw.  $\Delta z_N = 3,35$  mm lässt sich prinzipiell eine Breite des Gasstrahls von 3,25 mm an der Position der Druckmessröhre abschätzen und geometrisch auf eine Breite von etwa 4,3 mm am späteren Ort der Ionisation extrapolieren (vgl. Kapitel 4.3.2). Zunächst wird die Düse auf das nominelle Intensitätsmaximum bei  $(y_{N,0}, z_{N,0})$  positioniert, sodass der Druckverlauf in den einzelnen Kammern unter Strahlbetrieb beobachtet werden kann.

### 4.1.1 Druckverlauf unter Strahlbetrieb in den einzelnen Kammern

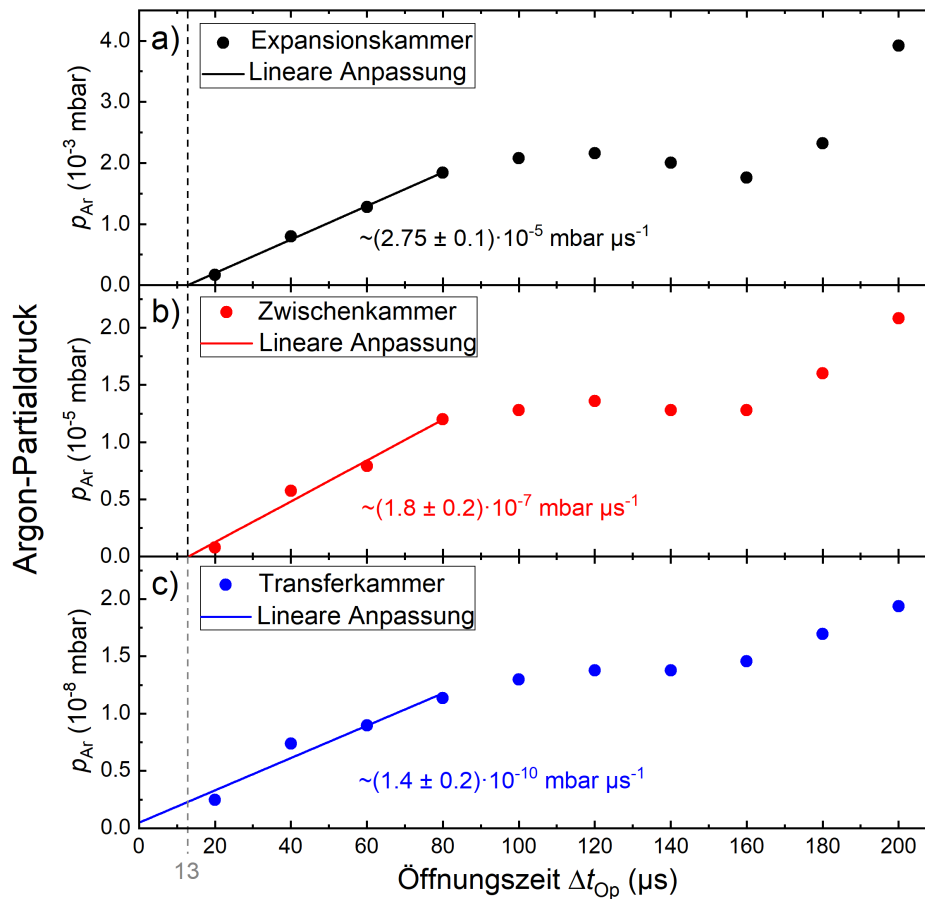
Ein wesentlicher Aspekt des experimentellen Aufbaus ist dessen Vermögen, unter laufendem Betrieb des Düsenstrahls am Ort der Ionisation UHV-Bedingungen zu garantieren (vgl. Kapitel 3.1). Daher wird der Gasstrahl bei einem Druck von  $p_0 = 5$  bar und einer Wiederholrate von 1 kHz betrieben und der Druckanstieg in den drei Kammern mithilfe von drei Heißkathoden-Druckmessröhren gemessen. Daraus lässt sich einerseits der Partialdruck eines Gases  $G$  und andererseits die zugehörige Teilchendichte  $n(p_G)$  entsprechend den Zusammenhängen

$$p_G = \nu \cdot p \quad \text{sowie} \quad n(p_G) = \frac{p_G}{k_B T} \quad (4.1)$$

bestimmen, wobei ein Korrekturfaktor  $\nu$  die Umrechnung des Partialdrucks  $p_G$  eines Gases  $G$  aus dem am Messinstrument angezeigten Druck  $p$  berücksichtigt. Dieser umfasst die Effizienz der Elektronenstoßionisation des Gases innerhalb der Druckmessröhre gegenüber derjenigen von  $N_2$ -Molekülen, anhand dessen die Messröhre kalibriert ist. Tabelle 4.1 beinhaltet die Korrekturfaktoren für verschiedene Gase laut Herstellerangabe, wobei hauptsächlich die Faktoren für Argon und Neon (vgl. Kapitel 7.1.1) für dieses Experiment relevant sind. Abbildung 4.3 schlüsselt dabei den Argon-Partialdruck in jeder einzelnen Kammer als Funktion der Öffnungszeit  $\Delta t_{Op}$  der Düse auf, welcher sich als Gleichgewicht zwischen Gaslast durch die Gasexpansion und der Pumpleistung der jeweiligen Turbomolekularpumpe ergibt. Unter laufendem Strahlbetrieb stellt sich innerhalb der Expansionskammer ein  $p_{Ar}^{Ex}$  in einer Größenordnung von  $10^{-3}$  mbar ein, wohingegen in der Zwischenkammer ein geringerer Argon-Partialdruck von  $10^{-5}$  mbar herrscht. Innerhalb der Transferkammer liegt der Partialdruck bei  $\leq 2 \cdot 10^{-8}$  mbar über den gesamten Bereich der Öffnungszeit, weshalb bereits dort UHV-Bedingungen vorliegen. Der generelle Verlauf stellt dabei ein Charakteristikum der Düse dar und zeigt jeweils einen linearen Anstieg bis  $\Delta t_{Op} = 80 \mu s$  auf, welcher auf eine minimale Öffnungszeit der Düse von  $\Delta t_{Op}^{\min} = 13 \mu s$  extrapoliert werden kann. Ferner kann anhand der Änderung des Partialdruckes  $dp_{Ar}^{Ex}/dt$  in der Expansionskammer die Flussrate und daraus die zentrale Strahlintensität der Gasexpansion abgeschätzt werden. Dazu

Gas	He	Ne	Ar	Kr	Xe	N <sub>2</sub>	O <sub>2</sub>	H <sub>2</sub>
$\nu$	5,9	4,1	0,8	0,5	0,4	1,0	1,0	2,4

**Tabelle 4.1:** Korrekturfaktor der Heißkathoden-Druckmessröhre für verschiedene Edel- und zweiatomige Gase (Herstellerangabe).



**Abbildung 4.3:** Argon-Partialdruck  $p_{\text{Ar}}$  unter Strahlbetrieb in der Expansions- (a), Zwischen- (b) und Transferkammer (c) unter Variation der Öffnungszeit  $\Delta t_{\text{Op}}$  der Düse. Die Düse operiert bei einem Betriebsdruck  $p_0 = 5 \text{ bar}$  und einer Wiederholrate von  $1 \text{ kHz}$ .

wird zunächst die mittlere Gaslast  $Q = p_{\text{Ar}} \cdot S$  pro Puls unter Berücksichtigung der Wiederholrate  $\eta = 1 \text{ kHz}$  im Gleichgewicht entsprechend

$$Q = p_{\text{Ar}} \cdot S_{\text{Ar}} \stackrel{!}{=} N_{\text{Ar}} k_{\text{B}} T_0 \cdot \eta \quad (4.2)$$

abgeschätzt, welche proportional zur mittleren Argon-Teilchenzahl  $N_{\text{Ar}}$  pro Puls ist.  $p_{\text{Ar}}$  bezeichnet dabei den Gleichgewichtsdruck unter Strahlbetrieb und  $S_{\text{Ar}}$  das Saugvermögen der Turbomolekularpumpe für Argon, wofür aufgrund der Geometrie der Expansionskammer eine reduzierte Saugleistung von  $S_{\text{Ar}}^{\text{Ex}} = 500 \text{ l s}^{-1}$  angenommen wird. Daraus lässt sich die Argon-Flussrate  $\dot{N}_{\text{Ar}}^{\text{Ex}}$  durch die Düse in die Expansionskammer abschätzen zu

$$\begin{aligned} \dot{N}_{\text{Ar}}^{\text{Ex}} &= \frac{dp_{\text{Ar}}^{\text{Ex}}}{dt} \cdot \frac{S_{\text{Ar}}^{\text{Ex}}}{k_{\text{B}}T_0\eta} \\ &\quad \downarrow \\ &= (3,3 \pm 0,1) \cdot 10^{20} \text{ s}^{-1}, \end{aligned} \quad (4.3)$$

mit der gemessenen Steigung aus Abbildung 4.3 a von  $dp_{\text{Ar}}^{\text{Ex}}/dt = 27,5 \text{ mbar s}^{-1}$  und  $T_0 = 300 \text{ K}$ . Unter Verwendung eines Peaking-Faktors von  $\kappa = 10$  (vgl. Abbildung 2.7 in Kapitel 2.1.3.1) folgt damit nach Gleichung 2.7 für die zentrale Strahlintensität

$$I_{0,\text{Ar}} = (1,1 \pm 0,1) \cdot 10^{21} \text{ s}^{-1} \text{ sr}^{-1}. \quad (4.4)$$

Unter der Näherung, dass sich diese Intensität für kleine Öffnungswinkel nicht ändert, lässt sich damit die Teilchenflussrate durch die beiden Skimmer durch Integration über den durch deren Öffnung vorgegebenen Raumwinkel abschätzen. Auf diese Weise können die Flussraten  $\dot{N}_{0,\text{Ar}}^{\text{ZK}}$  in die Zwischenkammer durch den ersten Skimmer mit Durchmesser  $d_{\text{S},1} = 1,5 \text{ mm}$  im Abstand  $x_{\text{S},1} = 125 \text{ mm}$  bzw.  $\dot{N}_{0,\text{Ar}}^{\text{TK}}$  in die Transferkammer durch den zweiten Skimmer mit  $d_{\text{S},2} = 1 \text{ mm}$  im Abstand  $x_{\text{S},2} = 225 \text{ mm}$  zu

$$\begin{aligned} \dot{N}_{0,\text{Ar}}^{\text{ZK}} &= I_{0,\text{Ar}} \cdot \left( \frac{d_{\text{S},1}}{x_{\text{S},1}} \right)^2 & \text{sowie} & \quad \dot{N}_{0,\text{Ar}}^{\text{TK}} = I_{0,\text{Ar}} \cdot \left( \frac{d_{\text{S},2}}{x_{\text{S},2}} \right)^2 \\ &\quad \downarrow & & \quad \downarrow \\ &= 1,6 \cdot 10^{17} \text{ s}^{-1} & & \quad = 2,0 \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1} \end{aligned} \quad (4.5)$$

bestimmt werden. Anhand der gemessenen Steigungen von  $dp_{\text{Ar}}^{\text{ZK}}/dt = 0,18 \text{ mbar s}^{-1}$  und  $dp_{\text{Ar}}^{\text{TK}}/dt = 1,4 \cdot 10^{-4} \text{ mbar s}^{-1}$  in Abbildung 4.3 c lassen sich die Flussraten in die Zwischen- und Transferkammer gemäß Gleichung 4.3 jedoch quantifizieren zu

$$\dot{N}_{\text{Ar}}^{\text{ZK}} = (6,5 \pm 0,2) \cdot 10^{17} \text{ s}^{-1} \quad \text{und} \quad \dot{N}_{\text{Ar}}^{\text{TK}} = (1,0 \pm 0,2) \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}, \quad (4.6)$$

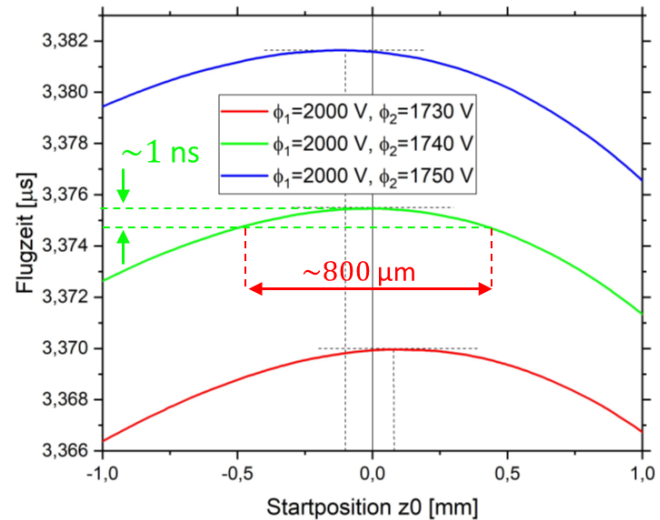
wobei für die Turbomolekularpumpe in der Zwischenkammer ebenfalls eine reduzierte Saugleistung von  $S_{\text{Ar}}^{\text{ZK}} = 150 \text{ l s}^{-1}$  angenommen wird. Damit liegt die gemessene Flussrate um einen Faktor 4 gegenüber dem zu erwartenden  $\dot{N}_{0,\text{Ar}}^{\text{ZK}}$  zu hoch, was aus der Leckrate durch den ersten Skimmer aufgrund der bestehenden Druckdifferenz im Strahlbetrieb resultieren kann. Dies belegt die Notwendigkeit der differentiellen Druckstufe in der Zwischenkammer, da der kleinste Teil der Gaslast in dieser Kammer von dem tatsächlichen Gasstrahl herrührt. Im Gegensatz dazu wird für die Transferkammer ein maximales  $S_{\text{Ar}}^{\text{TK}} = 300 \text{ l s}^{-1}$  angenommen, hierbei ist die gemessene Flussrate unter Vernachlässigung der Leckrate durch den zweiten Skimmer mindestens um einen Faktor 20 kleiner als  $\dot{N}_{0,\text{Ar}}^{\text{TK}}$ . Daraus lässt sich ableiten, dass das Transmissionsvermögen beider Skimmer zusammen  $\leq 5\%$  beträgt, was in der Diskussion um die zentrale Gasstrahldichte in Kapitel 4.4.2 bestätigt wird. Dennoch lässt sich mit dem hier implementierten dreistufigen, differentiellen Pumpschema bereits in der Transferkammer UHV-Bedingungen herstellen, sodass der bisher vorliegende experimentelle Aufbau um die Gasstrahlkammer erweitert wird, um die Überschall-Gasexpansion mithilfe des dort eingebauten Flugzeit-Massenspektrometers charakterisieren zu können.

## 4.2 Funktionsweise des Flugzeit-Massenspektrometers und Massenspektren

Das Flugzeit-Massenspektrometer wird entsprechend Kapitel 3.3.2 aufgebaut und dient dem massenaufgelösten Nachweis von photoionisierten Teilchen aus der Gasexpansion.

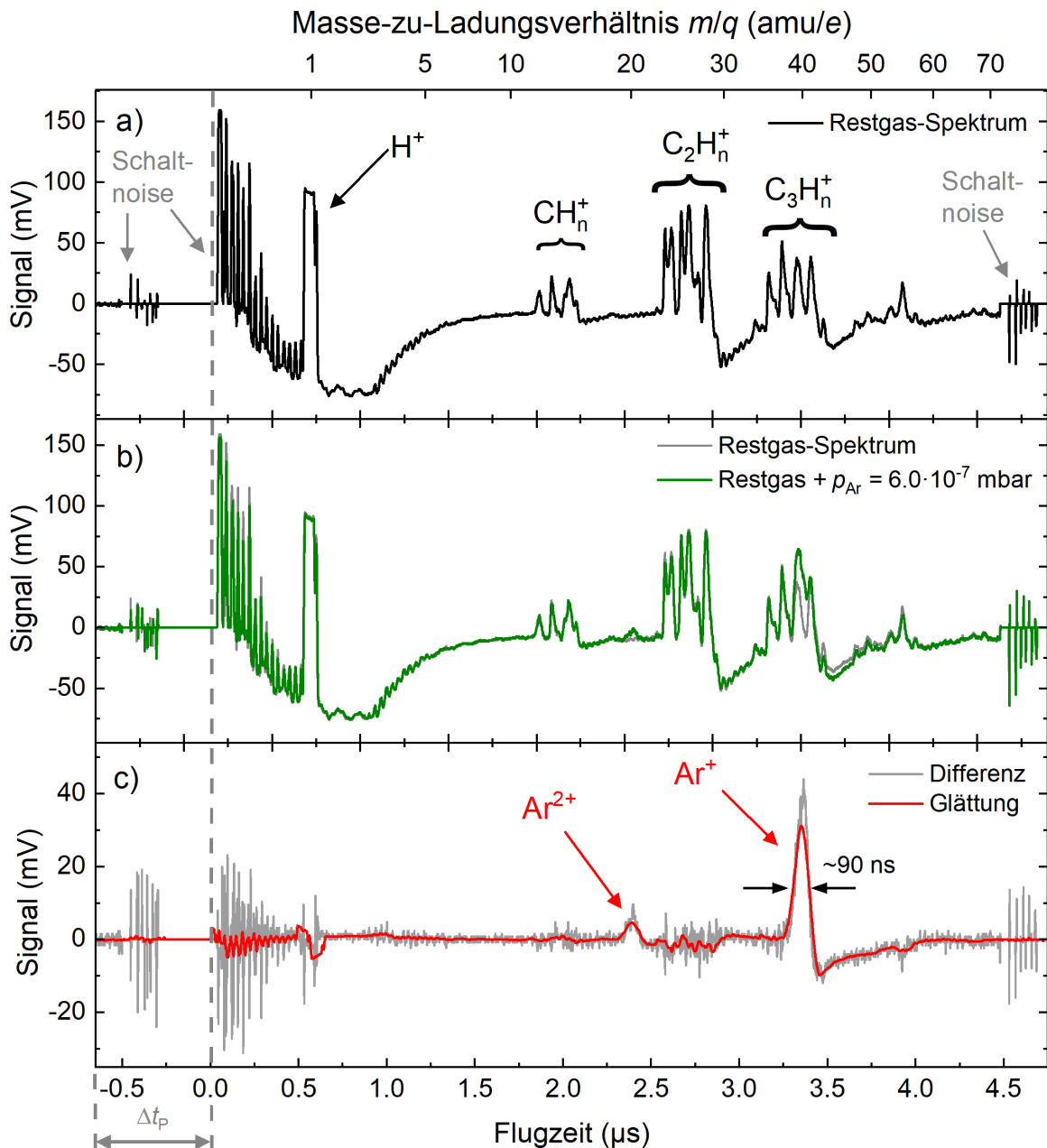
Zunächst können die flugzeitfokussierenden Eigenschaften des Spektrometers sowie dessen Sensitivität auf Argon geprüft werden, indem Argon-Hintergrundgas mit einem Feindosierventil in die Gasstrahlkammer eingelassen wird. Eine Druckmessröhre mit einer Heißkathode überwacht dabei den eingestellten Druck in der Gasstrahlkammer. Daraufhin können die Elektroden des Massenspektrometers im experimentellen Aufbau (vgl. Abbildung 3.7 in Kapitel 3.3.4) relativ zueinander beschaltet werden, aufgrund der technischen Limitierung der verwendeten Netzteile wird das Potential an  $E_1$  dabei zu  $\phi_1 = +2000$  V gewählt. Nach Gleichung 2.53 aus Kapitel 2.3.2 wird damit an  $E_2$  nominell ein Potential von

$\phi_2 = +1740$  V angelegt, um Flugzeitfokussierung zu gewährleisten. Abbildung 4.4 zeigt, dass sich der Flugzeitfokus bei diesen gewählten Potentials entlang der Extraktionsachse  $z$  bei  $z_0 = 0$  mm befindet, was die Position mittig zwischen den beiden Elektroden markiert. Somit ist eine Flugzeitfokussierung 1. Ordnung gewährleistet, bei einer Ausdehnung des Ionisationsvolumens von  $\sim 800$   $\mu\text{m}$  (vgl. Kapitel 3.3.1) ist daher ein  $\text{Ar}^+$ -Ionensignal mit einer Breite in der Größenordnung von  $\sim 1$  ns zu erwarten. Zunächst wird nach Anlegen der Hochspannung am Detektor von insgesamt  $U_{\text{MCP}} = -2$  kV ein Restgasspektrum gemessen, anhand dessen die Flugzeitfokussierung optimiert wird. Dazu löst ein Timer einerseits den Laser und andererseits nach einer Verzögerungszeit von  $\Delta t_{\text{P}} = 700$  ns die Potentiale an Elektroden und Detektor mithilfe der Hochspannungsschalter aus, um eine Sättigung des Detektors zu umgehen. Ebenfalls synchron dazu wird das Signal am Auskoppelkondensator über das Oszilloskop ausgelesen und über eine Anzahl von 256 Wiederholungen (*Sweeps*) gemittelt. Daraufhin wird das Spektrum unter Variation des Potentials  $\phi_1$  beobachtet und die auftretenden Peaks in ihrer Flugzeit fokussiert, was bei einem Potential von  $\phi_1 = +2040$  V der Fall ist. Ein solches Spektrum ist exemplarisch in Abbildung 4.5 a gezeigt und weist mehrere Schaltnoise-Beiträge auf, welche das Spektrum überlagern. Der dominante Teil resultiert dabei aus dem um  $\Delta t_{\text{P}}$  verzögerten Schalten der Extraktionspotentiale  $\phi_1$  und  $\phi_2$  gegenüber dem Laser und der Akquise (vgl. Abbildung 3.8 in Kapitel 3.3.4) und legt den Startzeitpunkt der extrahierten Ionen fest. Das schnelle Anlegen der Hochspannung hat dabei einerseits einen hohen Beitrag an Schaltnoise und andererseits ein Absinken des Signals auf bis zu  $-80$  mV zur Folge. Die kleineren Beiträge bei den



**Abbildung 4.4:** Position des Flugzeitfokus für  $\text{Ar}^+$ -Ionen unter Variation des Potentials  $\phi_2$ . Die zu erwartende Pulsbreite (grün) bei einer Ausdehnung des Laserfokus von  $\sim 800$   $\mu\text{m}$  (rot) um  $z_0 = 0$  ist ferner skizziert. Entnommen aus [88].

Flugzeiten  $-0,5 \mu\text{s}$  und  $4,5 \mu\text{s}$  resultieren hingegen aus den Triggerpulsen zum Ein- bzw. Ausschalten des Extraktionsfensters von  $5 \mu\text{s}$ , anhand des ersten Beitrags lässt sich so die Schaltdauer der Hochspannungsschalter auf etwa  $500 \text{ ns}$  nach Eingang des Triggerpulses abschätzen. Zwar scheinen diese drei Beiträge nur bedingt reproduzierbar zu sein, wie anhand des Signalverlaufs in 4.5b ersichtlich ist, sie beeinträchtigen jedoch nicht den relevanten Bereich des Spektrums zwischen  $1,5 \mu\text{s}$  und  $4,5 \mu\text{s}$ .



**Abbildung 4.5:** Exemplarische Flugzeit- bzw. Massenspektren von Restgas (a), unter Einfluss von Argon-Hintergrundgas bei  $p_{\text{Ar}} = 6,0 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$  (b) sowie die Differenz beider Spektren (c) bei  $\phi_1 = +2040 \text{ V}$ ,  $\phi_2 = +1740 \text{ V}$  und  $\Delta t_P = 100 \text{ ns}$ . Das zusätzliche Signal in b) unter Gaseinlass lässt sich in c) eindeutig  $\text{Ar}^{2+}$  und  $\text{Ar}^+$  zuordnen.

Dort ist ein typisches Muster aus Kohlenwasserstoff-Verbindungen erkennbar, welches sich in einem Abstand von 12 Massen wiederholt und somit eine Kalibrierung durch Abzählen der beteiligten Kohlen- und Wasserstoffatome ermöglicht. Der erste Peak der ersten Gruppe sowie der äußerste Peak der dritten Gruppe lassen sich als einfacher Kohlenstoff  $C_1$  mit einer Masse von 12 amu bzw. als Kohlenwasserstoff  $C_3H_6$  mit einer Masse von 42 amu identifizieren. Anhand dieser Peaks ist in Abbildung 4.5 entlang der Abszisse zu der Flugzeitskala unten die reskalierte  $m/q$ -Skala oben dargestellt und erlaubt die eindeutige Identifizierung der ionisierten Atome bzw. Moleküle anhand ihres Masse-zu-Ladungsverhältnisses. Anhand der Kalibrierung kann der übersteuerte Peak bei  $0,6 \mu\text{s}$  eindeutig  $H^+$ -Ionen zugeordnet werden, welcher aufgrund der eingestellten Skalierung des Oszilloskops abgeschnitten ist, den relevanten Massenbereich jedoch ebenfalls nicht beeinträchtigt.

Anhand des so kalibrierten Spektrums ist Argon mit dem Masse-zu-Ladungsverhältnis von  $40 \text{ amu/e}$  bei einer Flugzeit von  $3,35 \mu\text{s}$  zu erwarten. Mithilfe des Feindosierventils wird ein Argon-Partialdruck von  $p_{\text{Ar}} = 6,0 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$  in die Gasstrahlkammer eingelassen und ein entsprechendes Spektrum mit 256 Sweeps gemessen. Dieses ist in Abbildung 4.5 b dargestellt und unterscheidet sich von dem Restgasspektrum aus Abbildung 4.5 a um zwei zusätzliche Peaks. Diese lassen sich anhand der  $m/q$ -Skalierung eindeutig  $\text{Ar}^{2+}$  und  $\text{Ar}^+$  zuordnen und zeigen neben der Sensitivität des Spektrometers für Argon auch die Möglichkeit auf, mit dem vorhandenen experimentellen Aufbau doppelt geladene Argon-Ionen zu erzeugen. Für eine genaue Auswertung dieser Peaks wird das Restgasspektrum von denjenigen Spektren subtrahiert, welche unter Argon-Gaseinlass gemessen werden. Diese Spektren erlauben die Auswertung der Argon-Peaks hinsichtlich ihres Schwerpunktes, ihrer Breite sowie der Fläche unterhalb des Peaks. Diese Informationen geben prinzipiell Aufschluss über die Flugzeit der Ionen, ihre Verteilung in Startort und -geschwindigkeit sowie die Anzahl der Ionen in einem einzelnen Peak. Ein solches Spektrum ist beispielhaft in Abbildung 4.5 c aus den beiden vorhergegangenen Spektren dargestellt. Dabei wird zusätzlich zum Differenzspektrum (grau) dessen geglättetes Spektrum (rot) mit einem gleitenden Durchschnitt über 80 Datenpunkte dargestellt, wobei der Abstand zweier aufeinanderfolgender Datenpunkte  $1 \text{ ns}$  beträgt. Daran lässt sich der Peak für  $\text{Ar}^+$  auswerten, welcher neben dem Flugzeitschwerpunkt von  $3,36 \mu\text{s}$  eine Breite von etwa  $90 \text{ ns}$  sowie eine Fläche von  $6,5 \text{ V ns}$  aufweist. Insbesondere die breite Verteilung von Ankunftszeiten der  $\text{Ar}^+$ -Ionen (entgegen der Abbildung 4.4) in Kombination mit der Tatsache, dass bei einer vergleichsweise moderaten Laserpeakintensität von  $2 \cdot 10^8 \text{ W cm}^{-2}$  (vgl. Kapitel 3.3.1) bereits zweifach geladene Argon-Ionen nachzuweisen sind, legt jedoch die Vermutung nahe, dass es sich nicht um eine laserinduzierte Ionisation der neutralen Argon-Atome handelt. Daher wird die plausible Möglichkeit der elektronenstoßinduzierten Ionisation durch Photoelektronen im nachfolgenden Kapitel beleuchtet.

### 4.2.1 Photoelektronen als mögliche Ursache für Ionenerzeugung

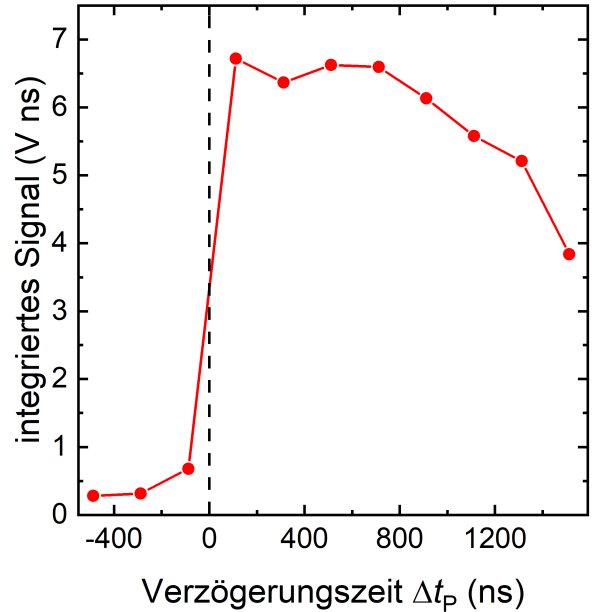
Das Auftreten von breiten Argon-Peaks einerseits sowie doppelt positiv geladenen Argon-Ionen andererseits deutet nicht auf einen laserinduzierten Ionisationsprozess in einem Ionisationsvolumen um den Laserfokus hin. Um dennoch eine Information über den Ursprung des  $\text{Ar}^+$ -Ionensignals zu erhalten, wird dieses Signal zunächst unter Variation der Verzögerungszeit  $\Delta t_P$  zwischen Laserpuls und Schalten der Extraktionsfelder verfolgt und ist in Abbildung 4.6 dargestellt.  $\Delta t_P = 0$  stellt dabei denjenigen



Fall dar, wo der Laser zeitgleich zum Schalten der Extraktionsfelder feuert. Dann ist ein sprunghafter Anstieg des Signals zu erkennen, welches auf einer Skala von ca.  $1 \mu\text{s}$

auf etwa die Hälfte des Signalmaximums abgefallen ist. Auf dieser Zeitskala liegt die Flugstrecke der erzeugten Argon-Ionen mit ihrer mittleren thermischen Geschwindigkeit von ca.  $400 \text{ m/s}$  bei Raumtemperatur im feldfreien Raum in einer Größenordnung von einigen  $100 \mu\text{m}$ . Auf dieser Skala kann die Verschiebung der Ionen im feldfreien Spektrometer gegenüber der Ausdehnung des Ionenpakets als stationär angenommen werden, bevor das Extraktionsfeld geschaltet wird. Daher kann diese isotrop verteilte thermische Bewegung den beobachteten Signalabfall nicht erklären. Vielmehr scheinen die  $\text{Ar}^+$ -Ionen durch Photoelektronen erzeugt zu werden, welche durch Streulicht des Lasers innerhalb des Extraktionsvolumens des Massenspektrometers generiert und durch das anschließend geschaltete elektrische Feld auf die obere Elektrode beschleunigt werden. Die Tat-

sache, dass die Betriebsspannung des vergleichsweise weit entfernt liegenden Detektors gepulst angelegt werden muss, um dessen Sättigung zu vermeiden, bestätigt diesen Verdacht. Daher wird die plausible Möglichkeit der Erzeugung freier Elektronen im Extraktionsvolumen in Betracht gezogen, welche den anschließenden Prozess einer Elektronenstoßionisation nach sich zieht. Die Photonenenergie des Lasers beträgt  $7,9 \text{ eV}$ , typische Austrittsarbeiten von Metallen liegen bei etwa  $4 - 5 \text{ eV}$ , sodass eine Anregung von Elektronen aus den Elektroden des Spektrometers ins Vakuum effizient vonstatten gehen kann. Wird nach einer Verzögerungszeit  $\Delta t_P > 0$  das Extraktionsfeld eingeschaltet, so werden die aus der Elektrode  $E_2$  ausgelösten Elektronen rapide auf die obere Elektrode  $E_1$  beschleunigt. Auf diesem Weg nimmt deren kinetische Energie entsprechend des elektrischen Feldes zwischen  $E_1$  und  $E_2$  um  $30 \text{ eV}$  pro Millimeter Wegstrecke zu, diese Elektronen können die im Extraktionsvolumen befindlichen neutralen Argon-Atome demnach effizient durch Stöße ionisieren. Für die in entgegengesetzte Richtung beschleunigten  $\text{Ar}^+$ -Ionen spielen die flugzeitfokussierenden Eigenschaften des Spektrometers dann keine Rolle, da die damit verbundene Bedingung erheblich verletzt ist, dass sich die Flugzeit unter kleiner Variation des Startortes nicht ändert. Daraus resultieren die breiten Peaks für  $\text{Ar}^+$  und  $\text{Ar}^{2+}$  im Spektrum, sie bilden die breite Startortverteilung der Ionen im Volumen ab. Ein  $\Delta t_P = 100 \text{ ns}$  zeigt dabei ein maximales integriertes Ionensignal auf, weshalb dieses für alle weiteren Messungen verwendet wird. Im nachfolgenden Kapitel wird das Ionensignal aus dem Gasstrahl untersucht sowie die Verzögerung  $\Delta t_N$  zwischen Laser und Düse vermessen. Unter Variation der Laserposition  $z$  senkrecht zu Gas- und Laserstrahlachse lassen sich so Informationen über die räumliche Ausdehnung und Zentralstrahldichte eines einzelnen Gaspulses gewinnen.



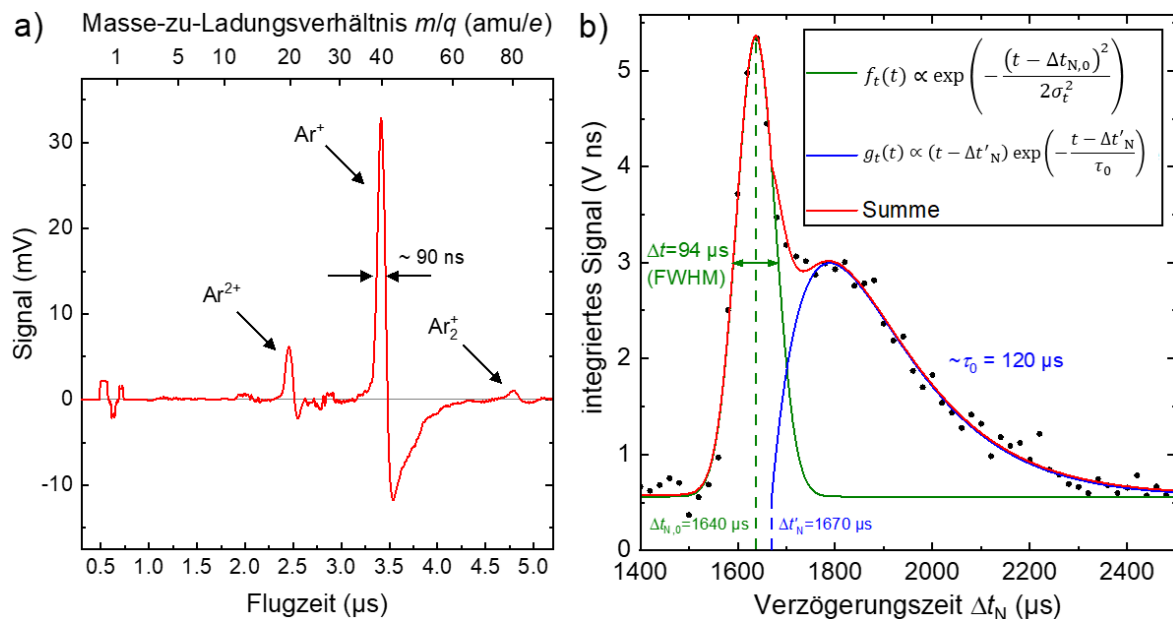
**Abbildung 4.6:**  $\text{Ar}^+$ -Signal als Funktion der Verzögerungszeit  $\Delta t_P$  zwischen Laser und Extraktion mit einer scharfen Kante bei  $\Delta t_P = 0$ .

### 4.3 Bestimmung des Strahlprofils

Das gepulste Ventil vor der Düse begrenzt einzelne Gaspulse entlang der Expansionsachse, die Skimmer schränken deren Ausdehnung in der  $yz$ -Ebene ein. Die rotationssymmetrische Düsenöffnung sowie Skimmerform suggerieren dementsprechend ein rotationssymmetrisches Strahlprofil, weshalb die Bestimmung des Strahlprofils entlang zweier Dimensionen zur vollständigen Charakterisierung des Gasstrahls ausreicht. Daher wird ein Scan entlang der Strahlrichtung in Kapitel 4.3.1 und ein Scan senkrecht dazu in Kapitel 4.3.2 vorgenommen.

#### 4.3.1 Scan entlang der Strahlrichtung

Mithilfe der Verzögerungszeit  $\Delta t_N$  zwischen dem Öffnen der Düse und dem Feuern des Lasers lassen sich prinzipiell Informationen über die Pulsform entlang der Expansionsachse sowie die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Gasteilchen und deren damit verbundene Paralleltemperatur gewinnen. Dazu wird die Düse mit folgenden Parametern gepulst betrieben: die Öffnungszeit  $\Delta t_{Op}$  beträgt nominell  $\Delta t_{Op} = 50 \mu\text{s}$  bei einer Wiederholrate von 500 Hz, der Betriebsdruck wird auf  $p_0 = 5 \text{ bar}$  eingestellt. Daraufhin werden Flugzeit- bzw. Massenspektren wie in Kapitel 4.2 unter Betrieb der Gasexpansion aufgenommen, Abbildung 4.7 a zeigt exemplarisch ein solches Flugzeitspektrum bei einer Verzögerungszeit von  $\Delta t_N = 1640 \mu\text{s}$  zwischen Öffnen der Düse und Feuern des Lasers sowie der anschließenden Extraktion der Ionen (vgl. Abbildung 3.8 in Kapitel 3.3.4).



**Abbildung 4.7:** a) Exemplarisches Flugzeit- bzw. Massenspektrum des Gasstrahls bei Betriebsdruck  $p_0 = 5 \text{ bar}$ , Düsenöffnungszeit  $\Delta t_{Op} = 50 \mu\text{s}$  sowie Verzögerungszeiten  $\Delta t_P = 100 \text{ ns}$  und  $\Delta t_N = 1640 \mu\text{s}$ . b) Integriertes Ar-Ionensignal als Funktion der Verzögerungszeit  $\Delta t_N$ . Neben einer gaußförmigen Anpassung mit Schwerpunkt  $\Delta t_{N,0}$  und Halbwertsbreite  $\Delta t$  (grün) ist eine nach  $\Delta t'_N$  zunächst ansteigende und daraufhin mit  $\tau_0$  abfallende Flanke des Signals (blau) zu verzeichnen.

Im Vergleich zum Massenspektrum unter Argon-Einlass in Abbildung 4.5 c lassen sich ebenfalls die beiden Peaks für  $\text{Ar}^+$  und  $\text{Ar}^{2+}$  mit vergleichbarer Pulsbreite und Signalverhältnis zueinander beobachten, es tritt allerdings ein weiterer, kleiner Peak um eine Flugzeit von  $4,8 \mu\text{s}$  auf, welcher aufgrund der Kalibrierung einer Masse von 80 amu und damit  $\text{Ar}_2^+$  zugeordnet werden kann. Dies impliziert zwar einen Anteil an Argon-Clustern, spiegelt aber aufgrund der Elektronenstoßionisation unter hohem Energieeintrag nur bedingt die tatsächliche Menge an Argon-Clustern im Gasstrahl wieder. Für die Auswertung der Pulsform genügt es, solche Flugzeitspektren unter Variation von  $\Delta t_N$  aufzunehmen und den jeweiligen  $\text{Ar}^+$ -Peak über die Zeitachse zu integrieren. Das so generierte Signal ist proportional zu der Anzahl detektierter Argon-Ionen und in Abbildung 4.7 b dargestellt.

Aus dem Verlauf lassen sich im Wesentlichen drei Beiträge ausmachen. Einerseits ist für kleine Verzögerungszeiten ein scharfer Anstieg mit anfänglich symmetrischem Abfall zu verzeichnen. Andererseits fällt ab etwa  $1700 \mu\text{s}$  die rechte Flanke wesentlich langsamer ab, sodass dieser Verlauf eine andere Ursache zu haben scheint. Zuletzt ist ein annähernd konstanter Untergrund zu beobachten. Der komplette Verlauf lässt sich dabei als Überlagerung des Gaspulses, welcher das Spektrometer passiert, mit demjenigen Anstieg der Teilchendichte verstehen, welcher sich aus dem Auftreffen dieser Gaspulse an der Rückseite der Kammerwand ergibt. Dies resultiert in einem annähernd linearen Druckanstieg, welcher aufgrund der Pumpleistung der Turbomolekularpumpe als Funktion der Zeit exponentiell abnimmt, was ein um etwa  $150 \mu\text{s}$  verschobenes Maximum der blau skizzierten Kurve bewirkt. Unter Berücksichtigung des konstanten Untergrundes von etwa  $0,6 \text{ V ns}$ , welcher sich aus dem Gleichgewicht zwischen Leckrate durch den letzten Skimmer und Pumprate der Turbomolekularpumpe ergibt, lassen sich die beiden Beiträge über eine Gaußfunktion  $f_t(t)$  bzw. einen linearen Anstieg mit anschließender exponentieller Abnahme  $g_t(t)$  entsprechend

$$f_t(t) \propto \exp\left(-\frac{(t - \Delta t_{N,0})^2}{2\sigma_t^2}\right) \quad \text{und} \quad g_t(t) \propto (t - \Delta t'_N) \exp\left(-\frac{t - \Delta t'_N}{\tau_0}\right) \quad (4.7)$$

anpassen. Der Schwerpunkt dieses Peaks von  $\Delta t_{N,0} = 1640 \mu\text{s}$  erlaubt dann mit dem Abstand des Ionisationspunktes zur Düse von  $\Delta x_I = 1060 \text{ mm}$  das Auswerten der Schwerpunktschwindigkeit der Gaspulse zu

$$v_{\parallel,\infty,\text{Ar}} = \frac{\Delta x_I}{\Delta t_{N,0}} = 646 \text{ m/s}. \quad (4.8)$$

Nach Gleichung 2.5 ist jedoch lediglich eine Geschwindigkeit von  $v_{\parallel,\infty} = 560 \text{ m s}^{-1}$  für Argon zu erwarten, die große Diskrepanz lässt sich dabei nur durch eine um etwa 100 K höhere Temperatur der Düse erklären. Monte-Carlo-Simulationen von Hillenkamp et. al zeigen jedoch, dass das Gas vor der Expansion bei einer vergleichbaren Düsenform eine Temperaturerhöhung um etwa 80 K erfahren kann [63], sodass die gemessene Schwerpunktschwindigkeit von  $v_{\parallel,\infty,\text{Ar}} = 646 \text{ m s}^{-1}$  durchaus plausibel erscheint. Damit ergibt sich für das verschobene Maximum von  $g_t(t)$  gegenüber  $f_t(t)$  eine zusätzliche Flugstrecke von  $\Delta x' = 646 \text{ m s}^{-1} \cdot 150 \mu\text{s} = 97 \text{ mm}$ , was gut mit dem Abstand des Ionisationspunktes zur Rückseite der Kammerwand von 110 mm übereinstimmt. Unter Berücksichtigung der Standardabweichung  $\sigma_t = 40 \mu\text{s}$  ergibt sich ferner eine räumliche Ausdehnung der Gaspulse entlang der Expansionsachse zu  $\sigma_x = v_{\parallel,\infty}\sigma_t = 26 \text{ mm}$ , mit

$$f_x(x) \propto \exp\left(-\frac{(x - v_{\parallel,\infty} \cdot t)^2}{2\sigma_x^2}\right) \quad (4.9)$$

Ferner lässt sich daraus die Halbwertsbreite (FWHM) der Gaspulse bestimmen zu

$$\Delta t = 2\sqrt{2 \ln(2)} \sigma_t = (94 \pm 4) \mu\text{s}, \quad (4.10)$$

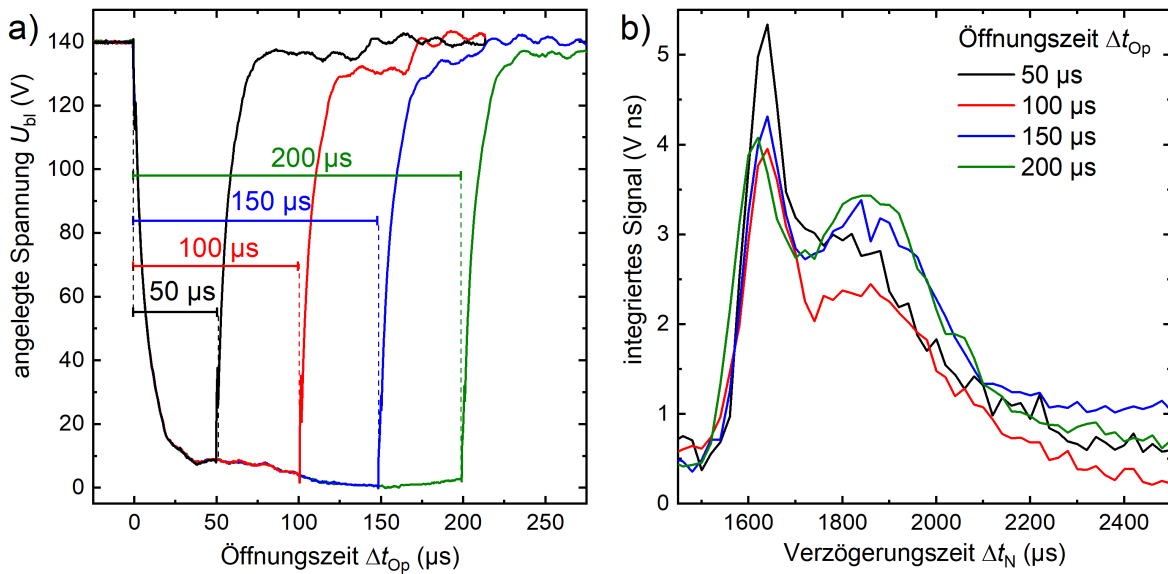
welche sich aus einer Faltung der Geschwindigkeitsverteilung der Gasteilchen mit der Öffnungszeit der Düse ergibt. Der Verlauf der Blockierspannung  $U_{\text{bl}}$  in Abbildung 4.8 a für verschiedene Öffnungszeiten  $\Delta t_{\text{Op}}$  suggeriert dabei ein zeitliches Rechteckprofil, dessen Breite entspricht jeweils näherungsweise der nominell eingestellten Düsenöffnungszeit abzüglich der minimalen Öffnungszeit  $\Delta t_{\text{Op}}^{\text{min}} = 13 \mu\text{s}$  (vgl. Abbildung 4.3 in Kapitel 4.1.1). Eine entsprechende Entfaltung reduziert die Breite der Gaspulse jedoch nur marginal auf  $\Delta t_{\text{dec}} = (90 \pm 4) \mu\text{s}$ , sodass der gemessene Verlauf im Wesentlichen die Paralleltemperatur der Expansion darstellt. Diese lässt sich über die in Kapitel 2.1.2 eingeführte Speed Ratio quantifizieren, welche sich aus Abbildung 4.7 b gemäß

$$S_{\text{Ar}} = 2\sqrt{\ln(2)} \frac{v_{\parallel,\infty}}{\Delta v} = 2\sqrt{\ln(2)} \frac{\Delta t_{\text{N},0}}{\Delta t_{\text{dec}}} \approx 30 \pm 1,3 \quad (4.11)$$

berechnen lässt. Daraus lässt sich einerseits die Lage der Freezing Plane relativ zur Düsenposition gemäß Gleichung 2.18 abschätzen zu  $x_{\text{F}} \approx 5 \text{ mm}$ . Andererseits kann die Strahltemperatur entlang der Expansionsachse mit Gleichung 2.19 zu

$$T_{\parallel,\infty,\text{Ar}} = \frac{1}{2} \cdot \frac{m}{k_{\text{B}}} \left(\frac{v_{\parallel,\infty,\text{Ar}}}{S_{\text{Ar}}}\right)^2 = (1,1 \pm 0,1) \text{ K}, \quad (4.12)$$

bestimmt werden, mit  $m$  der Masse von Argon. Eine Messung der Pulsform ist für verschiedene nominelle Öffnungszeiten (Abbildung 4.8 a) in Abbildung 4.8 b dargestellt.

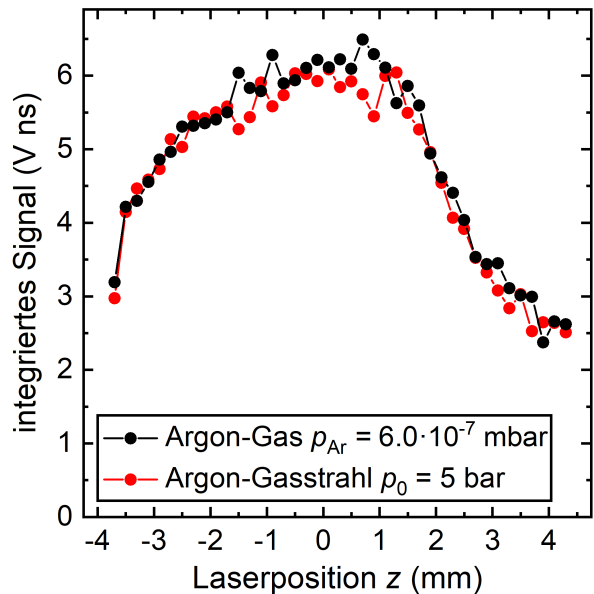


**Abbildung 4.8:** a) Verlauf der Blockierspannung  $U_{\text{bl}}$  am Piezoventil der Düse als Funktion von  $\Delta t_{\text{Op}}$  mit einem zeitlichen Rechteckprofil. b) Resultierende Signalverläufe für die entsprechenden Öffnungszeiten, analog zu Abbildung 4.7 b.

Hierbei ist ersichtlich, dass sich weder der Schwerpunkt der Pulse  $\Delta t_{N,0}$  noch deren Breite  $\Delta t$  verändert, woraus zu schließen ist, dass die Düsenöffnungszeit keinen großen Einfluss auf die Expansionseigenschaften hat. Insbesondere ändert sich daher die Strahltemperatur und die damit verbundene Speed Ratio nicht maßgeblich. Hillenkamp et al. weisen eine annähernd konstante Speed Ratio von  $S \approx 30$  für Argon über einen Druckbereich von 5 - 75 bar für Argon nach, was einer Paralleltemperatur von  $T_{\parallel,\infty} \approx 1$  K entspricht [63]. Dabei wurde die Düse (Durchmesser: 100  $\mu\text{m}$ , Öffnungswinkel:  $18^\circ$ ) mit einer kürzeren Öffnungszeit von  $\sim 10 \mu\text{s}$  betrieben. Die sehr gute Übereinstimmung mit der in dieser Arbeit gemessenen Speed Ratio (und der damit verbundenen Paralleltemperatur) zeigt in beiden Fällen, dass die Strahleigenschaften für einen mit Argon betriebenen Düsenstrahl sowohl unabhängig von der geometrischen Beschaffenheit der verwendeten Düse als auch von der Öffnungsdauer des Ventils zu sein scheint. Lediglich die Signalhöhe scheint mit der Öffnungszeit zu skalieren, dieser Effekt ist allerdings eher auf das Transmissionsvermögen der Skimmer zurückzuführen und wird in Kapitel 4.4.2 diskutiert. Zunächst wird die Verzögerungszeit  $\Delta t_{N,0}$  zwischen Öffnen der Düse und Feuern des Lasers auf das nominelle Maximum gestellt und das Strahlprofil unter Variation der z-Position des Lasers untersucht.

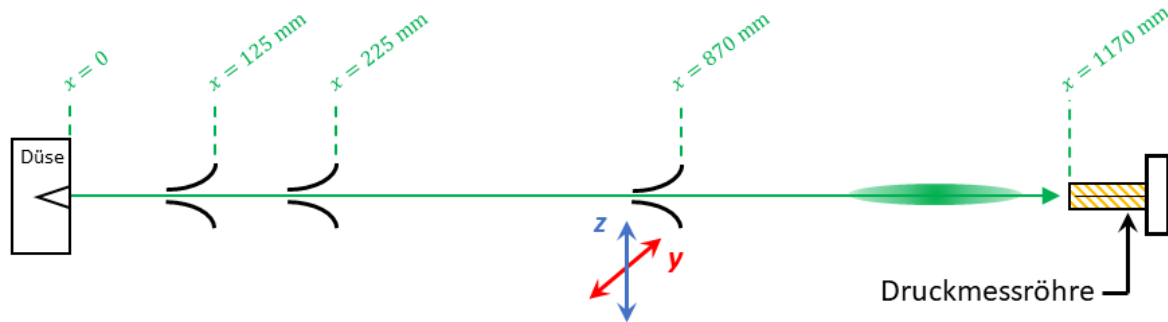
### 4.3.2 Scan senkrecht zur Strahlrichtung

Nachdem der Zeitpunkt der Düsenöffnung um  $\Delta t_{N,0} = 1640 \mu\text{s}$  mit dem Feuern des Lasers synchronisiert ist, wird dessen Position entlang der Extraktionsachse  $z$  innerhalb des Spektrometers variiert. Die zu erwartende Breite des Düsenstrahls lässt sich dabei geometrisch über den Abstand zwischen dem zweiten Skimmer mit einem Durchmesser von 1 mm und der Düse von 225 mm abschätzen. Wird die Breite von 1 mm auf die Ebene der Ionisation im Abstand von  $\Delta x_I = 1060$  mm von der Düse projiziert, so lässt sich eine Strahlbreite von etwa 4,7 mm erwarten. Dies deckt sich gut mit der Extrapolation der gemessenen Strahlbreite in Kapitel 4.1 Dabei soll die Anzahl der  $\text{Ar}^+$ -Ionen, welche aus dem Gasstrahl erzeugt werden, als Funktion der Laserposition  $z$  entlang der Extraktion das Profil der Expansion abbilden, wohingegen unter Argon-Gaseinlass aufgrund der homogenen Dichteverteilung ein konstantes Ionensignal zu erwarten ist. Für diesen Vergleich wird der Gasstrahl mit den Parametern aus Kapitel 4.3.1 bei  $\Delta t_{Op} = 50 \mu\text{s}$  betrieben, bei  $p_{\text{Ar}} = 6,0 \cdot 10^{-7}$  mbar ergibt sich zunächst eine identische Signalhöhe um den Flugzeitfokus bei  $z_0 = 0$ . Die Abbildung 4.9 zeigt jedoch, dass sich die beiden Verläufe unter Variation der Laserposition  $z$



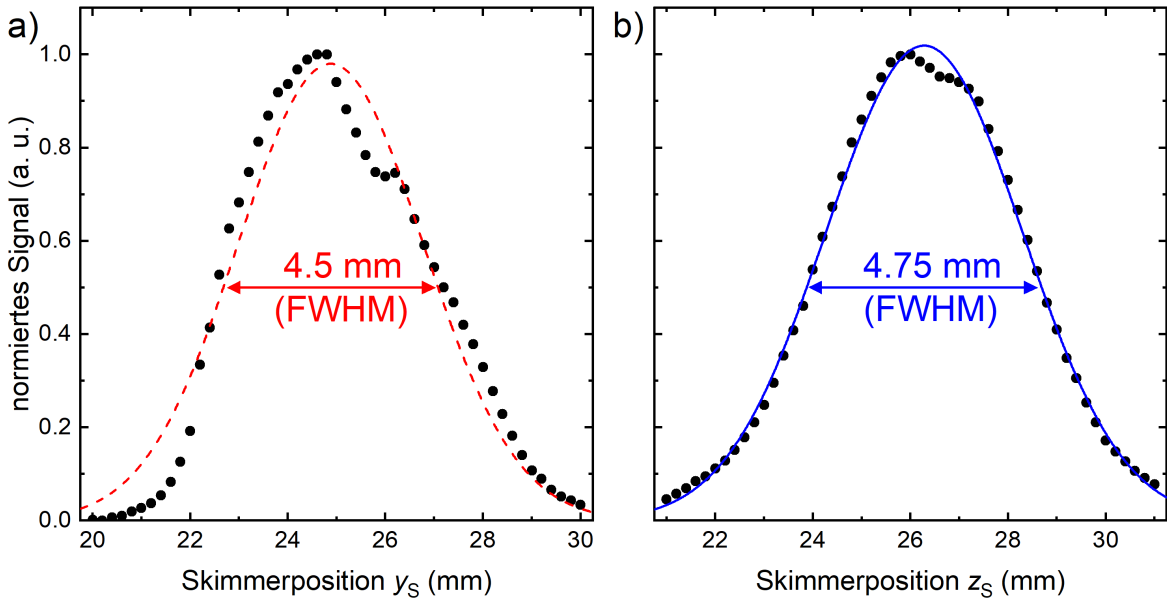
**Abbildung 4.9:** Vergleich der Signalverläufe zwischen Ionen aus der Expansion bei  $p_0 = 5$  bar mit Argon-Hintergrundgas  $p_{\text{Ar}} = 6,0 \cdot 10^{-7}$  mbar unter Variation der Laserposition entlang der  $z$ -Achse.

nicht wesentlich voneinander unterscheiden. Dabei ist ebenfalls zu beobachten, dass das Signal in beiden Fällen keinen konstanten Verlauf zeigt, sondern zuerst bis zum Zentrum des Spektrometers bei  $z_0$  langsam ansteigt und danach abfällt. Dies verstärkt die Vermutung, dass es sich bei den erzeugten  $\text{Ar}^+$ -Ionen um elektronenstoßionisierte Ionen handelt, da insbesondere der Signalverlauf bei eingelassenem Argon-Gas eine Überlagerung der Abbildungseigenschaften des Spektrometers mit der Ionisationseffizienz im Spektrometer als Funktion der Laserposition darstellt. Der identische Signalverlauf zeigt damit auf, dass das Strahlprofil der Expansion auf diese Weise nicht gemessen werden kann. Daher wird im Nachfolgenden eine weitere Messmethode vorgestellt und angewendet, um eine Information über die Ausdehnung des Gasstrahls senkrecht zu seiner Expansionsachse zu erhalten. Dazu wird ein dritter Skimmer mit einem Durchmesser von 1 mm in den Strahlengang im Abstand von 870 mm zur Düse eingebaut, welcher sich mithilfe des zweiten Manipulators in der  $yz$ -Ebene verfahren lässt. Die Heißkathoden-Druckmessröhre wird dabei direkt in den Strahlengang im Abstand von  $\Delta x_D = 1170$  mm von der Düse montiert und bildet dabei den Abschluss der Gasstrahlkammer. Abbildung 4.10 zeigt schematisch diesen Aufbau unter Vernachlässigung des Flugzeit-Massenspektrometers.



**Abbildung 4.10:** Schematischer Versuchsaufbau zur Vermessung des Strahlprofils (grün) entlang der  $y$ - (rot) und  $z$ -Achse (blau).

Unter gepulstem Strahlbetrieb bei 10 bar, einer Düsenöffnungszeit von  $100 \mu\text{s}$  sowie einer Wiederholrate von 500 Hz wird der Druck unter Variation der Skimmerposition mit der Druckmessröhre aufgezeichnet. Von diesen Messwerten wird zuerst der Restgasdruck von  $1,2 \cdot 10^{-8}$  mbar innerhalb der Gasstrahlkammer subtrahiert und diese Werte auf das jeweils maximale Signal normiert. Der resultierende Verlauf des Argon-Signals wird als Funktion der Skimmerposition in Abbildung 4.11 sowohl entlang der  $y$ -Achse bei  $z_{S,0} = 26,3$  mm (a) als auch der  $z$ -Achse bei  $y_{S,0} = 24,9$  mm (b) aufgetragen.



**Abbildung 4.11:** Normiertes Signal der Druckmessröhre unter Variation der Skimmerposition entlang der  $y$ - (a) bzw.  $z$ -Achse (b). Der Gasstrahl wird bei  $p_0 = 10$  bar, einer Öffnungszeit  $\Delta t_{\text{Op}} = 100 \mu\text{s}$  sowie einer Wiederholrate von 500 Hz betrieben. In beiden Fällen lässt sich den gemessenen Profilen eine Breite (FWHM) um den Schwerpunkt der Verteilungen bei  $y_{\text{S},0} = 24,9$  mm und  $z_{\text{S},0} = 26,3$  mm zuordnen, welche die räumliche Ausdehnung des Gasstrahls senkrecht zu seiner Ausbreitungsrichtung quantifiziert.

Für beide Profile lässt sich dabei ein annähernd symmetrischer Verlauf verzeichnen, was der rotationssymmetrischen Form der einzelnen Skimmer geschuldet ist. Die Form dieser Profile wird zumeist durch zwei koaxiale Gaußfunktionen der Form

$$f(\chi) = \sum_{i=1,2} c_i \exp\left(-\frac{\chi^2}{2\sigma_\chi^2}\right) \quad (4.13)$$

mit der Randbedingung  $c_1 + c_2 = 1$  beschrieben [54, 60], welche den den Anteilen der breiteren „Warm Source“ sowie der schmaleren „Cold Source“ entsprechen (vgl. Abbildung 2.2 in Kapitel 2.1.2). Da der Abstand zwischen Düse und Druckmessröhre allerdings viel größer ist als der Abstand zwischen Düse und der Freezing Plane ( $\Delta x_{\text{D}} \gg x_{\text{F}}$ ), kann der Beitrag der „Warm Source“ vernachlässigt werden [92], weshalb jeweils nur ein gaußförmiges Profil der Form

$$f_y(y) \propto \exp\left(-\frac{(y - y_{\text{S},0})^2}{2\sigma_y^2}\right) \quad \text{bzw.} \quad f_z(z) \propto \exp\left(-\frac{(z - z_{\text{S},0})^2}{2\sigma_z^2}\right) \quad (4.14)$$

an die Messwerte angepasst wird. Dennoch lässt sich insbesondere in dem Scan entlang der  $y$ -Achse ein Einbruch des Signals bei  $y_{\text{S}} = 26$  mm verzeichnen, welches eine Asymmetrie in dem Profil ausmacht. Einen ähnlichen Verlauf weist auch der Scan entlang der  $z$ -Achse aus, wenn auch weniger ausgeprägt. Die Asymmetrie in den Profilen kann zwei Gründe haben: Einerseits ist es schwierig, die Gasstrahlkammer, welche sich vergleichsweise weit weg von der Düse und den ersten beiden Skimmern befindet, genau entlang der Expansionsachse auszurichten. Somit ist es möglich, dass sich eine Überlagerung der Transmissionseigenschaften der beiden ersten Skimmer ergibt, welche nicht optimal zueinander bzw. gegenüber der Düse ausgerichtet sind. Das Auftreten der Schulter



in Abbildung 4.11 a indiziert dabei gut die Möglichkeit einer solchen Überlagerung, wohingegen die Beiträge in Abbildung 4.11 b recht gut zusammenfallen. Dies würde bedeuten, dass die Skimmer entlang der Expansionsachse in  $z$ -Richtung besser ausgerichtet wären als in  $y$ -Richtung. Andererseits kann die Nachweiseffizienz der Messröhre an genau denjenigen Stellen abfallen, an denen die Signale einbrechen, beispielsweise aufgrund der geometrischen Beschaffenheit der Messröhre selbst. Dafür spricht der jeweils symmetrische Anstieg und Abfall des Signalverlaufes. In beiden Fällen lässt sich den Profilen entlang beider Achsen eine Halbwertsbreite von  $\Delta y_S = 4,5$  mm bzw.  $\Delta z_S = 4,75$  mm, entsprechend der Standardabweichungen  $\sigma_y$  bzw.  $\sigma_z$ , um  $y_{S,0}$  und  $z_{S,0}$  zuordnen. Diese decken sich gut mit der geometrischen Abschätzung der Strahlbreite von 4,7 mm und werden für das nachfolgende Kapitel übernommen, welches die Neutralteilchendichte in der Gasstrahlexpansion behandelt.

### 4.4 Zentrale Gasstrahldichte

Da nun das zeitliche Verhalten des Gaspulses sowie dessen geometrische Ausdehnung bekannt sind, lässt sich daraus die zentrale Strahldichte bestimmen. Typischerweise wird dazu das Signal aus dem Strahlzentrum mit demjenigen Signal aus dem Hintergrundgas verglichen, bei dem die beiden Signalhöhen (und damit die beiden Teilchendichten) identisch sind. Da sich in dem vorliegenden experimentellen Aufbau die Signalhöhen als Funktion der Laserposition nicht unterscheiden (vgl. Abbildung 4.9 in Kapitel 4.3.2), obwohl unterschiedliche Profile für die beiden Teilchendichten zu erwarten sind, ist ein derartiger direkter Vergleich der Signale nicht möglich. Um dennoch eine Abschätzung der Strahldichte zu ermöglichen, können die beiden Signale unter Kenntnis des Strahlprofils verglichen werden, wenn das Extraktionsvolumen des Spektrometers bekannt ist, d.h. das Volumen, aus welchem erzeugte Ionen überhaupt den Detektor erreichen können. Dies lässt sich grob durch den Durchmesser des Loches in Elektrode 2 abschätzen, da diese Elektrode die Transmission im Wesentlichen definiert. Für eine genauere Bestimmung müssen allerdings die anliegenden Potentiale (und damit die sich ergebenden Felder) sowie die Geschwindigkeitsverteilung im Gasstrahl berücksichtigt werden. Aus diesem Grund wird der Aufbau des Spektrometers mithilfe des Programms SIMION simuliert, sodass das Extraktionsvolumen identifiziert werden kann. Die Funktionsweise von SIMION sowie das simulierte Flugzeit-Massenspektrometer werden daher im nachfolgenden Kapitel skizziert.

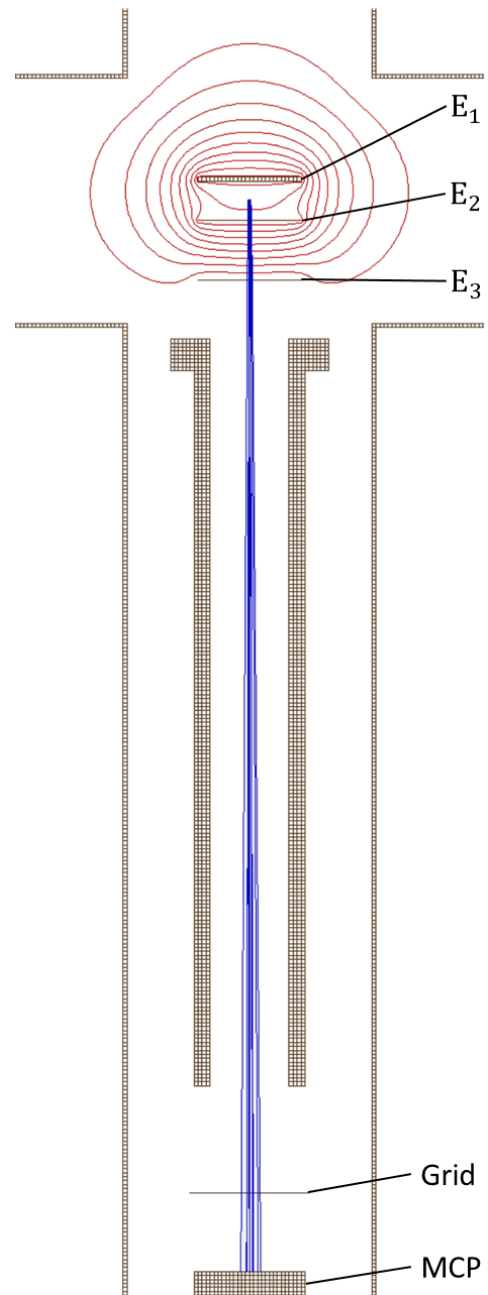


### 4.4.1 SIMION-Modellierung des Flugzeit-Massenspektrometers

SIMION ist ein Programm zur Simulation von Teilchentrajektorien innerhalb einer geometrischen Anordnung von Objekten, deren Potential eingestellt werden kann und die daher als Elektroden bezeichnet werden. Dabei wird ein Volumen entsprechend einer Finite-Elemente-Methode in einzelne Gitterpunkte in drei Dimensionen zerlegt. Einzelne Volumenelemente lassen sich so zu einer Elektrode zusammenfassen, alle übrigen Volumenelemente bilden dann den anfänglich potentialfreien Raum. Für diese Geometrie wird daraufhin die Potentiallandschaft errechnet, indem eine Elektrode auf ein Potential von 1 V gelegt wird, während alle übrigen Elektroden auf 0 V fixiert bleiben. In dieser Konfiguration lässt sich die Laplace-Gleichung  $\Delta\phi = 0$  mit der durch die Elektroden vorgegebenen geometrischen Randbedingungen für jeden Gitterpunkt lösen, indem der Laplace-Operator  $\Delta$  entsprechend einer Finite-Differenzen-Methode durch eine numerische zweite Ableitung diskretisiert wird. Unter Verwendung der Laplace-Gleichung lässt sich so das Potential auf jedem Gitterpunkt  $(x, y, z)$  innerhalb der Umgebung nächster Gitterpunkte iterativ bestimmen:

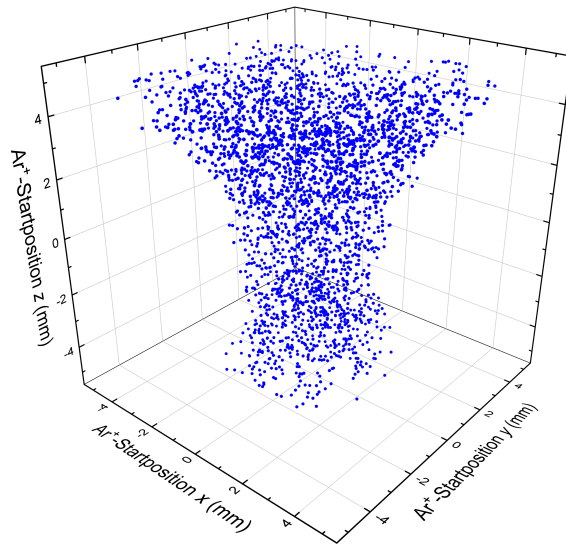
$$\begin{aligned} \phi_{x,y,z} = \frac{1}{6} & (\phi_{x+1,y,z} + \phi_{x-1,y,z} \\ & + \phi_{x,y+1,z} + \phi_{x,y-1,z} \\ & + \phi_{x,y,z+1} + \phi_{x,y,z-1}) \end{aligned} \quad (4.15)$$

Durch Superposition aller so errechneten Potentialverläufe innerhalb einer geometrischen Anordnung und Multiplikation mit dem gewünschten Spannungswert lässt sich so die gesamte Potentiallandschaft modellieren. Daraufhin können Teilchen initialisiert werden, deren Parameter wie Startort und Startgeschwindigkeit, Masse und Ladung frei wählbar sind. Die Trajektorien (blau) werden daraufhin durch die Bewegungsgleichungen eines geladenen Teilchens in einem elektrischen Feld mithilfe eines Runge-Kutta-Verfahrens numerisch gelöst. Exemplarisch ist das so erstellte SIMION-Modell mit den entsprechend der in Kapitel 4.2 vorgestellten Beschaltung der Elektroden in Abbildung 4.12 dargestellt. Dabei ist insbesondere anhand der Äquipotentiallinien (rot) zu sehen, dass das Potential innerhalb des Extraktionsvolumens nicht homogen verläuft, am Rand der Elektroden ausbricht und schnell abfällt, weshalb dort erzeugte Ionen den Detektor nicht unbedingt erreichen können. Aus diesem Grund wird das



**Abbildung 4.12:** Schnitt durch das in SIMION erstellte Modell des Spektrometers.

effektive Extraktionsvolumen  $V_{\text{eff}}$  durch folgende Methodik bestimmt: Es werden insgesamt 10.000 Teilchen der Masse 40 amu und Ladung  $q = +e$  (entsprechend  $\text{Ar}^+$ -Ionen) entlang aller drei kartesischen Koordinaten gleichverteilt auf einem Intervall von jeweils  $\pm 5$  mm innerhalb des Extraktionsvolumens initialisiert. Nachdem ein Ion eine Elektrode getroffen hat, wird registriert, ob es sich dabei um die aktive Fläche des Detektors handelt. Abschließend werden die Startkoordinaten aller Ionen, die den Detektor auf diese Weise erreichen konnten, innerhalb des Extraktionsvolumens verzeichnet. Abbildung 4.13 zeigt eine entsprechende, 3-dimensionale Verteilung der Startkoordinaten. Diese zylindersymmetrische Verteilung mit einem mittleren effektiven Radius von  $r_{\text{eff}} = 3$  mm gibt Aufschluss über das tatsächliche Transmissionsvermögen des Massenspektrometers. Auf diese Weise lässt sich das effektive Extraktionsvolumen unter Berücksichtigung des Abstandes  $d_1 = 10$  mm zwischen den Elektroden  $E_1$  und  $E_2$  bestimmen zu  $V_{\text{eff}} \approx 280 \text{ mm}^3$ .



**Abbildung 4.13:** Startkoordinaten der  $\text{Ar}^+$ -Ionen, welche den Detektor aus dem Extraktionsvolumen erreichen können.

#### 4.4.2 Bestimmung der zentralen Gasstrahldichte

In Kapitel 4.3.2 wurde diskutiert, dass der Signalverlauf der Gasexpansion im Vergleich mit dem Argon-Hintergrundgas keine Informationen über dessen Profil offenlegt. Insbesondere lässt sich daher keine Aussage über die Teilchendichte  $\rho_{\text{Ar},0}$  im Zentrum des Gasstrahls treffen, wie es typischerweise bei laserinduzierten Abbildungsverfahren von Überschall-Gasstrahlen der Fall ist [92, 93]. Deren Zentralstrahldichte lässt sich dabei aus der Bedingung herleiten, dass die Anzahl erzeugter Ionen im Ionisationsvolumen lokal um das Gasstrahlzentrum der Dichte  $\rho_{\text{Ar},0}$  der Anzahl an erzeugten Ionen aus eingelassenem Gas der Dichte  $n_{\text{Ar}}$  bei einem festen Druck  $p_{\text{Ar},0}$  nach Gleichung 4.1 entspricht:

$$\rho_{\text{Ar},0} \stackrel{!}{=} n_{\text{Ar}}(p_{\text{Ar},0}) \quad (4.16)$$

Diese Annahme ist dann gerechtfertigt, wenn das Ionisationsvolumen des Lasers um dessen Fokus kleiner ist als das Volumen eines einzelnen Gaspulses. Da allerdings alle Teilchen aus dem Extraktionsvolumen entsprechend Abbildung 4.13 zum Ionensignal beitragen, ist diese Bedingung erheblich verletzt, sodass die Zentralstrahldichte nicht auf diese Weise bestimmt werden kann. Stattdessen muss die gesamte Teilchenzahl für beide Fälle miteinander verglichen werden, weshalb Gleichung 4.16 erweitert wird zu

$$\iiint \rho(x,y,z) dV = N_{\text{Beam}} \stackrel{!}{=} N_{\text{Gas}} = n_{\text{Ar},0}(p_{\text{Ar},0}) \cdot V_{\text{eff}}, \quad (4.17)$$

wobei sich die Dichte eines Gaspulses mithilfe von Profildichten  $f_i$  entlang der entsprechenden kartesischen Koordinaten  $x, y, z$  gemäß

$$\rho(x, y, z) = \rho_{\text{Ar},0} f_x(x) f_y(y) f_z(z) \quad (4.18)$$

beschreiben lässt. Diese werden gemäß den Messungen aus den Kapiteln 4.3.1 und 4.3.2 übernommen. Zur Auswertung des Integrals in Gleichung 4.17 müssen die Integrationsgrenzen entlang der kartesischen Achsen unter Berücksichtigung des Extraktionsvolumens bestimmt werden. Dabei wird der Radius des resultierenden Zylindervolumens über die Ausdehnung des Gasstrahls  $\Delta y$  entlang der  $y$ -Achse um dessen Zentrum zu  $r \approx 2,5$  mm abgeschätzt und ist somit kleiner als  $r_{\text{eff}}$ . Der Grund hierfür ist die Tatsache, dass der Gasstrahl um das Zentrum des Extraktionsvolumens herum eingeschränkt ist und die Transmission in diesem Bereich kleiner ist (vgl. Kapitel 4.4.1). Mit diesem Radius ergibt sich die Nebenbedingung  $x^2 + y^2 = r^2$  für die Integration in der  $xy$ -Ebene, welche sich zu den Integrationsgrenzen entlang der  $x$ -Achse umformen lässt zu  $x = \pm \sqrt{r^2 - y^2}$ . Aufgrund der Bedingung, dass  $\sigma_x \gg r$  gilt, kann  $f_x(x)$  der Einfachheit halber in diesem Bereich als konstant angenommen werden. Die Integration entlang der  $y$ -Achse erstreckt sich dann über  $f_y(y)$  innerhalb von  $\pm r$ . Entlang der  $z$ -Achse hingegen lassen sich die Integrationsgrenzen auf  $\pm \infty$  anheben, ohne das Resultat signifikant zu verändern, da wegen  $5\sigma_z \leq d_1$  beinahe 99% aller Ionen in diesem Bereich erzeugt werden. Dadurch lässt sich entlang der  $z$ -Achse das Standardintegral

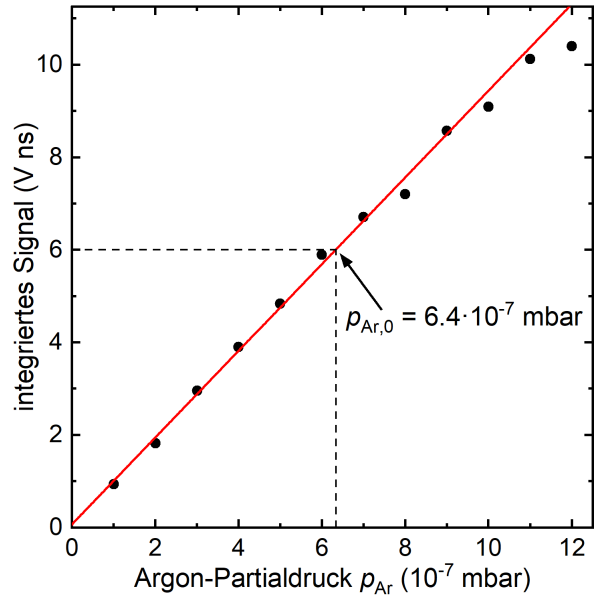
$$\int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left(-\frac{\zeta^2}{2a^2}\right) d\zeta = \sqrt{2\pi} \cdot a \quad [94] \quad (4.19)$$

verwenden. Somit ergibt sich für den rechten Teil von Gleichung 4.17

$$\begin{aligned} N_{\text{Beam}} &= \rho_{\text{Ar},0} \int_{-\sqrt{r^2-y^2}}^{+\sqrt{r^2-y^2}} f_x(x) dx \int_{-r}^r f_y(y) dy \int_{-\infty}^{+\infty} f_z(z) dz \\ &= \sqrt{2\pi} \cdot \rho_{\text{Ar},0} \cdot \sigma_z \int_{-r}^r \int_{-\sqrt{r^2-y^2}}^{+\sqrt{r^2-y^2}} dx f_y(y) dy \\ &= \sqrt{2\pi} \cdot \rho_{\text{Ar},0} \cdot \sigma_z 2 \int_{-r}^r \sqrt{r^2 - y^2} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) dy \\ &= \sqrt{2\pi} \cdot \rho_{\text{Ar},0} \cdot \pi r^2 \sigma_z \exp\left(\frac{r^2}{4\sigma_y^2}\right) \cdot \left[ B_0\left(\frac{r^2}{4\sigma_y^2}\right) + B_1\left(\frac{r^2}{4\sigma_y^2}\right) \right], \quad (4.20) \end{aligned}$$

mit den modifizierten Bessel-Funktionen erster Art und nullter  $B_0(x)$  bzw. erster Ordnung  $B_1(x)$ . Diese können unter Verwendung der Werte für  $r$  und  $\sigma_y$  beispielsweise mit dem Programm WOLFRAM MATHEMATICA ausgewertet werden. Auf diese Weise lässt sich die linke Seite von Gleichung 4.17 quantitativ bestimmen. Um nun die Anzahl der

zu detektierenden Teilchen zu bestimmen, wird das Ionensignal unter Variation des Argon-Partialdrucks innerhalb der Gasstrahlkammer gemessen. Dabei wird der Restgasdruck von  $1,2 \cdot 10^{-8}$  mbar von dem eingestellten Druck subtrahiert und das Resultat mit dem Korrekturfaktor für Argon entsprechend Gleichung 4.1 multipliziert, um  $p_{\text{Ar}}$  zu erhalten. Abbildung 4.14 zeigt diese Messung bei dem nominellen Zentrum des Spektrometers bei Laserposition  $z_0$ . Dabei kann es prinzipiell zu unerwünschten sekundären Austauschprozessen zwischen den erzeugten Ionen kommen, beispielsweise durch Ionenstreuung oder zusätzliche Sekundärelektronen-Ionen-Wechselwirkung [93, 95], weshalb im Allgemeinen eine nichtlineare Abhängigkeit zu erwarten ist. Anhand von Abbildung 4.14 ist allerdings ein lineares Verhalten zwischen Partialdruck und Ionensignal in dem betrachteten Druckbereich zu erkennen. Dementsprechend erlaubt eine lineare Anpassung die Auswertung desjenigen Partialdrucks  $p_{\text{Ar},0}$ , bei dem die Signale aus dem Gasstrahl und dem Argon-Hintergrundgas übereinstimmen.



**Abbildung 4.14:** Detektiertes Argon-Ionensignal als Funktion des eingestellten Argon-Partialdrucks in der Gasstrahlkammer. Der lineare Zusammenhang wird durch eine Ausgleichsgerade angepasst.

Dies ist bei einem integrierten Signal von 6,0 V ns der Fall, was einem Argon-Partialdruck von  $p_{\text{Ar},0} = (6,4 \pm 0,15) \cdot 10^{-7}$  mbar entspricht. Mithilfe von Gleichung 4.1 ergibt sich daher eine Teilchendichte von  $n(p_{\text{Ar},0}) = (1,24 \pm 0,03) \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ , woraus eine Teilchenzahl innerhalb des effektiven Volumens  $V_{\text{eff}}$  von  $N_{\text{Gas}} = (3,47 \pm 0,08) \cdot 10^9$  folgt. Damit lässt sich nun anhand von Gleichung 4.17 die Zentralstrahldichte bestimmen zu

$$\rho_{\text{Ar},0} = (4,2 \pm 0,12) \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}. \quad (4.21)$$

Diese so bestimmte Gasstrahldichte lässt sich anhand des in Kapitel 2.1 eingeführten theoretischen Modells diskutieren. Nach Gleichung 2.1 liegt im Reservoir eine Teilchendichte von  $n_0 = 1,2 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  bei  $p_0 = 5$  bar und  $T_0 = 300$  K vor. Gleichung 2.9 sagt daher eine Dichte von  $n(x = 1060 \text{ mm}) = 3,85 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$  voraus, wobei  $x_{\text{ref}}$  dabei dem Radius der Düsenöffnung entsprechend gleich  $60 \mu\text{m}$  ist. Berücksichtigt man ferner den in Kapitel 2.1.3.1 diskutierten Effekt der Düsenform, die Strahldichte um bis zu eine Größenordnung zu verbessern, unterscheidet sich die gemessene Strahldichte um bis zu zwei Größenordnungen von derjenigen, die sich aus dem Sudden-Freeze-Modell ergibt. Diese große Diskrepanz lässt sich mit der Tatsache erklären, dass der Verlauf der Dichte im Sudden-Freeze-Modell für eine Expansion ohne Skimmer im Strahlengang beschrieben wird. Tatsächlich ist die Transmission des zweiten Skimmers entscheidend für die resultierende Teilchendichte am Ort der Ionisation, wie anhand der gemessenen Druckverläufe unter Strahlbetrieb ersichtlich ist (vgl. Kapitel 4.1.1). Diese lässt sich beispielsweise vergleichen mit Simulationen von Luria et al. [67], welche mit einem Helium-Molekularstrahl bei  $p_0 = 30$  bar in 200 mm Entfernung zur Düse (Durchmesser:

200  $\mu\text{m}$ , Öffnungswinkel:  $40^\circ$ ) eine Strahldichte von  $2 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$  erwarten. Skaliert man die Dichte entsprechend des Betriebsdrucks der Düse um einen Faktor 6, so ergibt sich eine reduzierte Teilchendichte in der Größenordnung von  $n_0 = 3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ . Anhand von Abbildung 2.10 b ist dabei ersichtlich, dass die Transmission für einen Skimmer mit einem Durchmesser von 1 mm bei dieser Dichte weniger als 0,1 ist. Ferner erhöht eine geringere Teilchendichte das Transmissionsvermögen nur geringfügig in diesem Bereich der Teilchendichte. Berücksichtigt man hingegen den rapiden Abfall der Skimmertransmission für Argon in Abbildung 2.10 a für zunehmende Teilchendichten, so scheint es plausibel, dass der zweite Skimmer die Transmission um mehr als eine Größenordnung reduzieren kann. Diese hohe Reduktion der Neutralteilchendichte durch im Strahlengang eingebaute Skimmer ist auch in anderen, direkten Messungen der Gasstrahldichte beobachtet worden [92, 93], sodass die mit diesem experimentellen Aufbau gemessene Strahldichte realistisch erscheint.

Die Charakterisierung der Überschall-Gasexpansion mithilfe des Flugzeit-Massenspektrometers in diesem Kapitel erwies sich prinzipiell als erfolgreich. Die Elektronenstoßionisation neutraler Argon-Teilchen ermöglichte zwar eine Auflösung der zeitlichen Struktur einzelner Gaspulse, jedoch keine Information hinsichtlich ihrer räumlichen Verteilung senkrecht zur Expansionsachse. Das Scannen des Gasstrahls mithilfe eines dritten Skimmers erlaubte schließlich unter Beachtung des effektiven Ionisationsvolumens des Spektrometers einen Vergleich des gesamten Signals mit Argon-Hintergrundgas. Daraus resultierte eine glaubwürdige Breite des zylindersymmetrischen Strahlprofils einerseits sowie eine zentrale Dichte des Gasstrahls andererseits, welche unter Berücksichtigung der Transmission der Skimmer ebenfalls plausibel erscheint. Eine Erhöhung der Teilchendichte ließe sich beispielsweise durch Skimmer mit einem größeren Öffnungsdurchmesser realisieren, die installierten Skimmer bleiben jedoch im Rahmen dieser Arbeit bestehen, da die im nachfolgenden Kapitel 5 verwendete Messmethodik eine Neutralteilchendichte in der Größenordnung der Strahldichte nahelegt.



# 5 Funktionsweise des Ionenbunchers

Als weitere elementare Komponente zur Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse fungiert eine Anordnung von Elektroden gemäß den theoretischen Überlegungen aus Kapitel 2.3.3 sowie der physischen Umsetzung entsprechend Kapitel 3.4.3. Dieser Ionenbuncher wird in diesem Kapitel anhand von Messungen an Argon-Hintergrundgas bei Raumtemperatur charakterisiert. Da ab diesem Kapitel die Ionisation der Neutralteilchen mit dem Titan:Saphir-Laser als Kurzpuls-Laserquelle in dem dafür ausgezeichneten Laserlabor erfolgt, werden zuerst die Eigenschaften des Laserstrahls in Kombination mit dem Parabolspiegel quantifiziert. Anschließend wird der Parameterraum der Laserposition entlang der drei kartesischen Koordinaten in dem Ionenbuncher vermessen. Daraufhin werden erste Ergebnisse bezüglich der möglichen Pulsdauern, Ladungszustände sowie Anzahl der Ionen pro Puls bei Raumtemperatur präsentiert.

---

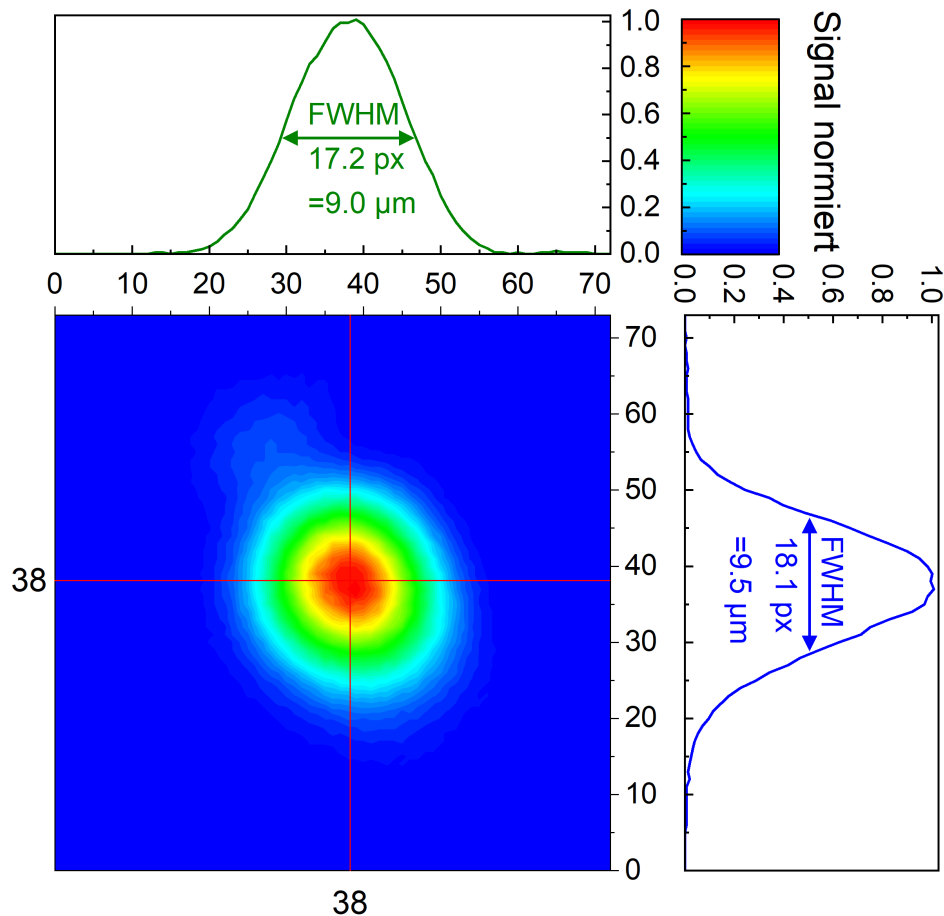
5.1	Messung des Laserstrahlprofils im Nahfeld . . . . .	77
5.1.1	Kalibrierung der Laserstrahlintensität über den Polarisationsfilter . . . . .	79
5.2	Einzelionensignal und erstes Flugzeitspektrum . . . . .	81
5.3	Räumlicher Parameterraum des Ionenbunchers . . . . .	84
5.3.1	Laser-Scan entlang der x-Achse . . . . .	84
5.3.2	Laser-Scan entlang der y-Achse . . . . .	85
5.3.3	Laser-Scan entlang der z-Achse . . . . .	86
5.4	Flugzeitminimum und kürzester Ionenpuls bei Raumtemperatur . . . . .	87
5.4.1	Energieverteilung der nachgewiesenen Ionenpulse . . . . .	91
5.4.2	Limitierung der Zeitauflösung der Ionenpulse . . . . .	92
5.5	Mögliche Ladungszustände . . . . .	93
5.6	Anzahl der Ionen pro Puls . . . . .	97

---

## 5.1 Messung des Laserstrahlprofils im Nahfeld

Das räumliche Strahlprofil, welches durch den Parabolspiegel um den Fokus herum erzeugt wird, lässt sich prinzipiell mithilfe einer CCD-Kamera vermessen. Dazu wird die Kamera planparallel in die Fokusebene gestellt und der Photonenfluss auf jedem einzelnen Pixel der Kamera registriert. Dabei wird die Laserintensität durch insgesamt drei Abschwächer im Laserstrahlengang vor dem Parabolspiegel mit einer Transmission von jeweils 0,1 drastisch reduziert. Dies hat zur Folge, dass die Photonenflussrate auf jedem einzelnen Pixel die maximale Zählrate von 255 Counts pro Sekunde nicht übersteigt und die CCD-Kamera damit nicht sättigt. Auf diese Weise lässt sich das Strahlprofil in der  $xz$ -Ebene messen, diese Messung ist in Abbildung 5.1 dargestellt. Die Farbskala indiziert dabei die Zählrate auf jedem Pixel in einem Raster von insgesamt  $72 \times 72$  Pixeln. Dabei ist deutlich ein annähernd rotationssymmetrisches Strahlprofil um das Strahlzentrum erkennbar. Um die Breite des Profils zu quantifizieren, sind sowohl bei  $x = 38$  als auch bei  $z = 38$  Schnitte durch das Strahlprofil dargestellt, welche eine volle Halbwertsbreite von 17,2 bzw. 18,1 Pixeln aufweisen. Mithilfe einer Mikrometerskala lassen

sich die Dimensionen von Pixeln in  $\mu\text{m}$  umrechnen, der entsprechende Skalierungsfaktor ergibt sich zu  $0,523 \mu\text{m}$  pro Pixel. Daraus folgt ein gemessener Fokusbereich von  $9,0$  bzw.  $9,5 \mu\text{m}$  (FWHM), weshalb  $d_f = 10 \mu\text{m}$  als obere Abschätzung im weiteren Verlauf plausibel erscheint.



**Abbildung 5.1:** Rotationssymmetrisches Laserprofil in der Ebene des Laserfokus. Die Schnitte entlang der horizontalen (grün) bzw. vertikalen (blau) Achse ermöglichen das Auswerten des Strahldurchmessers von  $9,0$  bzw.  $9,5 \mu\text{m}$  (FWHM).

Mithilfe der Kenntnis des räumlichen Laserstrahlprofils lässt sich bei gegebener Laserleistung die Laserintensität bestimmen, dies wird in Kapitel 5.1.1 behandelt. Zunächst wird die Rayleigh-Länge  $y_R$  des Lasers durch Variation der Laserposition in Laserstrahlrichtung bestimmt. Dazu wird das Strahlprofil mit der CCD-Kamera als Funktion der  $y$ -Position gemessen und die Halbwertsbreite ausgewertet. Abbildung 5.2 zeigt die Verbreiterung des Strahlprofils, aufgeschlüsselt in horizontaler (blau) und vertikaler (grün) Richtung. Dabei lässt sich rechts von dem Fokus ein nahezu identischer Verlauf der Halbwertsbreiten verzeichnen, wohingegen die Aufweitung links vom Fokus entlang der horizontalen Achse stärker zunimmt als entlang der vertikalen Achse. Dies lässt sich auf die asymmetrischen Fokuseigenschaften des Parabolspiegels in horizontaler bzw. vertikaler Richtung zurückführen, ist für die Bestimmung der Rayleigh-Länge jedoch unerheblich. Gemäß Abbildung 2.14 ist  $y_R$  derjenige Abstand vom Fokus entlang der Laserstrahlachse, bei dem die Strahlbreite um  $\sqrt{2}$  anwächst. Mit der gemessenen Halbwertsbreite des Strahldurchmessers von  $10 \mu\text{m}$  entspricht die Verbreiterung etwa  $14 \mu\text{m}$  und ist als gestrichelte Linie in Abbildung 5.2 eingezeichnet. Somit lässt sich die



Rayleigh-Länge zu etwa  $300 \mu\text{m}$  abschätzen, was sich gut mit der theoretisch zu erwartenden Rayleigh-Länge von  $280 \mu\text{m}$  entsprechend Gleichung 2.35 deckt. Aufgrund der Tatsache, dass  $y_R$  wesentlich größer ist als der Lochdurchmesser  $d$  in Elektrode  $E_2$ , ändert sich die räumliche Intensitätsverteilung entlang der Laserstrahlachse im Bereich von  $\pm d/2$  um das Lochzentrum kaum und kann daher als konstant angenommen werden. In Kombination mit dem deutlich schmaleren Strahlprofil senkrecht zur Laserstrahlachse lässt die räumliche Intensitätsverteilung oberhalb des Loches annähernd als Zylinder der Länge  $l_{Zy1} = 80 \mu\text{m}$  mit einem Durchmesser von  $d_{Zy1} = 10 \mu\text{m}$  (FWHM) beschreiben. Das zylinderförmige (effektive) Ionisationsvolumen  $V_I^{\text{eff}}$ , aus welchem Ionen daher nachgewiesen werden können, lässt sich daher abschätzen zu

$$V_I^{\text{eff}} = \frac{\pi}{4} d_{Zy1}^2 l_{Zy1} \approx 6,3 \cdot 10^3 \mu\text{m}^3, \quad (5.1)$$

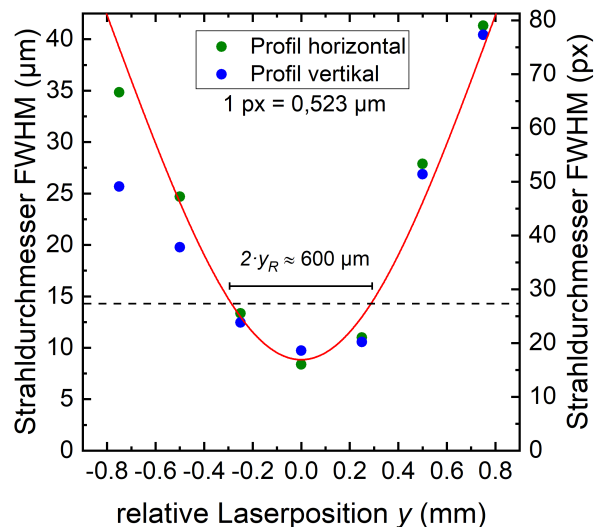
dieses ist allerdings aufgrund der starken nichtlinearen Abhängigkeit der Ionisierungswahrscheinlichkeit von der Laserintensität erheblich kleiner (vgl. Abbildung 2.15 in Kapitel 2.2.3). Nachdem das räumliche Profil des Laserstrahls im Nahfeld des Fokus vollständig charakterisiert wurde, lässt sich die Laserintensitätsverteilung im Fokus quantifizieren. Dazu wird im nächsten Kapitel die maximale Laserausgangsleistung gemessen und mithilfe einer Kombination aus Polarisationsfilter und  $\lambda/2$ -Plättchen kalibriert.

### 5.1.1 Kalibrierung der Laserstrahlintensität über den Polarisationsfilter

Zur Erzeugung von Argon-Ionen durch Photoionisation werden gemäß Abbildung 2.13 Laserintensitäten im Bereich zwischen  $10^{14}$  und  $10^{16} \text{W cm}^{-2}$  benötigt. Aus diesem Grund ist eine möglichst hohe Ausgangsleistung des unfokussierten Laserstrahls erstrebenswert, um die letztlich gewünschte Laserintensität über einen Polarisationsfilter in Kombination mit dem  $\lambda/2$ -Plättchen einstellen zu können. Daher wird zunächst die maximale Ausgangsleistung  $P_{\text{Max}}$  mit einem Laserleistungsmessgerät (Coherent Field-Mate) vor dem letzten Spiegel zu  $1,3 \text{W}$  gemessen. Dies entspricht bei einer Wiederholrate von  $1 \text{kHz}$  einer Energie von  $E_{0,\text{Max}} = 1,3 \text{mJ}$  pro Puls. Aus der Forderung

$$E_{0,\text{Max}} \stackrel{!}{=} I_{0,\text{Max}} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left(-\frac{t^2}{\tau_0^2}\right) dt \cdot 2\pi \int_0^{+\infty} r \exp\left(-\frac{2r^2}{w_0^2}\right) dr \quad (5.2)$$

lässt sich mit der Pulsdauer  $\Delta t = \sqrt{\ln(2)}\tau_0 = 50 \text{fs}$  und der Strahltaile  $w_0 = d_f/\sqrt{2\ln(2)} = 8,5 \mu\text{m}$  die maximale Peakintensität errechnen zu

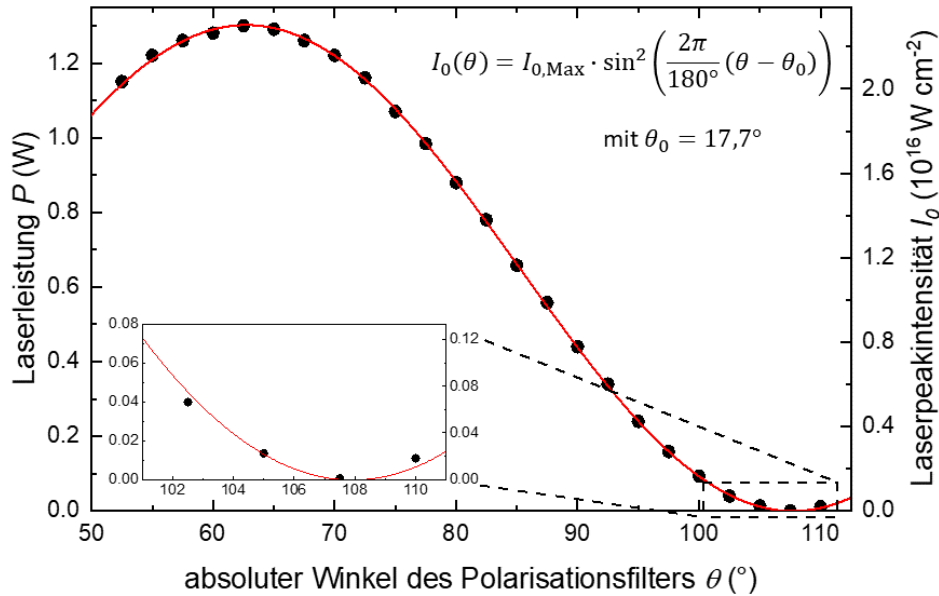


**Abbildung 5.2:** Aufweitung des horizontalen (grün) bzw. vertikalen (blau) Strahlprofils. Der zu erwartende Verlauf (rot) weist eine Rayleigh-Länge von  $y_R \approx 300 \mu\text{m}$  auf.

$$I_{0,\text{Max}} = \sqrt{\frac{\ln(2)}{\pi}} \cdot \frac{4E_{0,\text{Max}}}{\Delta t \pi w_0^2} \quad (5.3)$$

$$\underline{=} 2,16 \cdot 10^{16} \text{ W cm}^{-2}.$$

Die Ausgangsleistung wird daraufhin unter Variation des Winkels  $\theta$  des Polarisationsfilters gegenüber der Polarisationssebene gemessen, welche durch das  $\lambda/2$ -Plättchen definiert wird. Abbildung 5.3 zeigt die gemessene Laserleistung (linke Skala) sowie die umgerechnete Laserleistungsdichte (rechte Skala) als Funktion von  $\theta$ .



**Abbildung 5.3:** Gemessene Laserleistung  $P$  (linke Skala) unter Variation des Winkels  $\theta$  des Polarisationsfilters. Der Verlauf lässt sich mit einer  $\sin^2$ -Funktion anpassen, die Laserintensität (rechte Skala) kann dabei mithilfe des gemessenen Durchmessers im Fokus kalibriert werden.

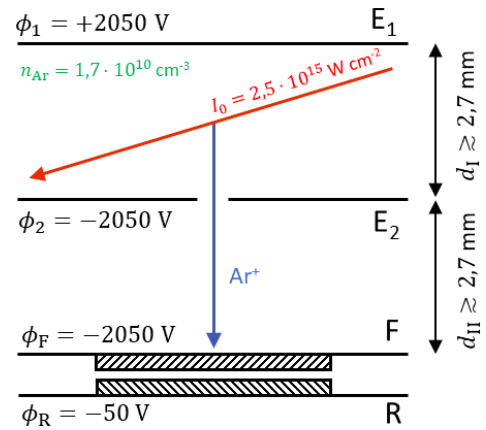
Über eine  $\sin^2$ -Funktion lassen sich die Messwerte anpassen, sodass die Laserintensität in Abhängigkeit vom Winkel des Polarisationsfilters kalibriert ist. Nachdem sich der Laser somit in seiner Leistungsdichte einstellen lässt, wird der Laserstrahl an der geöffneten Ionisationskammer durch das Lasereintritts- und das Laseraustrittsfenster geführt. Unter dieser Atmosphärenbedingung lässt sich ausnutzen, dass das elektrische Feld bei hohen Leistungsdichten im Fokus lokal zusammenbricht und diesen Fokus damit trotz des eigentlich infraroten Spektralbereiches sichtbar werden lässt. Entfernt man die obere Elektrode  $E_1$ , lässt sich der Fokus vage oberhalb der Elektrode  $E_2$  des Bunchers mittig über dem Loch positionieren. Nach dieser groben Justage des Lasers innerhalb des Bunchers wird dessen Strahlengang geblockt und die obere Elektrode in ihrer Nullstellung hinsichtlich ihrer Höhe und Winkel wieder eingesetzt. Daraufhin lässt sich der Abstand zwischen den Elektroden ebenfalls grob abschätzen, indem  $E_1$  mithilfe der Piezo-Schrittmotoren so weit nach unten verfahren wird, dass sich optisch kein Spalt mehr zwischen ihr und  $E_2$  ausmachen lässt. Dies ist bei einer Höhe von  $h_1 = -3,7 \text{ mm}$  gegenüber der Nullstellung der Fall, sodass sich damit der Ionenbuncher grob kalibrieren lässt. Daraufhin wird die Ionisationskammer verschlossen, auf

einen Restgasdruck von  $3,0 \cdot 10^{-8}$  mbar abgepumpt und die obere Elektrode auf eine Höhe von  $h_1 = -1,0$  mm eingestellt, sodass die Abstände  $d_I$  und  $d_{II}$  nominell jeweils etwa  $\gtrsim 2,7$  mm betragen. Im anschließenden Kapitel wird daraufhin das laserinduzierte Ionensignal am Detektor behandelt, welche die prinzipielle Funktionsweise des so installierten Ionenbunchers in Kombination mit dem Laser beweist.

## 5.2 Einzelionensignal und erstes Flugzeitspektrum

Nachdem UHV-Bedingungen innerhalb der Ionisationskammer hergestellt sind, lassen sich Potentiale an die Elektroden sowie den Detektor anlegen. Um eine geeignete Betriebsspannung des ultraschnellen MCP-Detektors

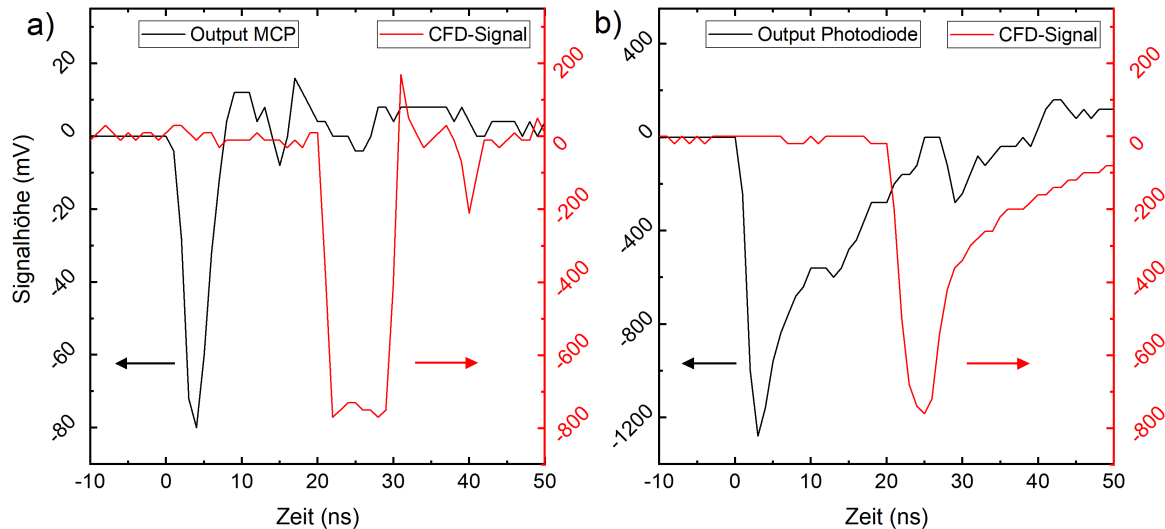
zu gewährleisten, wird dessen Front-Seite auf ein Potential von  $\phi_F = -2050$  V gegenüber der Rear-Seite gelegt, welche mit einem kleinen Potential von  $\phi_R = -50$  V gegenüber demjenigen des Gitters die emittierten Elektronen auf den Collector beschleunigt. Damit der Bereich zwischen Detektor und  $E_2$  zunächst feldfrei bleibt, wird ebenfalls  $\phi_2 = -2050$  V gewählt. Aus Symmetriegründen wird das Potential an der oberen Elektrode  $E_1$  auf  $\phi_1 = +2050$  V eingestellt. In Abbildung 5.4 ist die Konfiguration der Abstände und Potentiale schematisch skizziert, lediglich der Laser wird auf eine moderate Intensität von etwa  $I_0 = 4 \cdot 10^{14}$  W cm $^{-2}$



**Abbildung 5.4:** Konfiguration der Abstände und Potentiale des Ionenbunchers - Parameterraum Argon.

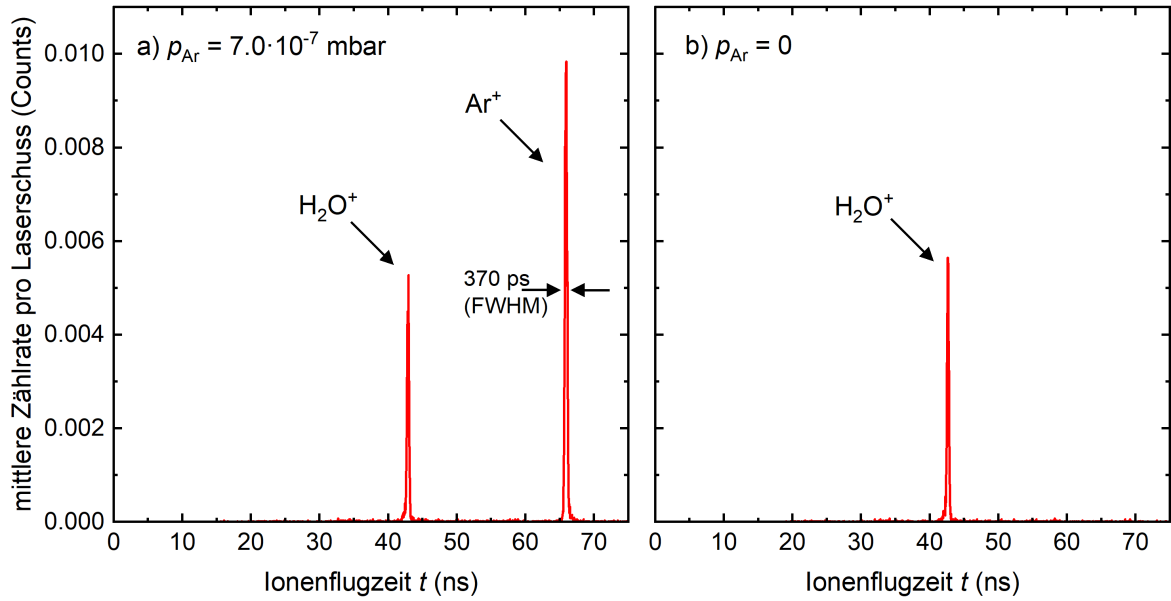
entspricht. In die Ionisationskammer wird daraufhin Argon-Hintergrundgas bei einem Partialdruck von  $p_{Ar} = 7,0 \cdot 10^{-7}$  mbar eingelassen, was einer Neutralteilchendichte von  $n_{Ar} = 1,7 \cdot 10^{10}$  cm $^{-3}$  entspricht. Die daraufhin im Laserfokus erzeugten, positiv geladenen Ionen werden in dieser Konfiguration durch das Loch in  $E_2$  auf den Detektor beschleunigt, erreichen beim Auftreffen auf der aktiven Fläche des Detektors eine kinetische Energie von etwa  $E_0 = 2$  keV und lösen dort eine Elektronenkaskade aus (vgl. Kapitel 3.3.3). Ein resultierender Strompuls auf dem Collector lässt sich zunächst mithilfe eines  $50 \Omega$ -Widerstandes an einem Oszilloskop (Rigol DS1204B Digital Oscilloscope, Bandbreite: 200 MHz, Abtastrate: 1 GSa s $^{-1}$ ) auslesen. Wie in Abbildung 5.5 a exemplarisch dargestellt, weist ein einzelner ioneninduzierter Spannungspuls dabei eine Höhe von etwa 80 mV bei einer Pulsbreite von ca. 5 ns auf, und ist maßgeblich von der Auflösung des Oszilloskops ( $\sim 5$  ns) definiert. Diese Pulse werden daraufhin vorverstärkt und dann von dem CFD prozessiert, das resultierende Signal ist mit einer Höhe von  $\gtrsim 750$  mV zeitlich versetzt ebenfalls in Abbildung 5.5 a gezeigt. Dabei spiegeln die gemessenen Pulse weder die tatsächliche Pulsbreite bzw. Flankensteilheit des Elektronensignals aus dem Detektor (vgl. Kapitel 3.4.4) noch einen etwaigen Jitter zwischen Eingangspuls wieder, vielmehr steht hier die Höhe, Form und zeitliche Position des prozessierten Signals relativ zum Eingangssignal im Vordergrund. Das von der Photodiode durch einen Laserpuls generierte Ausgangssignal wird ebenfalls am Oszilloskop gemessen und bildet den Referenzzeitpunkt für die Messung der Flugzeitverteilung. Dessen Signalthöhe liegt hingegen bei etwa 1200 mV und benötigt daher keine weitere Vorverstärkung, sondern wird direkt von dem zwei-

ten CFD prozessiert. In Abbildung 5.5 b ist je ein einzelner dieser Eingangs- bzw. Ausgangspulse exemplarisch dargestellt, auch hierbei werden Pulsbreite und Flankenteilheit der gemessenen Pulse durch die Auflösung des Oszilloskops deutlich verbreitert (vgl. Kapitel 3.4.2.2). Der von diesem CFD ausgegebene NIM-Puls weist ebenfalls eine Signalhöhe von  $\gtrsim 750$  mV auf und wird als Starttrigger auf den Starteingang des TDC gegeben. Jeder ioneninduzierte NIM-Puls hingegen wird auf dessen Stoppeingang nach Starten einer einzelnen Messakquise in ein entsprechendes Zeitbin einsortiert und erhöht in diesem Bin die Countzahl um 1. Nach einer einstellbaren Wiederholrate lässt sich der TDC auslesen und die so aufsummierte Messung der Ionenflugzeiten als Histogramm darstellen.



**Abbildung 5.5:** Direktes Ausgangssignal (schwarz, linke Skala) und prozessiertes Signal des entsprechenden CFDs (rot, rechte Skala) von MCP-Detektor (a) und Photodiode (b), exemplarisch für jeweils einen Eingangspuls. Die Betriebsspannung des Detektors beträgt  $U_{\text{MCP}} = -2,0$  kV, das Signal wird mit einer Bandbreite von 200 MHz und einer Abtastrate von  $1 \text{ GSa s}^{-1}$  aufgenommen.

Ein solches Histogramm wird im Folgenden als Spektrum bezeichnet. Generell stellt die Abszisse in einem solchen Spektrum die Flugzeit dar, diskretisiert nach der Binbreite von 27,4 ps, auf der Ordinate wird die mittlere Zählrate pro Laserschuss (Counts) in jedem einzelnen Bin aufgetragen, sodass einzelne Spektren unabhängig von der Anzahl an Laserschüssen dennoch untereinander vergleichbar sind. Dies hat ferner die messtechnischen Vorteile, einerseits statistische Schwankungen hinsichtlich der Zählrate pro Bin zu reduzieren, wenn über mehrere Spektren gemittelt wird, andererseits lassen sich prinzipielle Aussagen über die Statistik der detektierten Ionen pro Laserschuss treffen. Zu berücksichtigen ist bei dieser Messmethode mit einem TDC allerdings die Tatsache, dass keine zwei gleichzeitig auftreffenden Ionen innerhalb der Totzeit separat voneinander registriert werden können, weshalb auch in diesem Fall das Bin bei der entsprechenden Flugzeit nur um 1 Count erhöht wird (vgl. Kapitel 3.4.2.1). Da sich auf diese Weise keine Ionenpulse mit einer mittleren Ionenzahl pro Laserschuss größer 1 einer bestimmten Masse auflösen lassen, wird im Rahmen dieser Arbeit von Flugzeitverteilungen der Ionen gesprochen. Im Falle von mehr als einem Ion pro Laserschuss ist das Signal stattdessen gesättigt und kann die gemessene Flugzeitverteilung verfälschen, da die Höhe ihres Maximums unter- und ihre Breite dementsprechend überschätzt wird.



**Abbildung 5.6:** Erstes mit dem Ionenbuncher gemessenes Ionensignal als Funktion der Ionenflugzeit  $t$  unter Einlass von Argon-Hintergrundgas bei  $p_{\text{Ar}} = 7,0 \cdot 10^{-7}$  mbar (a) sowie bei  $p_{\text{Ar}} = 0$  (b). Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht der Abbildung 5.4, daraus folgt eine Ionenenergie von  $E_{0,\text{Ar}} \approx 2$  keV. Beide Spektren sind jeweils über  $5 \cdot 10^4$  Laserschüsse gemittelt.

Ein erstes auf diese Weise gemessenes, über  $5 \cdot 10^4$  Laserschüsse kumuliertes Spektrum ist in Abbildung 5.6 a dargestellt und weist zwei deutlich voneinander getrennte Peaks um Flugzeiten um 43 ns sowie 66 ns auf, welche durch ein Restgasquadrupol-Massenspektrometer (Pfeiffer QMG 220 PrismaPlus)  $\text{H}_2\text{O}^+$  mit einer Masse von 18 amu bzw.  $\text{Ar}^+$  bei 40 amu zugeordnet werden können. Dazu wird die Laserpeakintensität auf  $I_0 = 2,5 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$  erhöht, sodass die Konfiguration des Ionenbunchers Abbildung 5.4 entspricht. Dabei ließen sich im Mittel etwa 0,08  $\text{H}_2\text{O}^+$ -Ionen sowie 0,15  $\text{Ar}^+$ -Ionen pro Laserschuss detektieren, deren Flugzeitverteilung weist dabei eine Breite von 370 ps auf. Im Vergleich dazu ist ein Spektrum ohne Argon-Hintergrundgas, aber unter sonst identischen Bedingungen, in Abbildung 5.6 b gezeigt. Ein solches Restgasspektrum zeigt dabei nur noch einen einzelnen  $\text{H}_2\text{O}^+$ -Peak mit einer mittleren Ausbeute von etwa 0,08 Ionen pro Laserschuss. Die deutliche Diskrepanz zwischen dem Verhältnis der Partialdrücke ( $\sim 24$ ) und dem Verhältnis der nachgewiesenen Ionen für  $\text{H}_2\text{O}^+$  und  $\text{Ar}^+$  ( $\sim 0,5$ ) lässt sich zurückführen auf das niedrigere Ionisationspotential der Wassermoleküle von  $IP_{\text{H}_2\text{O}} = 12,6 \text{ eV}$  [96] gegenüber demjenigen von Argon. Obwohl die Ionisation einzelner Wassermoleküle um einen Faktor 12 effizienter abzulaufen scheint als für Argon, ist es möglich, mit dem Laser einerseits  $\text{Ar}^+$ -Ionen zu erzeugen und diese andererseits mithilfe des Ionenbunchers in ihrer Flugzeit separiert vom  $\text{H}_2\text{O}^+$ -Peak innerhalb eines Zeitfensters im Sub-Nanosekundenbereich auf den Detektor zu beschleunigen. Auch wenn die  $\text{H}_2\text{O}^+$ -Ionen aufgrund der hohen Flugzeitdifferenz zu den  $\text{Ar}^+$ -Ionen nicht hinderlich sind für die geplante Anwendung in einem Anrege-Abfrage-Schema, ist zu erwähnen, dass der  $\text{H}_2\text{O}^+$ -Peak nach hinreichend langer Pumpzeit in seiner Intensität abnimmt.

Nachdem der fundamentale Nachweis der Argon-Ionen erbracht werden konnte, wird im nachfolgenden Kapitel anhand solcher Flugzeitspektren der mögliche Parameterraum unter Variation der Laserposition entlang der drei kartesischen Koordinaten vermessen.

## 5.3 Räumlicher Parameterraum des Ionenbunchers

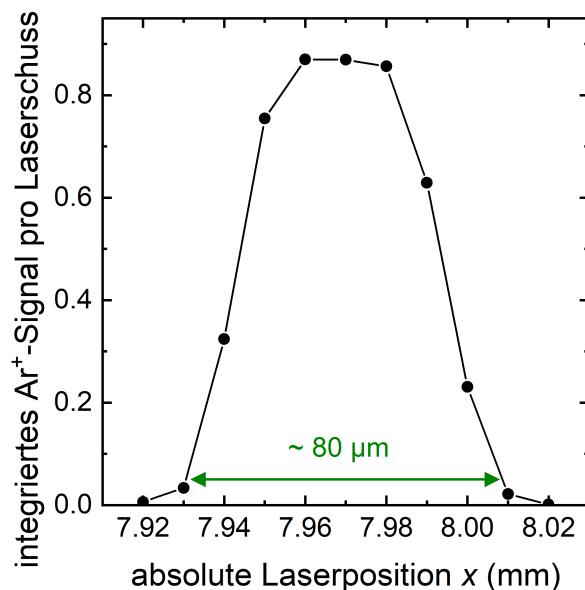
In diesem Kapitel wird das Signal als Funktion der Laserposition im Raum zwischen den beiden Elektroden  $E_1$  und  $E_2$  beobachtet, indem die Signalhöhe sukzessive entlang der  $x$ -,  $y$ - und  $z$ -Achse der Laserposition optimiert wird. Dazu wird unter Variation der entsprechenden Laserposition jeweils ein Spektrum über  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse gemittelt und anschließend über den Peak der  $\text{Ar}^+$ -Ionen integriert. Da sowohl die Ordinate als auch die Abszisse diskret sind, entspricht eine solche Peak-Integration einer Summation aller detektierten  $\text{Ar}^+$ -Ionen. Dabei bleiben die aus dem vorherigen Kapitel 5.2 gewählten Einstellungen der Abstände und Potentiale des Ionenbunchers sowie der Neutralteilchendichte von  $n_{\text{Ar}} = 1,7 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  und der Laserpeakintensität von  $I_0 = 2,5 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$  erhalten. Bei dieser Intensität kann ein maximales Signal von  $\text{Ar}^+$ -Ionen detektiert werden, was für die Charakterisierung des Parameterraumes zunächst von Vorteil ist, die große Diskrepanz zwischen der nominell eingestellten Intensität maximaler Ionisationswahrscheinlichkeit und der tatsächlich gewählten Intensität wird im Kapitel 5.5 diskutiert.

### 5.3.1 Laser-Scan entlang der $x$ -Achse

Der Laser-Scan entlang der  $x$ -Achse, welche der Gasstrahlachse entspricht, erfolgt parallel zur Oberfläche der Elektroden, aber senkrecht zur Laserstrahlachse. Da der Laserfokus in dieser Ausdehnung wesentlich kleiner als der Lochdurchmesser  $d$  in  $E_2$  ist, lässt sich so das Transmissionsverhalten des Loches abbilden. In Abbildung 5.7 ist das integrierte Signal als Funktion der absoluten Laserposition des Manipulators entlang der  $x$ -Achse gezeigt. Hierbei ist ein Signalverlauf erkennbar, welcher ein kleines Plateau mit zwei symmetrischen Flanken zeigt. Dies ist zwar aufgrund der Symmetrie der Messung zu erwarten, der exakte Verlauf ist jedoch nicht leicht vorherzusagen, da sich das Signal als Faltung der Transmissionsfunktion der Form

$$T(x,y) = \begin{cases} 1 & \text{für } x^2 + y^2 \leq \left(\frac{d}{2}\right)^2 \\ 0 & \text{sonst} \end{cases}$$

mit derjenigen Ionisierungswahrscheinlichkeit ergibt, welche aus dem zylinderförmigen Laserstrahlprofil resultiert. Zwar lässt sich dem Signalverlauf eine Breite von ca.  $80 \mu\text{m}$  zwischen dem linken und rechten Signalminimum zuordnen, welche sich in etwa mit Lochdurchmesser  $d$  deckt, dessen Flanken scheinen jedoch schneller abzufallen als für das Laserstrahlprofil zu erwarten ist. Dies ist vermutlich auf die stark nichtlineare Abhängigkeit der Ionisierungswahrscheinlichkeit von der Laserintensität zurückzuführen (vgl. Abbildung 2.13 a



**Abbildung 5.7:** Integriertes  $\text{Ar}^+$ -Ionensignal pro Laserschuss als Funktion der absoluten Laserposition  $x$  des Manipulators, gemittelt über  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht Abbildung 5.4.

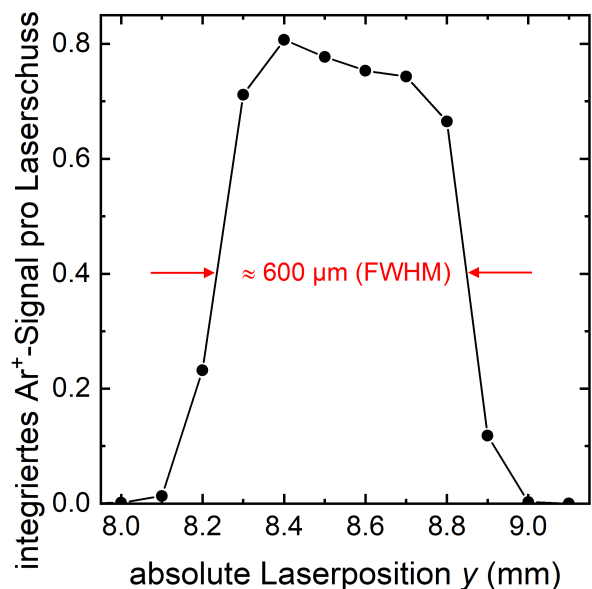


in Kapitel 2.2.2). Dennoch ist das Zentrum des Signalverlaufes bei der Manipulatorposition  $x_0 = 7,97$  mm auszumachen, daher wird der Laser für die Messungen entlang der beiden anderen Koordinaten an dieser Position belassen, da entlang der  $x$ -Achse auch die am stärksten begrenzte geometrische Einschränkung vorliegt. Ein weiterer wichtiger Aspekt, welcher dieser Messung zu entnehmen ist, besteht in der Ausblendung des Ionensignals, wenn sich der Laserfokus nicht oberhalb des Loches in  $E_2$  befindet. Dies bedeutet, dass die detektierten Ionen weder direkt durch Streulicht noch indirekt mittels dadurch induzierter Sekundärelektronen innerhalb des Ionenbunchers, sondern zweifelsfrei durch Photoionisation erzeugt werden.

### 5.3.2 Laser-Scan entlang der $y$ -Achse

Um die in Kapitel 5.1 getroffene Aussage zu überprüfen, dass die Intensitätsverteilung des Lasers annähernd konstant entlang der Laserstrahlachse verläuft, wird das  $\text{Ar}^+$ -

Ionensignal unter Variation der Laserposition in Laserstrahlrichtung untersucht. Dabei wird die absolute Laserposition des Manipulators entlang der  $y$ -Achse mit einer Schrittweite von  $100 \mu\text{m}$  variiert. Der resultierende Signalverlauf ist in Abbildung 5.8 illustriert und weist, analog zu der Messung entlang der  $x$ -Achse, einen annähernd symmetrischen Verlauf mit einer ansteigenden und einer abfallenden Flanke auf. Hierbei kann auf die Faltung des Laserstrahlprofils mit der Transmissionsfunktion verzichtet werden, da aufgrund von  $d/2 \ll y_R$  nur das Strahlprofil entlang der Laserstrahlachse abgebildet wird. Aus diesem Grund werden einerseits keine Ionen mehr detektiert, sobald sich der Laser weit genug weg von dem Loch befindet, was für  $y \leq 8,1$  mm bzw. für  $y \geq 9,0$  mm der Fall ist. Andererseits ist ein Plateau mit einer Breite von  $\approx 600 \mu\text{m}$  (FWHM) um den Schwerpunkt der Kurve bei  $y_0 = 8,55$  mm in der Signalthöhe



**Abbildung 5.8:** Integriertes  $\text{Ar}^+$ -Ionensignal pro Laserschuss als Funktion der absoluten Laserposition  $y$  des Manipulators, gemittelt über  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht Abbildung 5.4.

zu verzeichnen. Dies entspricht etwa der Rayleigh-Länge  $\pm y_R$  um  $y_0$  und belegt daher die Aussage, dass das Profil um  $\pm d/2$  entlang der Strahlrichtung als zylinderförmig angenommen werden kann. Analog zur Messung entlang der  $x$ -Achse fällt das Ionensignal am Rand des Plateaus rapider ab, als entsprechend der Rayleigh-Länge zu erwarten ist. Dies ist ein weiteres Indiz für den stark nichtlinearen Zusammenhang zwischen Laserintensität und der damit verbundenen Ionisierungswahrscheinlichkeit (vgl. Abbildung 2.13 a in Kapitel 2.2.2). Es bleibt jedoch festzuhalten, dass die Position des Laserfokus entlang dieser Achse oberhalb des Loches in  $E_2$  offenbar nicht kritisch ist, sodass der Laser auf die Manipulatorposition  $y_0 = 8,55$  mm eingestellt wird.

### 5.3.3 Laser-Scan entlang der z-Achse

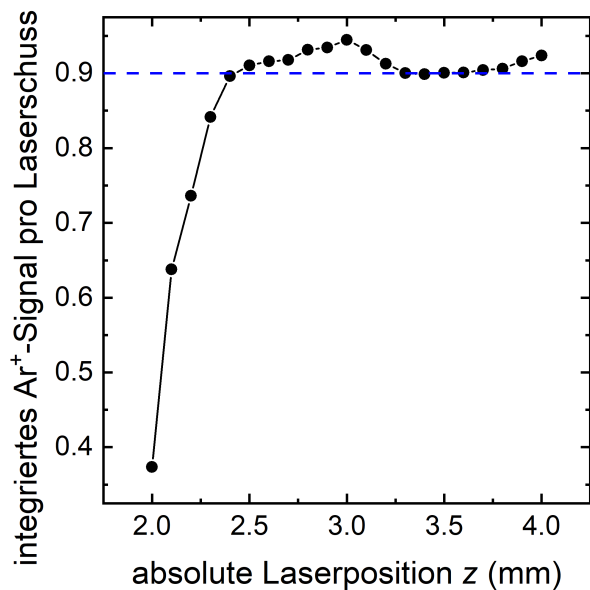
Da die Transmissionseigenschaften des Ionenbunchers im Prinzip nicht von der Höhe des Laserfokus oberhalb der  $E_2$  abhängen, sollte sich die Signalhöhe entlang der  $z$ -Achse nicht wesentlich verändern. Zu berücksichtigen ist allerdings, dass der Laserstrahl durch die beiden Elektroden  $E_1$  und  $E_2$  geometrisch eingeschränkt wird. Dabei legt die Strahlausdehnung am Eingang des Ionenbunchers zum einen den minimal möglichen Abstand der Elektroden zueinander fest, unter welchem der Laserstrahl uneingeschränkt Ionen im Buncher generieren kann. Zum anderen lässt sich anhand der halben Strahlausdehnung die geometrische Einschränkung zu jeder einzelnen Elektrode beurteilen. Dazu wird die Strahlausdehnung des Laserstrahls im Fernfeld über die Brennweite von etwa 100 mm anhand geometrischer Strahlenoptik beschrieben sowie die Breite des Laserstrahls am Ausgang des Lasers gemäß dem 2,55-fachen der Halbwertsbreite des Strahlprofils zu etwa 25 mm abgeschätzt (vgl. Kapitel 3.4.2). Daraus ergibt sich eine Strahlausdehnung am Eingang des Ionenbunchers im Abstand von 6 mm vom Fokus entsprechend dem halben Durchmesser beider Elektrodenhalter zu

$$25 \text{ mm} \cdot \frac{6 \text{ mm}}{100 \text{ mm}} \approx 1,5 \text{ mm}. \quad (5.4)$$

Das Signal als Funktion der absoluten Laserposition des Manipulators entlang der  $z$ -Achse ist in Abbildung 5.9 dargestellt, die Achse ist dabei von  $E_2$  in Richtung von

$E_1$  orientiert. Die Abbildung weist für  $z \geq 2,4$  mm erwartungsgemäß einen nahezu konstanten Signalverlauf auf, für kleinere  $z$ -Positionen ist hingegen eine drastische Abnahme der detektierten Ionen zu erkennen, welche vermutlich auf eine geometrische Ausblendung des Laserstrahlprofils zurückzuführen ist. Anhand des Verlaufs ist hauptsächlich zu erkennen, dass entlang der Extraktionsachse im Mittel 0,9  $\text{Ar}^+$ -Ionen per Laserschuss erzeugt und detektiert werden können. Ferner belegt das annähernd konstante Ionensignal entlang der  $z$ -Achse, dass sich das zylinderförmige Ionisationsvolumen entlang der Extraktionsachse nicht ändert. Die Tatsache, dass sich der Laser allerdings auf einem Bereich von etwa 1,5 mm ohne Signalverlust verfahren lässt, legt unter Berücksichtigung der Abschätzung aus Gleichung 5.4 nahe, dass die Bedingung gleicher Abstände  $d_I$  und  $d_{II}$  näherungsweise erfüllt ist. Um diese

Abstände jedoch quantitativ zu bestimmen, werden im nachfolgenden Kapitel die flugzeitfokussierenden Eigenschaften des Bunchers entlang der  $z$ -Achse detailliert beleuchtet, da diese ein essenzielles Charakteristikum des Ionenbunchers darstellen.



**Abbildung 5.9:** Integriertes  $\text{Ar}^+$ -Ionensignal pro Laserschuss als Funktion der absoluten Laserposition  $z$  des Manipulators, gemittelt über  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht Abbildung 5.4.



## 5.4 Flugzeitminimum und kürzester Ionenpuls bei Raumtemperatur

Die absolute Flugzeit der Ionen setzt sich gemäß der Überlegungen aus Kapitel 2.3.1 in der Elektrodenanordnung des Ionenbunchers aus der Ionenflugzeit in Bereich I sowie Bereich II zusammen. Die einzelnen Flugzeiten entsprechen dabei denjenigen aus den Gleichungen 2.41 und 2.45 mit den jeweiligen Beschleunigungen

$$a_I = \frac{qe\Delta\phi_I}{md_I} \quad (5.5)$$

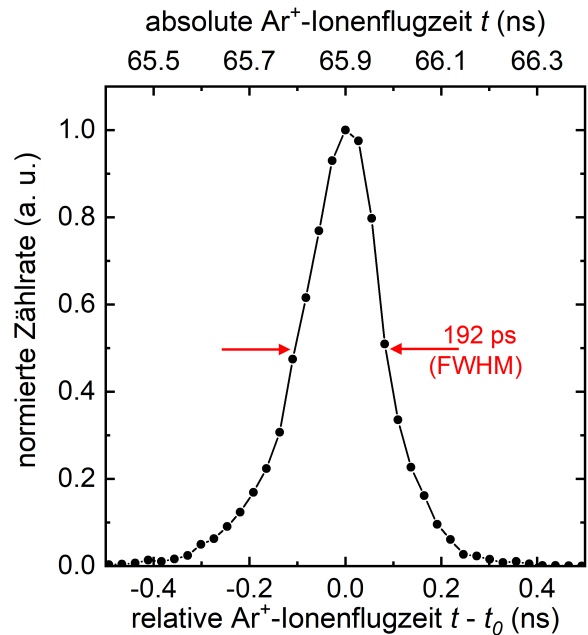
gemäß Gleichung 2.40 und dem Grenzfall  $a_{II} \rightarrow 0$ . Des Weiteren wird eine Koordinatentransformation  $d_I - 2z_{I,0} \rightarrow z = z' - z_E$  vorgenommen, sodass der Startort  $z$  der Ionen oberhalb der Position der Elektrode  $E_2$  bei  $z_E$  bemessen wird. Daraus ergibt sich die Gesamtflugzeit als Funktion der Laserposition entlang der Extraktionsachse  $z$  unter Vernachlässigung der Startgeschwindigkeit zu

$$t(z) = \sqrt{\frac{md_I}{qe\Delta\phi_I}} \cdot \left( \sqrt{2z} + \frac{d_{II}}{\sqrt{2z}} \right). \quad (5.6)$$

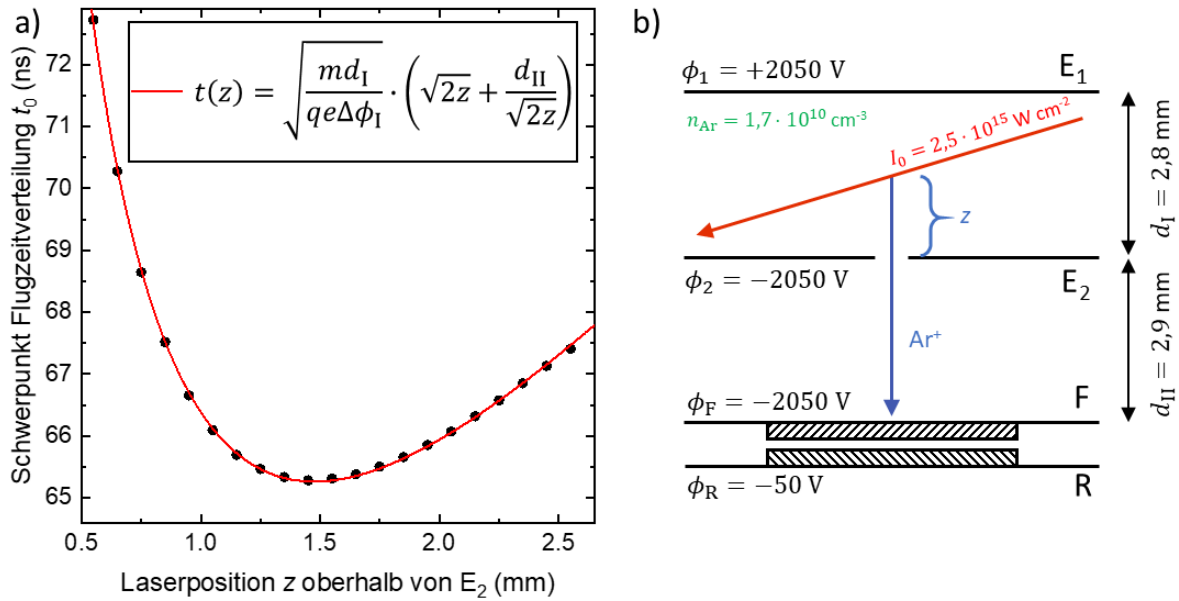
Innerhalb dieser Konfiguration ist die Position des Flugzeitfokus  $z_0$  definiert durch den Abstand

$$z_0 = \frac{d_{II}}{2} \quad (5.7)$$

oberhalb von  $E_2$ . Dieses Flugzeitminimum lässt sich anhand der gemessenen  $\text{Ar}^+$ -Pulse als Funktion der Laserposition entlang der  $z$ -Achse aus Kapitel 5.3.3 bestimmen. Dazu wird der Schwerpunkt der jeweils gemessenen Flugzeitverteilungen als wahrscheinlichste Flugzeit  $t_0$  interpretiert, wie exemplarisch anhand von Abbildung 5.10 für das Flugzeitspektrum bei  $z = 1,95$  mm oberhalb von  $E_2$  ersichtlich ist. Die obere Abszisse zeigt dabei die gemessene Flugzeit der  $\text{Ar}^+$ -Ionen an dieser Laserposition, die untere Abszisse wird um den daraus bestimmten Schwerpunkt  $t_0$  verschoben, sodass dieser Flugzeitverteilung eine Halbwertsbreite von 192 ps um  $t_0 = 65,9$  ns zugeordnet werden kann. Der auf diese Weise bestimmte Schwerpunkt der Ionenflugzeiten ist daraufhin unter Variation der  $z$ -Position des Laserfokus in Abbildung 5.11 a gezeigt. Dabei fällt sofort die minimale Flugzeit bei der Laserposition  $z = 1,45$  mm auf, welches sich anhand dieser Messung als  $z_0$  identifizieren lässt. Damit ist die prinzipielle flugzeitfokussierende Eigenschaft der Elektrodenanordnung des Bunchers erwiesen.



**Abbildung 5.10:** Gemessene Flugzeitverteilung von  $\text{Ar}^+$ -Ionen bei  $E_{0,\text{Ar}} \approx 2,8$  keV an der Laserposition  $z = 1,95$  mm, akquiriert über  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse.



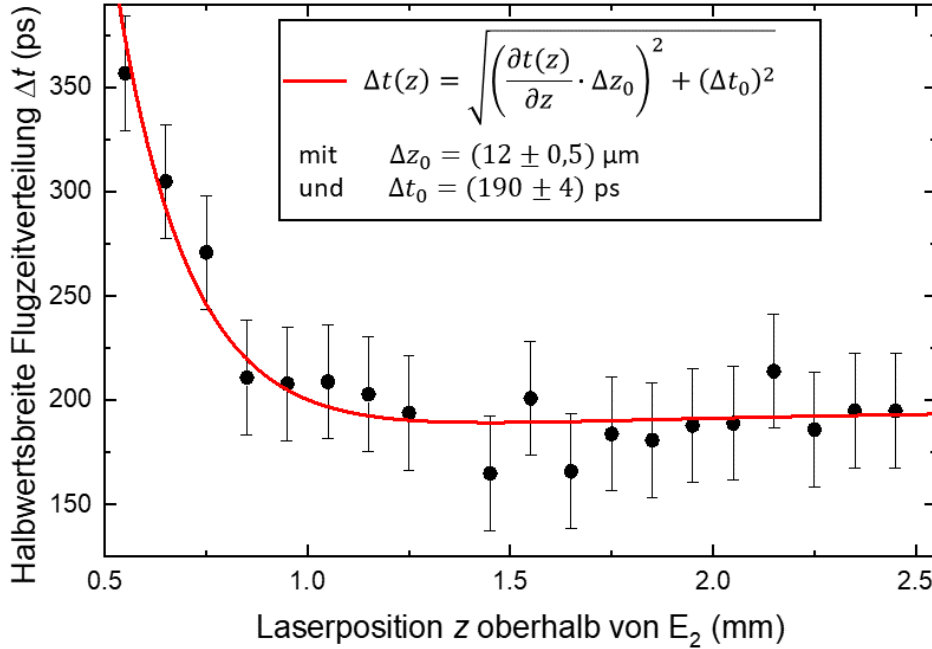
**Abbildung 5.11:** a) Schwerpunkte der gemessenen Flugzeitverteilungen  $t_0$  unter Variation der Laserposition  $z$ , akquiriert über jeweils  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Aus der Anpassung entsprechend Gleichung 5.6 (rot) lassen sich die Parameter  $d_I$  und  $d_{II}$  extrahieren, die Ionenenergie der  $\text{Ar}^+$ -Ionen im Flugzeitminimum  $z_0 = 1,45$  mm beträgt  $E_{0,Ar} = 2$  keV. b) Resultierende optimierte Konfiguration der Abstände und eingestellten Potentiale des Ionenbunchers.

Durch eine Anpassung der Messpunkte gemäß Gleichung 5.6 lassen sich ferner die Abstände  $d_I$  und  $d_{II}$  extrahieren, sofern die Masse  $m$  und der Ladungszustand  $q$  der untersuchten Ionenspezies sowie die verwendete Extraktionsspannung  $\Delta\phi_I$  bekannt sind. Eine entsprechende Anpassungskurve ist ebenfalls in Abbildung 5.11 a dargestellt, welche den Verlauf der Ionenflugzeit für  $m = 40$  amu,  $q = 1$  und  $\Delta\phi_I = 4100$  V hervorragend wiedergibt. Anhand der angepassten Kurve lassen sich dennoch die Abstände bestimmen zu

$$d_I = (2,8 \pm 0,12) \text{ mm} \quad \text{sowie} \quad d_{II} = (2,9 \pm 0,04) \text{ mm} \quad (5.8)$$

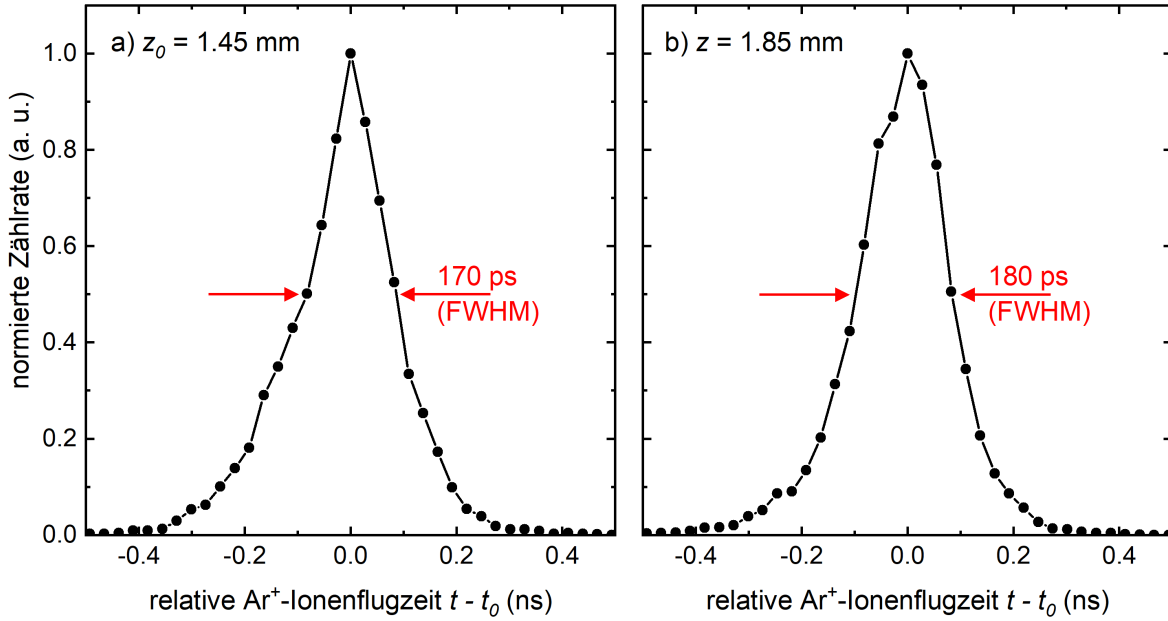
womit die Bedingung gleicher Abstände ausreichend erfüllt ist. Damit sind die Abstände und elektrostatischen Potentiale des Ionenbunchers entsprechend Abbildung 5.11 b konfiguriert. Da der Flugzeitfokus geometrisch gemäß Gleichung 5.7 bei  $z_0 = 1,45$  mm oberhalb von  $E_2$  liegt, lässt sich dessen  $z$ -Position entlang der Manipulatorachse zu  $z_E = 1,45$  mm bestimmen und stellt die Kalibrierung der Laserposition innerhalb des Ionenbunchers dar. Analog dazu ist in den Messungen der absoluten Flugzeitverteilungen von  $\text{Ar}^+$ -Ionen entlang der Ordinate ein Offset von  $t_{\text{Off}} = (11,7 \pm 1,7)$  ns von den gemessenen Flugzeiten subtrahiert worden. Dieser Offset resultiert aus unterschiedlichen Kabellängen und Dauern für die Prozessierung der Signale durch die CFDs an der Photodiode und dem MCP-Detektor. Anhand von  $t_{\text{Off}}$  lässt sich der Zeitpunkt der Ionisation extrapolieren, welcher somit den Referenzzeitpunkt für die Verteilung der Flugzeiten in den präsentierten Messungen bildet.

Zudem kann den Flugzeitverteilungen eine Halbwertsbreite zugeordnet werden, wie exemplarisch anhand der Verteilung in Abbildung 5.10 ersichtlich ist. Die auf diese Weise bestimmte Breite der jeweiligen Verteilung als Funktion der Laserposition  $z$  ist in Abbildung 5.12 dargestellt und weist dabei über einen relativ großen Bereich zwischen  $z = 0,9$  mm und  $z = 2,5$  mm eine annähernd konstante Pulsbreite von  $\lesssim 200$  ps auf.



**Abbildung 5.12:** Halbwertsbreiten der gemessenen Flugzeitverteilungen  $\Delta t$  unter Variation der Laserposition  $z$ , akquiriert über jeweils  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht Abbildung 5.11 b, aus der Anpassung entsprechend Gleichung 5.11 (rot) lassen sich die Parameter  $\Delta z_0$  und  $\Delta t_0$  extrahieren.

In Abbildung 5.13 sind beispielhaft die Flugzeitverteilungen an zwei verschiedenen Laserpositionen in diesem Bereich gezeigt. An dem nominellen Flugzeitminimum  $z_0$  (a) lässt sich der Flugzeitverteilung eine volle Halbwertsbreite des Ionenpulses von 170 ps nachweisen, sie bildet jedoch eine asymmetrische Pulsform aus. Die Flugzeitverteilung an der Laserposition  $z = 1,85$  mm (b) weist hingegen einen nahezu symmetrisch geformten Ionenpuls auf, dessen volle Halbwertsbreite zu 180 ps bestimmt werden kann. Die Auswertung der Flugzeitverteilungen zeigt dabei, dass die Pulsbreite zwischen  $z = 0,9$  mm und  $z = 2,5$  mm annähernd konstant  $\lesssim 200$  ps beträgt, lediglich für  $z < 0,9$  mm ist eine Verbreiterung der Flugzeitverteilung zu verzeichnen. Das Auftreten zweier unterschiedlicher Bereiche für die Pulsbreiten legt daher zwei Beiträge zur Breite der gemessenen Flugzeitverteilungen nahe, die unterschiedlich stark ins Gewicht fallen. Für kleine  $z$ -Positionen dominiert die laserinduzierte Startortverteilung in der Größenordnung des Laserfokus  $\Delta z_0$  um die jeweilige  $z$ -Position die resultierende Pulsbreite und ruft daher gemäß dem Verlauf der Kurve von Gleichung 5.6 dort eine breite Flugzeitverteilung hervor. Im Bereich von  $z \geq 0,9$  mm hingegen dominiert der Effekt der in dieser Gleichung vernachlässigten Geschwindigkeitsverteilung der Ionen, welche aus ihrer thermisch bedingten Bewegung bei der Temperatur  $T_0$  resultiert und aufgrund der Unabhängigkeit vom Startort der Ionen einen konstanten Beitrag zur Breite der Flugzeitverteilung verursacht. Es bedarf daher prinzipiell einer Verteilungs-



**Abbildung 5.13:** Flugzeitverteilung von  $\text{Ar}^+$ -Ionen im Flugzeitminimum  $z_0 = 1,45$  mm ( $E_{0,\text{Ar}} = 2$  keV, a) bzw. bei Laserposition  $z = 1,85$  mm ( $E_{0,\text{Ar}} = 2,6$  keV, b), jeweils akquiriert über  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht Abbildung 5.11 b.

funktion für die Flugzeiten  $t(z, v_z)$ , welche die beiden Beiträge von Startortverteilung und Startgeschwindigkeitsverteilung berücksichtigt und anhand derer die Halbwertsbreite der Flugzeitverteilung bestimmt werden kann. Hier werden die beiden Beiträge der Einfachheit halber getrennt voneinander betrachtet, da sowohl die Startortverteilung aufgrund des Laserprofils als auch die Startgeschwindigkeitsverteilung aufgrund der Boltzmann-Verteilung entlang der Extraktionsachse bei der Temperatur  $T_0$  jeweils gaußförmig sind. Die Breite der Flugzeitverteilungen ergibt sich dann näherungsweise aus der Faltung der Breiten beider Gaußverteilungen. Dementsprechend setzt sich die Pulsbreite aus einer von der Laserposition  $z$  abhängigen Breite  $\Delta t_z(z)$  sowie einer konstanten Breite  $\Delta t_0$  gemäß

$$\begin{aligned} \Delta t(z) &= \sqrt{(\Delta t_z(z))^2 + (\Delta t_0)^2} \\ &= \sqrt{\left(\frac{\partial t(z)}{\partial z} \cdot \Delta z_0\right)^2 + (\Delta t_0)^2} \end{aligned} \quad (5.9)$$

zusammen, ihr Verlauf ist ebenfalls in Abbildung 5.12 dargestellt. Hierbei bezeichnet  $\partial t(z)/\partial z$  die Ableitung von Gleichung 5.6 nach  $z$  mit der Konfiguration der Abstände und Potentiale entsprechend Abbildung 5.11 b,  $\Delta z_0$  sowie  $\Delta t_0$  werden als Fitparameter aufgefasst. Dabei stimmt die so angepasste Breite von  $\Delta z_0 = (12 \pm 0,5) \mu\text{m}$  unter Berücksichtigung einer möglichen Vergrößerung des Laserfokus durch das Lasereintrittsfenster gut mit dem gemessenen Durchmesser  $d_f = 10 \mu\text{m}$  überein. Analog zu der Startortverteilung lässt sich der Beitrag aus der Geschwindigkeitsverteilung

$$f(v_z) = \sqrt{\frac{m}{2\pi k_B T_0}} \exp\left(-\frac{mv_z^2}{2k_B T_0}\right) \quad (5.10)$$

entsprechend einer eindimensionalen Boltzmann-Verteilung bei der Temperatur  $T_0 = 300$  K berechnen. Mit  $d_I = 2,8$  mm zu den bereits bekannten Parametern  $m$ ,  $q$  und  $\Delta\phi_I$  folgt dann für den konstanten Anteil

$$\begin{aligned} \Delta t_{v_z} &= \frac{\partial t(v_z)}{\partial v_z} \cdot \Delta v_z \quad \text{mit} \quad \frac{\partial t(v_z)}{\partial v_z} = \frac{1}{a_I} \\ &= 2\sqrt{2\ln(2)} \cdot \frac{\sigma_{v_z}}{a_I} = 2\sqrt{2\ln(2)} \cdot \sqrt{\frac{k_B T_0}{m}} \cdot \frac{m d_I}{q e \Delta\phi_I} \\ &= 170 \text{ ps.} \end{aligned} \quad (5.11)$$

Diese von der Laserposition unabhängige Breite deckt sich in guter Übereinstimmung mit dem aus Abbildung 5.12 extrahierten konstanten Anteil  $\Delta t_0 = (190 \pm 4)$  ps und resultiert daher vermutlich aus der thermisch bedingten Bewegung der erzeugten Ionen. Gleichzeitig limitiert dieser Beitrag die minimal mögliche Pulsbreite bei  $z_0$  im Ionenbuncher, da diese dort nach Voraussetzung für die Flugzeitfokussierung nur noch durch die Temperatur der neutralen Gasatome vorgegeben und im Rahmen der Messgenauigkeit auch erreicht wird.

An dieser Stelle wird zudem die Energieverteilung der nachgewiesenen Ionenpulse beleuchtet, welche sich aus der geometrischen Konfiguration des Ionenbunchers ergibt. Daran anschließend wird die Limitierung der Zeitauflösung und die damit verbundene Notwendigkeit diskutiert, den experimentellen Aufbau zu erweitern.

### 5.4.1 Energieverteilung der nachgewiesenen Ionenpulse

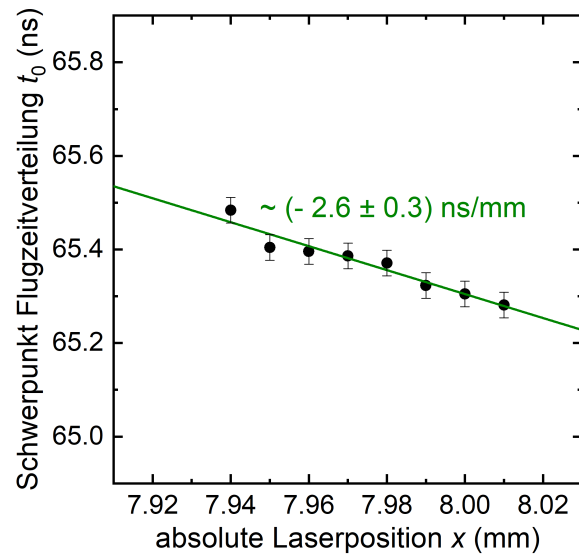
Der nach Abbildung 5.11 b konfigurierte Ionenbuncher erlaubt es, den Flugzeitfokus  $z_0$  mittig zwischen den Elektroden  $E_1$  und  $E_2$  zu verorten. Somit kann die kinetische Energie der Ionen beim Auftreffen entsprechend der Geometrie und gewählten Potentiale auf  $E_{0,\text{Ar}} = 2,0$  keV spezifiziert und unter Variation der Laserposition  $z$  leicht variiert werden. Unabhängig davon lässt sich die Breite der Energieverteilung  $\Delta E$  über die Ausdehnung des Laserfokus innerhalb des Ionenbunchers gemäß

$$\frac{\Delta E}{e\Delta\phi_I} = \frac{d_f}{d_I} \approx 3,6 \cdot 10^{-3} \quad (5.12)$$

abschätzen, was eine vorteilhafte Eigenschaft der Ionenquelle aufgrund des schmalen Laserfokus darstellt. Daraus resultiert für alle mit dieser Konfiguration in Kapitel 5.4 gemessenen Flugzeitverteilungen eine errechnete Halbwertsbreite der Energieverteilung von  $\approx 15$  eV. Mit dem Ionenbuncher lassen sich demnach Flugzeitverteilungen mit annähernd monoenergetischen  $\text{Ar}^+$ -Ionen um eine Ionenenergie von  $E_{0,\text{Ar}} = 2$  keV nachweisen. Der Schwerpunkt der kinetischen Energie lässt sich innerhalb einer festen Konfiguration einfach einstellen, indem das Potential  $\phi_1$  an der Elektrode  $E_1$  variiert wird. Auf diese Weise bleiben die flugzeitfokussierenden Eigenschaften des Ionenbunchers erhalten, die Energie der Ionen wird nur durch die Durchschlagsfestigkeit der Hochspannung im Ultrahochvakuum von typischerweise  $10 \text{ kV mm}^{-1}$  limitiert.

### 5.4.2 Limitierung der Zeitauflösung der Ionenpulse

Die in Kapitel 5.4 untersuchten Flugzeitverteilungen weisen eine konstante, thermisch bedingte Breite von ca. 170 ps auf. Diese Grenze stellt die minimal zu erzeugende Pulsbreite dar, welche in der Konfiguration des Ionenbunchers gemäß Abbildung 5.11 b zu erreichen ist und zeigt die Notwendigkeit eines Neutralteilchen-Reservoirs mit deutlich niedriger Temperatur auf. Ein solches Reservoir wird unter Verwendung des Überschall-Gasstrahls in Kapitel 7.4 realisiert, sodass die Pulsbreite weiter reduziert werden kann. Ein weiterer Aspekt, welcher dafür hinderlich sein kann, stellt die Parallelisierung der Elektroden zueinander dar. Um dessen Effekt auf die Breite der Flugzeitverteilung abschätzen zu können, werden die Schwerpunkte der in Kapitel 5.3.1 gemessenen Verteilungen entlang der  $x$ -Achse über die Laserposition  $x$  aufgetragen, analog zur Messung entlang der  $z$ -Achse (vgl. Abbildung 5.11 a in Kapitel 5.4). Dieser in Abbildung 5.14 dargestellte Verlauf wird dabei linear angepasst und weist eine geringe Flugzeitdispersion parallel zu

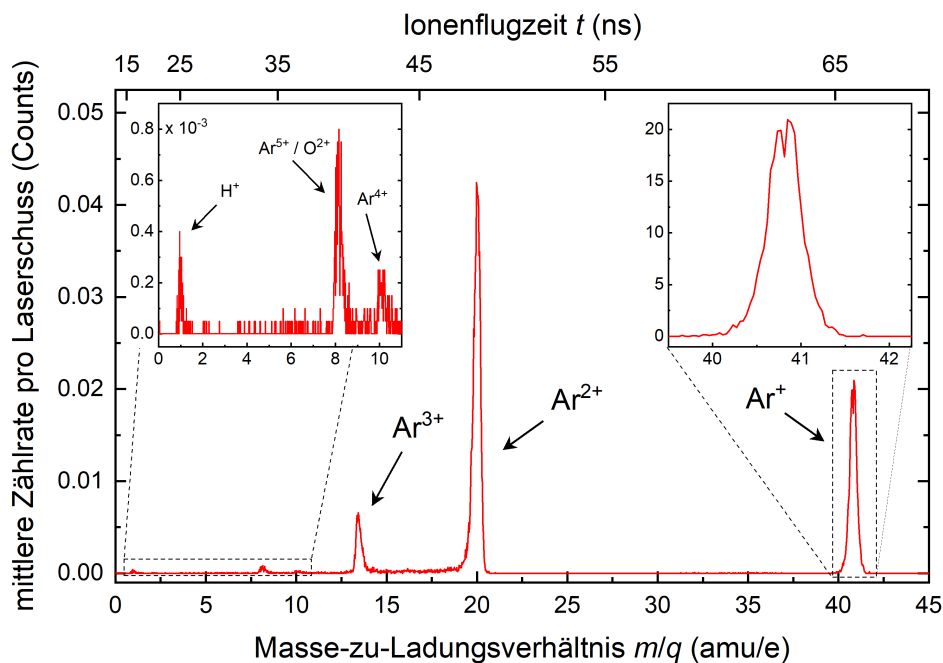


**Abbildung 5.14:** Schwerpunkte  $t_0$  der gemessenen Flugzeitverteilungen unter Variation der Laserposition  $x$ , akquiriert über  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Eine lineare Anpassung (grün) zeigt eine Dispersion der Flugzeit auf.

der Orientierung der Elektroden im Ionenbuncher auf. Eine Skalierung der Steigung mit dem Durchmesser des Laserfokus  $d_f$  ermöglicht damit eine Abschätzung der dadurch zu erreichenden Pulsbreite zu  $(-2,6 \pm 0,3) \text{ ns mm}^{-1} \cdot 10 \mu\text{m} = (26 \pm 3) \text{ ps}$  auf. Dieser Effekt ist dabei allein durch Verkipfung der obersten Elektrode  $E_1$  nicht zu korrigieren, sondern resultiert aus der festen Orientierung der beiden anderen Elektroden zueinander aufgrund der Macor-Keramik. Zwar lässt sich dieser Effekt wegen  $d \ll y_R$  entlang der Laserstrahlachse nicht beobachten, eine Skalierung entlang dieser Achse würde jedoch eine deutlich höhere Breite von  $(-2,6 \pm 0,3) \text{ ns mm}^{-1} \cdot 80 \mu\text{m} = (208 \pm 24) \text{ ps}$  nach sich ziehen. Dies zeigt die Notwendigkeit auf, im experimentellen Aufbau eine Entkopplung der Elektroden  $E_2$  und  $E_3$  voneinander vorzunehmen, weshalb der Ionenbuncher in Kapitel 6 um 3 weitere Piezo-Schrittmotoren für  $E_2$  erweitert wird (vgl. Abbildung 3.16 in Kapitel 3.4.3). Zunächst werden in den anschließenden beiden Kapiteln jedoch zwei wichtige Aspekte hinsichtlich der zukünftigen Anwendung in einem Anrege-Abfrage-Experiment beleuchtet: In Kapitel 5.5 werden Argon-Ionen in höheren Ladungszuständen durch Erhöhung der Laserintensität erzeugt und nachgewiesen, ohne die Zeitauflösung maßgeblich zu beeinträchtigen. Kapitel 5.6 behandelt hingegen die Möglichkeit, die Anzahl der Ionen pro Puls unter Variation der Neutralteilchendichte zu variieren.

## 5.5 Mögliche Ladungszustände

Die Flugzeitverteilung der  $\text{Ar}^+$ -Ionen wurde gemessen bei einer nominellen Laserpeakintensität von  $I_0 = 2,5 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$ , bei der experimentell ein maximales Ionensignal an  $\text{Ar}^+$ -Ionen vorliegt. Anhand von Gleichung 5.3 ist zu erkennen, dass die Intensität um eine Größenordnung erhöht werden kann, was anhand von Abbildung 2.13 Ladungszustände  $q = 1 - 6$  ermöglichen soll. Daher wird eine vergleichsweise hohe Peakintensität von  $I_0 = 1,5 \cdot 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$  gewählt, um überhaupt die Möglichkeit zu haben, Argon-Ionen in höheren Ladungszuständen generieren zu können. Die resultierende Flugzeitverteilung ist exemplarisch in einem Spektrum in Abbildung 5.15 dargestellt, akquiriert über  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Ein entsprechendes Restgasspektrum ist in Abbildung 10.6 im Anhang gezeigt. Da der Schwerpunkt einzelner Flugzeitpeaks von dem Masse-zu-Ladungsverhältnis der beteiligten Ionen abhängt, wird die Abszisse von einer Flugzeitachse in eine  $m/q$ -Achse umgerechnet, analog zu der Messung aus Abbildung 4.5 mit dem Flugzeit-Massenspektrometer. Auf diese Weise lassen sich die auftretenden Peaks den jeweiligen Ladungszuständen  $\text{Ar}^{q+}$  eindeutig zuordnen.

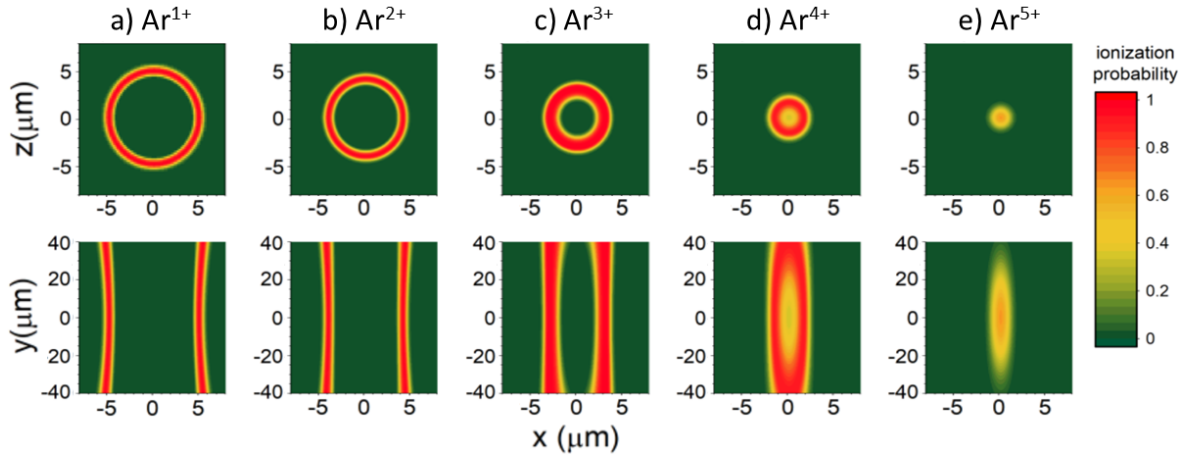


**Abbildung 5.15:** Flugzeitspektrum bei einer nominellen Laserpeakintensität von  $I_0 = 1,5 \cdot 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$  gemittelt über  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse, die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht in allen anderen Parametern Abbildung 5.11 b. Die Flugzeit der Ionen (obere Skala) wird in ein Masse-zu-Ladungsverhältnis (untere Skala) umgerechnet, um die auftretenden Peaks den entsprechenden Ladungszuständen der Ionen zuordnen zu können.

Auch bei dieser hohen Laserpeakintensität werden noch  $\text{Ar}^+$ -Ionen erzeugt, wie der Peak bei  $m/q = 40 \text{ amu/e}$  belegt. Das rechte Inset in der Abbildung 5.15 zeigt allerdings, dass das  $\text{Ar}^+$ -Signal einerseits aus zwei einzelnen Peaks besteht und diese Doppelpeakstruktur andererseits nicht exakt um die Flugzeit entsprechend  $m/q = 40 \text{ amu/e}$  für  $\text{Ar}^+$  zentriert ist. Vielmehr sind diese Ionen langsamer und tauchen daher später, d.h. weiter rechts im Spektrum auf, da sie nicht im Fokus selbst, sondern am Rand des Intensitätsprofils generiert werden. Abbildung 5.16 zeigt exemplarisch die nach der



ADK-Theorie [78] für eine Laserpeakintensität von  $I_0 = 6,3 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$  errechnete räumliche Verteilung der Ionisierungswahrscheinlichkeit, radial (obere Zeile) sowie axial (untere Zeile) zur Laserstrahlrichtung aufgeschlüsselt, für die verschiedenen Ladungszustände [50].

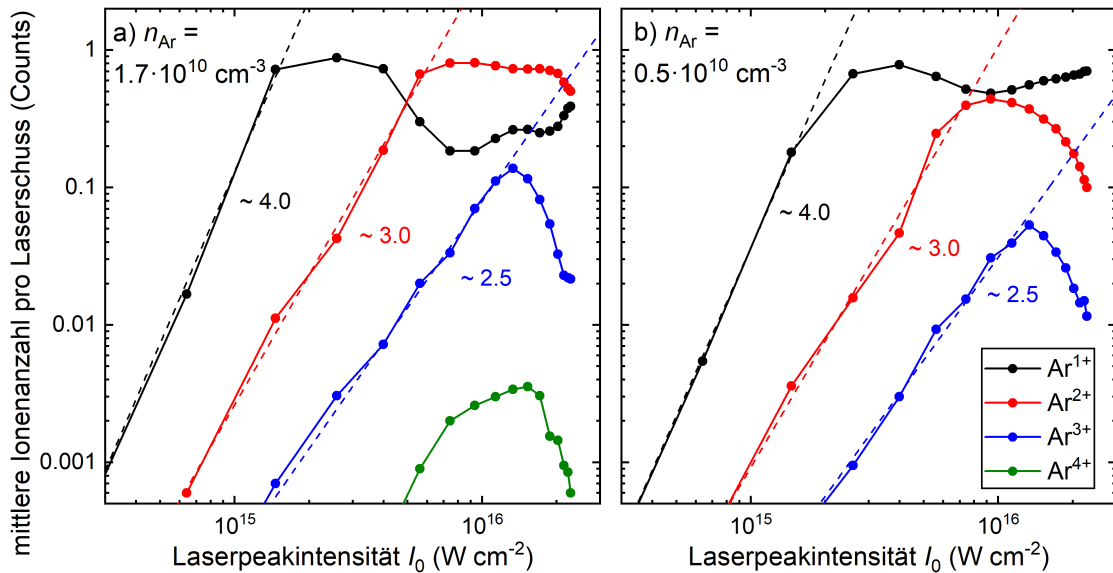


**Abbildung 5.16:** Räumliche Startortverteilungen von  $\text{Ar}^{q+}$ -Ionen, aufgeschlüsselt für  $q \leq 5$  in radialer (obere Zeile) sowie axialer (untere Zeile) Richtung, errechnet bei einer Laserpeakintensität von  $I_0 = 6,3 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$  mittels ADK-Theorie [78]. Entnommen aus [50].

Es ist zu erkennen, dass im Fokus vornehmlich  $\text{Ar}^{q+}$ -Ionen mit  $q = 5$  generiert werden. Mit abnehmender Laserintensität entsprechend des Gaußprofils in radialer bzw. des Lorentzprofils in axialer Richtung nimmt ebenfalls die Wahrscheinlichkeit zu, Ionen mit niedrigeren Ladungszuständen zu erzeugen. Aufgrund dessen werden  $\text{Ar}^+$ -Ionen am weitesten entfernt vom Zentrum erzeugt und erfahren daher am meisten Raumladung durch alle anderen, zeitgleich gebildeten Ionen um den Fokus herum. Diejenigen Ionen, die entlang der Extraktionsachse näher an  $E_1$  generiert werden, erhalten durch die Raumladung eine Beschleunigung entgegen der Extraktionsrichtung, umgekehrt werden die näher an  $E_2$  gebildeten Ionen in Extraktionsrichtung beschleunigt. Dieser Effekt der Raumladung für die Startortverteilung von  $\text{Ar}^+$ -Ionen ober- und unterhalb des Laserfokus bewirkt dann, dass der Peak bei  $m/q = 40 \text{ amu}/e$  bei hohen Laserintensitäten zu einem leicht versetzten Doppelpeak aufspaltet. Der dominante Peak bei  $20 \text{ amu}/e$  entspricht doppelt positiv geladenen Argon-Ionen, links daneben ist ein weiterer, deutlicher Peak knapp oberhalb von  $13 \text{ amu}/e$  als  $\text{Ar}^{3+}$ -Ionen im Verhältnis  $\text{Ar}^{3+}/\text{Ar}^{2+} \approx 0,2$  auszumachen. Anhand des linken Insets sind ebenfalls Signale bei 1, 8 und  $10 \text{ amu}/e$  zu verzeichnen, wovon der erste Peak eindeutig  $\text{H}^+$ -Ionen zugeordnet werden kann. Während die anderen beiden Peaks den Masse-zu-Ladungsverhältnissen von  $\text{Ar}^{4+}$  und  $\text{Ar}^{5+}$  entsprechen, suggeriert das 3,5-mal größere Signal bei  $8 \text{ amu}/e$  gegenüber dem integrierten Signal bei  $10 \text{ amu}/e$ , dass deutlich mehr  $\text{Ar}^{5+}$ -Ionen als  $\text{Ar}^{4+}$ -Ionen nachgewiesen werden können. Dies deutet auf einen nicht-sequenziellen Tunnelionisationsprozess hin, welcher im Rahmen der ADK-Theorie unberücksichtigt bleibt, es ist jedoch zu beachten, dass bei gleichem  $m/q$ -Verhältnis zweifach positiv geladene  $\text{O}^+$ -Ionen auftreten können. Ursprung dieses Ionensignals könnte die Ionisation und Fragmentierung von  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekülen bei hohen Laserintensitäten aus der Restgaszusammensetzung sein, das Auftreten von Wasserstoffionen im Massenspektrum bestärkt diese Vermutung. Interessanterweise lassen sich in diesem Spektrum



keine intakten  $\text{H}_2\text{O}^+$ -Ionen mehr nachweisen, was auf eine vollständige photoinduzierte Dissoziation der  $\text{H}_2\text{O}$ -Moleküle bei derart hohen Laserintensitäten hinzuweisen scheint. Da  $\text{Ar}^{5+}$  und  $\text{O}^{2+}$  hierbei nicht spektral zerlegt werden können, wird von einer weiteren Auswertung dieses Peaks abgesehen. Es lassen sich also  $\text{Ar}^{q+}$ -Ionen im Ladungszustand  $q \leq 4$  innerhalb des Ionenbunchers erzeugen und nachweisen, daher wird deren Signalhöhe in Abhängigkeit von der fokalen Laserleistungsdichte untersucht. Unter Variation der Laserintensität werden daher Spektren wie solche aus Abbildung 5.15 gemessen und daraufhin die Peaks für jeden Ladungszustand integriert. Abbildung 5.17a zeigt dann in doppellogarithmischer Auftragung den Verlauf der detektierten Ionenanzahl als Funktion der Laserintensität bei einer Neutralteilchendichte von  $n_{\text{Ar}} = 1,7 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ , aufgeschlüsselt nach Ladungszustand. Auf der Ordinate ist dabei die mittlere Anzahl detektierter Ionen pro Laserschuss aufgetragen, sodass sich unter Berücksichtigung des effektiven Ionisationsvolumens  $V_{\text{I}}^{\text{eff}}$  (vgl. Kapitel 5.1) die Ionenanzahl mit der Ionisierungswahrscheinlichkeit vergleichen lässt (vgl. Abbildung 2.13a in Kapitel 2.2.2).



**Abbildung 5.17:** Integriertes Ionensignal pro Laserschuss als Funktion der Laserpeakintensität für zwei verschiedene Teilchendichten  $n_{\text{Ar}} = 1,7 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  (a) und  $n_{\text{Ar}} = 0,5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  (b), aufgeschlüsselt nach Ladungszustand  $q$  und gemittelt über jeweils  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht in Abständen und Potentialen Abbildung 5.11 b.

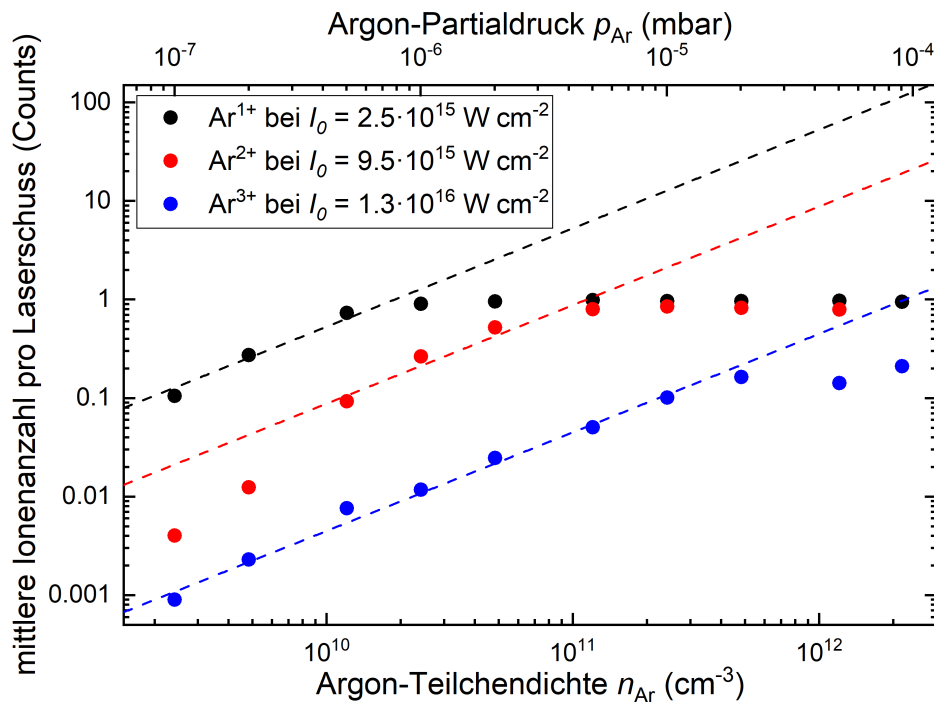
Die Signalverläufe befinden sich für  $\text{Ar}^+$  um  $I_0 = 2,5 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$  sowie bei  $\text{Ar}^{2+}$  für  $I_0 \geq 5,0 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$  allerdings in Sättigung, weshalb die Messung bei einer geringeren Argon-Dichte von  $n_{\text{Ar}} = 0,5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  in Abbildung 5.17 b ebenfalls gezeigt ist. Aufgrund der geringeren Neutralteilchenzahl im Ionisationsvolumen können hierbei nur  $\text{Ar}^{q+}$ -Ionen im Ladungszustand  $q \leq 3$  nachgewiesen werden. Beide Messungen geben dabei qualitativ zwei wesentliche Merkmale für den Verlauf der Ionisierungswahrscheinlichkeit wieder: Zum einen werden Ionen in höheren Ladungszuständen sukzessive mit steigender Laserintensität detektiert, wobei die Anzahl der nachgewiesenen Ionen im jeweiligen Maximum abnimmt. Zum anderen sind deutliche Maxima für jeden einzelnen Ladungszustand bei bestimmten Laserintensitäten erkennbar, welche unabhängig von der Teilchendichte bei der gleichen Intensität auftreten. Die ausgewerteten Stei-

gungen der Signalverläufe von etwa 4,0 (für  $\text{Ar}^+$ ) bis 2,5 (für  $\text{Ar}^{3+}$ ) liegen jedoch unterhalb der Steigung von etwa 6,5 für alle drei Ladungszustände aus Abbildung 2.13 a innerhalb der Skala entlang der Ordinate. Grund dafür ist die Einschränkung der tatsächlich detektierten Ionen entlang der Laserstrahlachse auf das effektive Ionisationsvolumen, welches nach Abbildung 5.16 radial mit steigendem  $I_0$  zunimmt, axial allerdings eingeschränkt ist. Anhand der Steigungen kann die relative Zunahme von  $V_1^{\text{eff}}$  mit steigender Laserpeakintensität bewertet werden, diese nimmt erwartungsgemäß für Ionen in höheren Ladungszuständen ab. Unabhängig davon sollten die Anzahl der nachgewiesenen  $\text{Ar}^{q+}$ -Ionen für je ein bestimmtes  $I_0$  sättigen, ab welcher im gesamten effektiven Volumen konstant viele Ionen eines Ladungszustandes erzeugt werden und sich diese Anzahl mit steigender Laserpeakintensität nicht verändert [50]. Stattdessen sinkt die Zahl nachgewiesener  $\text{Ar}^{q+}$ -Ionen für größere  $I_0$  als der jeweiligen sogenannten Sättigungsintensität wieder, für die maximale Laserpeakintensität  $I_{0,\text{Max}}$  von etwa  $2 \cdot 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$  nimmt die Zahl an  $\text{Ar}^+$ -Ionen sogar wieder zu. Eine potentielle Ursache dafür ist der Einfluss der Raumladung aufgrund von Ionen niedriger Ladungszustände. Deren räumliche Verteilung lässt sich anhand von Abbildung 5.16 bestimmen und zeigt, dass beispielsweise  $\text{Ar}^+$ -Ionen mit zunehmender Laserpeakintensität innerhalb des zylinderförmigen Volumens weiter weg vom Fokus entfernt erzeugt werden.  $\text{Ar}^{2+}$ -Ionen werden dabei zeitgleich und räumlich näher um den Fokus herum erzeugt und könnten bewirken, dass die  $\text{Ar}^+$ -Ionen aufgrund der sofort einsetzenden Raumladung aus dem effektiven Ionisationsvolumen gedrückt werden. Ein Indiz dafür ist der Vergleich des Signaleinbruchs vom  $\text{Ar}^+$ -Signal bei  $I_0 = 8,0 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$  in Abbildung 5.17, welcher kein Effekt der Sättigung sein kann, da er bei einer höheren Neutralteilchendichte (a) – und damit potentiell mehr zu erzeugenden Ionen – drastischer ausfällt als bei geringerem  $n_{\text{Ar}}$  (b). Stattdessen ist bei einem höheren Anteil an  $\text{Ar}^{2+}$ -Ionen in Abbildung 5.17 a eine ebenfalls größere Abnahme des  $\text{Ar}^+$ -Ionensignals zu beobachten, welcher in Abbildung 5.17 b nicht so präsent ist. Ferner ist dieses Verhalten ebenfalls für das  $\text{Ar}^{3+}$ -Signal relativ zum  $\text{Ar}^{2+}$ -Signal bei  $I_0 = 1,3 \cdot 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$  zu erkennen. Dementsprechend würden die  $\text{Ar}^{2+}$ -Ionen selbst aus dem effektiven Ionisationsvolumen gedrückt werden, was einen schwächeren Effekt ihrer Raumladung auf die umliegenden einfach geladenen Argon-Ionen bedeutet. Dies wird durch einen erneuten Anstieg an  $\text{Ar}^+$ -Ionen bei dieser Laserpeakintensität belegt. Ein weiteres Indiz ist die generelle Ionenanzahl von  $\lesssim 1$ , welche überhaupt nachgewiesen werden. Mithilfe des in Kapitel 5.1 bestimmten effektiven Ionisationsvolumens sind mit den hier verwendeten Neutralteilchendichten sowie bei einer Ionisierungswahrscheinlichkeit von 1 etwa  $6 \cdot 10^3 \mu\text{m} \cdot 0,5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3} \approx 30$   $\text{Ar}^+$ -Ionen innerhalb von  $V_1^{\text{eff}}$  zu erwarten. Aufgrund der starken nichtlinearen Abhängigkeit der Ionisierungswahrscheinlichkeit von der Laserintensität muss das effektive Ionisationsvolumen daher erheblich kleiner sein (vgl. Abbildung 2.15 in Kapitel 2.2.3), weshalb sich auch die erzeugten Ionen auf ein kleineres Volumen verteilen, was den diskutierten Effekt der Raumladung auf Ionen niedrigerer Ladungszustände begünstigt. Dabei können prinzipiell mit dem Ionenbuncher in Kombination mit dem verwendeten fs-Lasersystem keine Ionenpulse mit einem festen Ladungszustand  $q = 2 - 4$  erzeugt werden, ohne ebenfalls Flugzeitverteilungen von Ionen mit kleineren Ladungszuständen zu generieren. Deren Schwerpunkte weisen in dieser Konfiguration des Ionenbunchers aber einen zeitlichen Abstand von  $\gtrsim 2$  ns auf und lassen sich daher für die Einbettung in ein Anrege-Abfrage-Schema auf einer Pikosekunden-Zeitskala zeitlich gut separieren. Allerdings sind die kalibrierten Peakintensitäten für die jeweilige maximale Ionisierungswahrscheinlichkeit systematisch um

einen Faktor 6 zu hoch. Diese hohe Diskrepanz lässt sich beispielsweise mit einer zu geringen Reflektivität des letzten Spiegels im Strahlengang oder mit einer unzureichenden Strahlqualität durch den off-Axis-Parabolspiegel entlang der Laserstrahlachse erklären. Auch wird das Transmissionsvermögen des Lasereintrittsfensters nicht berücksichtigt, weshalb alle drei Faktoren in Kombination durchaus die Laserpeakintensität im Fokus drastisch reduzieren kann. Dennoch lassen sich Ionenpulse mit Ladungszuständen bis  $q = 4$  für Argon nachweisen, deren Anzahl mit der Neutralteilchendichte skaliert. Um abschätzen zu können, wie viele Ionen pro Puls für jeden Ladungszustand möglich sind, werden im anschließenden Kapitel die Anzahl der Ionen pro Puls unter Variation der Teilchendichte beleuchtet.

## 5.6 Anzahl der Ionen pro Puls

Im Rahmen zukünftiger Anrege-Abfrage-Experimente ist es von Vorteil, je nach Art der ioneninduzierten Anregung möglichst viele oder wenige Ionen in einem einzelnen Puls generieren zu können, ohne dessen Zeitauflösung zu zerstören. Beispielsweise skaliert die benötigte Messzeit direkt mit der Ionenanzahl, welche experimentell durch die Wiederholrate des Lasers von 1 kHz limitiert ist. Daher ist es zweckmäßig, die mögliche Anzahl an Ionen pro Puls zu kennen, welche prinzipiell von der Dichte der Neutralteilchen im Ionisationsvolumen abhängt. Infolgedessen werden die Signalhöhen der  $\text{Ar}^{q+}$ -Ionen mit  $q \leq 3$  unter Variation der Neutralteilchendichte von Argon gemessen, welche direkt proportional zum tatsächlich eingestellten Argon-Partialdruck ist. Abbildung 5.18 zeigt den resultierenden Verlauf in doppellogarithmischer Auftragung.



**Abbildung 5.18:** Integriertes Ionensignal pro Laserschuss als Funktion des Argon-Partialdrucks  $p_{\text{Ar}}$  (obere Skala) und damit der Neutralteilchendichte  $n_{\text{Ar}}$  (untere Skala), aufgeschlüsselt nach Ladungszustand  $q$  und gemittelt über jeweils  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht in Abständen und Potentialen Abbildung 5.11 b.

Dabei wird mit  $2,5 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$ ,  $9,5 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$  und  $1,3 \cdot 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$  jeweils diejenige Laserpeakintensität gewählt, bei der anhand von Abbildung 5.17 das höchste Ionensignal für die drei Ladungszustände detektiert werden konnte. Es ist erwartungsgemäß jeweils eine lineare Abhängigkeit der Zählrate von der Dichte zu erkennen, welche ab einem bestimmten Wert abflacht und gegen eins konvergiert. Dieses Sättigungsverhalten ist durch die bereits erwähnte Messmethodik mit einem TDC bedingt und verbietet das Messen von Ionenpulsen mit mehr als einem Ion pro Puls bei gleichem  $m/q$ . Daher werden an den jeweiligen linearen Anteilen der Kurven Geraden mit einer Steigung von 1 angepasst, welche eine Abschätzung der Ionenanzahl für größere  $n_{\text{Ar}}$  erlaubt. Für den Verlauf von zweifach geladenen Argon-Ionen lässt sich zwar ein überlineares Verhalten ausmachen, was prinzipiell auf eine nicht-sequenzielle Tunnelionisation [97] hinweist oder durch Ladungsaustauschprozesse [95] zu erklären wäre. Anhand der in Abbildung 10.7 im Anhang gezeigten Spektren ist jedoch erkennbar, dass der Beitrag an  $\text{H}_2\text{O}^+$ -Ionen den  $\text{Ar}^{2+}$ -Peak aufgrund der Totzeit des TDC überdecken kann (vgl. Kapitel 3.4.2.1). Infolgedessen werden im Mittel weniger  $\text{Ar}^{2+}$ -Ionen detektiert, sodass der Verlauf der Ionenanzahl im Bereich kleiner Neutralteilchendichten deutlich unterschätzt wird. Für  $n_{\text{Ar}} \geq 10^{10} \text{ cm}^{-3}$  lässt sich auch für  $\text{Ar}^{2+}$  ein lineares Verhalten mit einer Steigung von 1 anpassen und ermöglicht ebenso eine Extrapolation an  $\text{Ar}^{2+}$ -Ionen als obere Abschätzung der experimentellen Daten. Alle drei Geraden sind ebenfalls in der Abbildung skizziert und zeigen, dass beispielsweise bis zu 100 Argon-Ionen im einfach geladenen Zustand bei einer Neutralteilchendichte von  $n_{\text{Ar}} = 2 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-3}$  möglich wären. Umgekehrt ist es möglich, durch geeignete Wahl der Dichte im Mittel nur ein einzelnes Ion oder sogar noch weniger Ionen pro Laserschuss zu generieren. Dies ist durch entsprechende Wahl der Neutralteilchendichte  $n_{\text{Ar}}$  für alle drei Ladungszustände möglich, sodass die Anzahl der Ionen pro Puls als Parameter für ein zukünftiges Anrege-Abfrage-Experiment prinzipiell einstellbar ist.

Die Funktionsweise des Ionenbunchers in Kombination mit dem Kurzpuls-Laser konnte in diesem Kapitel anhand von Argon-Gas bei  $T_0 = 300 \text{ K}$  nachgewiesen werden. Der räumliche Parameterraum des Laserfokus zeigte dabei entlang der kartesischen Koordinaten das zu erwartende Verhalten bezüglich der Ionenzählrate auf, die Charakteristik der möglichen Ladungszustände unter Variation der Laserpeakintensität konnte qualitativ demonstriert werden. Daraufhin ließen sich um die Position des experimentell bestimmten Flugzeitfokus im Ionenbuncher Flugzeitverteilungen mit einer minimalen Halbwertsbreite von 180 ps nachweisen. Diese thermisch bedingte Pulsbreite gilt es nun durch Herabsenken der Neutralteilchen-Temperatur innerhalb der Düsenstrahl-Expansion zu reduzieren, weshalb der Ionenbuncher mitsamt des Laserfokus im anschließenden Kapitel 6 an dem Gasstrahl ausgerichtet wird.

# 6 Ausrichten von Ionenbuncher und Laser am Gasstrahl

Anhand von Kapitel 5.4 ist ersichtlich, dass die Pulsbreite der Ionen im Wesentlichen von der Startgeschwindigkeit – und damit von der Temperatur – der Neutralteilchen abhängt. In diesem Kapitel wird der Ionenbuncher daher mit dem Reservoir an kalten Neutralteilchen aus der Überschall-Gasexpansion kombiniert. Dazu werden sowohl der Beam Dump als auch der modifizierte Ionenbuncher zuerst geometrisch an dem Gasstrahl ausgerichtet, dessen Ausdehnung durch den dritten Skimmer definiert ist. Daraus lässt sich anschließend mithilfe des Titan:Saphir-Lasers ein laserinduziertes Ionensignal aus dem Argon-Gasstrahl generieren. Infolgedessen zeigt sich, dass Argon aufgrund massiver Clusterbildung für die Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse ungeeignet ist, woraufhin ein Wechsel des Gases für den Betrieb des Überschall-Gasstrahls diskutiert und durchgeführt wird.

---

6.1 Ausrichten des Strahlengangs der Überschall-Gasexpansion . . . . .	99
6.1.1 Ausrichten des Beam Dumps . . . . .	100
6.1.2 Ausrichten des Ionenbunchers . . . . .	102
6.2 Ionensignal aus dem Ionenbuncher mit dem Gasstrahl . . . . .	103

---

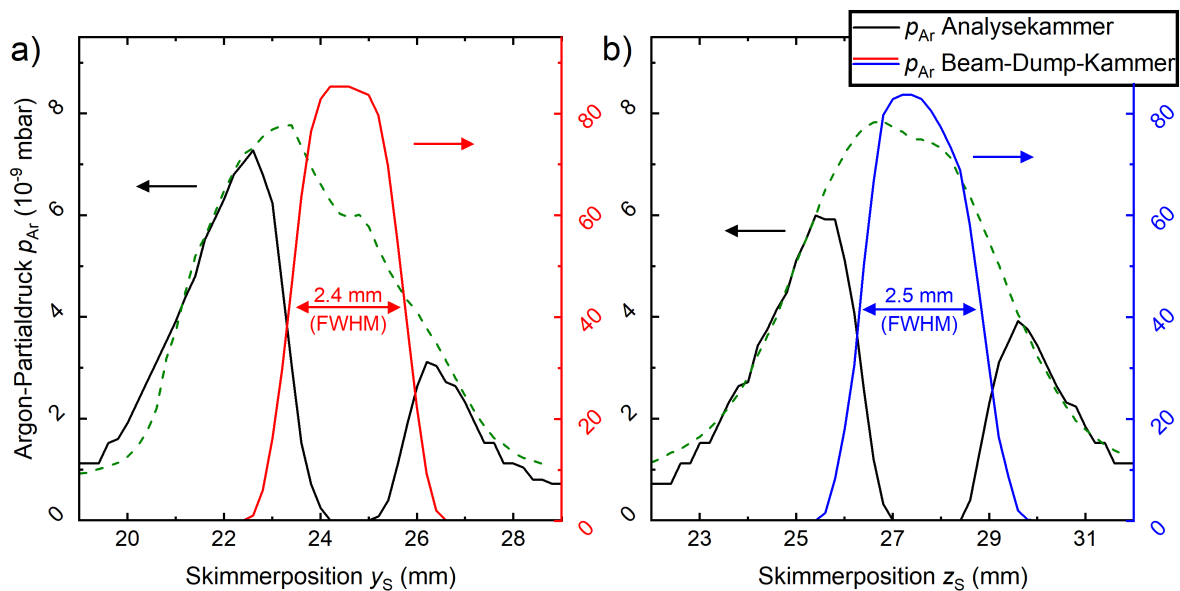
## 6.1 Ausrichten des Strahlengangs der Überschall-Gasexpansion

Für die Charakterisierung des Ionenbunchers in Kapitel 5 ist die Lage der Buncherelektroden im Raum aufgrund der Rotationssymmetrie ausschließlich relativ zur Position des Laserfokus relevant. Da der Laser Ionen aus dem Gasstrahl erzeugen soll, müssen beide Strahlengänge sowohl in ihrer Höhe als auch senkrecht zueinander geometrisch ausgerichtet werden. Dazu muss neben der optischen Laserstrahlachse ebenfalls die Expansionsachse zwischen die beiden Elektroden  $E_1$  und  $E_2$  justiert und oberhalb des Loches in  $E_2$  positioniert werden. Aufgrund des kleinen Abstandes von  $\lesssim 3$  mm zwischen diesen beiden Elektroden ist der eingebaute dritte Skimmer mit 1 mm Durchmesser notwendig, damit der Gasstrahl den oberen Teil des Bunchers ungehindert passieren kann. Andernfalls würden etwaige gestreute Teilchen einen Untergrund in der Flugzeitverteilung verursachen, da ein Streuprozess ihre Besetzung der Geschwindigkeitsverteilung gemäß Gleichung 2.16 aufhebt. Die daraus resultierende Besetzungswahrscheinlichkeit der Geschwindigkeit entspräche dann einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung bei 300 K und zerstört somit den Effekt des Geometric Cooling. Aus dem gleichen Grund muss der Überschall-Gasstrahl nach dem Passieren des Bunchers durch das Beam Dump-Röhrchen in die dahinter anschließende Kammer geführt werden, damit keine Neutralteilchen an der Kammerwand der Ionisationskammer gestreut werden. Diese gestreuten Teilchen ließen sich ebenfalls aufgrund der thermischen Besetzung bei Raumtemperatur

nicht von Argon-Hintergrundgas unterscheiden und führten damit einerseits zu einem Untergrund im Ionensignal, wie beispielsweise in Abbildung 4.7 a aus Kapitel 4.3.1 ersichtlich, und andererseits zu einem breiten Anteil in der Flugzeitverteilung aufgrund der thermischen Verbreiterung der Startgeschwindigkeitsverteilung. Daher ist ein ungehinderter Verlauf der Überschall-Expansion durch den Buncher und durch den Beam Dump zwingend notwendig, weshalb dessen optische Achse zuerst an der Expansion ausgerichtet wird, welche von dem dritten Skimmer definiert wird. Anschließend wird die optische Achse aus Skimmer und Beam Dump durch einen Diodenlaser modelliert, sodass sich der Buncher daran grob ausrichten lässt. Abschließend erfolgt eine feine Justage des Bunchers unter UHV-Bedingungen in der Ionisationskammer im laufenden Betrieb der Gasexpansion. Dabei wird der Argon-Gasstrahl bei  $p_0 = 10$  bar und mit einer Düsenöffnungszeit von  $\Delta t_{Op} = 100 \mu s$  unter einer Wiederholrate von 500 Hz betrieben.

### 6.1.1 Ausrichten des Beam Dumps

Der Beam Dump lässt sich innerhalb der  $yz$ -Ebene mechanisch auf  $\pm 6$  mm in beide Richtungen verfahren. Um dessen Einstellung optimaler Transmission für den Gasstrahl zu finden, werden die Elektroden des Bunchers entfernt und der Detektor weit nach unten gefahren, sodass der Gasstrahl hinter dem dritten Skimmer zunächst ungehindert die Beam-Dump-Kammer erreichen kann. Der resultierende Druckanstieg in der Ionisationskammer einerseits als auch in der Beam-Dump-Kammer andererseits wird mithilfe der jeweiligen Heißkathoden-Druckmessröhre bei einer festen Beam-Dump-Position unter Variation der Skimmerposition um  $y_S = 24,9$  mm bzw.  $z_S = 26,3$  mm beobachtet und in Abbildung 6.1 entlang der  $y$ -Achse (a) bzw.  $z$ -Achse (b) dargestellt.



**Abbildung 6.1:** Druckanstieg  $p_{Ar}$  in der Ionisationskammer (schwarz) sowie in der Beam-Dump-Kammer (rot (a) bzw. blau (b)) als Funktion der Position  $y_S$  (a) bzw.  $z_S$  (b) des dritten Skimmers unter Betrieb des Gasstrahls mit  $p_0 = 10$  bar, Öffnungszeit  $\Delta t_{Op} = 100 \mu s$  sowie einer Wiederholrate von 500 Hz. Die gemessenen Profile des Gasstrahls aus Abbildung 4.11 in Kapitel 4.3.2 sind mit entsprechender Skalierung zum Vergleich ebenfalls dargestellt (grün gestrichelt).

Der jeweilige Argon-Partialdruck resultiert dabei nach Subtraktion des jeweiligen Restgasdruckes von  $3,0 \cdot 10^{-8}$  mbar in der Ionisationskammer bzw.  $5,0 \cdot 10^{-9}$  mbar in der Beam-Dump-Kammer sowie unter Multiplikation mit dem Korrekturfaktor entsprechend Gleichung 4.1. In beiden Fällen sind die analog gemessenen Profile aus Abbildung 4.11 in Kapitel 4.3.2 unter entsprechender Skalierung ebenfalls gezeigt. Dabei bestätigt der symmetrische Argon-Signalverlauf in der Beam-Dump-Kammer entlang beider Achsen eine optimale Ausrichtung des Beam Dumps an dem dritten Skimmer für  $y_{S,0} = 24,5$  mm sowie  $z_{S,0} = 27,2$  mm. Ferner werden dabei zwei Faktoren deutlich: Zum einen fällt  $p_{Ar}$  in der Ionisationskammer bei  $y_{S,0}$  und  $z_{S,0}$  auf Null ab, sodass sichergestellt ist, dass der gesamte Teilchenstrahl auf diese Weise durch den Beam Dump geführt werden kann. Zum anderen weicht die diese Skimmerposition aufgrund des experimentellen Umbaus mit der Ionisationskammer von der nominellen optimalen Skimmerposition aus Kapitel 4.3.2 ab, dies reduziert die durch den Skimmer transmittierte Strahlintensität jedoch kaum, da die Verschiebung kleiner als die Ausdehnung des Strahlprofils entlang beider Richtungen ist. Infolgedessen wird der dritte Skimmer in der  $yz$ -Ebene auf  $(y_{S,0}, z_{S,0})$  eingestellt und der Buncher anhand der resultierenden optischen Achse aus Skimmer und Beam Dump im anschließenden Kapitel ausgerichtet. Zuvor wird der Anstieg des Argon-Partialdrucks in der Beam-Dump-Kammer mit dem Maximum des Strahlprofils in der Ionisationskammer verglichen, um den Unterschied der Signalhöhe von einer Größenordnung zu begründen. Dazu wird analog zu Gleichung 4.2 in Kapitel 4.1.1 die mittlere Gaslast  $Q = \dot{p}_{Ar} \cdot V$  betrachtet, welche proportional zur mittleren Argon-Teilchenzahl  $N_{Ar}$  pro Puls ist. Im Gleichgewicht ist die Druckänderung  $\dot{p}_{Ar}$ , welche der Gasstrahl hervorruft, proportional zum Produkt aus Saugvermögen  $S$  und Gleichgewichtsdruck  $p_{Ar}$  unter Strahlbetrieb, sodass

$$N_{Ar} \propto S_{Ar} \cdot p_{Ar} \cdot V. \quad (6.1)$$

Da sich die mittlere Argon-Teilchenzahl entweder auf die Ionisations- oder auf die Beam-Dump-Kammer verteilt, kann aus der Forderung  $N_{Ar}^{IK} \stackrel{!}{=} N_{Ar}^{BD}$  das Verhältnis der Volumina der beiden Vakuumkammern abgeschätzt werden zu

$$\frac{V^{BD}}{V^{IK}} = \frac{S_{Ar}^{IK}}{S_{Ar}^{BD}} \cdot \frac{p_{Ar}^{IK}}{p_{Ar}^{BD}} \approx 0,3. \quad (6.2)$$

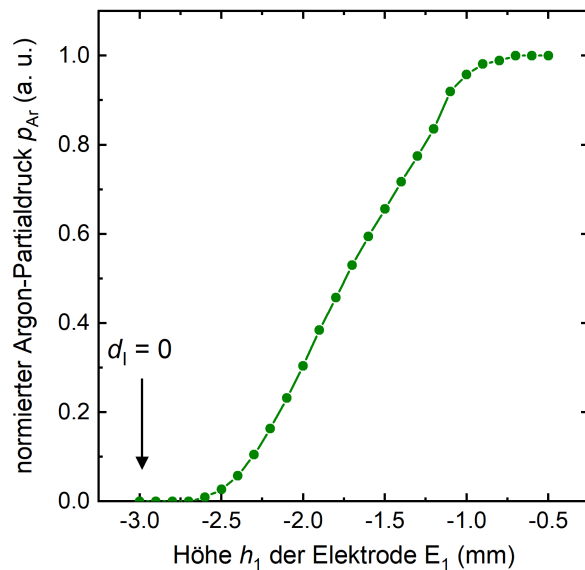
Dieser Abschätzung liegen einerseits die Herstellerangaben für  $S_{Ar}^{IK} = 260 \text{ l s}^{-1}$  bzw.  $S_{Ar}^{BD} = 83 \text{ l s}^{-1}$  sowie andererseits ein Verhältnis der Gleichgewichtsdrücke  $p_{Ar}^{IK}/p_{Ar}^{BD} \approx 0,1$  anhand von Abbildung 6.5 zugrunde und erscheint angesichts des experimentellen Aufbaus plausibel (vgl. Abbildung 3.9 in Kapitel 3.4).

### 6.1.2 Ausrichten des Ionenbunchers

Nachdem der Beam Dump die Verlängerung der optischen Achse der Gasstrahl-Expansion bildet, wird der modifizierte Ionenbuncher anhand dieser Achse ausgerichtet. Dazu wird der Strahlengang einer Laserdiode zur Justage unter Atmosphärenbedingung entgegen der Gasstrahlrichtung durch den Beam Dump auf den dritten Skimmer gerichtet. In der geöffneten Ionisationskammer wird der Ionenbuncher mit allen 6 Piezoschrittmotoren entsprechend Abbildung 3.16 in Kapitel 3.4.3 derart aufgebaut, dass Elektrode  $E_2$  in ihrer Nullstellung unterhalb und Elektrode  $E_1$  entsprechend oberhalb des Laserdiodenstrahls liegt. Dabei wird beim Aufbau sichergestellt, dass die optische Achse des Gasstrahls direkt oberhalb des Loches in  $E_2$  verläuft. Anschließend wird der Laserfokus des fs-Lasers entsprechend dem Vorgehen in Kapitel 5.1.1 ebenfalls mittig oberhalb des Loches positioniert. Auf diese Weise wird sichergestellt, dass sich die Strahlengänge von Laser und Gasstrahl an derjenigen Stelle kreuzen, an der die so generierten Ionen den Detektor erreichen können. Dabei bedarf es einer Einstellung des Gasstrahls mit einer Genauigkeit entsprechend der anhand von Abbildung 4.11 in Kapitel 4.3.2 gemessenen Strahlbreite von etwa 4,5 mm, sodass eine grobe Justage zunächst ausreichend ist. Anschließend wird der Detektor von unten so weit wie möglich an die zweite Elektrode herangefahren, was unter Berücksichtigung der endlichen Dicke von Macor-Keramik und Elektrode  $E_2$  zu einem Abstand von  $d_{II} \gtrsim 3$  mm führt. Daraufhin wird die Ionisationskammer erneut verschlossen und auf den Restgasdruck von  $3,0 \cdot 10^{-8}$  mbar abgepumpt.

Um nun sicherzustellen, dass der Gasstrahl tatsächlich zwischen den beiden Elektroden verläuft, wird  $E_1$  analog zu Kapitel 5.1.1 erneut soweit nach unten gefahren, bis sie bündig mit  $E_2$  abschließt, was in diesem Aufbau bei einer Höhe von  $h_1 = -3,0$  mm der Fall ist. Daraufhin wird der Gasstrahl mit den eingangs beschriebenen Parametern betrieben, um den Ionenbuncher daran präziser zu justieren. Zunächst wird der Strahl geometrisch durch die obere Elektrode blockiert, sodass kein Druckanstieg in der Beam-Dump-Kammer zu beobachten ist. Dessen Verlauf ist als Funktion zunehmender Höhe  $h_1$  bis zu einem konstanten Signal bei  $h_1 = -0,8$  mm der Abbildung 6.2 zu entnehmen. Aus dieser Messung lässt sich zum einen feststellen, dass der Gasstrahl bei Nullstellung beider Elektroden den Buncher gänzlich passieren kann, zum anderen stellt der Umkehrpunkt der Signalsteigerung bei etwa  $h_1 = -1,75$  mm die Position des Strahlzentrums innerhalb des Ionenbunchers dar. Die Breite des Strahls lässt sich dabei anhand der Umkehrpunkte

des konstanten zum annähernd linearen Anstieg bei  $h_1 = -2,5$  mm bzw.  $h_1 = -1,0$  mm zu etwa 1,5 mm abschätzen (vgl. Abbildung 7.8 in Kapitel 7.2.3). Um erneut den Zu-



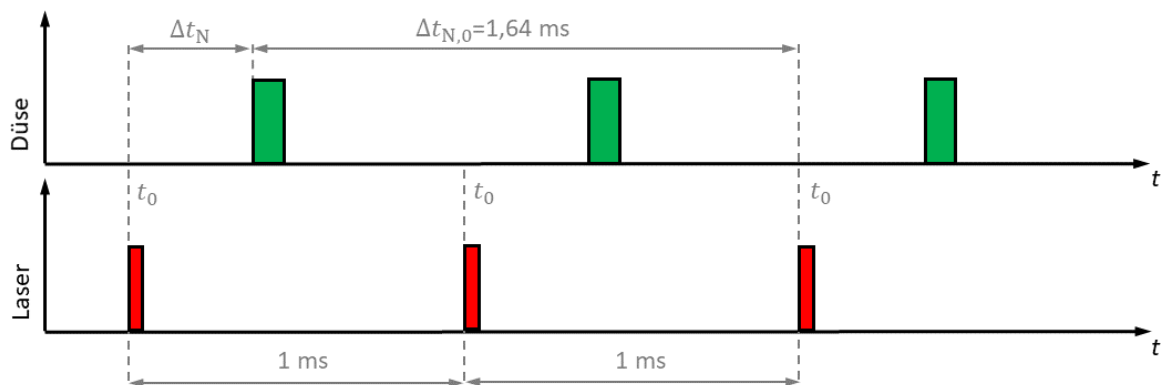
**Abbildung 6.2:** Normierter Anstieg von  $p_{Ar}$  in der Beam-Dump-Kammer als Funktion der Höhe  $h_1$  der Elektrode  $E_1$ . Der Verlauf zeigt den Anteil des Gasstrahls, welcher bei der eingestellten Höhe den Bereich zwischen  $E_1$  und  $E_2$  passieren kann.



stand  $d_I = d_{II}$  zu gewährleisten, wird Elektrode  $E_1$  zunächst genauso wie  $E_2$  bei  $h_2 = 0$  auf ihrer Nullstellung  $h_1 = 0$  belassen. Nach dieser groben Ausrichtung des Ionenbunchers am Gasstrahl wird im anschließenden Kapitel mithilfe des Lasers ein Ionensignal aus der Expansion generiert und charakterisiert.

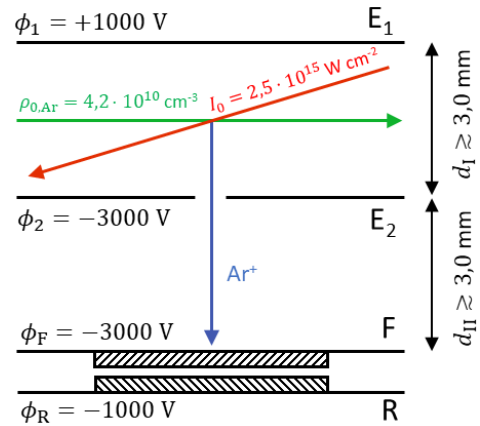
## 6.2 Ionensignal aus dem Ionenbuncher mit dem Gasstrahl

In dem zeitlichen Ablauf dieses Experimentes bildet das Feuern eines Laserpulses den Referenzzeitpunkt einer Messung mit einer festen Wiederholrate von 1 kHz, woraus sich ein zeitlicher Abstand von 1 ms zwischen zwei Laserpulsen ergibt. Aufgrund der Verschiebung der Referenz für den Start des Experimentes und der erhöhten Wiederholrate ergeben sich zwei Konsequenzen: Einerseits ist die mittlere Flugzeit einzelner Argon-Gaspulse bis zum Erreichen des Ionenbunchers gemäß Abbildung 4.7 b in Kapitel 4.3.1 von 1,64 ms größer als der Abstand aufeinanderfolgender Laserpulse. Andererseits kann das Öffnen der Düse zeitlich erst hinter einem bestimmten Laserpuls ausgelöst werden. Auf Grund dessen muss das Timingschema in dieser experimentellen Abfolge derart angepasst werden, dass die Düse nach einer Verzögerungszeit von  $\Delta t_{N,0} = (n - 1,64)$  ms nach Feuern eines Laserpulses geöffnet wird, wobei  $n$  eine ganze Zahl ist. Für  $n = 2$  ergibt sich dabei erstmals ein positives  $\Delta t_{N,0}$ , was bedeutet, dass der Schwerpunkt eines so ausgelösten Gaspulses den Buncher genau dann erreicht, wenn der übernächste Laserpuls diesen ebenfalls kreuzt. Somit wird die ursprünglich gemessene Flugzeitverteilung einzelner Gaspulse bis zum Ort der Ionisation gewährleistet, wie das Timingschema zwischen Laser und Düse in Abbildung 6.3 skizziert. Folglich wird eine Verzögerungszeit  $\Delta t_N = 360 \mu\text{s}$  zwischen Laser und Düse gewählt. Ferner wird die Düse auf eine nominelle Öffnungszeit von  $\Delta t_{Op} = 50 \mu\text{s}$  eingestellt und bei einem Druck von  $p_0 = 5$  bar betrieben.

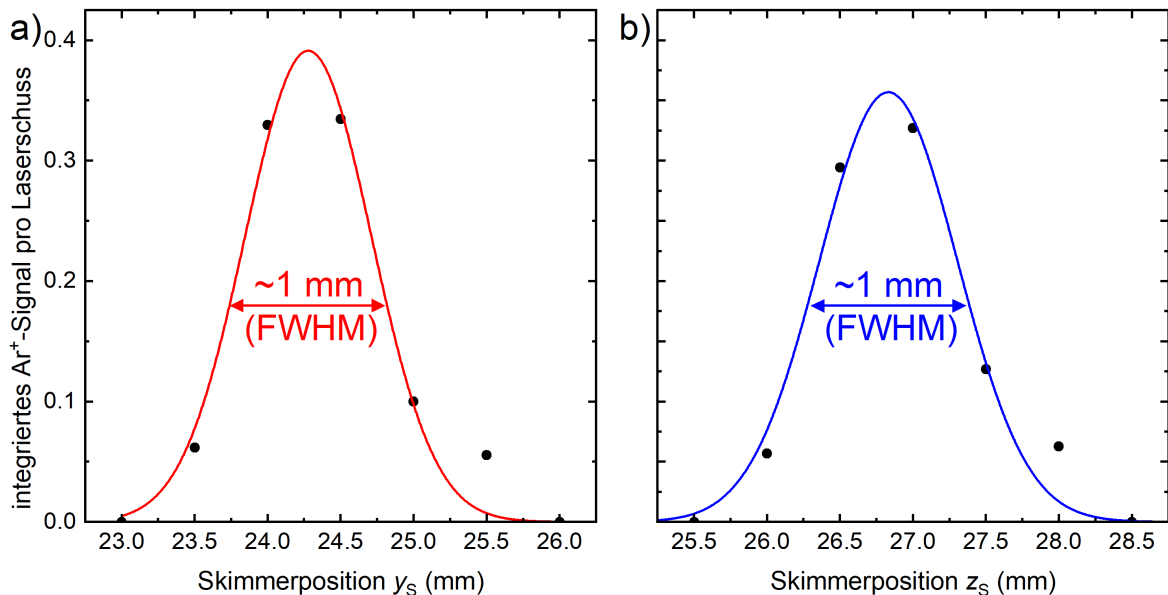


**Abbildung 6.3:** Angepasstes Timingschema zwischen Düse und Laser. In diesem Experiment bildet jedes Feuern des Lasers einen Referenzzeitpunkt  $t_0$  für eine Messung, sodass die Düse nach einer Anpassung der Verzögerungszeit von  $\Delta t_N = 0,36$  ms relativ zum Laser geöffnet wird. Der resultierende Gaspuls wird daraufhin vom übernächsten Laserpuls gekreuzt.

Der nächste Schritt besteht darin, ein laserinduziertes  $\text{Ar}^+$ -Ionensignal mit dem Buncher aus dem so eingestellten Gasstrahl nachzuweisen. Aus diesem Grund werden die Elektroden und der Detektor mit den Potentialen entsprechend Abbildung 6.4 beschaltet, sodass das Extraktionsfeld vergleichbar ist mit demjenigen aus Kapitel 5.2. Die daraus resultierende erhöhte Nachbeschleunigung der Elektronen zwischen Rear und Gitter des MCPs soll es dabei ermöglichen, eine potentiell schmalere Flugzeitverteilung an  $\text{Ar}^+$ -Ionen nachzuweisen. Die Laserintensität wird dazu für eine effiziente Erzeugung von  $\text{Ar}^+$ -Ionen entsprechend Abbildung 5.17 in Kapitel 5.5 auf  $I_0 = 2,5 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$  eingestellt. Analog zu der in Kapitel 5.3 beschriebenen Systematik wird zunächst die Laserposition ( $x_0, y_0, z_0$ ) anhand von Argon-Hintergrundgas ( $p_{\text{Ar}} = 7,0 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$ ) bestimmt, bei der ein maximales  $\text{Ar}^+$ -Ionensignal in dem neu aufgebauten Ionenbuncher im Flugzeitfokus nachzuweisen ist. Daraufhin wird das Feindosierventil wieder geschlossen, die Position des dritten Skimmers entlang der y-Achse bei  $z_{\text{S},0} = 27,2 \text{ mm}$  sowie der z-Achse bei  $y_{\text{S},0} = 24,5 \text{ mm}$  variiert und die laserinduzierten Ionensignale gemessen, um die Position maximalen Signals zu finden. Dazu wird das  $\text{Ar}^+$ -Ionensignal über jeweils  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse integriert und in Abbildung 6.5 als Funktion der Skimmerpositionen  $y_{\text{S}}$  (a) bzw.  $z_{\text{S}}$  (b) gemittelt über die Anzahl der Laserschüsse dargestellt.



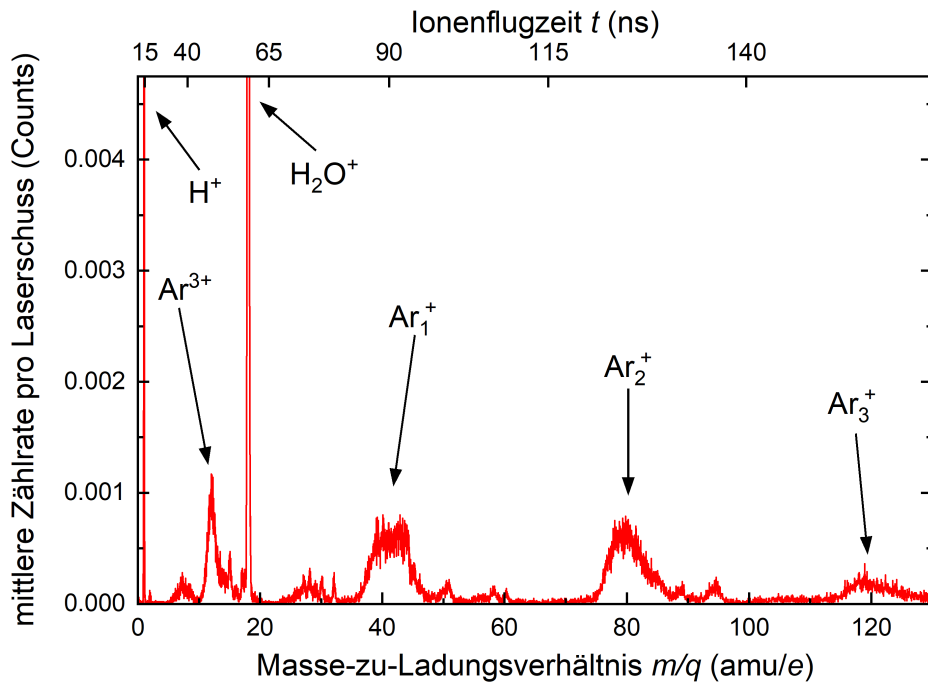
**Abbildung 6.4:** Konfiguration der Abstände und Potentiale des Ionenbunchers - Ionensignal aus dem Gasstrahl.



**Abbildung 6.5:** Integriertes  $\text{Ar}^+$ -Ionensignal als Funktion der Skimmerpositionen  $y_{\text{S}}$  (a) bzw.  $z_{\text{S}}$  (b) um  $(y_{\text{S},0}, z_{\text{S},0})$ , gemittelt über jeweils  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht Abbildung 6.4, der Gasstrahl wird bei  $p_0 = 5 \text{ bar}$ ,  $\Delta t_{\text{Op}} = 50 \mu\text{s}$  sowie  $\Delta t_{\text{N}} = 360 \mu\text{s}$  betrieben. Es ist jeweils ein maximales Ionensignal zu verzeichnen, welches eine dem Skimmerdurchmesser von 1 mm entsprechenden Breite in beide Richtungen aufweist.

Dabei ist jeweils ein ansteigender und abfallender Signalverlauf um die Positionen maximalen Signals bei  $y_S = 24,3$  mm und  $z_S = 26,8$  mm zu erkennen. Dieser Signalverlauf belegt, dass  $\text{Ar}^+$ -Ionen aus dem Strahl erzeugt werden können und es sich dabei nicht um Ionen aus rückgestreuten Neutralteilchen handelt. Die Abweichung zu der nominalen Skimmerposition  $(y_{S,0}, z_{S,0})$  um 0,2 mm bzw. 0,4 mm ist aufgrund der Breite des Gasstrahls vor dem dritten Skimmer und gegenüber der Schrittweite von 0,5 mm in dieser Messung unkritisch.

Betrachtet man allerdings die Flugzeitverteilungen, aus denen jeweils der Signalbeitrag jedes Datenpunktes in Abbildung 6.5 integriert wurde, so lassen sich viele weitere Peaks in jedem Spektrum feststellen. Dazu ist exemplarisch das Flugzeitspektrum im Strahlzentrum in Abbildung 6.6 gezeigt. Zur besseren Zuordnung anhand des Masse-zu-Ladungsverhältnis wird die untere Abszisse in eine  $m/q$ -Achse umskaliert, die Flugzeit ist auf der oberen Achse dargestellt.



**Abbildung 6.6:** Exemplarisches Flugzeitspektrum an der Position  $(y_{S,0}, z_{S,0})$  des Gasstrahls, gemittelt über  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht Abbildung 6.4, der Gasstrahl wird bei  $p_0 = 5$  bar,  $\Delta t_{\text{Op}} = 50 \mu\text{s}$  sowie  $\Delta t_{\text{N}} = 360 \mu\text{s}$  betrieben. Zur besseren Zuordnung der auftretenden Peaks ist die untere Abszisse in ein Masse-zu-Ladungsverhältnis umgerechnet.

Das Spektrum weist neben den beiden scharfen, dominanten Peaks für  $\text{H}^+$  und  $\text{H}_2\text{O}^+$ , welche in dieser Darstellung abgeschnitten sind, zwar  $\text{Ar}^+$ -Ionen erwartungsgemäß um  $m/q = 40$  amu/e auf, dessen Verteilung ist allerdings extrem verbreitert und kann nicht aus der direkten Photoionisation atomarer Neutralteilchen aus dem Gasstrahl resultieren. Ferner lassen sich bei  $m/q = 80$  bzw.  $m/q = 120$  amu/e ähnlich breite Peaks verzeichnen. Diese Peaks entsprechen dabei den Argon-Clusterionen  $\text{Ar}_2^+$  bzw.  $\text{Ar}_3^+$ . Eine vergleichbare Verteilung tritt um das fragmentierte  $m/q$ -Verhältnis von 13,3 amu/e auf und entspricht dreifach geladenen  $\text{Ar}^{3+}$ -Ionen. Das Auftreten dieser vielen Fragmente mit Halbwertsbreiten der entsprechenden Flugzeitverteilungen im Nanosekundenbereich erhärtet nicht nur den in Kapitel 4.3.1 erwähnten Verdacht, dass ein signifikanter

Anteil der Überschall-Expansion aus Argon-Clustern besteht [98, 99]. Vielmehr belegt das Massenspektrum aus Abbildung 6.6, dass der Gasstrahl nahezu ausschließlich aus Clustern besteht, welche unter Einstrahlung eines kurzen, intensiven Laserpulses angeregt oder ionisiert werden können. Die so in den Cluster eingetragene Energie kann dann unter Austausch und Emission weiterer Elektronen innerhalb des Clusters sowie durch unimolekulare Fragmentierung unter Emission von Mono-, Di- oder Trimeren thermalisiert werden [100]. Die innere Energie kann dabei teilweise in kinetische Energie dieser emittierten Fragmente umgesetzt werden, was die Verteilung der Startgeschwindigkeiten der daraus gebildeten Ionen enorm verbreitern kann. Das Beobachten der breiten Flugzeitverteilungen zeigt eine daraus resultierende Zerstörung der Flugzeitfokussierung des Ionenbunchers für diese Fragmente, welche bei den im Spektrum auftretenden Restgaspeaks hingegen intakt bleibt. Eine Kombination beider Relaxationskanäle ist ebenfalls möglich, was das Auftreten höher geladener Monomere trotz der moderat gewählten Laserpeakintensität erklärt. Die entsprechende Relaxationsdynamik für den Ladungsaustausch läuft dabei auf einer Zeitskala von Pikosekunden nach der Ionisation ab, das Verdampfen kleinerer Fragmente geschieht hingegen auf Zeitskalen von bis zu einigen Nanosekunden [101]. Dies erklärt beispielsweise die Flugzeitverteilung um  $\text{Ar}_1^+$  mit einer Halbwertsbreite von etwa 6 ns. Das Auftreten einer Verteilung der Fragmente bis hin zu Trimeren deutet dabei auf eine Größe der Cluster hin, deren mittlere Teilchenanzahl deutlich größer als 1 zu sein scheint. Die mittlere Clustergröße lässt sich abschätzen mit dem Hagera-Parameter

$$\Gamma^* = k_G \cdot p_0 \cdot \frac{d_{\text{eq}}^{0,85}}{T_0^{2,29}} \quad [102], \quad (6.3)$$

wobei  $k_G$  ein Parameter zur Beschreibung der Kondensation des betrachteten Gases  $G$  ist,  $p_0$  den Betriebsdruck der Düse beschreibt,

$$d_{\text{eq}} = 0,74 \cdot \frac{D_0}{\tan \alpha_N} \quad [103] \quad (6.4)$$

$\downarrow$   
 $\approx 300 \mu\text{m}$

die konische Düsenform mit Öffnungsdurchmesser  $D_0$  und halbem Öffnungswinkel  $\alpha_N = 20^\circ$  und  $T_0$  die Temperatur der Düse berücksichtigt. Dabei ist  $k_{\text{Ar}} = 1650$  für Argon [104],  $p_0$  wird in mbar,  $d_{\text{eq}}$  in  $\mu\text{m}$  und  $T_0$  in K bemessen, sodass  $\Gamma^*$  eine dimensionslose Zahl ergibt. Mit dem Hagera-Parameter folgt dann für die mittlere Atomanzahl  $\langle N \rangle$  in einem Cluster

$$\langle N \rangle = B \cdot \left( \frac{\Gamma_{\text{Ar}}^*}{1000} \right)^C \quad [105] \quad (6.5)$$

$\downarrow$   
 $\gtrsim 200$  für  $\Gamma_{\text{Ar}}^* = 2230$ ,

mit empirischen Parametern  $B = 33$  und  $C = 2,35$  für  $1800 \leq \Gamma^* \leq 10^4$  [105]. Dabei lässt die Abschätzung der mittleren Teilchenzahl pro Cluster und die damit verbundene Verteilung der Clustergrößen vermuten, dass der Anteil atomarer Neutralteilchen vernachlässigbar klein ist, sodass deren Flugzeitverteilung in Abbildung 6.6 durch die

fragmentierten Monomere überdeckt wird. In Abbildung 4.7 a in Kapitel 4.3.1 konnte im Gegensatz dazu durch die Elektronenstoßionisation lediglich ein kleiner Anteil an  $\text{Ar}_2^+$ -Ionen beobachtet werden, was auf einen deutlich geringeren Anteil an Clustern im Gasstrahl hinwies. Durch die vergleichsweise schonende, laserinduzierte Photoionisation lassen sich die einzelnen Fragmente hingegen besser nachweisen. So ist deutlich zu erkennen, dass Argon aufgrund massiver Clusterbildung in der Überschall-Gasexpansion für die Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse in dieser Konfiguration offenbar ungeeignet ist. Um den Clusteranteil zu reduzieren, müsste der Hagen-Parameter in einem Bereich von  $\Gamma^* \leq 350$  liegen, in welchem eine Kondensation zu kleinen Clustern gerade eintritt [106]. Eine Möglichkeit besteht daher darin, die Temperatur des Reservoirs zu erhöhen, eine Reduktion von  $\Gamma^*$  um etwa eine Größenordnung würde allerdings einer Temperatur von  $T \approx 800 \text{ K}$  entsprechen, was mit der in dieser Arbeit verwendeten Düse nicht zweckmäßig erscheint. Eine einfachere Alternative besteht darin, das Edelgas für den Betrieb der Düse zu wechseln. Wird beispielsweise Neon ( $k_{\text{Ne}} = 185$  [104]) als Betriebsgas unter ansonsten gleichen Bedingungen verwendet, so ergibt sich ein Hagen-Parameter von

$$\Gamma_{\text{Ne}}^* \approx 250, \quad (6.6)$$

weshalb für Neon nur eine vernachlässigbare Clusterbildung bei identischer Konfiguration der Düse zu erwarten ist. Aus diesem Grund wird im restlichen Verlauf dieser Arbeit die Überschall-Gasexpansion mit Neon betrieben und mithilfe des Ionenbunchers im anschließenden Kapitel 7 charakterisiert.



# 7 Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse mit Neon

Im vorangegangenen Kapitel ist ersichtlich geworden, dass der Gasstrahl ausschließlich aus Argon-Clustern zu bestehen scheint, was die Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse mit Argon-Ionen auf diese Weise unmöglich macht. Daher wird in diesem Kapitel die Möglichkeit betrachtet, die Gasexpansion stattdessen mit Neon zu betreiben. Dazu wird zuerst der Laser für die Ionisation von Neon-Ionen an Neon-Hintergrundgas kalibriert. Anschließend erfolgt eine Charakterisierung der Strahlzusammensetzung des Neon-Gasstrahls und des damit verbundenen Parameterraums der Düse. Zuletzt wird der Ionenbuncher optimiert und der kürzeste Ionenpuls präsentiert, woraufhin mögliche Verbesserungen der Pulsdauer diskutiert werden.

---

7.1	Parameterraum der Düse für Neon . . . . .	109
7.1.1	Flugzeitspektrum für Neon . . . . .	110
7.1.2	Kalibrierung der Laserintensität für Neon . . . . .	111
7.1.3	Variation von Betriebsdruck und Öffnungszeit der Düse . . . . .	112
7.2	Parameterraum des Lasers für Neon . . . . .	115
7.2.1	Laser-Scan entlang der x-Achse . . . . .	115
7.2.2	Laser-Scan entlang der y-Achse . . . . .	116
7.2.3	Laser-Scan entlang der z-Achse und Zentralstrahldichte . . . . .	117
7.3	Kalibrierung der Winkel aller drei Elektroden . . . . .	119
7.4	Flugzeitminimum und kürzester Ionenpuls aus dem Neon-Gasstrahl . . .	123
7.5	Einfluss von Extraktionsfeld und Temperatur auf die Ionenpulsbreite . . .	125

---

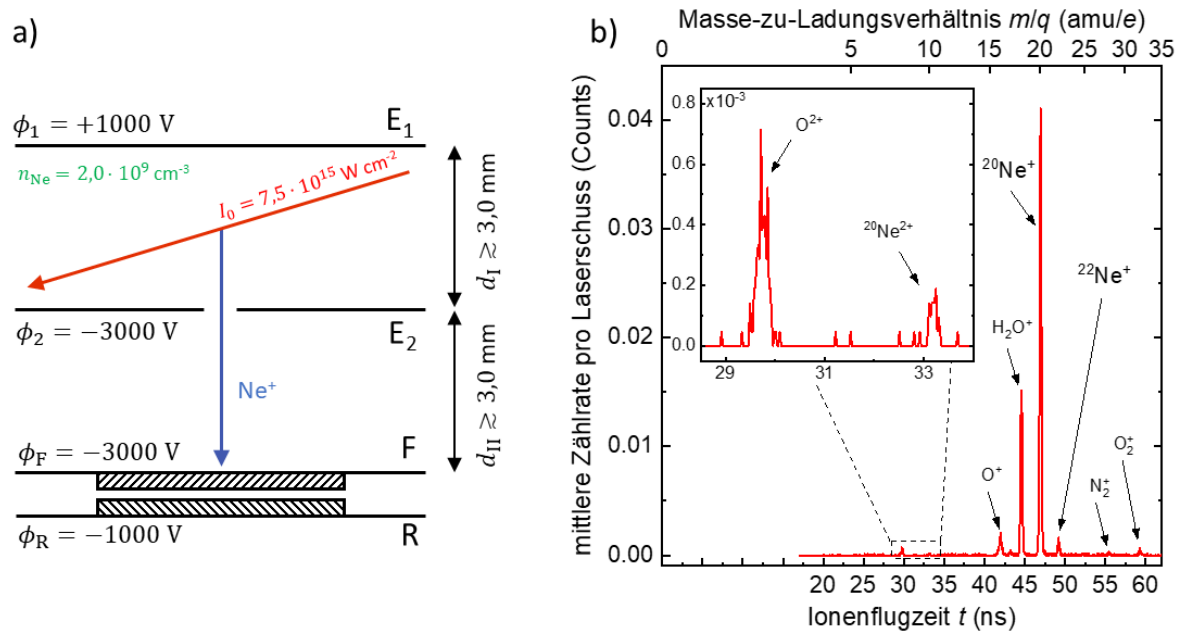
## 7.1 Parameterraum der Düse für Neon

Neon bietet sich für die Überschall-Gasexpansion aus zwei Gründen an, welche hinsichtlich der Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse vorteilhaft sind: Zum Einen ist der Anteil an Neon-Clustern in dem Gasstrahl vernachlässigbar klein, da Neon eine deutlich geringere Bindungsenergie für das Ne-Dimer aufweist als beispielsweise Argon [107] und sich daher eher wie ein ideales Gas verhält. Zum Anderen können Neon-Gasstrahlen aufgrunddessen eine geringere Strahltemperatur aufweisen [63], was eine schmalere Geschwindigkeitsverteilung – und damit kürzere Ionenpulse – begünstigt. Ebenfalls ist zu berücksichtigen, dass Neon eine geringere Masse von 20 amu gegenüber Argon mit 40 amu aufweist. Die daraus resultierende kürzere Flugzeit von  $\text{Ne}^+$ -Ionen unter identischen Bedingungen ist für die spätere Einbettung der Ionenquelle in ein Anrege-Abfrage-Experiment vorteilhaft, da eine um einen Faktor  $\sqrt{2}$  kürzere optische Verzögerungsstrecke zu konstruieren ist. Da der Gasstrahl infolgedessen mit Neon betrieben und hinsichtlich seiner Strahleigenschaften charakterisiert werden muss, wird zunächst anhand von Neon-Hintergrundgas ein Flugzeitspektrum für Neon in der gleichen Konfiguration des Ionenbunchers wie im vorherigen Kapitel 6.2 präsentiert. Auf-

grund des höheren Ionisationspotentials  $IP_{\text{Ne}}$  wird eine maximale Ionisierungswahrscheinlichkeit für  $\text{Ne}^+$ -Ionen bei höheren Laserintensitäten erwartet (vgl. Abbildung 2.13 b in Kapitel 2.2.2). Daher wird die Laserpeakintensität zunächst erhöht und anschließend für die effiziente Erzeugung von Neon-Ionen optimiert. Anhand dessen lässt sich der Parameterraum der Düse unter Betrieb mit Neon quantifizieren.

### 7.1.1 Flugzeitspektrum für Neon

Über das Feindosierventil wird Neon-Gas bei einem Partialdruck von  $p_{\text{Ne}} = 8,4 \cdot 10^{-8}$  mbar in die Ionisationskammer eingelassen. Dabei wird der Restgasdruck von  $3 \cdot 10^{-8}$  mbar von dem gemessenen Druck mit der Heißkathoden-Druckmessröhre subtrahiert und diese Differenz mit dem Korrekturfaktor  $\nu = 4,1$  gemäß Tabelle 4.1 zu skalieren. Die Neutralteilchendichte entspricht dann Gleichung 4.1 zufolge  $n_{\text{Ne}} = 2,0 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-3}$ . In Abbildung 7.1 ist die resultierende Flugzeitverteilung gemittelt über  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse bei einer Laserpeakintensität  $I_0 = 7,5 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$  dargestellt, ein entsprechendes Restgasspektrum ist in Abbildung 10.8 im Anhang gezeigt.



**Abbildung 7.1:** a) Konfiguration der Abstände und Potentials des Ionenbunchers zur Messung der Flugzeitverteilung von Neon. b) Gemessenes Flugzeitspektrum unter Einlass von Neon-Gas bei  $p_{\text{Ne}} = 8,4 \cdot 10^{-8}$  mbar in der nebenstehenden Konfiguration des Ionenbunchers, gemittelt über  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Neben dem dominanten  $\text{Ne}^+$ -Peak bei  $m/q = 20 \text{ amu/e}$  tritt sowohl das  $^{22}\text{Ne}^+$  Isotop als auch  $\text{Ne}^{2+}$  im Spektrum auf.

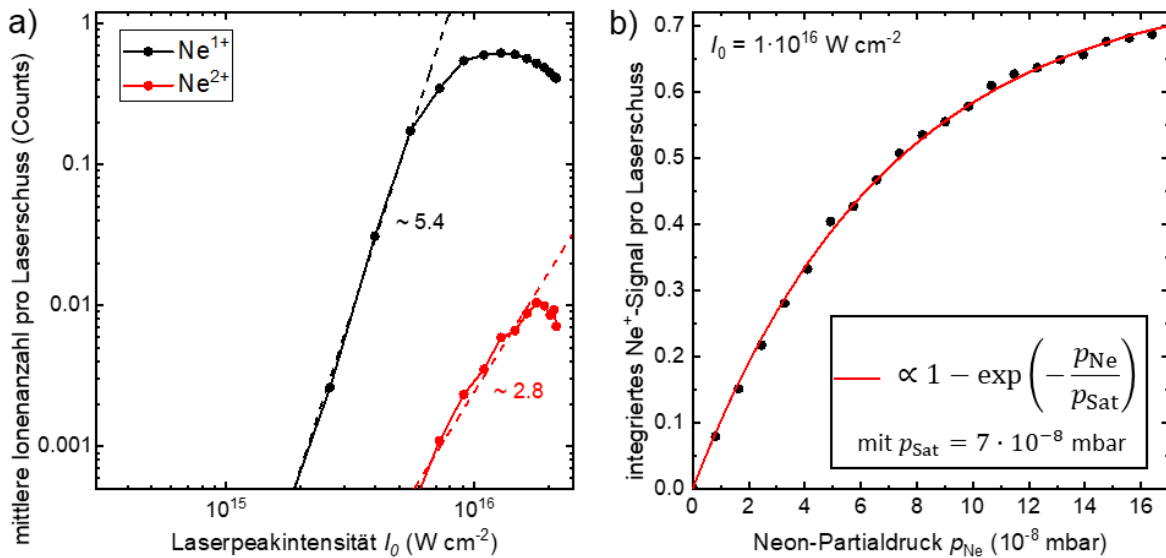
Die obere Abszisse ist dabei in ein entsprechendes Masse-zu-Ladungsverhältnis skaliert, sodass die auftretenden Peaks eindeutig zugeordnet werden können. Anhand des dominanten Peaks bei einer Flugzeit von 47 ns ist ersichtlich, dass Neon-Ionen erwartungsgemäß einen Peak um  $m/q = 20 \text{ amu/e}$  bildet. Daneben lassen sich zwei weitere Peaks im Spektrum beobachten, die auf Neon zurückzuführen sind: der Peak bei 10 amu/e entspricht  $\text{Ne}^{2+}$ -Ionen, der Peak bei 22 amu/e ist hingegen dem  $^{22}\text{Ne}$ -Isotop zuzuordnen. Dessen Signalhöhe sollte im Verhältnis  $^{22}\text{Ne}^+ / ^{20}\text{Ne}^+ \approx 0,1$  auftreten [71], sie wird allerdings vom Signal des  $^{20}\text{Ne}$ -Peaks unter Berücksichtigung der Totzeit des



TDC überdeckt (vgl. Kapitel 3.4.2.1), sodass die Relation der gemessenen Signalhöhen mit 0,043 bei der Intensität von  $I_0 = 7,5 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$  deutlich unterschätzt wird. In Abbildung 10.9 im Anhang ist ein Flugzeitspektrum bei einer geringeren Laserpeakintensität gezeigt, welches das Verhältnis von  $\approx 0,1$  bestätigt. Die weiteren Peaks können einerseits  $\text{H}_2\text{O}^+$  sowie  $\text{O}^+$  bzw.  $\text{O}^{2+}$  andererseits zugeordnet werden, die ebenfalls auftretenden  $\text{H}^+$ -Ionen lassen sich hierbei nicht nachweisen, da der Triggerpuls am Start-Eingang des TDC die Messung erst 17 ns nach Erzeugung der Ionen startet. Das Auftreten von  $\text{H}_2\text{O}^+$  und dessen Fragmenten im Spektrum weist auf die bereits in Kapitel 5.2 diskutierte Problematik der effizient zu ionisierenden Wassermoleküle hin, ist allerdings aufgrund der spektralen Zerlegung der ankommenden Ionen anhand ihrer Flugzeitverteilungen im weiteren Verlauf unkritisch. Vielmehr ist anhand dieses Spektrums erwiesen, dass die Ionisation von  $\text{Ne}^{q+}$  mit  $q = 1, 2$  mit dem Laser ebenfalls funktioniert. Daraufhin werden die Auswirkungen der Laserpeakintensität und der Neutralteilchendichte auf die Zählrate an Neon-Ionen charakterisiert.

### 7.1.2 Kalibrierung der Laserintensität für Neon

Um den Verlauf der Ionisationswahrscheinlichkeit für diese beiden Ladungszustände zu vermessen, wird nun die Laserpeakintensität  $I_0$  im gleichen Bereich wie für Argon in Kapitel 5.5 variiert und die Anzahl an  $\text{Ne}^{1+}$ - und  $\text{Ne}^{2+}$ -Ionen pro Laserschuss detektiert. Der resultierende Verlauf ist in Abbildung 7.2 a) dargestellt und zeigt analog zu Abbildung 5.17 qualitativ einen vergleichbaren Verlauf für die nachzuweisenden Ladungszustände.



**Abbildung 7.2:** a) Integriertes Ionensignal pro Laserschuss als Funktion der Laserpeakintensität bei  $p_{\text{Ne}} = 1,0 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$ , aufgeschlüsselt nach Ladungszustand  $q$ . Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht Abbildung 7.1 a. b) Integriertes Ionensignal pro Laserschuss als Funktion des Neon-Partialdrucks bei  $I_0 = 1,0 \cdot 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ , angepasst mit einer Sättigungskurve entsprechend Gleichung 7.1. In beiden Fällen ist das Ionensignal gemittelt über jeweils  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse.

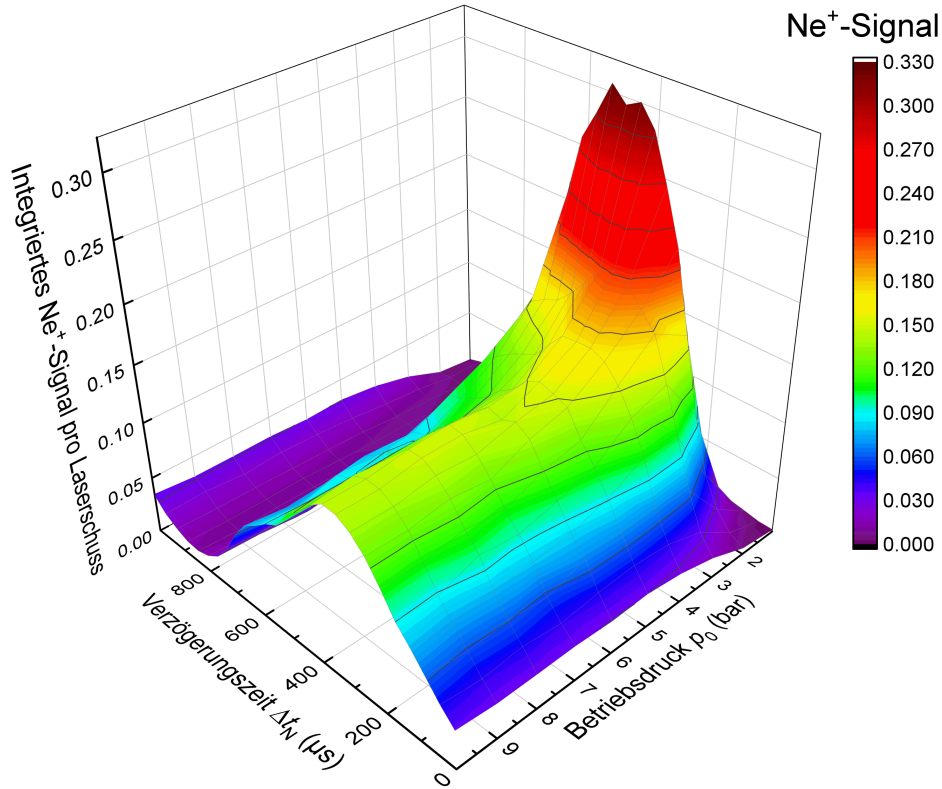
Aufgrund des höheren Ionisationspotentials sind die Maxima beider Kurven erwartungsgemäß zu größeren Laserpeakintensitäten verschoben. Damit einher geht auch die Tatsache, dass auch bei der nominell maximalen Peakintensität  $I_{0,\text{Max}}$  aus Gleichung 5.3 keine höheren Ladungszustände zu beobachten sind. Die Steigung von 5,4 für den Signalverlauf von  $\text{Ne}^+$  entspricht nahezu der Steigung von 6,5 für die Ionisierungswahrscheinlichkeit von Neon (vgl. Abbildung 2.13 b in Kapitel 2.2.2), sie wird für  $\text{Ne}^{2+}$  mit 2,8 jedoch deutlich unterschätzt. Bei  $I_0 = 1,0 \cdot 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$  ist ein maximales  $\text{Ne}^+$ -Ionensignal erkennbar, sodass bei dieser Laserpeakintensität die  $\text{Ne}^+$ -Ionenzählrate unter Variation des Neon-Partialdrucks  $p_{\text{Ne}}$  gemessen wird. Entsprechend Abbildung 7.2 b ergibt sich dabei kein linearer Zusammenhang (vgl. Abbildung 4.14 in Kapitel 4.4.2), da der TDC auch Pulse mit mehr als einem Ion pro Puls nur als einen Ioneneinschlag registriert. Deshalb weist die Nachweiswahrscheinlichkeit  $w(p_{\text{Ne}})$  als Funktion des Neon-Partialdrucks ein typisches Sättigungsverhalten auf und wird entsprechend

$$w(p_{\text{Ne}}) \propto 1 - \exp\left(-\frac{p_{\text{Ne}}}{p_{\text{Sat}}}\right), \quad (7.1)$$

mit dem Sättigungsdruck  $p_{\text{Sat}} = 7 \cdot 10^{-8} \text{ mbar}$ , bei dem im Mittel 1 Ion pro Laserschuss gebildet wird. Die Nachweiswahrscheinlichkeit konvergiert dabei zwar nicht gegen 1, da der  $\text{Ne}^+$ -Peak von dem  $\text{H}_2\text{O}^+$ -Peak aufgrund der Totzeit des TDC unterschätzt wird (vgl. Abbildung 7.1 b), der direkte Vergleich des  $\text{Ne}^+$ -Ionensignals aus dem Gasstrahl mit Neon-Hintergrundgas zur Bestimmung der zentralen Strahldichte ist davon allerdings unabhängig. Anhand der Kalibrierung lassen sich die gemessenen Zählraten an  $\text{Ne}^+$ -Ionen in einen entsprechenden Partialdruck  $p_{\text{Ne}}$  für Neon umrechnen, welcher wegen Gleichung 4.1 proportional zu der Teilchendichte  $n_{\text{Ne}}$  ist. Zunächst wird jedoch der Parameterraum der Düse unter Betrieb mit Neon vermessen, um die Dichte des Gasstrahls im Ionenbuncher zu maximieren.

### 7.1.3 Variation von Betriebsdruck und Öffnungszeit der Düse

Der Betrieb des Gasstrahls mit Neon sollte prinzipiell keine Auswirkungen auf die physikalischen Eigenschaften der Überschall-Expansion haben. Lediglich die Verzögerung der Düsenöffnung nach dem Feuern des Lasers muss aufgrund der höheren Schwerpunktsgeschwindigkeit  $v_{\parallel,\infty}$  für Neon angepasst werden. Die Wiederholrate des Lasers erlaubt das Vermessen des gesamten möglichen Verzögerungsbereichs zwischen 0 und 1 ms, um das maximale  $\text{Ne}^+$ -Ionensignal zu finden. Dabei wird die Öffnungszeit der Düse auf  $\Delta t_{\text{Op}} = 20 \mu\text{s}$  sowie die Laserpeakintensität von  $I_0 = 7,5 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$  eingestellt, um eine mögliche Sättigung des Ionensignals zu vermeiden. In Abbildung 7.3 ist auf der Abszisse die Verzögerungszeit  $\Delta t_{\text{N}}$  und auf der Ordinate der Betriebsdruck der Düse von  $p_0 = 1 - 10 \text{ bar}$  gezeigt, auf der Applikate ist die gemessene Ionenzählrate aufgetragen.



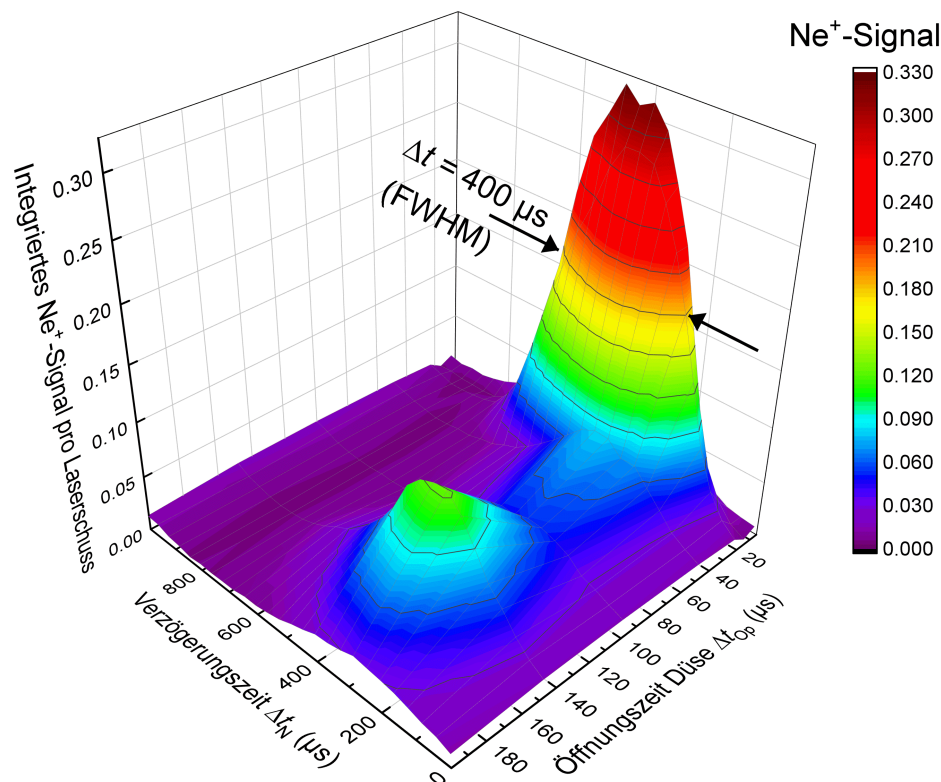
**Abbildung 7.3:** Integriertes  $\text{Ne}^+$ -Ionensignal pro Laserschuss als Funktion der Verzögerungszeit  $\Delta t_N$  unter Variation des Betriebsdrucks  $p_0$ , gemittelt über  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht Abbildung 7.1 a. Es ist für alle  $\Delta t_{N,0} = 440 \mu\text{s}$  ein Maximum in dem  $\text{Ne}^+$ -Signal zu erkennen, welches bei  $p_0 = 2 \text{ bar}$  eine mehr als doppelt so hohe Zählrate aufweist als für  $p_0 \geq 4 \text{ bar}$ .

Es lässt sich dabei unabhängig vom eingestellten Druck  $p_0$  jeweils ein Maximum bei  $\Delta t_{N,0} = 0,44 \text{ ms}$  feststellen. Daraus lässt sich die Schwerpunktgeschwindigkeit eines Gaspulses unter Berücksichtigung des Abstandes zwischen Düse und Ionisationspunkt von  $\Delta x_I = 1200 \text{ mm}$  bestimmen zu (vgl. Kapitel 6.2)

$$v_{\parallel, \infty, \text{Ne}} = \frac{\Delta x_I}{2 \text{ ms} - \Delta t_{N,0}} \quad (7.2)$$

|  
= 770 m/s,

was gut mit der zu erwartenden Geschwindigkeit entsprechend Gleichung 2.5 von  $v_{\parallel, \infty} = 790 \text{ m s}^{-1}$  für Neon übereinstimmt. Zwar ändert sich die Geschwindigkeit der Gaspulse nicht unter Variation des eingestellten Drucks, jedoch lässt sich ein maximales Ionensignal bei einem Druck von  $p_0 = 2 \text{ bar}$  verzeichnen, welches für größere Drücke jedoch drastisch abnimmt. Um zu beurteilen, ob die Öffnungszeit der Düse einen ähnlichen Effekt in der Signalhöhe aufweist, wird die  $\text{Ne}^+$ -Zählrate bei einem festen Betriebsdruck von  $p_0 = 2 \text{ bar}$  unter Variation von  $\Delta t_{\text{Op}}$  untersucht. Dazu wird in Abbildung 7.4 auf der Abszisse die Verzögerungszeit  $\Delta t_N$  und auf der Ordinate die Öffnungszeit der Düse von  $\Delta t_{\text{Op}} = 5 - 200 \mu\text{s}$  gezeigt, auf der Applikate ist analog zu Abbildung 7.3 die gemessene Ionenzählrate aufgetragen.



**Abbildung 7.4:** Integriertes  $\text{Ne}^+$ -Ionensignal pro Laserschuss als Funktion der Verzögerungszeit  $\Delta t_N$  unter Variation der Öffnungszeit der Düse  $\Delta t_{\text{Op}}$ , gemittelt über  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht Abbildung 7.1 a. Es ist ebenfalls für alle  $\Delta t_{N,0} = 440 \mu\text{m}$  ein signifikantes Signal in der Zählrate zu erkennen, welches allerdings nur bei  $\Delta t_{\text{Op}} = 20 \mu\text{s}$  ein deutliches Maximum des Neon-Signals aufweist und für größere Öffnungszeiten rapide abnimmt.

Anhand der Abbildung ist ebenfalls zu erkennen, dass  $v_{\parallel,\infty}$  nicht von  $\Delta t_{N,0}$  abhängt. Jedoch nimmt die Signalthöhe für größere Öffnungszeiten als  $40 \mu\text{s}$  erheblich ab und bildet nur noch ein kleines Maximum bei  $\Delta t_{\text{Op}} = 140 \mu\text{s}$  aus. Für diese Öffnungszeit scheint die Durchflussrate durch die Düse nominell ein Maximum zu bilden, die Signalthöhe liegt dort allerdings etwa bei einem Drittel der maximalen Zählrate an  $\text{Ne}^+$ -Ionen bei  $\Delta t_{\text{Op}} = 20 \mu\text{s}$ . Damit lässt sich die Strahlqualität unter Betrieb mit Neon analog zu Kapitel 4.3.1 charakterisieren. Unter Vernachlässigung der Entfaltung mit  $\Delta t_{\text{Op}}$  für die gemessene Breite  $\Delta t = 400 \mu\text{s}$  ergeben sich damit für die Speed Ratio und die damit verbundene Paralleltemperatur (vgl. Gleichungen 4.11 und 4.12)

$$S_{\text{Ne}} = 2\sqrt{\ln(2)} \frac{2 \text{ ms} - \Delta t_{N,0}}{\Delta t} \approx 6,5 \quad \text{und} \quad T_{\parallel,\infty,\text{Ne}} = \frac{1}{2} \cdot \frac{m}{k_B} \left( \frac{v_{\parallel,\infty,\text{Ne}}}{S_{\text{Ne}}} \right)^2 \approx 17 \text{ K}. \quad (7.3)$$

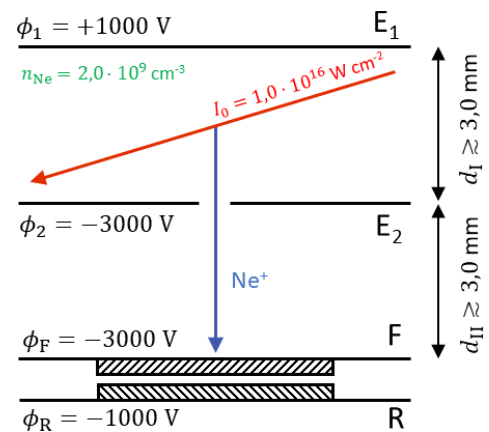
Im Vergleich mit Argon weist der Gasstrahl unter Betrieb mit Neon also schlechtere Eigenschaften aus, was vor allem durch die vergleichsweise niedrigen Einstellung des Betriebsdrucks bedingt ist. Hillenkamp et al. beobachten beispielsweise für Neon im Bereich von  $p_0 = 20 - 40 \text{ bar}$  eine Speed Ratio von bis zu 70 [63], welche jedoch für kleinere Drücke um eine Größenordnung abnimmt und die hier gemessene Speed Ratio plausibel erscheinen lässt. Die Abnahme der Zählrate an  $\text{Ne}^+$ -Ionen für höhere

Drücke bzw. Öffnungszeiten ist auf das Transmissionsvermögen der verwendeten Skimmer zurückzuführen, wovon vor allem der zweite Skimmer die Strahlintensität auch für Neon drastisch zu reduzieren scheint. Eine Vergrößerung der Skimmerdurchmesser hat demnach nicht nur eine direkte Erhöhung der Strahldichte (vgl. Kapitel 4.4.2), sondern auch eine mögliche Verbesserung der Strahlqualität zur Folge. Da die hohe Abnahme der Transmission in den Abbildungen 7.3 und 7.4 für  $p_0 \geq 4$  bar und  $\Delta t_{Op} \geq 40 \mu\text{s}$  deutlich erkennbar ist, werden im Folgenden die optimalen Düsenparameter  $p_0 = 2$  bar und  $\Delta t_{Op} = 20 \mu\text{s}$  für den Betrieb des Gasstrahls bei einer Verzögerungszeit von  $\Delta t_{N,0} = 440 \mu\text{s}$  gewählt.

## 7.2 Parameterraum des Lasers für Neon

Nachdem die Gasexpansion als Neutralteilchenquelle auf ein maximales Ionensignal optimiert wurde, wird der Parameterraum des Lasers für den Neon-Gasstrahl erfasst.

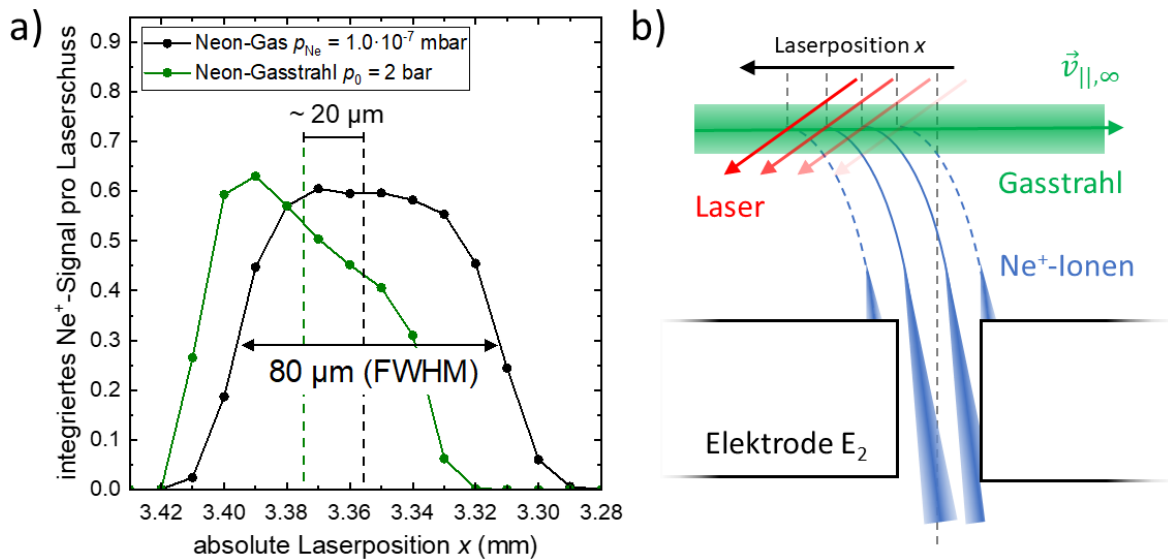
Dazu wird die Laserpeakintensität wieder auf  $I_0 = 1,0 \cdot 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$  erhöht und Neon-Hintergrundgas bei einem Partialdruck von  $p_{\text{Ne}} = 1,0 \cdot 10^{-7}$  mbar eingelassen. Abbildung 7.5 fasst die Konfiguration des Ionenbunchers dafür übersichtlich zusammen, es wird jeweils das  $\text{Ne}^+$ -Ionensignal über  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse gemittelt. Dabei wird neben der Vermessung der kartesischen Koordinaten entlang der Gasstrahlachse  $x$  und der Extraxionsachse  $z$  das  $\text{Ne}^+$ -Signal mit dem Signal aus dem Gasstrahl verglichen sowie der Einfluss der Laserpeakintensität entlang der Laserstrahlachse  $y$  untersucht. Schließlich erlaubt eine Kalibrierung des Ionensignals an Neon-Hintergrundgas eine Quantifizierung der Zentralstrahldichte.



**Abbildung 7.5:** Konfiguration der Abstände und Potentiale des Ionenbunchers - Parameterraum Neon.

### 7.2.1 Laser-Scan entlang der $x$ -Achse

Der Laser-Scan entlang der Expansionsachse im Ionenbuncher ist erforderlich, um den Einfluss der Driftgeschwindigkeit der Gasteilchen in Strahlrichtung auf die  $x$ -Position maximalen Ionensignals abzuschätzen. Aus diesem Grund wird der Scan entlang der  $x$ -Achse sowohl für den Neon-Gasstrahl als auch für Neon-Hintergrundgas bei einem Partialdruck von  $p_{\text{Ne}} = 1,0 \cdot 10^{-7}$  mbar vorgenommen. Abbildung 7.6 a zeigt beide Messungen, wobei insbesondere der Signalverlauf für den Gasstrahl das Transmissionsvermögen des Loches in  $E_2$  widerspiegelt. Einerseits weisen beide Verläufe einen Versatz von etwa  $20 \mu\text{m}$  auf, welcher auf die Vorzugsrichtung der Geschwindigkeit  $v_{\parallel, \infty}$  entlang der Gasstrahlachse zurückzuführen ist. Aufgrund dessen verlaufen die Trajektorien einzelner Neon-Ionen aus dem Gasstrahl nicht geradlinig entlang der  $z$ -Achse, sondern beschreiben eine Parabel in der  $xz$ -Ebene. Diese bewirkt neben der resultierenden Verschiebung entlang der  $x$ -Achse ebenfalls die Abnahme des  $\text{Ne}^+$ -Ionensignals aus dem Gasstrahl für kleinere  $x$ -Werte. Aufgrund der endlichen Dicke der Elektrode  $E_2$  können  $\text{Ne}^+$ -Ionen gegen die Innenseite des Loches treffen und reduzieren auf diese Weise die Signalhöhe, wohingegen das Signal aus dem Neon-Gas konstant ist.



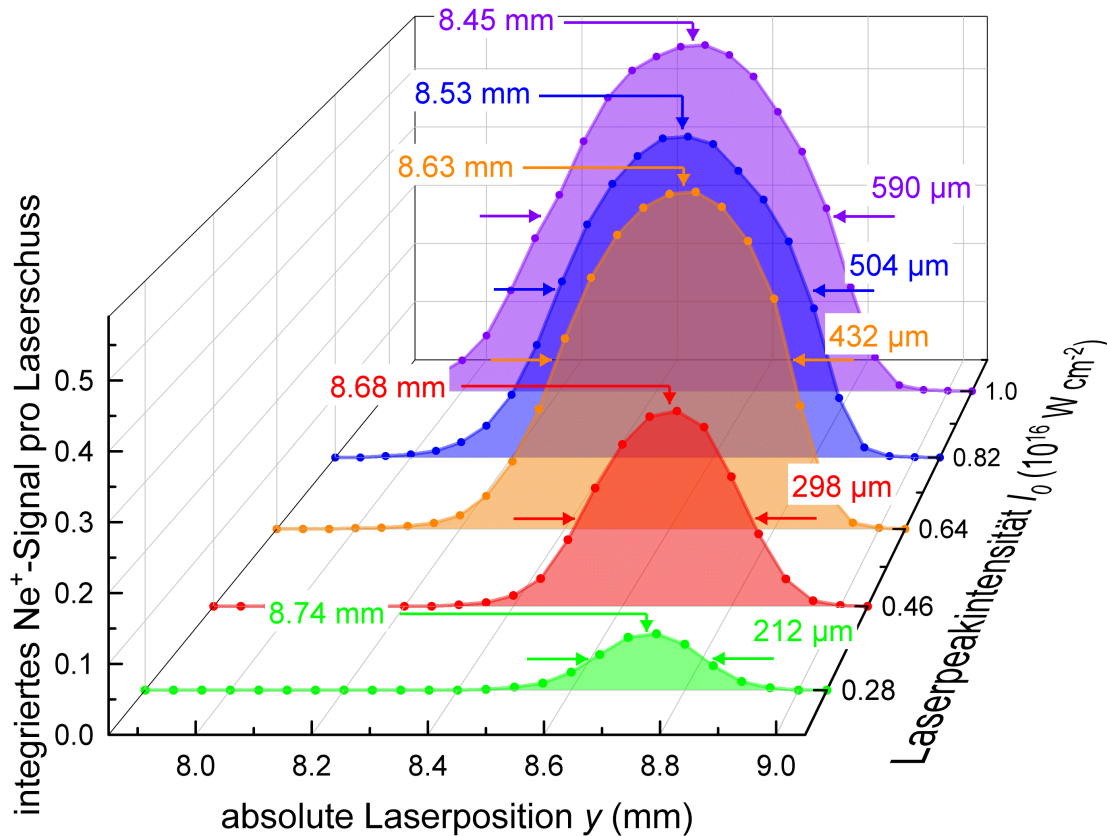
**Abbildung 7.6:** a) Integriertes  $\text{Ne}^+$ -Ionsignal pro Laserschuss als Funktion der absoluten Laserposition  $x$  des Manipulators für Neon-Hintergrundgas bei  $p_{\text{Ne}} = 1,0 \cdot 10^{-7}$  mbar (schwarz) sowie für Neon-Gasstrahl bei  $p_0 = 2$  bar (grün), gemittelt über  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht Abbildung 7.5. b) Photoionisierte  $\text{Ne}^+$ -Ionen (blau) beschreiben aufgrund der Geschwindigkeit  $\vec{v}_{\parallel, \infty}$  (grün) eine parabelförmige Trajektorie, daher können Ionen aus dem Gasstrahl unter Variation der  $x$ -Position des Lasers (rot) vollständig oder teilweise ausgeblendet werden.

Beide Effekte werden in Abbildung 7.6 b skizziert und erklären die Abweichungen zu dem Signalverlauf für Neon-Hintergrundgas. Dabei ist zu berücksichtigen, dass die Skala invertiert ist und die Position des Laserfokus für höhere  $x$ -Werte in Richtung der Propagation des Gasstrahls verschiebt. Daher wird die Laserposition entlang der Expansionsachse etwa  $35 \mu\text{m}$  von dem nominellen Lochzentrum entfernt auf  $x_0 = 3,39$  mm eingestellt. Anschließend wird das Ionensignal entlang der Laserstrahlachse vermessen.

## 7.2.2 Laser-Scan entlang der $y$ -Achse

Der Verlauf des Ionensignals als Funktion der Laserposition entlang der  $y$ -Achse sollte sich auch für Neon gemäß der Ausdehnung des Intensitätsprofils in Laserstrahlrichtung nur geringfügig ändern. Um daher gleichzeitig den Einfluss der Laserintensität auf die Photoionisation von Neon zu untersuchen, werden Laser-Scans entlang der  $y$ -Achse für unterschiedliche Laserpeakintensitäten aufgenommen. In Abbildung 7.7 ist dabei die absolute Laserposition  $y$  auf der Abszisse unter Variation der Laserpeakintensität auf der Ordinate dargestellt, die jeweils detektierte Zählrate an  $\text{Ne}^+$ -Ionen ist auf der Applikate aufgetragen. Anhand der Verläufe der Kurven entlang der Laserstrahlachse ist jeweils ein Maximum mit annähernd symmetrischen Flanken zu beobachten, deren Signalhöhe auf Null abfällt. Ebenfalls nimmt die maximale Zählrate mit steigender Laserpeakintensität erwartungsgemäß zu. Unter Erhöhung von  $I_0$  hingegen verschiebt sich einerseits der Schwerpunkt  $y_0$  der einzelnen Verteilungen zu kleineren  $y$ -Werten, andererseits nimmt deren Breite  $\Delta y$  auf bis zu  $590 \mu\text{m}$  bei  $I_0 = 1,0 \cdot 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$  zu.



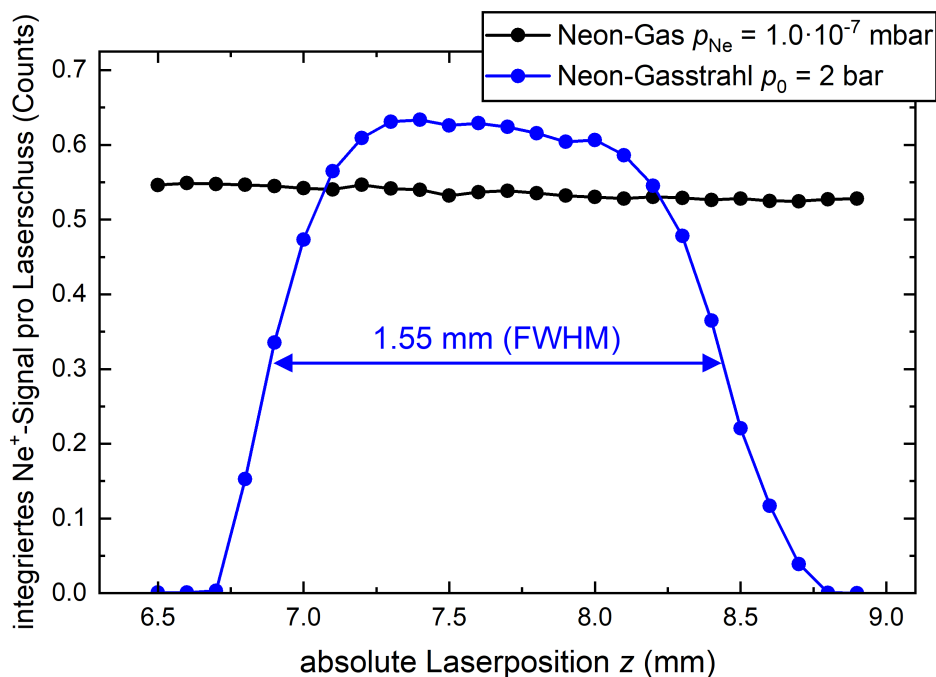


**Abbildung 7.7:** Integriertes  $\text{Ne}^+$ -Ionensignal pro Laserschuss als Funktion der absoluten Laserposition  $y$  des Manipulators für Neon-Hintergrundgas bei  $p_{\text{Ne}} = 1,0 \cdot 10^{-7}$  mbar unter Variation der Laserpeakintensität  $I_0$ , gemittelt über  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht Abbildung 7.5.

Da dies etwa der doppelten Rayleigh-Länge entspricht und weder diese Breite noch die Ionenzählrate für eine größere Laserpeakintensität zunimmt, bestätigt dies die Laserpeakintensität höchster Ionisationswahrscheinlichkeit auch für  $\text{Ne}^+$ -Ionen aus dem Gasstrahl. Zu berücksichtigen ist ferner, dass die Position des Laserfokus mit zunehmendem  $I_0$  entlang der  $y$ -Achse verschiebt. Dieser Effekt schwacher Selbstfokussierung ist auf das Lasereintrittsfenster zurückzuführen und erfordert, die Laserposition  $y$  für höhere Laserintensitäten näher zum Off-Axis-Parabolspiegel hin nachzujustieren. Für die Messung des Ionensignals senkrecht zur Gasstrahlachse wird  $I_0 = 1,0 \cdot 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$  gewählt, weshalb die Laserposition auf  $y_0 = 8,45 \mu\text{m}$  eingestellt wird.

### 7.2.3 Laser-Scan entlang der $z$ -Achse und Zentralstrahldichte

Der Scan des Lasers entlang der Extraktionsachse  $z$  hat einerseits den Zweck, das Strahlprofil der Gasexpansion zu vermessen, welches durch den dritten Skimmer im Strahlengang hervorgerufen wird. Andererseits lässt sich damit zeigen, ob der Gasstrahl den Buncher gänzlich passieren kann oder von den Elektroden blockiert wird. Damit kann ferner die Lage des Gasstrahls im Buncher und der damit verbundene Bereich, auf welchem der Laser ein konstantes  $\text{Ne}^+$ -Ionensignal generiert, bestimmt werden. Die Zählrate an  $\text{Ne}^+$ -Ionen aus der Gasexpansion ist in Abbildung 7.8 als Funktion der Laserposition  $z$  aufgetragen (blau), zum Vergleich ist das Signal bei einem Neon-Partialdruck von  $p_{\text{Ne}} = 1,0 \cdot 10^{-7}$  mbar ebenfalls dargestellt (schwarz).



**Abbildung 7.8:** Integriertes  $\text{Ne}^+$ -Ionsignal pro Laserschuss als Funktion der absoluten Laserposition  $z$  des Manipulators für Neon-Hintergrundgas bei  $p_{\text{Ne}} = 1,0 \cdot 10^{-7}$  mbar (schwarz) sowie für Neon-Gasstrahl bei  $p_0 = 2$  bar (blau), gemittelt über  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht Abbildung 7.5.

Dieses zeigt erwartungsgemäß eine konstante mittlere Zählrate von 0,55 Ionen pro Laserschuss über den gleichen Bereich der Laserposition  $z$ , wohingegen die Zählrate des Gasstrahls ein Profil mit einer Halbwertsbreite von 1,55 mm aufweist (vgl. Abbildung 6.2 in Kapitel 6.1.2). Dieses resultiert aus der Überlagerung des breiten Strahlprofils vom zweiten Skimmer mit dem Transmissionsvermögen des dritten Skimmers und beweist, dass der Gasstrahl den Ionenbuncher ungehindert passieren kann. Ferner lässt sich eine annähernd konstante Zählrate von 0,63  $\text{Ne}^+$ -Ionen pro Laserschuss in einem Plateau zwischen  $z = 7,3$  mm und  $z = 8,0$  mm um das Strahlzentrum bei  $z_0 = 7,75$  mm feststellen. Dies ermöglicht beispielsweise eine Variation der Laserposition innerhalb des Ionenbunchers entlang der Extraktionsachse zur Bestimmung des Flugzeitminimums (vgl. Abbildung 7.13 a in Kapitel 7.4).

Zusätzlich kann die zentrale Strahldichte der Gasexpansion durch Vergleich der Ionenzählrate mit Neon-Hintergrundgas bestimmt werden. Unter Berücksichtigung der Kalibrierung des Ionensignals (vgl. Abbildung 7.2 in Kapitel 7.1.2) entspricht diese Zählrate einem Neon-Partialdruck von  $p_{\text{Ne}} = (1,2 \pm 0,08) \cdot 10^{-7}$  mbar. Daraus resultiert eine Zentralstrahldichte für den Neon-Gasstrahl von

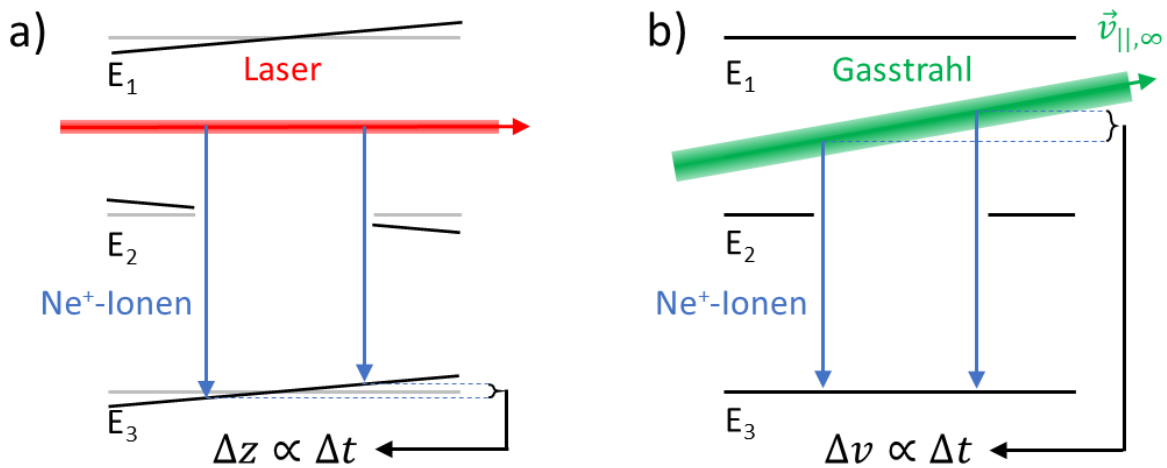
$$\rho_{0,\text{Ne}} = (3,0 \pm 0,2) \cdot 10^9 \text{ cm}^{-3}. \quad (7.4)$$

Da der Neon-Gasstrahl hinsichtlich seiner Lage relativ zum Buncher sowie seiner Teilchendichte charakterisiert ist, kann die Flugzeitverteilung der  $\text{Ne}^+$ -Ionen hinsichtlich ihrer Pulsbreite optimiert werden. Dazu wird der Ionenbuncher mithilfe der Piezoschrittmotoren geometrisch an dem Gasstrahl ausgerichtet.



## 7.3 Kalibrierung der Winkel aller drei Elektroden

Neben der Möglichkeit, durch jeweils drei Piezo-Schrittmotoren die Position der entsprechenden Elektrode einzustellen, können die Elektroden in ihrem Winkel gegenüber jeder Achse beliebig verkippt werden. Dabei sind weder die einzelnen Elektroden des Bunchers notwendigerweise gegeneinander noch gegen die von Laser- und Gasstrahlachse aufgespannte Ebene ausgerichtet. Aus diesem Grund werden alle drei Elektroden des Ionenbunchers hinsichtlich ihrer Verkipfung gegenüber den beiden Achsen kalibriert und optimiert. Eine Verkipfung um die Gasstrahlachse ist dabei hinsichtlich der Startortverteilung der Ionen entlang der ausgedehnten Laserstrahlachse kritisch, wie Abbildung 7.9 a schematisch illustriert.



**Abbildung 7.9:** Schematische Darstellung der Verkipfung der Elektroden bezüglich des Lasers (a) sowie des Gasstrahls (b). Unterschiedliche Startorte aufgrund der Ausdehnung des Lasers in Laserstrahlrichtung können zu verschiedenen Flugstrecken führen, wohingegen aus einer Verkipfung des Gasstrahls eine zusätzliche Geschwindigkeitskomponente entlang der Extraktionsachse resultiert. Beide Effekte können eine zusätzliche Verbreiterung der Flugzeitverteilung an  $\text{Ne}^+$ -Ionen bewirken.

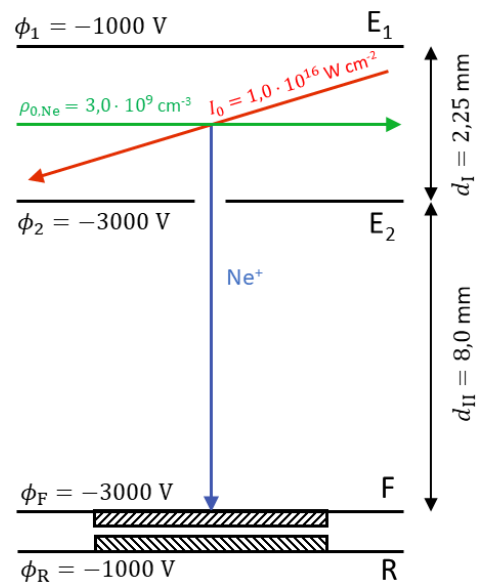
Die unterschiedlichen Startorte können dabei trotz Flugzeitfokussierung zu einer Verteilung der Flugzeiten aufgrund unterschiedlicher Flugstrecken führen, falls die Elektroden nicht parallel ausgerichtet sind. Eine damit verbundene Inhomogenität des elektrischen Feldes zwischen  $E_1$  und  $E_2$  kann eine zusätzliche Verbreiterung der Pulsbreite aufgrund unterschiedlicher Beschleunigungen bewirken. Analog dazu hat die Verkipfung um die Laserstrahlachse entsprechend Abbildung 7.9 b Einfluss auf die Startgeschwindigkeitsverteilung der Ionen. Sind die Elektroden nicht parallel zur Orientierung des Gasstrahls ausgerichtet, so kann die Projektion der Parallelkomponente des Gasstrahls entlang der Extraktionsachse zu unterschiedlichen Startgeschwindigkeiten der Ionen bei ihrer Erzeugung führen. Beide Effekte führen schlussendlich zu einer Vergrößerung der Flugzeitverteilung, weshalb eine korrekte Kalibrierung aller drei Buncher-Elektroden sowohl gegenüber Gas- als auch Laserstrahlachse unerlässlich ist. Dazu werden die Elektroden so eingestellt, dass der Gasstrahl den Ionenbuncher mittig zwischen  $E_1$  und  $E_2$  passiert und dabei deren Abstand zueinander entsprechend der Fußbreite des Gasstrahls  $d_{\text{I}} = 2,25 \text{ mm}$  beträgt. Der Abstand von  $E_2$  zum Detektor hingegen wird zu  $d_{\text{II}} = 8,0 \text{ mm}$  gewählt, sodass die Flugstrecke der Ionen vergleichsweise groß ist. Die

Laserpeakintensität wird im Rahmen dieser Messungen auf dem vorherigen Wert von  $I_0 = 1,0 \cdot 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$  beibehalten. Die einzelnen Elektroden werden entsprechend Ab-

bildung 7.10 mit den Potentialen  $\phi_1 = -1000 \text{ V}$ ,  $\phi_2 = -3000 \text{ V}$ ,  $\phi_F = -3000 \text{ V}$  und  $\phi_R = -1000 \text{ V}$  beschaltet, sodass eine Extraktionsspannung von  $\Delta\phi_1 = 2000 \text{ V}$  resultiert. Diese Potentialdifferenz stellt sicher, dass einerseits genügend  $\text{Ne}^+$ -Ionen zum Signal beitragen können und andererseits die Verbreiterung der Flugzeitverteilungen als Funktion der eingestellten Winkel  $\vartheta_{i,x/y}$  im Rahmen der verfügbaren Zeitaufösung beobachtet werden kann. Der Index  $i$  bezeichnet dabei die jeweilige Elektrode  $E_i$ , der Index  $x,y$  hingegen die Drehung um die entsprechende Achse. Die Elektroden  $E_1$  und  $E_2$  lassen sich dabei prinzipiell um  $\pm 5^\circ$  verkippen, zu berücksichtigen ist allerdings, dass der Laser unter Verkipfung von  $E_2$  in der  $xy$ -Ebene nachjustiert werden muss. Aufgrund dessen ist die Einstellbarkeit von  $\vartheta_{2,x/y}$  geometrisch eingeschränkt durch die Positionierung des Lasers, weshalb nicht der gesamte Winkelbereich vermessen werden kann, wie in Abbildung 7.11 a für den Winkel  $\vartheta_{2,x}$  zu erkennen ist.

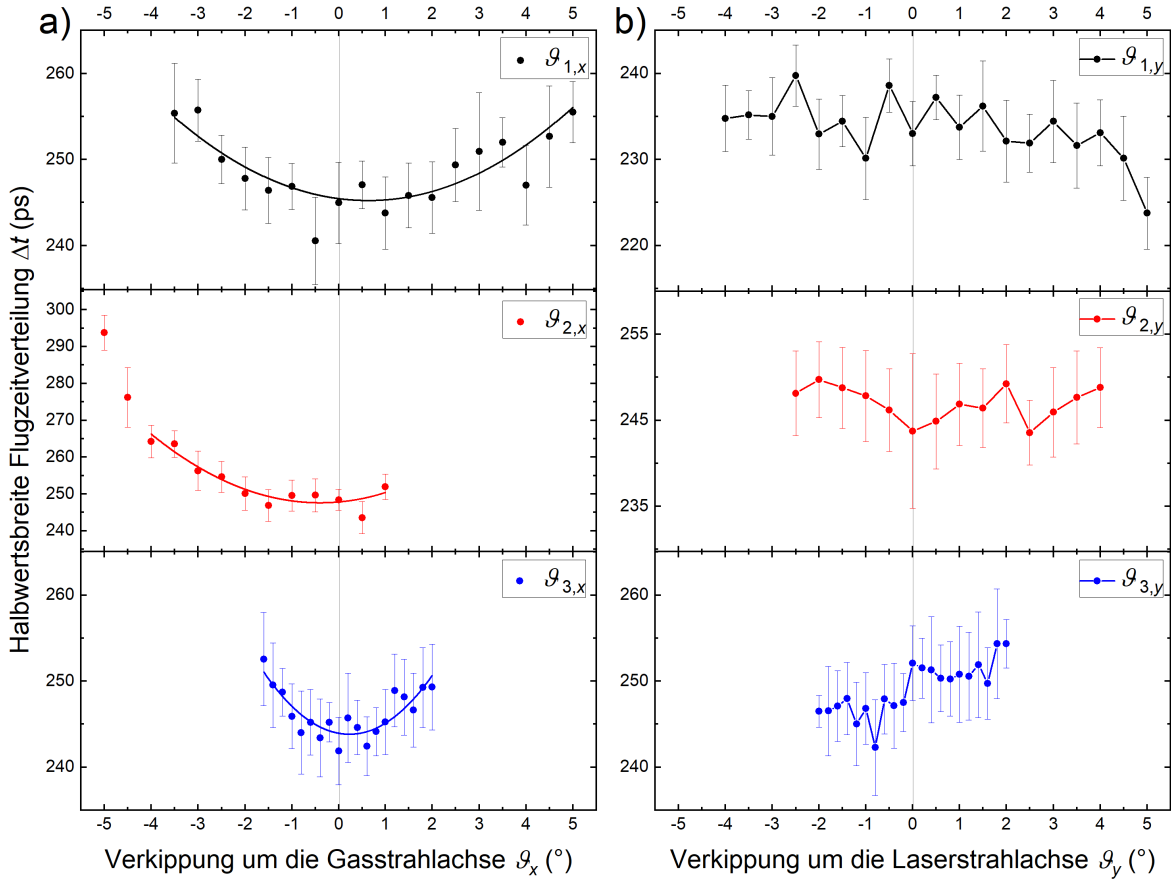
Für alle Einstellungen der Winkel werden jeweils

144 Spektren über jeweils 1000 Laserschüsse aufgenommen, davon werden jeweils zwölf zufällige Spektren aufaddiert und der Schwerpunkt sowie die Halbwertsbreite der so summierten Flugzeitverteilung ausgewertet (vgl. Abbildung 5.10 in Kapitel 5.4). Über diese zwölf summierten Verteilungen werden die Schwerpunkte und Halbwertsbreiten dann gemittelt und die jeweilige Standardabweichung als statistischer Fehler der entsprechenden Messung interpretiert. Auf diese Weise lässt sich abschätzen, über wie viele Einzelionensignale gemittelt werden muss, um ein statistisch signifikantes Ergebnis der Pulsbreite und Ionenflugzeit zu erhalten. Daraufhin wird zuerst der Winkel  $\vartheta_{2,x/y}$  variiert, da dessen Orientierung beide Felder des Ionenbunchers beeinflusst. Nachdem auf diese Weise die optimale Einstellung für  $E_2$  anhand der minimalen Pulsbreite experimentell bestimmt werden kann, wird mit den anderen beiden Elektroden analog verfahren. Abbildung 7.11 zeigt die resultierenden Verläufe der Pulsbreiten als Funktion der Winkel  $\vartheta_i$ , sortiert nach der Verkipfung um die Gasstrahlachse  $x$  (a) und um die Laserstrahlachse  $y$  (b). Die Pulsbreiten in Abbildung 7.11 a werden dabei durch einen parabelförmigen Verlauf approximiert, welcher für alle drei Elektroden ein Minimum in der Breite der Flugzeitverteilungen zeigt. Die Änderung von  $\Delta t$  weist dabei unter der Variation von  $\vartheta_{2,x}$  erwartungsgemäß die größte Änderung auf, die Verkipfung des Detektors hingegen zeigt nur eine geringe Abhängigkeit der Pulsbreite von  $\vartheta_{3,x}$ . Dennoch lassen sich für alle drei Winkel  $\vartheta_{i,x}$  Minima in der gemessenen Pulsbreite ausmachen, auf welche die Winkel der Elektroden um die  $x$ -Achse schlussendlich eingestellt werden. Eine Verkipfung der Elektroden um die Laserstrahlachse  $y$  weist hingegen unter Berücksichtigung des Messfehlers kein strukturelles Minimum auf. Dies lässt sich mit der deutlich kleineren Ausdehnung des Lasers in Richtung des Gasstrahls verstehen, was die Startortverteilung der Ionen enorm einschränkt. Dessen Effekt auf die Puls-



**Abbildung 7.10:** Konfiguration der Abstände und Potentiale des Ionenbunchers - Einfluss der Verkipfung der Elektroden.

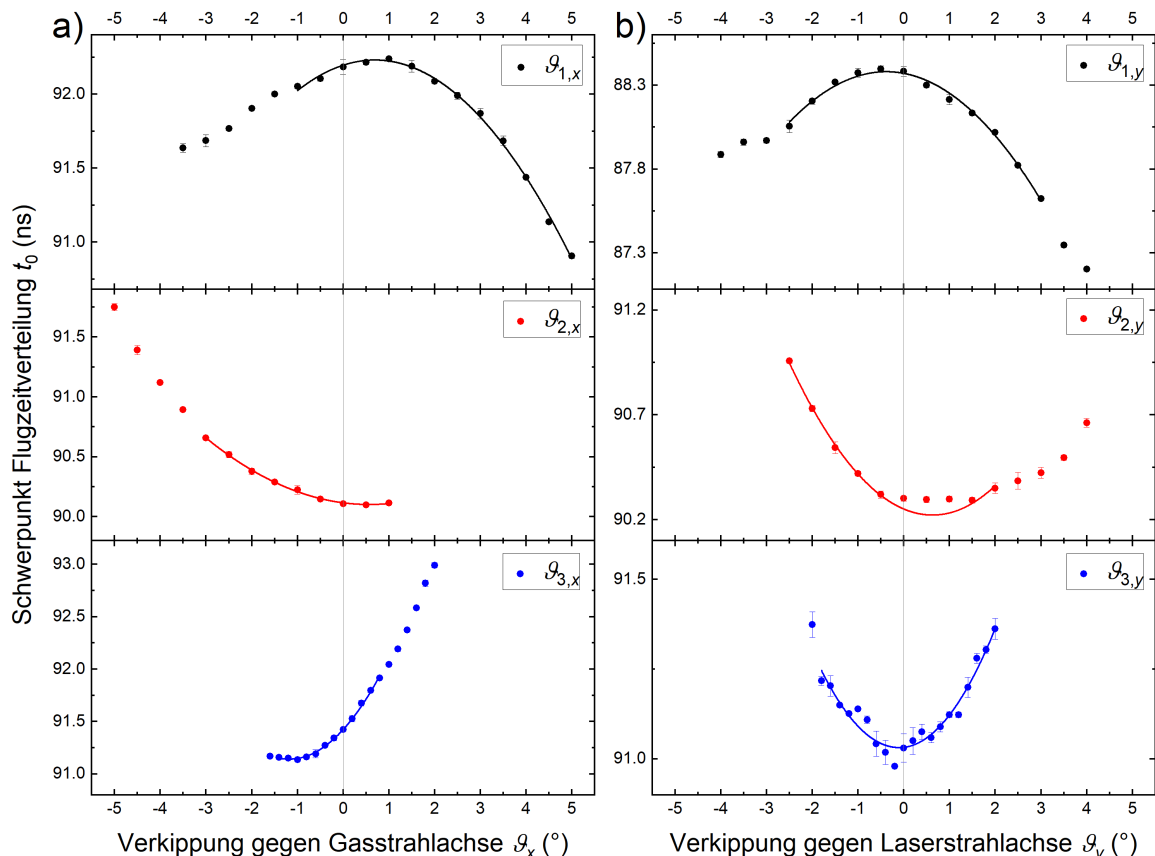
breite lässt sich somit mit der hier verwendeten Messmethodik nicht auflösen, ebenso scheint die Auswirkung der Startgeschwindigkeitsverteilung entlang der Gasstrahlachse nicht besonders kritisch zu sein.



**Abbildung 7.11:** Halbweitsbreiten der gemessenen Flugzeitverteilungen  $\Delta t$  als Funktion der Verkippungen  $\vartheta_{i,x}$  der Elektroden  $E_i$  um die Gasstrahlachse (a) bzw.  $\vartheta_{i,y}$  um die Laserstrahlachse (b), akquiriert über jeweils  $1,2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht Abbildung 7.10, der Verlauf von  $\Delta t$  unter Verkippung von  $\vartheta_{i,x}$  wird jeweils durch eine parabelförmige Funktion angepasst.

Um dennoch eine sinnvolle Kalibrierung der Winkel  $\vartheta_{i,y}$  vornehmen zu können, sind in Abbildung 7.12 die experimentell bestimmten absoluten Flugzeiten als Funktion aller Winkel  $\vartheta_i$  dargestellt, ebenfalls sortiert entlang der  $x$ -Achse (a) bzw. der  $y$ -Achse (b). An diese Daten wird um die erkennbaren Extrema, analog zu der Messung aus Abbildung 7.11 a, jeweils ein parabelförmiger Verlauf angepasst, anhand dessen die Position der Extrema in den Flugzeiten abzulesen ist, speziell unter Verkippung um die Laserstrahlachse. Dabei erscheint zunächst das Maximum für die Variation von  $E_1$  überraschend, wohingegen die Verläufe unter Verkippung von  $E_2$  und  $E_3$  jeweils ein Minimum aufweisen. Dabei ist jedoch zu berücksichtigen, dass aufgrund der Konstruktion der Elektrodenhalter die Lage der Drehebene nicht mit der Ebene der Elektrodenoberfläche übereinstimmt, was die gemessenen Flugzeiten unterschiedlich zu beeinflussen scheint. Außerdem weist der Verlauf für  $\vartheta_{2,y}$  um das Minimum herum keine signifikante Veränderung der Flugzeit auf,  $\vartheta_{3,y}$  zeigt hingegen eine vergleichsweise hohe Streuung der gemessenen Schwerpunkte untereinander, was vermutlich auf mechanische Insta-

bilität der beiden Elektroden unter ihrer Verkippung zurückzuführen ist. Aufgrund der Symmetrie des Bunchers gegenüber der Laserstrahlachse müssen die gemessenen Flugzeiten ebenfalls einen Symmetriepunkt aufweisen, welcher hierbei das jeweilige Extremum für alle drei Winkel der entsprechenden Elektroden darstellt. Diese Winkel  $\vartheta_{i,y}$  werden folglich für die Verkippung der Elektroden um die  $y$ -Achse eingestellt, Tabelle 7.1 fasst die gemessenen Winkel zur Kalibrierung ihrer Nullposition entlang beider Achsen für alle Elektroden übersichtlich zusammen.



**Abbildung 7.12:** Schwerpunkte der gemessenen Flugzeitverteilungen  $t_0$  als Funktion der Verkippungen  $\vartheta_{i,x}$  der Elektroden  $E_i$  um die Gasstrahlachse (a) bzw.  $\vartheta_{i,y}$  um die Laserstrahlachse (b), akquiriert über jeweils  $1,2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht Abbildung 7.10, beide Verläufe werden jeweils durch eine parabelförmige Funktion angepasst.

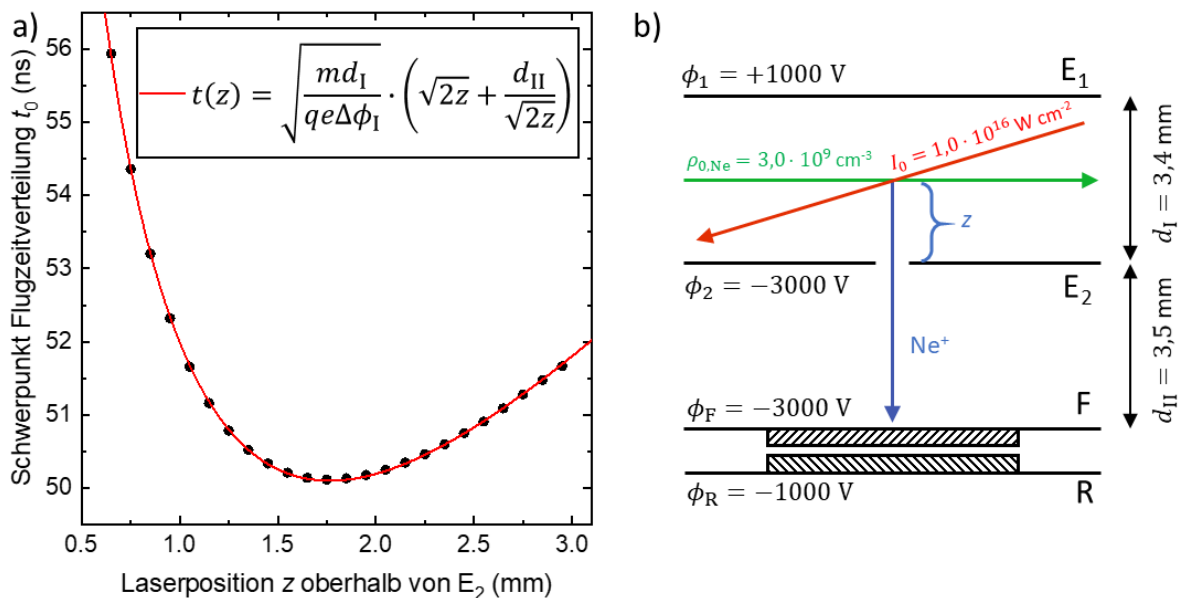
Nachdem die Winkel auf diese Weise kalibriert werden können, wird der Detektor wieder auf seine ursprüngliche Position minimalen Abstandes  $d_{II} \gtrsim 3$  mm verfahren und die obere Elektrode auf ihre Nullposition entsprechend Abbildung 7.5 verfahren, sodass auch  $d_I \gtrsim 3$  mm beträgt. Dabei wird berücksichtigt, dass der Gasstrahl den oberen Teil des Ionenbunchers zentriert und damit ungehindert passieren kann. In dieser Konfiguration mit zueinander planparallelen Elektroden wird im anschließenden Kapitel das Flugzeitminimum  $z_0$  durch Variation der Laserposition  $z$  bestimmt.

	$\vartheta_{i,x}$	$\vartheta_{i,y}$
$E_1$	$+0,6^\circ$	$-0,3^\circ$
$E_2$	$-0,3^\circ$	$+0,6^\circ$
$E_3$	$+0,2^\circ$	$0,0^\circ$

**Tabelle 7.1:** Winkel-Einstellungen  $\vartheta_{i,x/y}$  zur Kalibrierung aller drei Elektroden auf ihre Nullposition.

## 7.4 Flugzeitminimum und kürzester Ionenpuls aus dem Neon-Gasstrahl

Entsprechend Abbildung 5.11 in Kapitel 5.4 lässt sich unter Variation der Laserposition  $z$  das Flugzeitminimum  $z_0$  zwischen  $E_1$  und  $E_2$  bestimmen. Aus der Anpassung des theoretischen Verlaufs an die Messpunkte können ferner die Abstände  $d_I$  und  $d_{II}$  extrahiert werden. Auf diese Weise lässt sich die konfigurierte Einstellung der Buncher-Elektroden hinsichtlich ihrer Lage entlang der  $z$ -Achse überprüfen. Dabei ist es vorteilhaft, dass die Strahldichte entsprechend Abbildung 7.8 auf einem großen Bereich innerhalb des Bunchers annähernd konstant ist, sodass ein Scan der  $z$ -Position des Lasers an dem Gasstrahl möglich ist, ohne dass das  $\text{Ne}^+$ -Signal abnimmt. Dabei werden die einzelnen Elektroden mit den Potentialen  $\phi_1 = +1000 \text{ V}$ ,  $\phi_2 = -3000 \text{ V}$ ,  $\phi_F = -3000 \text{ V}$  und  $\phi_R = -1000 \text{ V}$  beschaltet, um einen Ionenpuls möglichst kompakter Breite nachzuweisen. Abbildung 7.13 zeigt die gemessenen Schwerpunkte der Flugzeitverteilungen als Funktion der Laserposition  $z$  oberhalb von  $E_2$ .

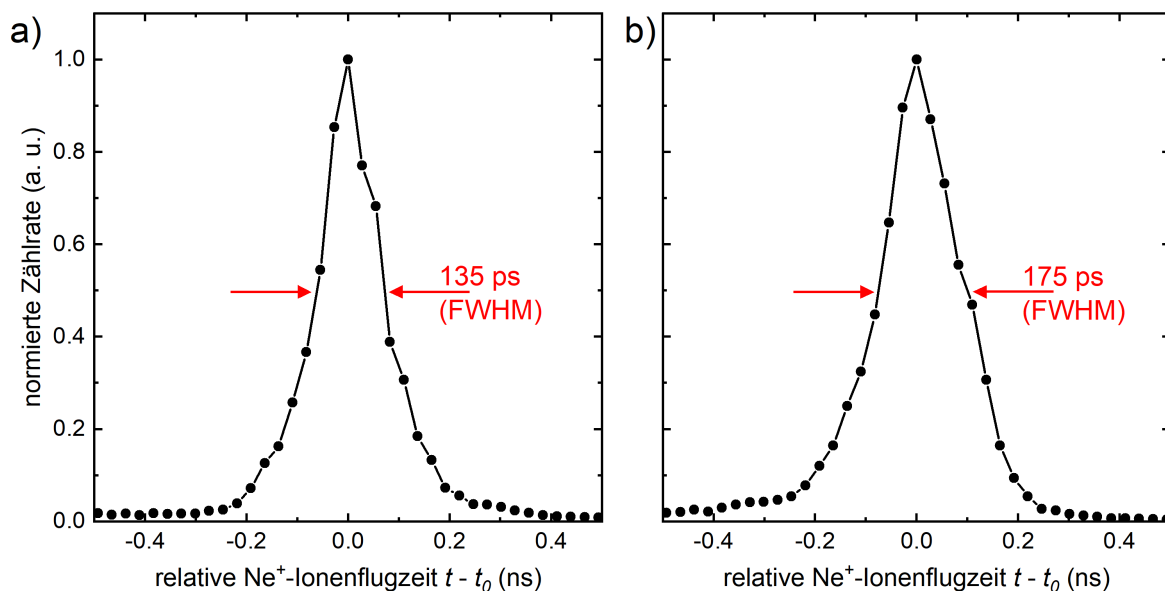


**Abbildung 7.13:** a) Schwerpunkte der gemessenen Flugzeitverteilungen  $t_0$  unter Variation der Laserposition  $z$ , akquiriert über jeweils  $2 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Aus der Anpassung entsprechend Gleichung 5.6 (rot) lassen sich die Parameter  $d_I$  und  $d_{II}$  extrahieren, die Ionenenergie der  $\text{Ne}^+$ -Ionen im Flugzeitminimum  $z_0 = 1,75 \text{ mm}$  beträgt  $E_{0,\text{Ne}} = 2 \text{ keV}$ . b) Resultierende optimierte Konfiguration der Abstände und eingestellten Potentiale des Ionenbunchers.

Anhand dieser Abbildung kann der Flugzeitfokus bei  $z_0 = 1,75 \text{ mm}$  oberhalb von  $E_2$  identifiziert werden, die Abstände zwischen den Elektroden ergeben sich dabei entsprechend Gleichung 5.6 zu

$$d_I = (3,4 \pm 0,1) \text{ mm} \quad \text{sowie} \quad d_{II} = (3,5 \pm 0,1) \text{ mm} \quad (7.5)$$

und erfüllen damit die Bedingung gleicher Abstände  $d_I = d_{II}$  ausgezeichnet. Daher belegt die Messung der Flugzeitverteilungen eine optimierte Einstellung des Bunchers in Bezug auf dessen geometrische Ausrichtung.

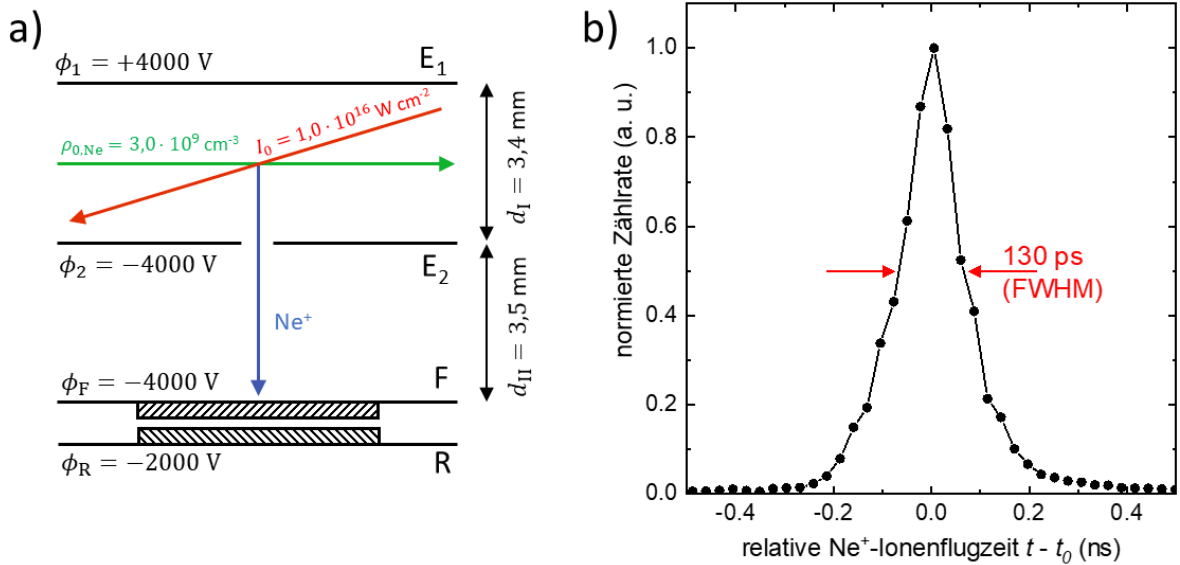


**Abbildung 7.14:** Flugzeitverteilung von  $\text{Ne}^+$ -Ionen im Flugzeitfokus  $z_0$  des Ionenbunchers aus dem Gasstrahl (a) sowie aus Neon-Hintergrundgas bei Raumtemperatur (b), jeweils bei einer Ionenenergie von  $E_{0,\text{Ne}} = 2 \text{ keV}$  und akquiriert über  $1 \cdot 10^5$  Laserschüsse. Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht Abbildung 7.13 b.

Wird der Laserfokus auf  $z_0$  positioniert, so lässt sich diejenige Flugzeitverteilung messen, welche nominell die optimale Pulsbreite aufweist. In Abbildung 7.14 a ist diese Flugzeitverteilung von etwa 0,6  $\text{Ne}^+$ -Ionen pro Laserschuss, gemittelt über insgesamt  $1 \cdot 10^5$  Laserschüsse, dargestellt und weist eine volle Halbwertsbreite von 135 ps auf. Zum Vergleich ist in Abbildung 7.14 b die Flugzeitverteilung über die gleiche Anzahl an Laserschüssen gemittelt für  $\text{Ne}^+$ -Ionen bei Raumtemperatur gezeigt. Dessen Pulsbreite von 175 ps ist vergleichbar mit der gemessenen Breite der  $\text{Ar}^+$ -Ionen aus Abbildung 5.13 in Kapitel 5.4 und somit ebenfalls thermisch bedingt. Damit ist gezeigt, dass der Effekt des Geometric Cooling der Überschall-Gasexpansion tatsächlich die Breite der Flugzeitverteilung reduzieren kann. Da die mittig zwischen  $E_1$  und  $E_2$  erzeugten Ionen aufgrund der gewählten Potentiale beim Auftreffen auf den Detektor eine kinetische Energie von  $E_{0,\text{Ne}} = 2 \text{ keV}$  aufweisen, lassen sich somit ultrakurze Ionenpulse im Bereich von 130 ps erzeugen. Der in Abbildung 7.14 a gemessene  $\text{Ne}^+$ -Ionenpuls stellt dabei die Flugzeitverteilung kürzester Pulsbreite im keV-Bereich dar. Detaillierte Ionentrajektorie-Simulationen zu dieser experimentellen Konfiguration [50] lassen jedoch um bis zu zwei Größenordnungen kleinere Pulsbreiten vermuten, weshalb die hier gemessene Halbwertsbreite der Flugzeitverteilung im Wesentlichen durch die Messtechnik limitiert ist. Im anschließenden Kapitel wird daher der Einfluss des Extraktionsfeldes – und damit der Temperatur – auf die Ionenpulse untersucht, um daher eine Abschätzung ihrer tatsächlichen Breite geben zu können.

## 7.5 Einfluss von Extraktionsfeld und Temperatur auf die Ionenpulsbreite

Entsprechend der in Kapitel 5.4 eingeführten Gleichung 5.11 zur Bestimmung der Pulsbreite lässt sich feststellen, dass sich die Breite der Flugzeitverteilung sowohl direkt proportional zur Wurzel der Temperatur als auch invers proportional zum Extraktionspotential verhält. Dies wird anhand von Ionentrajektorie-Simulationen [50] bestätigt, nach denen die gemessene Flugzeitverteilung der  $\text{Ne}^+$ -Ionen eine Pulsbreite von wenigen Pikosekunden aufweisen sollte. Daher wird zunächst der Einfluss der Feldstärke untersucht, indem das insgesamt angelegte Extraktionspotential  $\Delta\phi_I$  entsprechend Abbildung 7.15 a verdoppelt wird.



**Abbildung 7.15:** a) Konfiguration der Abstände und Potentiale des Ionenbunchers, um den Einfluss des Extraktionspotentials zu untersuchen. Damit verbunden ist eine Erhöhung der Nachbeschleunigung für die Elektronen aus dem MCP-Rear. b) Flugzeitverteilung von  $\text{Ne}^+$ -Ionen im Flugzeitfokus  $z_0$  des Ionenbunchers aus dem Gasstrahl bei einer Ionenenergie von  $E_{0,\text{Ne}} = 4$  keV, akquiriert über  $1 \cdot 10^5$  Laserschüsse.

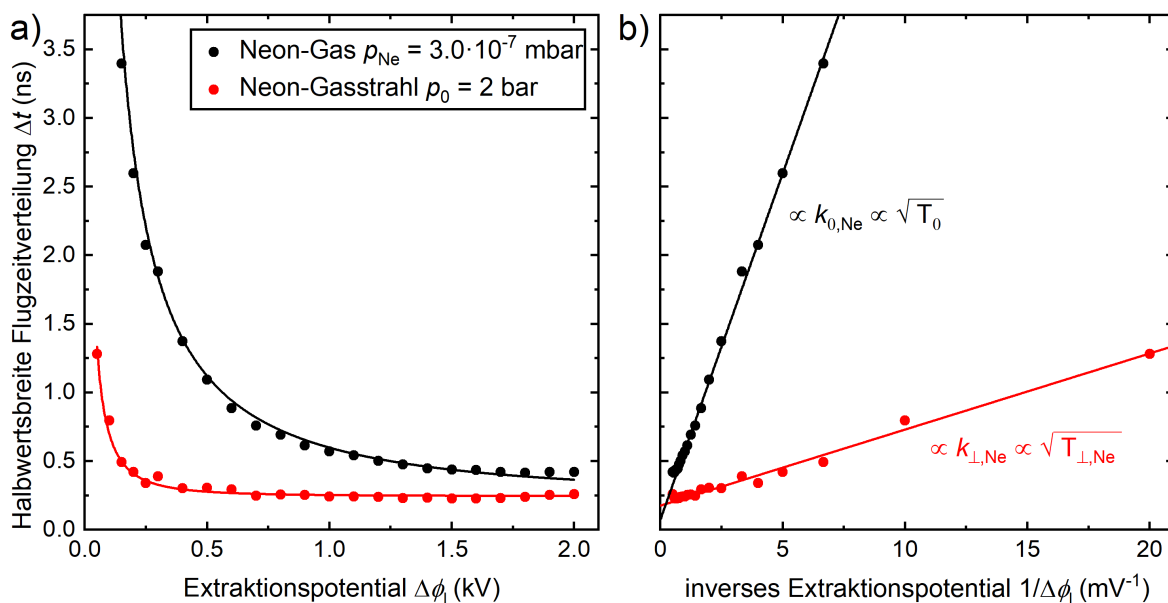
Anhand der in Abbildung 7.15 b dargestellten Flugzeitverteilung für  $\text{Ne}^+$ -Ionen mit einer kinetischen Energie von  $E_{0,\text{Ne}} = 4$  keV ist jedoch ersichtlich, dass sich die Pulsbreite nur geringfügig ändert, sodass die Wahl des Extraktionspotentials nicht ursächlich für die gemessene Pulsbreite sein kann. Anhand von Gleichung 5.11 ist näherungsweise der Zusammenhang

$$\Delta t \propto \frac{\sqrt{T}}{\Delta\phi_I} \quad (7.6)$$

zwischen der Pulsbreite  $\Delta t$ , dem Extraktionspotential  $\Delta\phi_I$  und der Temperatur  $T$  ersichtlich, sodass eine Flugzeitverteilung mit einer um die Hälfte reduzierten Breite zu erwarten ist. Stattdessen scheint die gemessene Pulsbreite durch die zeitliche Auflösung der Messmethode begrenzt, welche aufgrund elektronischer Limitierung der verwendeten Komponenten (MCP-Detektor, TDC, CFD) die tatsächliche Flugzeitverteilung verbreitert. Insbesondere der Auftreffort einzelner Ionen in einem Kanal des MCPs kann



diese Verteilung aufgrund unterschiedlicher Auslöseorte der Elektronenkaskade erheblich beeinflussen (vgl. Abbildung 3.19 in Kapitel 3.4.4). Dabei ist nicht ausgeschlossen, dass auch ein Jitter in der elektronischen Prozessierung der Signale von Laserdiode oder MCP die zu erwartende Pulsbreite überdeckt. Um den Einfluss der thermisch bedingten Startgeschwindigkeitsverteilung auf die Pulsbreite einordnen zu können, wird diese unter Variation des Extraktionspotentials für  $\text{Ne}^+$ -Ionen aus dem kalten Gasstrahl sowie aus Neon-Hintergrundgas bei Raumtemperatur verglichen. Der Effekt des Geometric Cooling bewirkt eine schmalere Pulsbreite bei der gemessenen Flugzeitverteilung als diejenigen Pulse, welche bei  $T_0 = 300\text{ K}$  nachgewiesen wurden. Neben der Flugzeitfokussierung für einzeln erzeugte Ionen ist ein kaltes Reservoir an neutralen Gasteilchen daher essenziell für die Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse. Aufgrund der limitierenden Auflösung der Messtechnik lässt sich die tatsächliche Pulsbreite der Ionenpulse mithilfe des hier verwendeten MCP-Detektors jedoch nicht nachweisen. Um dessen Breite dennoch abschätzen zu können, werden Flugzeitverteilungen von Ionen aus dem Gasstrahl sowie aus Neon-Hintergrundgas unter Variation des Extraktionsfeldes gemessen und dabei der Zusammenhang zwischen Temperatur und Pulsbreite gemäß Gleichung 7.6 ausgenutzt. Dazu wird das Potential an der oberen Elektrode  $E_1$  zwischen  $\phi_1 = -1000\text{ V}$  und  $\phi_1 = -2950\text{ V}$  variiert, die Konfiguration des Ionenbunchers bleibt ansonsten im Vergleich zum vorherigen Kapitel 7.4 hinsichtlich der Abstände und Potentiale unverändert. In Abbildung 7.16 a sind die so gemessenen Pulsbreiten für  $\text{Ne}^+$ -Ionen aus dem Gasstrahl (rot) bzw. Neon-Hintergrundgas bei Raumtemperatur und  $p_{\text{Ne}} = 3,0 \cdot 10^{-7}\text{ mbar}$  (schwarz) über  $\Delta\phi_I$  aufgetragen.



**Abbildung 7.16:** a) Halbwidths der gemessenen Flugzeitverteilungen  $\Delta t$  für  $\text{Ne}^+$ -Ionen aus dem Gasstrahl (rot) und Neon-Gas bei  $T_0 = 300\text{ K}$  (schwarz), aufgetragen über das Extraktionspotential  $\Delta\phi_I$  und akquiriert über jeweils  $5 \cdot 10^4$  Laserschüsse. Die Konfiguration des Ionenbunchers entspricht Abbildung 7.13 b in Kapitel 7.4. b) Anhand einer Auftragung der Pulsbreiten über dem inversen Extraktionspotential ( $1/\Delta\phi_I$ ) lässt sich über die Steigungen der Geraden  $k_{0,\text{Ne}}$  und  $k_{\perp,\text{Ne}}$  die Temperatur  $T_{\perp,\text{Ne}}$  des Gasstrahls abschätzen.



Der vergleichsweise hohe Partialdruck ist notwendig, um innerhalb des eingestellten Bereiches genügend viele  $\text{Ne}^+$ -Ionen nachweisen zu können, da deren Signalhöhe für ein abnehmendes Extraktionspotential sinkt. Anhand der Abbildung ist erkennbar, dass die Breite der gemessenen Pulse im Wesentlichen durch die Auflösung der Messmethodik bestimmt ist, da die Pulsbreite über einen großen Bereich von  $\Delta\phi_{\text{I}}$  konstant bleibt und erst für  $\Delta\phi_{\text{I}} \leq 300 \text{ V}$  eine Verbreiterung aufgrund der Temperatur des Gasstrahls zeigt. Für die Pulsbreite der  $\text{Ne}^+$ -Ionen aus dem Gas ist deren Aufweitung aufgrund der Temperatur  $T_0$  auf dem gesamten vermessenen Bereich des Extraktionspotentials erkennbar und lässt eine deutlich geringere Temperatur des Gasstrahls entlang der Extraktionsachse vermuten. Dies ermöglicht eine Abschätzung der Senkrecht-Temperatur  $T_{\perp, \text{Ne}}$  des Gasstrahls, und damit eine Abschätzung für die tatsächliche Breite der Flugzeitverteilung für  $\text{Ne}^+$ -Ionen aus dem Gasstrahl. Aufgrund der reziprok proportionalen Beziehung zwischen Pulsbreite und Extraktionspotential zueinander wird dazu  $\Delta t$  in Abbildung 7.16 b über  $(1/\Delta\phi_{\text{I}})$  aufgetragen, sodass die Steigung in dieser Darstellung unter sonst gleichen Bedingungen von  $\sqrt{T}$  abhängt. Dabei ist für beide Fälle für große  $(1/\Delta\phi_{\text{I}})$  erwartungsgemäß ein linearer Zusammenhang zu erkennen, was jeweils eine Anpassung mithilfe einer Ausgleichsgeraden erlaubt. Auf diese Weise kann der Beitrag der konstanten Auflösungsgrenze für beide Kurven vernachlässigt werden, da der Bereich großer  $(1/\Delta\phi_{\text{I}})$  ein kleines Extraktionsfeld bedeutet und dabei die Temperatur maßgeblich die Pulsbreite dominiert. Unter Berücksichtigung des Zusammenhangs aus Gleichung 7.6 lässt sich dann die (Start-)Temperatur  $T_{\perp, \text{Ne}}$  der  $\text{Ne}^+$ -Ionen aus dem Gasstrahl abschätzen zu

$$T_{\perp, \text{Ne}} = \left( \frac{k_{\perp, \text{Ne}}}{k_{0, \text{Ne}}} \right)^2 \cdot T_0 \quad (7.7)$$

$$\quad \quad \quad = (3,6 \pm 0,4) \text{ K},$$

mit den Steigungen der angepassten Geraden für den Neon-Gasstrahl  $k_{\perp, \text{Ne}} = (55 \pm 2) \text{ V ns}$  und Neon-Hintergrundgas  $k_{0, \text{Ne}} = (505 \pm 10) \text{ V ns}$ . Mit der so bestimmten Starttemperatur lässt sich die mögliche zu erreichende Pulsbreite  $\Delta t$  ebenfalls gemäß Gleichung 5.11 extrapolieren. Dazu wird die bei  $T_0 = 300 \text{ K}$  gemessene Pulsbreite aus Abbildung 7.14 b anhand der Relation zur Temperatur aus Gleichung 7.6 abgeschätzt zu

$$\Delta t = \sqrt{\frac{T_{\perp, \text{Ne}}}{T_0}} \cdot \Delta t_0 \quad (7.8)$$

$$\quad \quad \quad = (18 \pm 4) \text{ ps}$$

Diese um eine Größenordnung kürzere Breite lässt sich mit der in dieser Arbeit verwendeten Messmethodik jedoch nicht nachweisen, da eine solche Auflösung unterhalb des messtechnischen Jitters im Bereich von  $\gtrsim 100 \text{ ps}$  liegt. Dafür bedarf es anderer experimenteller Methoden, wie beispielsweise einer opto-elektronischen Streak-Kamera, um Pulsbreiten dieser Größenordnung nachweisen zu können. Die gemessene Pulsbreite von  $130 \text{ ps}$  im Vergleich mit dem breiteren Ionenpuls von  $175 \text{ ps}$  bei Raumtemperatur bestätigt allerdings, dass das im Rahmen dieser Arbeit vorgestellte Konzept des

## 7 Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse mit Neon

Geometric Cooling zur Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse im Prinzip funktioniert. Die aus Abbildung 7.16 bestimmte Starttemperatur  $T_{\perp, \text{Ne}}$  der  $\text{Ne}^+$ -Ionen überschätzt dabei zwar die Senkrechttemperatur des Gasstrahls enorm, da deren Impulsverteilung bei ihrer Erzeugung eine Temperatur in der Größenordnung von 1 K zugeordnet werden kann (vgl. Kapitel 2.2.1). Die damit verbundene Extrapolation der Pulsbreite lässt jedoch prinzipiell Ionenpulse mit einer deutlich kürzeren Zeitauflösung zu, was durch die enorme Reduktion der thermischen Bewegung der Neutralteilchen aus der Gasexpansion ermöglicht wird.

## 8 Zusammenfassung und Ausblick

Gegenstand dieser Arbeit ist die experimentelle Realisation und Charakterisierung einer Pikosekunden-Ionenquelle zur Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse mit kinetischen Energien im keV-Bereich. In diesem Kapitel werden daher die zentralen Erkenntnisse dargestellt und abschließend diskutiert, ein Ausblick hinsichtlich Verbesserung und Einsatz der Ionenquelle wird gegeben.

Das eingangs erwähnte Konzept zur Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse konnte prinzipiell experimentell umgesetzt werden. Dabei gewährleisteten eine UHV-Kammer mit Düse und Skimmern den Betrieb des Gasstrahls, geeignete Schrittmotoren die mikrometergenaue räumliche Steuerung des Laserfokus und der einzelnen Elektroden des Ionenbunchers sowie zweckmäßige Netzteile stabile elektrische Felder innerhalb des Ionenbunchers. Alle drei Komponenten stellten sich dabei als geeignet heraus und wurden hinsichtlich ihrer wesentlichen Einstellungen und möglichen Parameter untersucht. Dabei erwies sich zunächst die Charakterisierung des Gasstrahls als schwierig, da mit dem verwendeten VUV-Laser neben einem vernachlässigbaren Anteil an photoionisierten  $\text{Ar}^+$ -Ionen vor allem Argon-Ionen aus dem Gasstrahl nachgewiesen werden konnten, welche durch Stoßionisation von Photoelektronen erzeugt werden. Eine geeignete Wahl der Schaltverzögerung des Extraktionsfeldes zeigte dabei, dass diese Elektronen durch Streulicht des Lasers vermutlich an der mittleren Elektrode des Spektrometers ausgelöst werden, dies verwehrt infolgedessen eine Quantifizierung des Strahlprofils und der damit verbundenen zentralen Gasstrahldichte der Expansion unter Variation des Laserfokus. Stattdessen ermöglichte eine Simulation der Abbildungseigenschaften mithilfe von SIMION über den Vergleich der gesamten detektierten Ionenanzahl bei einer definierten Argon-Teilchendichte  $n_{\text{Ar}}$  eine realistische Messung der zentralen Strahldichte von  $\rho_{\text{Ar},0} = (4,2 \pm 0,12) \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ . Ferner konnten die Parameter Speed Ratio und Paralleltemperatur zu  $S_{\text{Ar}} = 30 \pm 1,3$  bzw.  $T_{\parallel,\infty,\text{Ar}} = (1,1 \pm 0,1) \text{ K}$  mit  $v_{\parallel,\infty,\text{Ar}} = 646 \text{ m s}^{-1}$  gemessen werden, was unter Berücksichtigung des Transmissionsvermögens der Skimmer plausibel erscheint.

Anschließend wurde die erste Version des Ionenbunchers in einer für diese experimentelle Umsetzung konstruierten Ionisationskammer aufgebaut. Ein laserinduziertes Ionsignal an eingelassenem Argon-Hintergrundgas belegte dabei die prinzipielle Funktionsweise des konzipierten Ionenbunchers und erlaubte es, dessen Parameterraum vollständig zu charakterisieren. Insbesondere konnten  $\text{Ar}^{q+}$ -Ionen bis zum Ladungszustand  $q \leq 4$  eindeutig nachgewiesen werden, auch wenn die nominelle Laserpeakintensität von  $I_{0,\text{Max}} \simeq 2 \cdot 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$  prinzipiell auch  $\text{Ar}^{6+}$ -Ionen ermöglichen sollte. An dieser Stelle wäre eine bessere Kalibrierung der Laserpeakintensität notwendig, da weder das Reflektionsvermögen des letzten Spiegels oder des zur Fokussierung benutzten Off-Axis-Parabolspiegels noch das Transmissionsvermögen des Lasereintrittsfensters in der Kalibrierung berücksichtigt wird. Ferner kann der Effekt einer schwachen Selbstfokussierung dieses Fensters den Laserfokus entlang der Laserstrahlachse verschieben und nimmt mit steigenden Laserpeakintensitäten zu. Dennoch decken sich die gemessenen Verläufe für die Ladungszustände qualitativ dahingehend mit denjenigen, die

aus der ADK-Theorie resultieren, dass Ionen höherer Ladungszustände bei nominell größeren Laserpeakintensitäten, allerdings in geringerer Anzahl nachzuweisen sind. Die Verwendung eines TDC limitierte dabei zwar den Nachweis auf maximal ein Ion bei einem festen  $m/q$ -Verhältnis pro Laserschuss, die gesamte Messmethodik erlaubte allerdings eine Zeitaufösung der Flugzeitverteilungen im Bereich von etwa 100 ps. Dabei ermöglichte vor allem die Variation der Laserposition entlang der Extraktionsachse der Argon-Ionen das Vermessen der flugzeitfokussierenden Eigenschaften sowie der genauen Geometrie des Ionenbunchers, was insbesondere die *in-situ*-Kalibrierung der Elektrodenabstände zueinander umfasst. In einer Konfiguration mit  $d_I = (2,8 \pm 0,12)$  mm und  $d_{II} = (2,9 \pm 0,04)$  mm ließen sich um das resultierende Flugzeitminimum herum bereits kurze Argon-Ionenpulse nachweisen, deren Flugzeitverteilung eine thermisch bedingte Halbwertsbreite von 180 ps bei einer Ionenenergie von  $E_{0,Ar} = (2,0 \pm 0,015)$  keV aufwiesen. Dies demonstrierte die Notwendigkeit, eine kalte Überschall-Gasexpansion als Neutralteilchenquelle zu verwenden, um diese Pulsbreite deutlich reduzieren zu können. Daher wurde der Gasstrahl mit dem Ionenbuncher kombiniert, woraufhin Argon aufgrund eines massiven Anteils von Clustern im Gasstrahl für die Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse als ungeeignet erachtet wurde. Aus diesem Grund erschien der Wechsel zu Neon als Betriebsgas für die Überschall-Gasexpansion als naheliegend, da hier die Clusterbildung erheblich geringer ist.

Aufgrund des höheren Ionisationspotentials konnten durch Photoionisation mit den Kurzpuls-Laser nur  $Ne^{q+}$ -Ionen im Ladungszustand  $q = 1,2$  an eingelassenem Neon-Hintergrundgas nachgewiesen werden. Die Photoionisation von  $Ne^+$ -Ionen aus dem Gasstrahl erwies sich hingegen als unproblematisch und erlaubte daher die Einstellung und Justierung der Strahlgeometrie für ein optimiertes  $Ne^+$ -Signal bei einem Betriebsdruck  $p_0 = 2$  bar und einer nominell eingestellten Düsenöffnungszeit  $\Delta t_{Op} = 20 \mu s$  mit einer Schwerpunktschwindigkeit  $v_{\parallel,\infty,Ne} = 770 \text{ m s}^{-1}$ . Anhand der Speed Ratio  $S_{Ne} \approx 6,5$  bzw. der Paralleltemperatur  $T_{\parallel,\infty,Ne} \approx 17 \text{ K}$  ist dabei für Neon eine schlechtere Strahlqualität gegenüber dem Argonbetrieb zu erkennen, ferner zeigten auch die eingestellten Betriebsparameter für die Düse ein massives Problem bezüglich des Transmissionsvermögens der Skimmer auf. Vor allem die Strahlintensität erscheint durch die beiden ersten Skimmer bei hohen Strahldichten massiv eingeschränkt zu werden, was durch eine Vergrößerung ihres Öffnungsdurchmessers verbessert werden könnte. Im Rahmen dieser Arbeit war die Anzahl nachzuweisender Ionen allerdings ohnehin durch die Messmethode mittels TDC limitiert, sodass eine niedrige Strahlintensität nur eine geringe Auswirkung auf die Ergebnisse hatte. Nach der Optimierung der Düsenparameter wurde der Parameterraum der Laserposition bei einer nominellen Laserpeakintensität von  $I_0 = 1,0 \cdot 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$  entsprechend einer maximalen Zählrate für  $Ne^+$ -Ionen in dem Ionenbuncher charakterisiert. Anhand der Profilierung des Gasstrahls konnte gezeigt werden, dass dieser den Ionenbuncher bei einer Halbwertsbreite von 1,55 mm ungehindert passieren kann, welche durch den Öffnungsdurchmesser des letzten Skimmer definiert ist. Ferner ließ sich durch Vergleich mit Neon-Hintergrundgas bei einer identischen Ionenzählrate eine Neutralteilchendichte der Neon-Atome in der Gasexpansion von  $\rho_{Ne,0} = (3,0 \pm 0,2) \cdot 10^9 \text{ cm}^{-3}$  nachweisen. Aufgrund des Transmissionsvermögens der Skimmer erschien auch diese Neutralteilchendichte – unter Berücksichtigung der vergleichsweise kleinen Werte für die Parameter  $p_0$  und  $\Delta t_{Op}$  – plausibel und resultierte in 0,63  $Ne^+$ -Ionen pro Laserschuss. Daraufhin wurde die Orientierung der einzelnen Elektroden des Ionenbunchers in der  $xy$ -Ebene gegenüber dem Laser- und dem Gasstrahl *in-situ* optimiert, wobei diese unter laufender Messung vorgenommene Ver-

kipfung aller drei Elektroden gegenüber dem Laserstrahl die größte Verbreiterung der Ionenpulsbreiten bedingte. Auf diese Weise konnte einerseits eine sinnvolle Kalibrierung der Verkippungswinkel vorgenommen werden, andererseits erlaubt die Möglichkeit zur *in-situ*-Justierung der drei Elektroden eine spätere Optimierung der Geometrie des Ionenbunchers, um eine minimale Ionenpulsbreite zu erzielen. Schlussendlich konnte eine Anordnung der Elektroden annähernd gleicher Abstände von  $d_I = (3,4 \pm 0,1)$  mm und  $d_{II} = (3,5 \pm 0,1)$  mm bestimmt werden. Innerhalb dieser Konfiguration des Ionenbunchers ließen sich mit dem Laser  $\text{Ne}^+$ -Ionen aus dem Gasstrahl photoionisieren, deren Flugzeitverteilung bei einer Ionenenergie von  $E_{0,\text{Ne}} = (2,0 \pm 0,008)$  keV eine Pulsbreite von 135 ps aufwies. Dies belegt eine erfolgreiche Umsetzung der reduzierten Geschwindigkeitsverteilung durch die Überschall-Gasexpansion im Vergleich zur Flugzeitverteilung bei Raumtemperatur mit 175 ps (FWHM), dennoch wurde aufgrund einer deutlich geringeren erwarteten Pulsbreite der Einfluss des Extraktionsfeldes untersucht. Eine Erhöhung des Feldes zeigte zwar keine signifikante Änderung der Pulsbreite, eine Verminderung des Feldes hingegen bewies einerseits eine limitierte Auflösung durch die Messmethodik und andererseits den durchaus präsenten Effekt des Geometric Cooling. Der Vergleich mit dem Verlauf der Flugzeitverteilungen als Funktion des Extraktionsfeldes bei  $T_0$  erlaubte eine Auswertung der Starttemperatur der Ionen aus dem Gasstrahl von  $T_{\perp,\text{Ne}} = 3,6$  K, was eine Abschätzung der tatsächlichen Pulsbreite in der Größenordnung von 18 ps ermöglicht. Diese ließ sich jedoch mithilfe der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Messmethodik nicht auflösen, die große Diskrepanz der gemessenen Pulsbreite von 130 ps zu der angegebenen Binbreite von 27,4 ps bzw. Auflösungsgrenze der Messkomponenten in der Größenordnung von 50 ps ließ auch eher auf eine prinzipielle Messproblematik schließen, beispielsweise hervorgerufen durch einen Jitter des MCP-Detektors zum Ionennachweis, der Photodiode zur zeitlichen Referenz des Laserpulses oder der zur Signalprozessierung verwendeten Diskriminatoren.

Um einen solchen potentiellen Jitter zu umgehen, müsste die prinzipielle Methodik zum Nachweis der Ionenpulse geändert werden. Da elektronische Komponenten eine Limitierung der zeitlichen Auflösung im Bereich einiger 10 Pikosekunden aufweisen, bedarf es opto-elektronischer Messtechniken, beispielsweise einer Streak-Kamera, um solche kurzen Ionenpulse indirekt nachweisen zu können. Dazu könnte beispielsweise eine ultradünne Probe als schneller Elektronenemitter fungieren, welche den verwendeten MCP-Detektor als Target ersetzt. Die durch den Ioneneinschlag aus der Probe emittierten Elektronen könnten dann mithilfe konventioneller Streaking-Technik die Flugzeitverteilung der auf dem Target auftreffenden Ionen abbilden. Ein vielversprechender Proben-Kandidat für eine solche Messung scheint Graphen zu sein, da es sich über große räumliche Bereiche freistehend herstellen lässt [108]. Dabei zeichnet es sich ferner durch hohe Langlebigkeit unter Ionenbeschuss [109] und das Vermögen aus, Elektronen [110] und Photonen [111] sowohl in Transmission als auch in Reflektion relativ zum Ioneneinschlag emittieren zu können. Lassen sich auf diese Weise Ionenpulse mit einer deutlich besseren Zeitauflösung nachweisen, so ermöglicht die Einbettung der Kurzpuls-Ionenquelle in ein Anrege-Abfrage-Schema erstmalig einen experimentellen Zugang zur Dynamik unterschiedlicher Phänomene unter Ionenbeschuss mit Ionenenergien im keV-Bereich, welche nach theoretischen Modellrechnungen auf einer Zeitskala von Pikosekunden ablaufen. Dazu besteht eine Möglichkeit darin, die Synchronisation zwischen Ionen- und Laserpuls für eine experimentelle Untersuchung zu nutzen, in wie weit eine durch den Ioneneinschlag ausgelöste Dynamik lokal durch eine laserinduzierte

elektronische Anregung einer Festkörperoberfläche beeinflusst wird. Umgekehrt könnte die Synchronisation zwischen Laser- und Ionenpuls ausgenutzt werden, um Photoelektronen nach einem Ioneneinschlag aus dem angeregten Festkörper auszulösen. Eine spektrale Analyse der Energie der Photoelektronen würde es ermöglichen, die ioneninduzierte Anregung der Elektronen und die damit verbundene rapide Zunahme der Elektronentemperatur an der Oberfläche zu messen. Ebenso könnten die lokale Unordnung der Gitterstruktur nach einem Ioneneinschlag sowie die darauffolgende Dynamik der Rekristallisation – beispielsweise mithilfe von zeitaufgelöster Röntgenbeugung – untersucht werden. Eine simplere experimentelle Einbettung, welches zunächst als erstes *proof-of-principle*-Experiment der Kurzpuls-Ionenquelle fungieren könnte, wäre das Messen der Ionolumineszenz nach einem Ioneneinschlag [112]. Dabei müssten zunächst nur emittierte Photonen zeitaufgelöst nachgewiesen werden, ohne dass es eines synchronisierten Abfrage-Pulses bedarf.

Die experimentelle Umsetzung einer Pikosekunden-Ionenquelle zur Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse erwies sich prinzipiell als erfolgreich. Die nachgewiesene Halbwertsbreite der Flugzeitverteilung an  $\text{Ne}^+$ -Ionen von 130 ps stellt dabei die kürzeste gemessene Pulsbreite eines Ionenpulses im keV-Bereich dar. Vielmehr geben die aufgeführten Experimente bezüglich der Temperatur der Neutralteilchen Grund zur Hoffnung, die Pulsbreite um mindestens eine Größenordnung weiter absenken zu können. Der experimentelle Nachweis solch kurzer Ionenpulse ermöglicht es, mithilfe zeitaufgelöster Anrege-Abfrage-Experimente ein fundamentales Verständnis der Wechselwirkung von Ionen niedriger Energie mit Festkörpern aufzubauen.

# Literaturverzeichnis

- <sup>1</sup>J. Li, D. Stein, C. McMullan, D. Branton, M. J. Aziz und J. A. Golovchenko, “Ion-beam sculpting at nanometre length scales”, *Nature* **412**, 166–169 (2001).
- <sup>2</sup>C. Ronning, E. Carlson und R. F. Davis, “Ion implantation into gallium nitride”, *Physics Reports* **351**, 349–385 (2001).
- <sup>3</sup>B. Schmidt und K. Wetzig, *Ion beams in materials processing and analysis* (Springer Science & Business Media, 2012).
- <sup>4</sup>F. Watt, A. Bettiol, J. Van Kan, E. Teo und M. Breese, “Ion beam lithography and nanofabrication: a review”, *International Journal of Nanoscience* **4**, 269–286 (2005).
- <sup>5</sup>R. Hellborg, H. J. Whitlow und Y. Zhang, *Ion beams in Nanoscience and Technology* (Springer Science & Business Media, 2009).
- <sup>6</sup>R. Kozubek, M. Tripathi, M. Ghorbani-Asl, S. Kretschmer, L. Madauß, E. Pollmann, M. O’Brien, N. McEvoy, U. Ludacka, T. Susi u. a., “Perforating freestanding molybdenum disulfide monolayers with highly charged ions”, *The journal of physical chemistry letters* **10**, 904–910 (2019).
- <sup>7</sup>A. Asaithambi, R. Kozubek, G. M. Prinz, F. Reale, E. Pollmann, M. Ney, C. Mattevi, M. Schleberger und A. Lorke, “Laser-and Ion-Induced Defect Engineering in WS<sub>2</sub> Monolayers”, *physica status solidi (RRL)–Rapid Research Letters* **15**, 2000466 (2021).
- <sup>8</sup>F. Dolde, I. Jakobi, B. Naydenov, N. Zhao, S. Pezzagna, C. Trautmann, J. Meijer, P. Neumann, F. Jelezko und J. Wrachtrup, “Room-temperature entanglement between single defect spins in diamond”, *Nature Physics* **9**, 139–143 (2013).
- <sup>9</sup>T. Lühmann, R. John, R. Wunderlich, J. Meijer und S. Pezzagna, “Coulomb-driven single defect engineering for scalable qubits and spin sensors in diamond”, *Nature communications* **10**, 1–9 (2019).
- <sup>10</sup>R. Behrisch, *Sputtering by particle bombardment I: Physical sputtering of single-element solids, Vol. 47* (Springer-Verlag, New York, NY, 1981).
- <sup>11</sup>Z. Sroubek, “Formation of ions in sputtering”, *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy* **44**, 317–328 (1989).
- <sup>12</sup>R. A. Baragiola, “Principles and mechanisms of ion induced electron emission”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **78**, 223–238 (1993).
- <sup>13</sup>S. A. Boden, T. Franklin, L. Scipioni, D. M. Bagnall und H. N. Rutt, “Ionoluminescence in the helium ion microscope”, *Microscopy and Microanalysis* **18**, 1253–1262 (2012).
- <sup>14</sup>M. Nastasi, N. Michael, J. Mayer, J. K. Hirvonen und M. James, *Ion-solid interactions: fundamentals and applications* (Cambridge University Press, 1996).

- <sup>15</sup>J. Lindhard und M. Scharff, “Energy dissipation by ions in the keV region”, *Physical Review* **124**, 128 (1961).
- <sup>16</sup>F. Aumayr, S. Facksko, A. S. El-Said, C. Trautmann und M. Schleberger, “Single ion induced surface nanostructures: a comparison between slow highly charged and swift heavy ions”, *Journal of Physics: Condensed Matter* **23**, 393001 (2011).
- <sup>17</sup>M. Toulemonde, C. Trautmann, E. Balanzat, K. Hjort und A. Weidinger, “Track formation and fabrication of nanostructures with MeV-ion beams”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **216**, 1–8 (2004).
- <sup>18</sup>W. Assmann, M. Toulemonde und C. Trautmann, “Electronic sputtering with swift heavy ions”, *Sputtering by Particle Bombardment*, 401–450 (2007).
- <sup>19</sup>A. Benninghoven, F. Rudenauer und H. W. Werner, “Secondary ion mass spectrometry: basic concepts, instrumental aspects, applications and trends”, (1987).
- <sup>20</sup>A. Benninghoven, “Surface analysis by secondary ion mass spectrometry (SIMS)”, *Surface Science* **299**, 246–260 (1994).
- <sup>21</sup>M. Yu, “Sputtering by Particle Bombardment III”, Eds. R. Behrisch and K. Wittmaack, Springer, Berlin, 91 (1991).
- <sup>22</sup>I. V. Veryovkin, W. F. Calaway, C. E. Tripa, J. F. Moore, A. Wucher und M. J. Pellin, “Laser post-ionization secondary neutral mass spectrometry for ultra-trace analysis of samples from space return missions”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **241**, 356–360 (2005).
- <sup>23</sup>A. Wucher, “Laser Post-Ionisation-Fundamentals”, *TOF-SIMS: Materials analysis by mass spectrometry*, 217–246 (2013).
- <sup>24</sup>G. Lakits, F. Aumayr und H. Winter, “Statistics of ion-induced electron emission from a clean metal surface”, *Review of scientific instruments* **60**, 3151–3159 (1989).
- <sup>25</sup>F. Aumayr, G. Lakits und H. Winter, “On the measurement of statistics for particle-induced electron emission from a clean metal surface”, *Applied surface science* **47**, 139–147 (1991).
- <sup>26</sup>M. Lindenblatt und E. Pehlke, “Time-dependent density-functional molecular-dynamics study of the isotope effect in chemicurrents”, *Surface science* **600**, 5068–5073 (2006).
- <sup>27</sup>E. Gruber, R. A. Wilhelm, R. Pétuya, V. Smejkal, R. Kozubek, A. Hierzenberger, B. C. Bayer, I. Aldazabal, A. K. Kazansky, F. Libisch u. a., “Ultrafast electronic response of graphene to a strong and localized electric field”, *Nature communications* **7**, 1–7 (2016).
- <sup>28</sup>R. Behrisch und W. Eckstein, *Sputtering by particle bombardment: experiments and computer calculations from threshold to MeV energies*, Bd. 110 (Springer Science & Business Media, 2007).
- <sup>29</sup>D. E. Harrison Jr, “Application of molecular dynamics simulations to the study of ion-bombarded metal surfaces”, *Critical Reviews in Solid State and Material Sciences* **14**, 1–78 (1988).



- <sup>30</sup>A. Wucher, B. Weidtmann und A. Duvenbeck, “A microscopic view of secondary ion formation”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **303**, 108–111 (2013).
- <sup>31</sup>M. C. Fischer, J. W. Wilson, F. E. Robles und W. S. Warren, “Invited review article: pump-probe microscopy”, *Review of Scientific Instruments* **87**, 031101 (2016).
- <sup>32</sup>J. Hastings, F. Rudakov, D. Dowell, J. Schmerge, J. Cardoza, J. Castro, S. Gierman, H. Loos und P. Weber, “Ultrafast time-resolved electron diffraction with megavolt electron beams”, *Applied physics letters* **89**, 184109 (2006).
- <sup>33</sup>A. Janzen, B. Krenzer, P. Zhou, D. Von der Linde und M. Horn-von Hoegen, “Ultrafast electron diffraction at surfaces after laser excitation”, *Surface science* **600**, 4094–4098 (2006).
- <sup>34</sup>A. Cavalleri, C. Siders, F. Brown, D. Leitner, C. Tóth, J. Squier, C. Barty, K. Wilson, K. Sokolowski-Tinten, M. H. Von Hoegen u. a., “Anharmonic lattice dynamics in germanium measured with ultrafast X-ray diffraction”, *Physical review letters* **85**, 586 (2000).
- <sup>35</sup>K. Sokolowski-Tinten, C. Blome, C. Dietrich, A. Tarasevitch, M. H. Von Hoegen, D. von der Linde, A. Cavalleri, J. Squier und M. Kammler, “Femtosecond x-ray measurement of ultrafast melting and large acoustic transients”, *Physical Review Letters* **87**, 225701 (2001).
- <sup>36</sup>M. Chini, K. Zhao und Z. Chang, “The generation, characterization and applications of broadband isolated attosecond pulses”, *Nature Photonics* **8**, 178–186 (2014).
- <sup>37</sup>T. Gaumnitz, A. Jain, Y. Pertot, M. Huppert, I. Jordan, F. Ardana-Lamas und H. J. Wörner, “Streaking of 43-attosecond soft-X-ray pulses generated by a passively CEP-stable mid-infrared driver”, *Optics express* **25**, 27506–27518 (2017).
- <sup>38</sup>C. Höhr, D. Fischer, R. Moshhammer, A. Dorn und J. Ullrich, “A subnanosecond pulsed ion source for micrometer focused ion beams”, *Review of Scientific Instruments* **79**, 053102 (2008).
- <sup>39</sup>M. K. Linnarsson, A. Hallén, J. Åström, D. Primetzhofer, S. Legendre und G. Possnert, “New beam line for time-of-flight medium energy ion scattering with large area position sensitive detector”, *Review of Scientific Instruments* **83**, 095107 (2012).
- <sup>40</sup>K. Kimura und J. Wada, “Excitation-density-dependent competition between radiative and nonradiative annihilations of core holes produced by ion irradiation of a single-crystalline BaF 2”, *Physical Review B* **48**, 15535 (1993).
- <sup>41</sup>B. Dromey, M. Coughlan, L. Senje, M. Taylor, S. Kuschel, B. Villagomez-Bernabe, R. Stefanuik, G. Nersisyan, L. Stella, J. Kohanoff u. a., “Picosecond metrology of laser-driven proton bursts”, *Nature communications* **7**, 1–6 (2016).
- <sup>42</sup>F. Aumayr, K. Ueda, E. Sokell, S. Schippers, H. Sadeghpour, F. Merkt, T. F. Gallagher, F. B. Dunning, P. Scheier, O. Echt u. a., “Roadmap on photonic, electronic and atomic collision physics: III. Heavy particles: with zero to relativistic speeds”, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **52**, 171003 (2019).
- <sup>43</sup>G. Scoles, *Atomic and molecular beam methods* (Oxford university press, 1988).
- <sup>44</sup>R. Campargue, *Atomic and Molecular beams: The state of the art 2000* (Springer Science & Business Media, 2012).

- <sup>45</sup>C. Rulliere, *Femtosecond laser pulses* (Springer, 2005).
- <sup>46</sup>K. Zrost, A. Rudenko, T. Ergler, B. Feuerstein, V. de Jesus, C. Schröter, R. Moshammer und J. Ullrich, “Multiple ionization of Ne and Ar by intense 25 fs laser pulses: few-electron dynamics studied with ion momentum spectroscopy”, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **39**, S371 (2006).
- <sup>47</sup>S. Augst, D. Strickland, D. D. Meyerhofer, S.-L. Chin und J. H. Eberly, “Tunneling ionization of noble gases in a high-intensity laser field”, *Physical review letters* **63**, 2212 (1989).
- <sup>48</sup>M. Reijnders, P. Van Kruisbergen, G. Taban, S. Van Der Geer, P. Mutsaers, E. Vredenburg und O. Luiten, “Low-energy-spread ion bunches from a trapped atomic gas”, *Physical review letters* **102**, 034802 (2009).
- <sup>49</sup>U. Even, J. Jortner, D. Noy, N. Lavie und C. Cossart-Magos, “Cooling of large molecules below 1 K and He clusters formation”, *The Journal of Chemical Physics* **112**, 8068–8071 (2000).
- <sup>50</sup>P. Kucharczyk, “Erzeugung ultrakurzer Ionenpulse im keV-Bereich: Eine Machbarkeitsstudie mittels numerischer Simulationen”, Dissertation (Universität Duisburg-Essen, 2021).
- <sup>51</sup>R. Campargue, “High intensity supersonic molecular beam apparatus”, *Review of Scientific Instruments* **35**, 111–112 (1964).
- <sup>52</sup>H. Ashkenas und F. S. Sherman, “Structure and utilization of supersonic free jets in low density wind tunnels”, (1965).
- <sup>53</sup>M. Verheijen, H. Beijerinck, W. Renes und N. Verster, “A quantitative description of skimmer interaction in supersonic secondary beams: Calibration of absolute intensities”, *Chemical physics* **85**, 63–71 (1984).
- <sup>54</sup>H. Beijerinck und N. Verster, “Absolute intensities and perpendicular temperatures of supersonic beams of polyatomic gases”, *Physica B+C* **111**, 327–352 (1981).
- <sup>55</sup>M. Sibulkin und W. Gallaher, “Far-field approximation for a nozzle exhausting into a vacuum”, *AIAA Journal* **1**, 1452–1453 (1963).
- <sup>56</sup>H. Beijerinck und N. Verster, “Velocity distribution and angular distribution of molecular beams from multichannel arrays”, *Journal of Applied Physics* **46**, 2083–2091 (1975).
- <sup>57</sup>H. Beijerinck, R. Van Gerwen, E. Kerstel, J. Martens, E. Van Vliembergen, M. T. Smits und G. Kaashoek, “Campargue-type supersonic beam sources: absolute intensities, skimmer transmission and scaling laws for mono-atomic gases He, Ne and Ar”, *Chemical physics* **96**, 153–173 (1985).
- <sup>58</sup>H. Beijerinck, G. Kaashoek, J. Beijers und M. Verheijen, “Non-maxwellian velocity distributions in the transition region of supersonic expansions of the noble gases He, Ne and Ar”, *Physica B+ C* **121**, 425–436 (1983).
- <sup>59</sup>A. Habets, H. Beijerinck, N. Verster und J. de Warrimont, “Non-Maxwellian velocity distributions in supersonic expansions of argon”, *Progress in Astronautics and Aeronautics* **51**, 919–932 (1977).
- <sup>60</sup>D. DePonte, S. Kevan und F. Patton, “Brightness of micronozzle helium source”, *Review of scientific instruments* **77**, 055107 (2006).

- <sup>61</sup>T. Reisinger, G. Bracco, S. Rehbein, G. Schmahl, W. E. Ernst und B. Holst, “Direct images of the virtual source in a supersonic expansion”, *The Journal of Physical Chemistry A* **111**, 12620–12628 (2007).
- <sup>62</sup>D. R. Miller, “Atomic and molecular beam methods”, *Atomic and Molecular Beam Methods* **1**, 14 (1988).
- <sup>63</sup>M. Hillenkamp, S. Keinan und U. Even, “Condensation limited cooling in supersonic expansions”, *The Journal of chemical physics* **118**, 8699–8705 (2003).
- <sup>64</sup>G. Bird, “Molecular gas dynamics and the direct simulation of gas flows”, Clarendon Press Oxford **199**, 1–9 (1994).
- <sup>65</sup>U. Even, “Pulsed supersonic beams from high pressure source: Simulation results and experimental measurements”, *Advances in Chemistry* **2014** (2014).
- <sup>66</sup>U. Even, “The Even-Lavie valve as a source for high intensity supersonic beam”, *EPJ Techniques and Instrumentation* **2**, 1–22 (2015).
- <sup>67</sup>K. Luria, W. Christen und U. Even, “Generation and propagation of intense supersonic beams”, *The Journal of Physical Chemistry A* **115**, 7362–7367 (2011).
- <sup>68</sup>G. S. Hurst und M. G. Payne, *Principles and applications of resonance ionisation spectroscopy* (CRC Press, 1988).
- <sup>69</sup>C. H. Becker und K. T. Gillen, “Surface analysis by nonresonant multiphoton ionization of desorbed or sputtered species”, *Analytical Chemistry* **56**, 1671–1674 (1984).
- <sup>70</sup>I. Velchev, W. Hogervorst und W. Ubachs, “Precision VUV spectroscopy of Ar I at 105 nm”, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **32**, L511 (1999).
- <sup>71</sup>E. B. Saloman und C. J. Sansonetti, “Wavelengths, energy level classifications, and energy levels for the spectrum of neutral neon”, *Journal of Physical and Chemical Reference Data* **33**, 1113–1158 (2004).
- <sup>72</sup>S. Augst, D. D. Meyerhofer, D. Strickland und S.-L. Chin, “Laser ionization of noble gases by Coulomb-barrier suppression”, *JOSA B* **8**, 858–867 (1991).
- <sup>73</sup>R. Freeman, P. Bucksbaum und T. McIlrath, “The ponderomotive potential of high intensity light and its role in the multiphoton ionization of atoms”, *IEEE journal of quantum electronics* **24**, 1461–1469 (1988).
- <sup>74</sup>L. Keldysh, “Ionization in the field of a strong electromagnetic wave”, *Sov. Phys. JETP* **20**, 1307–1314 (1965).
- <sup>75</sup>R. Moshhammer, B. Feuerstein, W. Schmitt, A. Dorn, C. D. Schröter, J. Ullrich, H. Rottke, C. Trump, M. Wittmann, G. Korn u. a., “Momentum distributions of Ne  $n+$  ions created by an intense ultrashort laser pulse”, *Physical review letters* **84**, 447 (2000).
- <sup>76</sup>P. Kucharczyk, A. Golombek und A. Wucher, “Generation of ultrashort ion pulses in the keV range: Numerical simulations”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **483**, 41–49 (2020).
- <sup>77</sup>M. Kamphus, *Resonanzverstärkte Mehrphotonen-Ionisationsmassenspektrometrie zur Analytik aromatischer Verbindungen in brennstoffreichen Flammen* (Cuvillier Verlag, 2005).

- <sup>78</sup>M. V. Ammosov, N. B. Delone und V. P. Krainov, “Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field”, *Sov. Phys. JETP* **64**, 1191 (1987).
- <sup>79</sup>D. Basting und G. Marowsky, *Excimer laser technology* (Springer Science & Business Media, 2005).
- <sup>80</sup>W. Demtröder, *Laser Spectroscopy: Basic Concepts and Instrumentation*, Bd. 5 (Springer Series in Chemical Physics, 1982).
- <sup>81</sup>P. H. Dawson, *Quadrupole mass spectrometry and its applications* (Elsevier, 2013).
- <sup>82</sup>J. C. Vickerman und D. Briggs, *Tof-SIMS: materials analysis by mass spectrometry* (im publications, 2013).
- <sup>83</sup>W. Wiley und I. H. McLaren, “Time-of-flight mass spectrometer with improved resolution”, *Review of scientific instruments* **26**, 1150–1157 (1955).
- <sup>84</sup>W. Christen, “Stationary flow conditions in pulsed supersonic beams”, *The Journal of chemical physics* **139**, 154202 (2013).
- <sup>85</sup>D. Irimia, D. Dobrikov, R. Kortekaas, H. Voet, D. A. van den Ende, W. A. Groen und M. H. Janssen, “A short pulse ( $7 \mu\text{s}$  FWHM) and high repetition rate (dc-5kHz) cantilever piezovalve for pulsed atomic and molecular beams”, *Review of Scientific Instruments* **80**, 113303 (2009).
- <sup>86</sup>W. R. Gentry und C. F. Giese, “High- precision skimmers for supersonic molecular beams”, *Review of Scientific Instruments* **46**, 104–104 (1975).
- <sup>87</sup>J. Braun, P. Day, J. Toennies, G. Witte und E. Neher, “Micrometer-sized nozzles and skimmers for the production of supersonic He atom beams”, *Review of scientific Instruments* **68**, 3001–3009 (1997).
- <sup>88</sup>L. Danzig, “Charakterisierung eines gepulsten Argon-Strahls mithilfe von Flugzeit-massenspektrometrie”, Bachelorarbeit (Universität Duisburg-Essen, 2017).
- <sup>89</sup>J. L. Wiza, “Microchannel plate detectors”, *Nucl. Instrum. Methods* **162**, 587–601 (1979).
- <sup>90</sup>M. Herder, “Untersuchung zur Messung der Ionisierungswahrscheinlichkeit zerstäubter Teilchen mittels lasergestützter Flugzeit-Massenspektrometrie”, Masterarbeit (Universität Duisburg-Essen, 2014).
- <sup>91</sup>A. Breuers, M. Herder, P. Kucharczyk, M. Schleberger, K. Sokolowski-Tinten und A. Wucher, “A concept to generate ultrashort ion pulses for pump-probe experiments in the keV energy range”, *New Journal of Physics* **21**, 053017 (2019).
- <sup>92</sup>N. Schofield, D. Paganin und A. I. Bishop, “Absolute density-profile tomography of molecular beams using multiphoton ionization”, *Review of Scientific Instruments* **80**, 123105 (2009).
- <sup>93</sup>C. Meng und M. H. Janssen, “Measurement of the density profile of pure and seeded molecular beams by femtosecond ion imaging”, *Review of Scientific Instruments* **86**, 023110 (2015).
- <sup>94</sup>M. L. Boas, *Mathematical methods in the physical sciences* (John Wiley & Sons, 2006).

- <sup>95</sup>A. Sorokin, L. Shmaenok, S. Bobashev, B. Möbus, M. Richter und G. Ulm, “Measurements of electron-impact ionization cross sections of argon, krypton, and xenon by comparison with photoionization”, *Physical Review A* **61**, 022723 (2000).
- <sup>96</sup>K. B. Snow und T. F. Thomas, “Mass spectrum, ionization potential, and appearance potentials for fragment ions of sulfuric acid vapor”, *International journal of mass spectrometry and ion processes* **96**, 49–68 (1990).
- <sup>97</sup>B. Feuerstein, R. Moshhammer, D. Fischer, A. Dorn, C. D. Schröter, J. Deipenwisch, J. C. Lopez-Urrutia, C. Höhr, P. Neumayer, J. Ullrich u. a., “Separation of recollision mechanisms in nonsequential strong field double ionization of Ar: the role of excitation tunneling”, *Physical review letters* **87**, 043003 (2001).
- <sup>98</sup>H. Lu, G. Ni, R. Li und Z. Xu, “An experimental investigation on the performance of conical nozzles for argon cluster formation in supersonic jets”, *The Journal of chemical physics* **132**, 124303 (2010).
- <sup>99</sup>M. Aladi, R. Bolla, D. E. Cardenas, L. Veisz und I. B. Földes, “Cluster size distributions in gas jets for different nozzle geometries”, *Journal of Instrumentation* **12**, C06020 (2017).
- <sup>100</sup>M. Hoener, C. Bostedt, H. Thomas, L. Landt, E. Eremina, H. Wabnitz, T. Laarmann, R. Treusch, A. De Castro und T. Möller, “Charge recombination in soft x-ray laser produced nanoplasmas”, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **41**, 181001 (2008).
- <sup>101</sup>H. Haberland, “A model for the processes happening in a rare-gas cluster after ionization”, *Surface Science* **156**, 305–312 (1985).
- <sup>102</sup>O. F. Hagen, “Condensation in free jets: Comparison of rare gases and metals”, *Zeitschrift für Physik D Atoms, Molecules and Clusters* **4**, 291–299 (1987).
- <sup>103</sup>O. F. Hagen, “Nucleation and growth of clusters in expanding nozzle flows”, *Surface Science* **106**, 101–116 (1981).
- <sup>104</sup>R. Karnbach, M. Joppien, J. Stapelfeldt, J. Wörmer und T. Möller, “CLULU: An experimental setup for luminescence measurements on van der Waals clusters with synchrotron radiation”, *Review of scientific instruments* **64**, 2838–2849 (1993).
- <sup>105</sup>O. F. Hagen, “Cluster ion sources”, *Review of scientific instruments* **63**, 2374–2379 (1992).
- <sup>106</sup>U. Buck und R. Krohne, “Cluster size determination from diffractive He atom scattering”, *The Journal of chemical physics* **105**, 5408–5415 (1996).
- <sup>107</sup>B. Ulrich, “Argon- und Neon-Dimere und Trimere in intensiven Laserfeldern”, Dissertation (Univ.-Bibliothek Frankfurt am Main, 2011).
- <sup>108</sup>L. Madauß, E. Pollmann, T. Foller, J. Schumacher, U. Hagemann, T. Heckhoff, M. Herder, L. Skopinski, L. Breuer, A. Hierzenberger u. a., “A swift technique to hydrophobize graphene and increase its mechanical stability and charge carrier density”, *npj 2D Materials and Applications* **4**, 1–7 (2020).
- <sup>109</sup>R. A. Wilhelm, E. Gruber, J. Schwestka, R. Kozubek, T. I. Madeira, J. P. Marques, J. Kobus, A. V. Krasheninnikov, M. Schleberger und F. Aumayr, “Interatomic coulombic decay: the mechanism for rapid deexcitation of hollow atoms”, *Physical review letters* **119**, 103401 (2017).

- <sup>110</sup>J. Schwestka, A. Niggas, S. Creutzburg, R. Kozubek, R. Heller, M. Schleberger, R. A. Wilhelm und F. Aumayr, “Charge-exchange-driven low-energy electron splash induced by heavy ion impact on condensed matter”, *The journal of physical chemistry letters* **10**, 4805–4811 (2019).
- <sup>111</sup>J. Schwestka, R. Wilhelm, E. Gruber, R. Heller, R. Kozubek, M. Schleberger, S. Facsko und F. Aumayr, “The role of radiative de-excitation in the neutralization process of highly charged ions interacting with a single layer of graphene”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **422**, 63–67 (2018).
- <sup>112</sup>R. Kaercher, E. Da Silveira, J. Blankenship und E. Schweikert, “Solid-state luminescence: Probe for ion-solid interactions”, *Physical Review B* **51**, 7373 (1995).

# Anhang

## Berechnung der Flugzeitbedingung 1. Ordnung

Die Änderung der Gesamtflugzeit  $dt$  unter kleiner Variation des Startortes  $dz_{I,0}$  ist

$$\begin{aligned} \frac{dt}{dz_{I,0}} = & - \frac{1}{\sqrt{a_I(d_I - z_{I,0})}} \\ & + \frac{1}{a_{II}} \cdot \left( - \frac{a_I}{\sqrt{a_I(d_I - z_{I,0}) + 2a_{II}d_{II}}} + \frac{a_I}{\sqrt{a_I(d_I - z_{I,0})}} \right) \\ & + \frac{a_I d_{III}}{\sqrt{a_I(d_I - z_{I,0}) + 2a_{II}d_{II}}^3}. \end{aligned}$$

Daraus folgt mit der Flugzeitfokussierung 1. Ordnung  $\left. \frac{dt}{dz_{I,0}} \right|_{z_{I,0}=0} \stackrel{!}{=} 0$  die Bedingung

$$\frac{1}{\sqrt{a_I d_I}} - \frac{a_I}{a_{II}} \cdot \left( \frac{1}{\sqrt{a_I d_I}} - \frac{1}{\sqrt{a_I d_I + 2a_{II} d_{II}}} \right) - \frac{a_I d_{III}}{\sqrt{a_I d_I + 2a_{II} d_{II}}^3} = 0.$$

Unter Ausnutzung der Relationen  $a_j d_j = (q \cdot e/m) \Delta \phi_j$  (mit  $j = I - III$ ) ergibt sich:

$$\begin{aligned} \frac{1}{\sqrt{\Delta \phi_I}} - \frac{\Delta \phi_I}{\Delta \phi_{II}} \cdot \frac{d_{II}}{d_I} \cdot \left( \frac{1}{\sqrt{\Delta \phi_I}} - \frac{1}{\sqrt{\Delta \phi_I + 2\Delta \phi_{II}}} \right) - \frac{d_{III}}{d_I} \cdot \frac{\Delta \phi_I}{\sqrt{\Delta \phi_I + 2\Delta \phi_{II}}^3} = 0 \\ \Leftrightarrow d_I - \frac{\Delta \phi_I}{\Delta \phi_{II}} \cdot \left( 1 - \sqrt{\frac{\Delta \phi_I}{\Delta \phi_I + 2\Delta \phi_{II}}} \right) \cdot d_{II} - \sqrt{\frac{\Delta \phi_I}{\Delta \phi_I + 2\Delta \phi_{II}}}^3 \cdot d_{III} = 0 \end{aligned}$$

Mit der Substitution  $\xi := \sqrt{\frac{\Delta \phi_I}{\Delta \phi_I + 2\Delta \phi_{II}}}$  und der daraus resultierenden Beziehung

$$\frac{\Delta \phi_I}{\Delta \phi_{II}} = \frac{2\xi^2}{1 - \xi^2} \quad \text{folgt:}$$

$$\begin{aligned} d_I - \frac{2\xi^2}{1 - \xi^2} (1 - \xi) \cdot d_{II} - \xi^3 \cdot d_{III} = 0, \quad \text{und mit } 1 - \xi^2 = (1 - \xi)(1 + \xi) \\ d_I - \frac{2\xi^2}{1 + \xi} \cdot d_{II} - \xi^3 \cdot d_{III} = 0 \\ (1 + \xi) \cdot d_I - 2\xi^2 \cdot d_{II} - (1 + \xi)\xi^3 \cdot d_{III} = 0 \quad q.e.d. \end{aligned}$$

# Technische Zeichnungen zur Expansionskammer

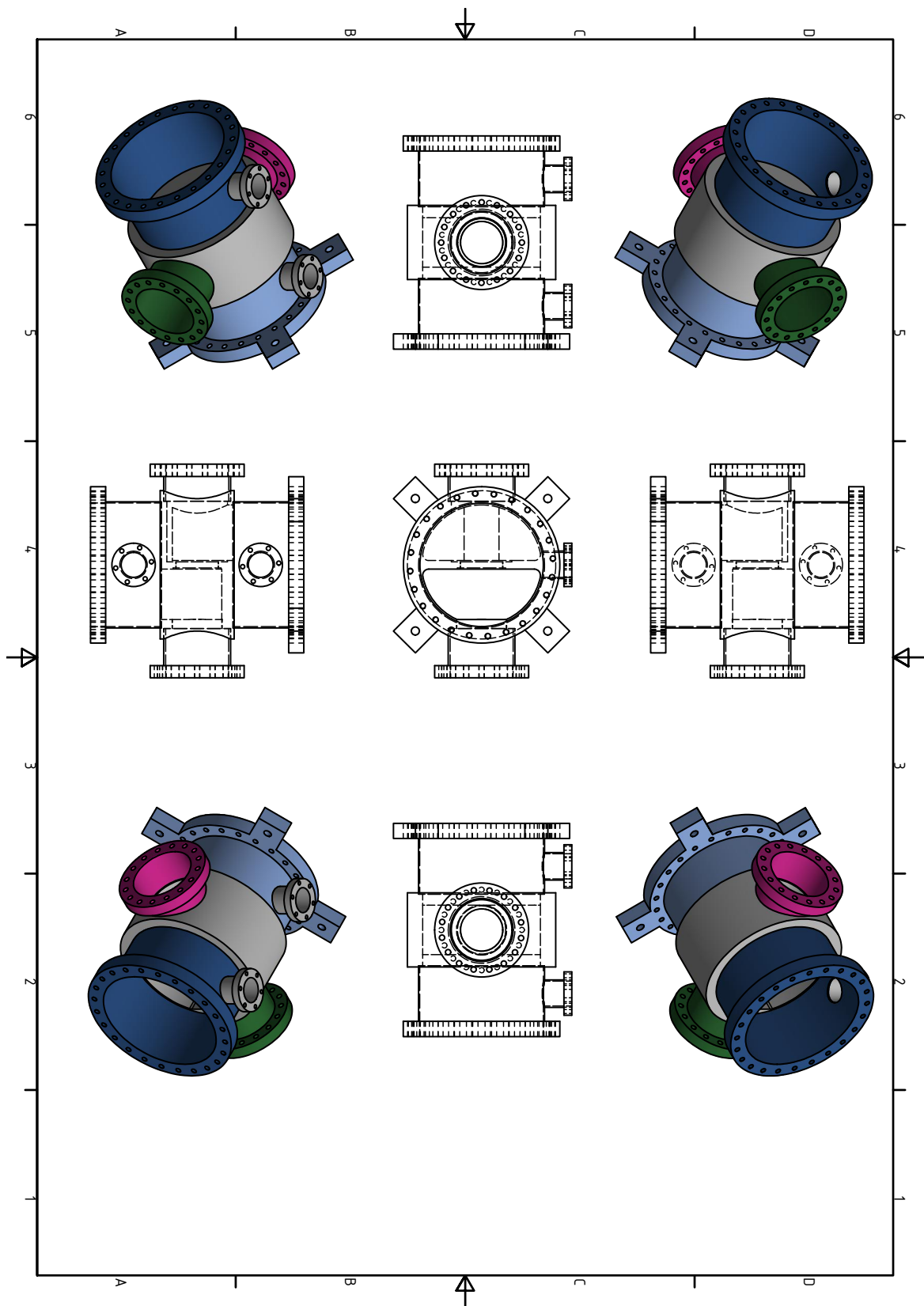


Abbildung 10.1: Übersichtszeichnung Expansionskammer.



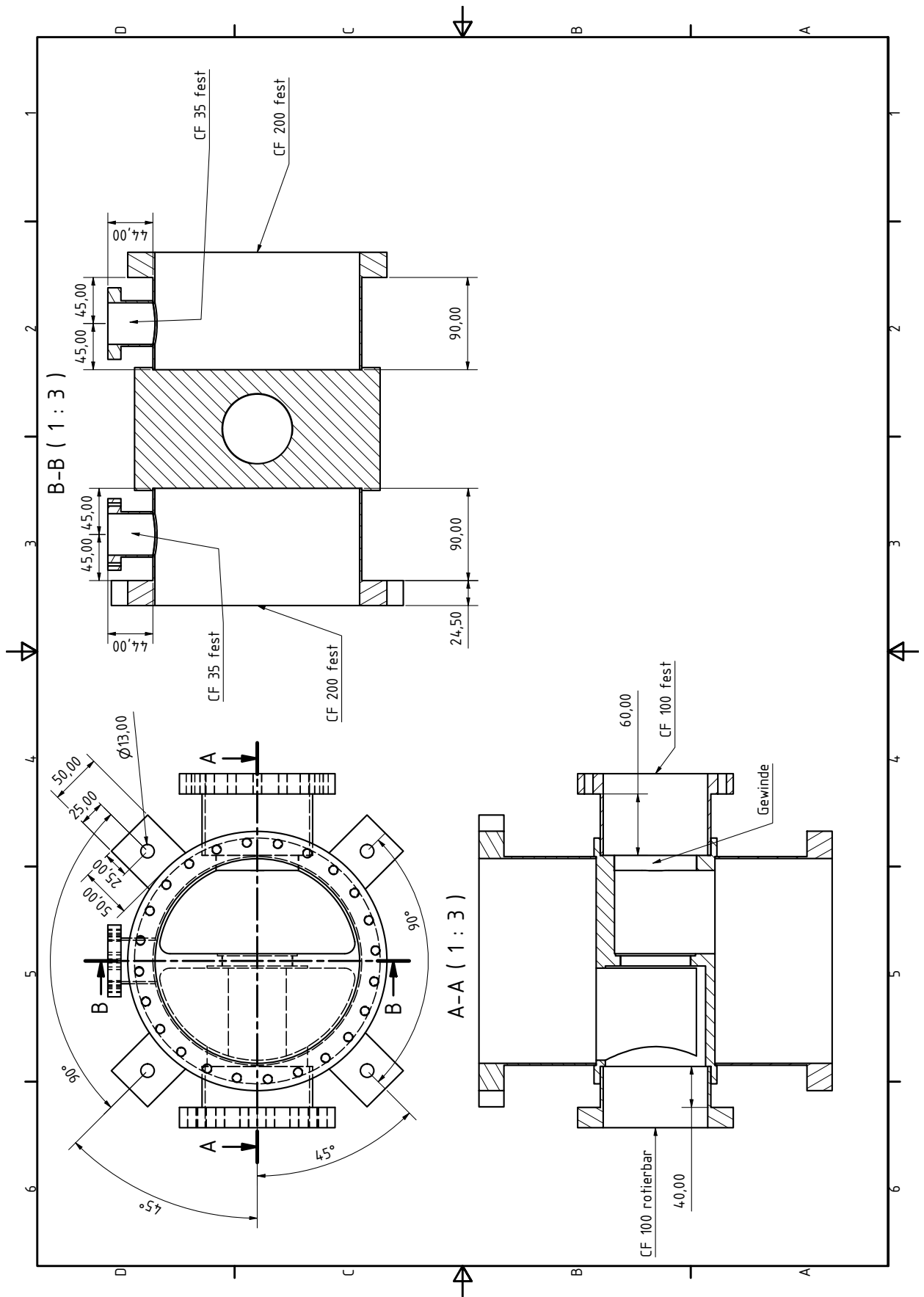


Abbildung 10.2: Expansionskammer: Detail- und Schnittzeichnungen.

# Technische Zeichnungen zur Ionisationskammer

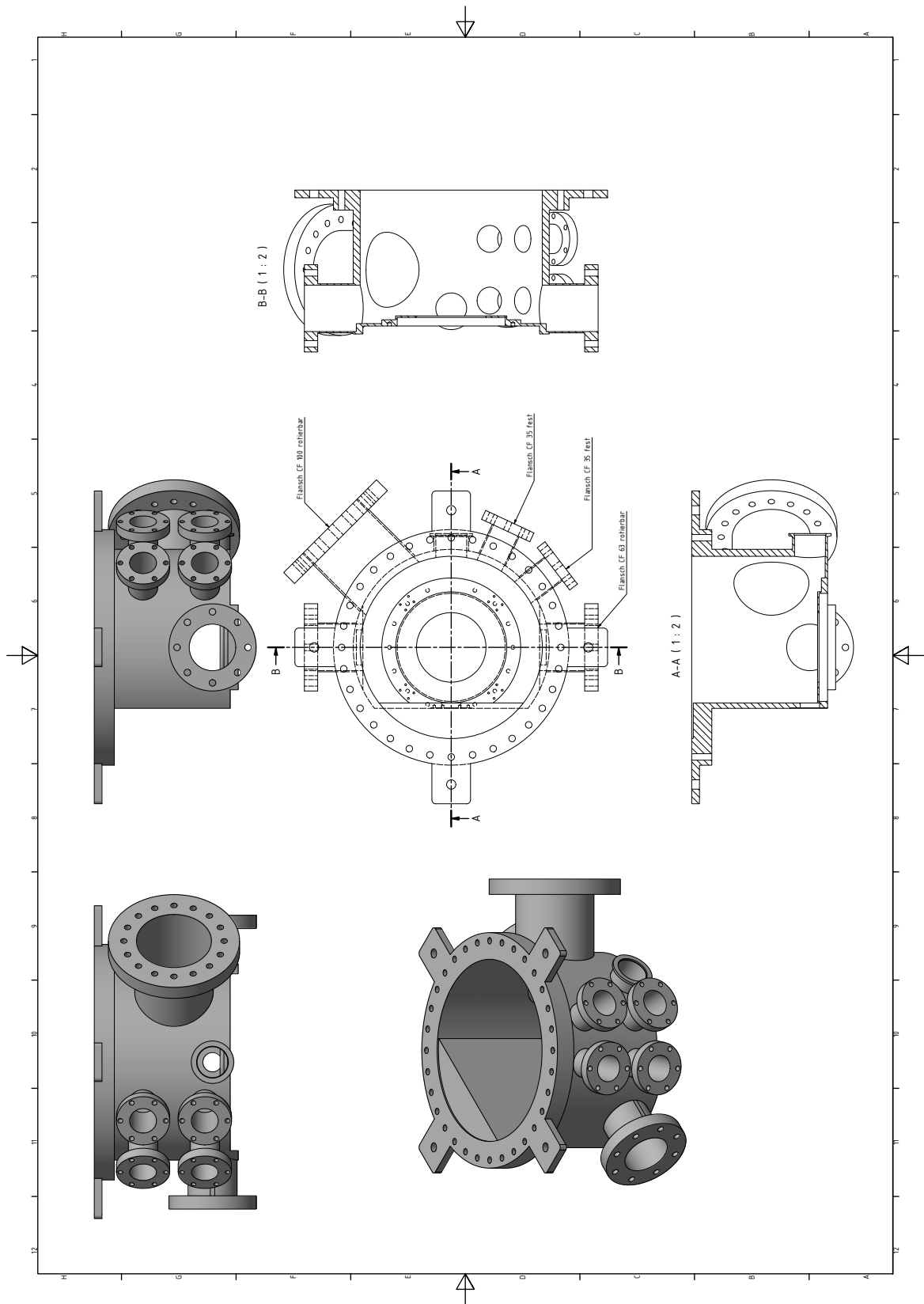


Abbildung 10.3: Übersichtszeichnung Analysekkammer.

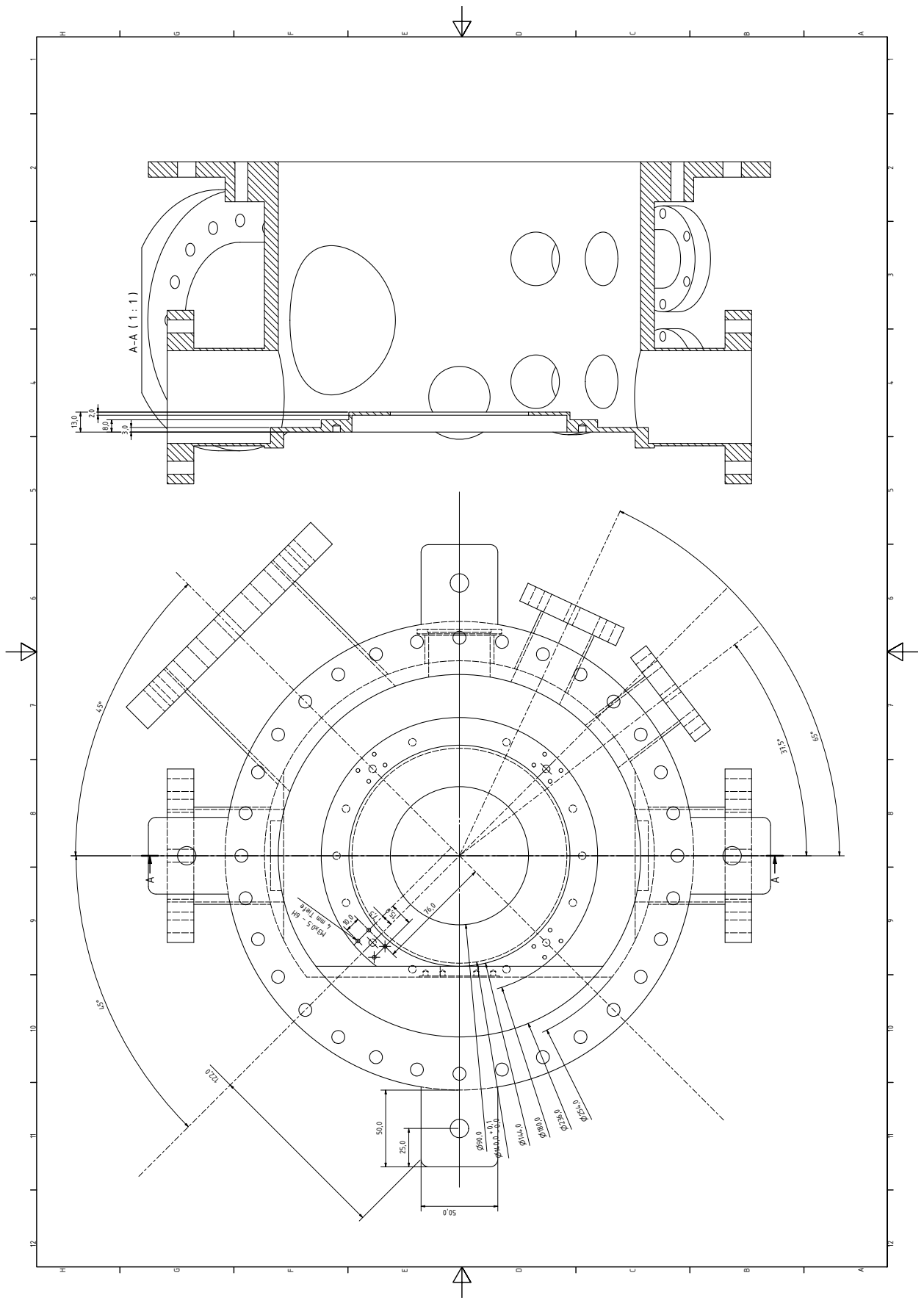


Abbildung 10.4: Analyse-kammer: Detail- und Schnittzeichnungen.

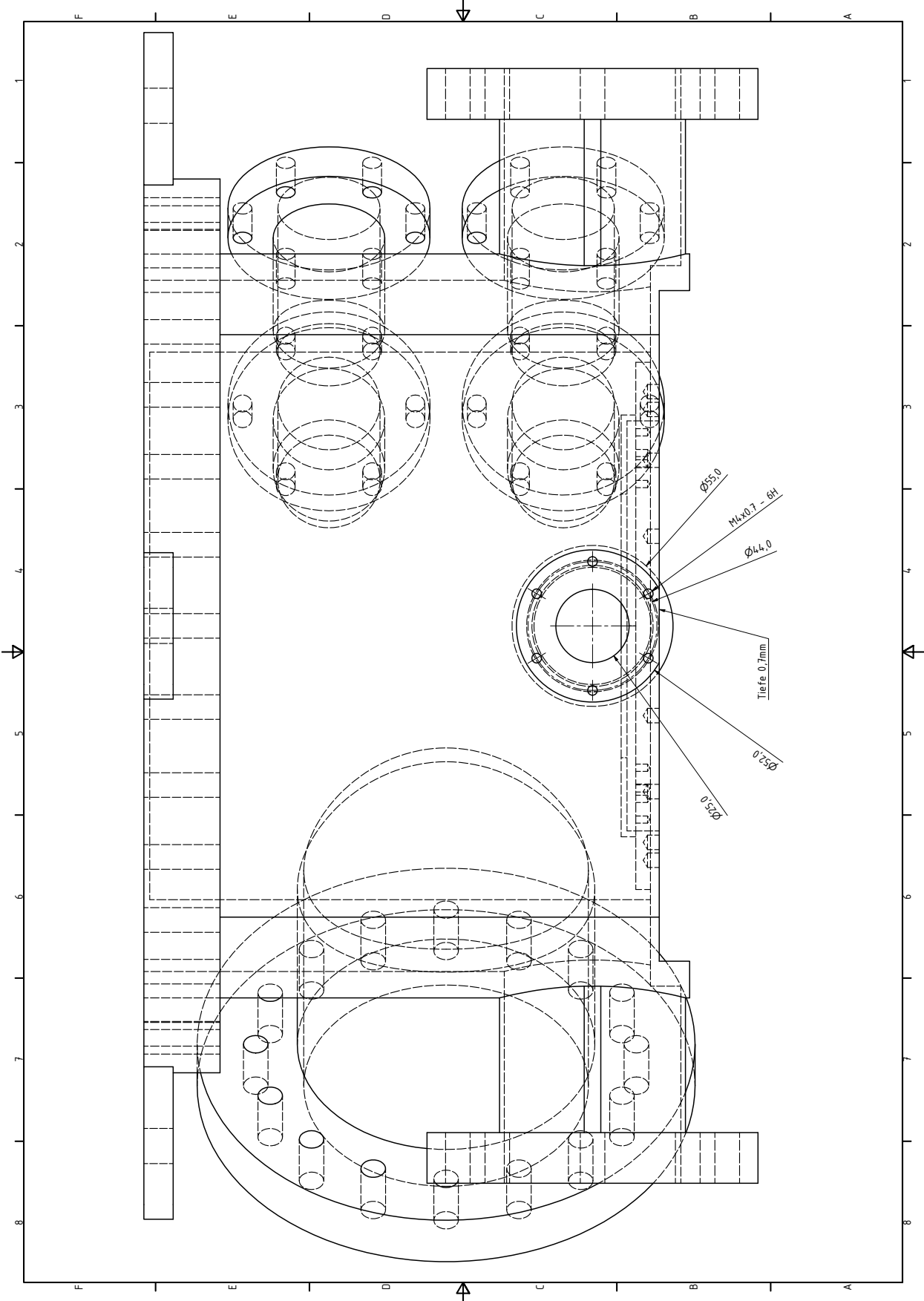


Abbildung 10.5: Analysekammer: Detailzeichnung in Laserstrahlrichtung.

## Zusätzliche Flugzeit- bzw. Massenspektren

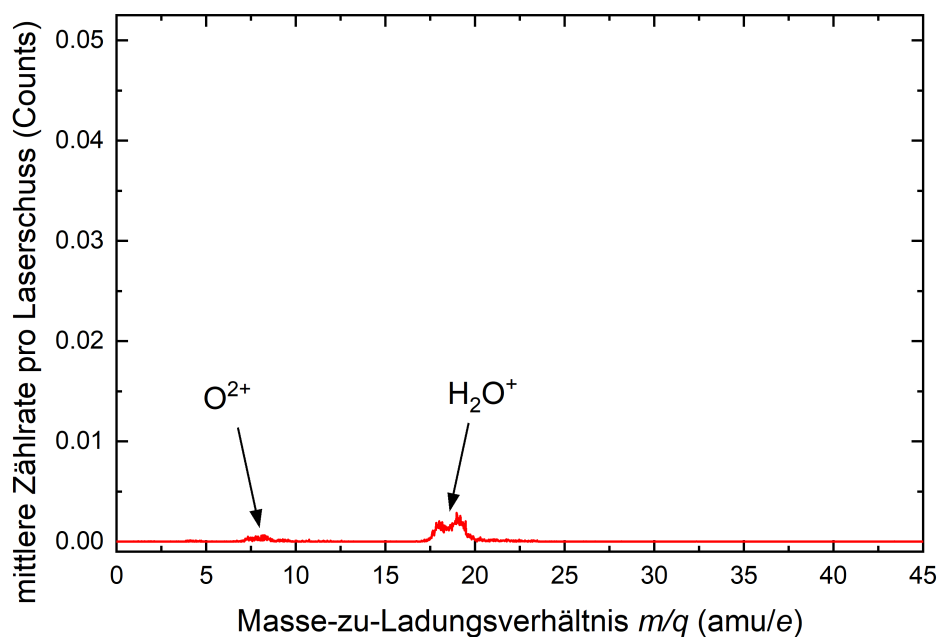


Abbildung 10.6: Restgasspektrum zur Messung mit Argon-Hintergrundgas bei  $I_0 = 1,5 \cdot 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ .

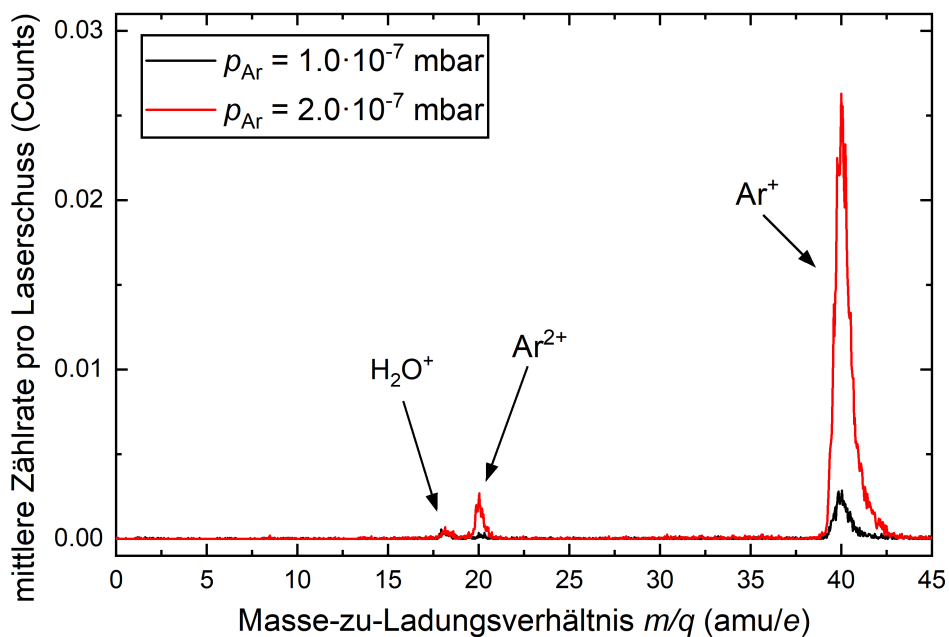
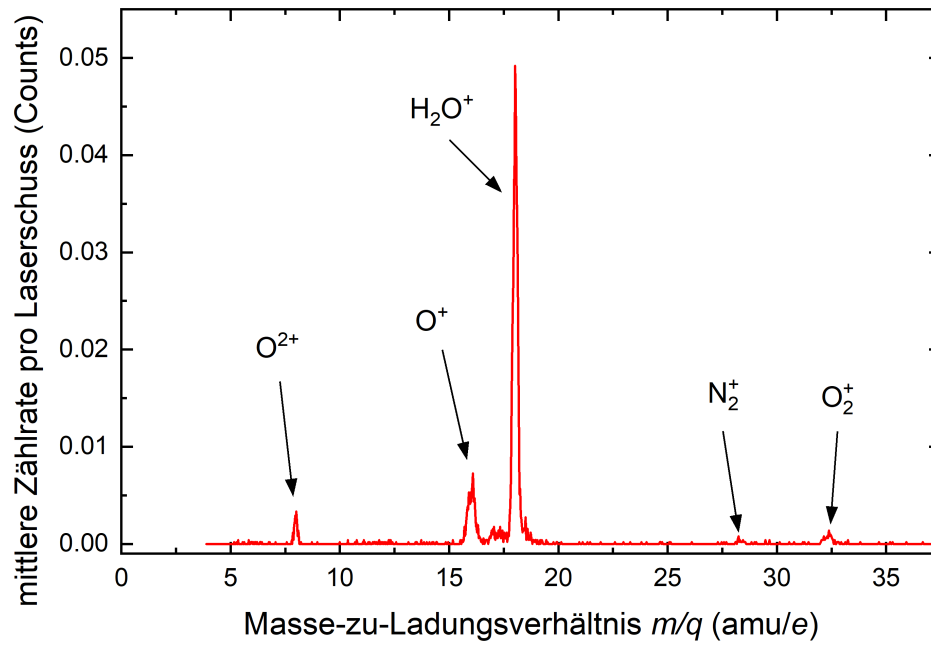
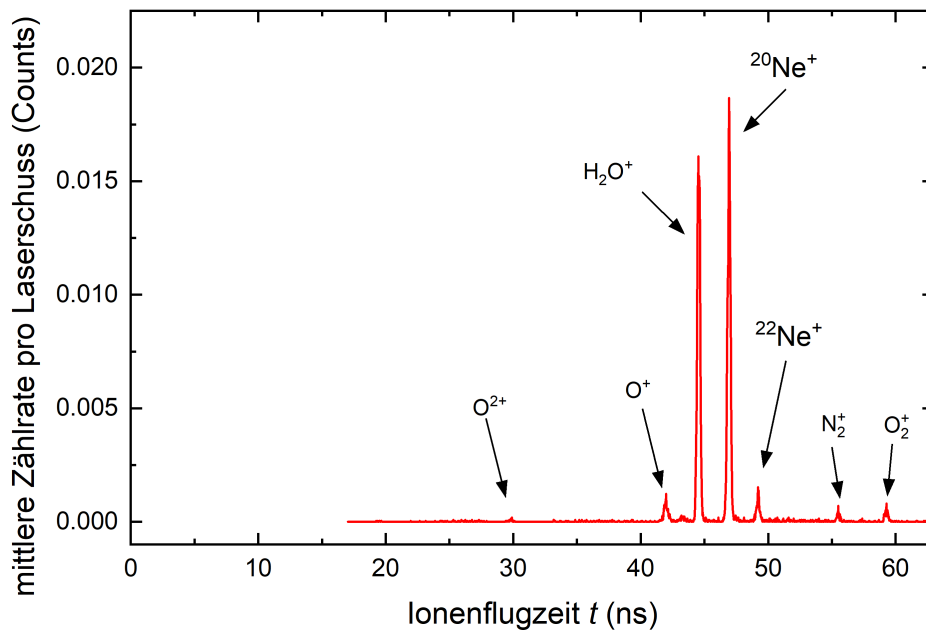


Abbildung 10.7: Spektren zur Auswertung der mittleren  $Ar^{2+}$ -Ionenanzahl mit Argon-Hintergrundgas bei  $p_{Ar} = 1,0 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$  (schwarz) und  $p_{Ne} = 2,0 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$  (rot) bei  $I_0 = 9,5 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$ .



**Abbildung 10.8:** Restgasspektrum zur Messung mit Neon-Hintergrundgas bei  $I_0 = 7,5 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$ .



**Abbildung 10.9:** Spektrum zur Auswertung des  $^{22}\text{Ne}^+ / ^{20}\text{Ne}^+$ -Verhältnisses mit Neon-Hintergrundgas bei  $p_{\text{Ne}} = 8,4 \cdot 10^{-8} \text{ mbar}$  bei  $I_0 = 4,0 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$ .

## Danksagung

Am Ende dieser Dissertation – und damit auch zum Abschluss meiner Promotion – möchte ich einigen Personen meinen Dank aussprechen, ohne die diese Arbeit sicherlich nicht zustande gekommen wäre.

An erster Stelle möchte ich mich besonders bei Prof. Dr. Andreas Wucher bedanken, ohne den diese niedergeschriebenen Seiten nicht existieren würden. Vielen Dank für deine gute Betreuung während meiner gesamten Promotionszeit, für dein offenes Ohr zu jeder Zeit, für alle fruchtbaren Diskussionen und Ideen, für alle hilfreichen Gespräche, für dein Interesse an Detailfragen und für deine Geduld, mir jene auch noch zum dritten Mal zu erklären, bis ich glaube, die Antwort darauf verstanden zu haben. Vor allem aber danke ich dir für den nötigen Freiraum, eigene Konzepte umsetzen und verfolgen zu können, und für dein Vertrauen in mich, an diesem einzigartigen Projekt mitgearbeitet haben zu dürfen, obwohl ich nicht nur ein-(!), sondern gleich zweimal (!!)

unseren Detektor zerstört habe (danach habe ich ihn eigenhändig repariert, das hält eine Weile – versprochen!). Ich bin immer wieder erstaunt über dein physikalisches Verständnis dieser Welt und mit welcher Begeisterung du dieses Wissen weiter gibst. Ich sage gerne, dass ich während der Promotionszeit mehr gelernt habe als im gesamten Studium davor – und das ist nicht ausschließlich auf Physik bezogen – du hast einen wesentlichen Teil dazu beigetragen. Vielen Dank, dass du diese Arbeit jetzt auch begutachten wirst, ohne dich wäre sie in vielerlei Hinsicht nicht so geworden, wie sie jetzt ist!

Ein weiteres Dankeschön gilt Prof. Dr. Marika Schleberger, die nicht minder Interesse an meiner Arbeit zeigt. Du hast ebenso ein offenes Ohr für mich gehabt und mich motiviert, nicht den Kopf hängen zu lassen, wenn es mal „nicht ganz rund“ läuft, sondern mich ermutigt, nicht den Blick fürs Wesentliche zu verlieren. Dabei hast du dir ebenso Zeit für Diskussionen genommen und Ideen angeregt und mir gleichzeitig genügend Freiraum gelassen, eigene Konzepte auszuprobieren. Daher auch dir vielen Dank, nicht zuletzt dafür, dass du dich ebenso dazu bereit erklärt hast, die Dissertation zu begutachten!

Ich danke allen Mitarbeitern, ob aktuell oder ehemals, beider Arbeitsgruppen für eine kollegiale und freundliche Arbeitsatmosphäre, fachliche und weniger fachliche Diskussionen, aber für allem für Hilfestellung in allen möglichen Fragestellungen! Ein besonderer Dank gilt dabei zunächst Dr. Christian Heuser, der mich anfänglich in der Arbeitsgruppe betreut hat, alle Laborfragen sorgfältig (und vor allem mit einer Engelsgeduld) beantwortet hat und ohne den ich diese Dissertation garantiert nicht verfasst hätte! Darüber hinaus gilt ein großes Dankeschön unserem ehemaligen Techniker Werner Saure für alle größeren und kleineren Probleme in jedem Labor. Dein kompaktes Konzept für den Aufbau der Gasstrahlkammer hat dessen Transfer von einem Labor zum anderen zu einer einwöchigen Aufgabe gemacht (anstatt zu einer mehrmonatigen!). Danke auch an Dr. Matthias Herder für deine uneingeschränkte Hilfestellung bei allen Fragen zum Thema Programmieren. Wie du mir dankenswerterweise meine grobschlächtigen Codes gerettet hast, das grenzt an Zauberei! Ebenfalls möchte ich mich bei Arne Metzloff und Lisa Danzig bedanken, deren Abschlussarbeiten ich betreuen durfte. Aus dieser Zusammenarbeit konnte ich einiges mitnehmen (nicht zuletzt die Resultate eurer Arbeiten)!

Ein großes Dankeschön gilt auch Dr. Lars Breuer, für deine Unterstützung im Labor, beim Verstehen meiner Daten und die Möglichkeit, neben dieser Kurzpuls-Quelle aus großen „Edelstahlbausteinen“ auch das eine oder andere Objekt aus kleinen Klemmbausteinen zu konstruieren! Danke auch an Dr. Paul Kucharczyk für lange und ausführliche Diskussionen zu dem Projekt und über die Frage, für wen das Verstehen der jeweils eigenen Daten nun einfacher war (das Experiment hat immer recht!). Dir und Dr. Philipp Ernst auch ein Dankeschön für eine in jeglicher Hinsicht unvergessliche IISC 22 in Dresden 2017! Ein weiterer Dank gilt Dr. Andreas Duvenbeck für das gelegentliche, vollkommen unangekündigte Hereinschneien ins Büro und anschließende Herausfordern meiner mathematischen Kenntnisse (so sie denn da sind). Besonderer Dank gilt auch Tobias Heckhoff, für deine kritische Auseinandersetzung mit meinen Problemen, deinen Ideen aus einem anderen Blickwinkel, dein spontanes Einspringen für meine Übungsgruppen und dass du es jahrelang mit mir in einem Büro ausgehalten hast! Dank dir habe ich dort nicht alleine sitzen müssen (die Anschaffung eines 3D-Druckers nicht allzu weit entfernt)! Ebenso gilt ein besonderer Dank dem im letzten Jahr hinzugestoßenen Büro- und Labornachbarn Lukas Kalkhoff. Ob es an dem ständigen Austausch (auf fachlicher wie auch auf privater Ebene), deiner optimistischen Art oder deinem, sagen wir mal, „direkten“ Umgang liegt (den ich sehr schätze!): du hast mich damit motiviert, die Promotion bis zum Ende durchzuziehen, und dafür danke ich dir wirklich sehr! Ich kann mir keinen besseren vorstellen, der das Projekt jetzt weiterführt, Bruder.

Ich möchte mich auch für meinen Erkenntnisgewinn aus dem Laserlabor bedanken, und damit zuerst bei Prof. Dr. Klaus Sokolowski-Tinten. Danke, dass du meine oftmals naiven Fragen zur Laser- und Kurzpulsphysik ausführlich beantwortet hast und dabei trotzdem einen unvergleichlichen Enthusiasmus ausstrahlst! Danke auch an Dr. Ping Zhou, Marius Milnikel und Thies Albert für eure bereitwillige und uneingeschränkte Hilfestellung mit dem Kurzpuls-Laser, ganz gleich wie klein oder groß die Schwierigkeiten waren! Dank euch habe ich ein wenig Expertise in diesem Bereich aufbauen können.

Danke auch an Tobias Roos für die schnelle Fertigung diverser feinmechanischer Bauteile „mal eben zwischendurch“! Du hast mir stellenweise viel Zeit und Nerven gespart, dafür danke ich dir!

Ein sehr großes Dankeschön gilt auch Dr. Pia Lochner, für deine warmherzige und offene Art, deinen grenzenlosen Optimismus und deinen Fleiß, den ich mir zwar zum Vorbild genommen habe, aber vermutlich in diesem Leben nicht mehr erreichen werde. Die Kaffee- und Kuchenpausen mit dir werde ich vor allem vermissen (da wird mir niemand widersprechen können, der einmal einen deiner Kuchen kosten durfte!).

Zudem danke ich Assistant Prof. Dr. Richard Wilhelm dafür, dass er sich dazu bereit erklärt hat, die Rolle des Zweitgutachters dieser Arbeit anzunehmen. Ebenso danke ich dir für ein angenehmes Kennenlernen und anregende Diskussionen über die Kurzpuls-Ionenquelle auf der IISC 23 in Matsue 2019! Diese Konferenz und der daran anschließende Aufenthalt in Japan zählt zu einem der Höhepunkte während meiner Promotionszeit, an den ich noch länger zurückdenken werde.



Abschließend, aber nicht minder bedeutsam, möchte ich mich bei meiner Familie bedanken. Ein riesengroßer Dank, der eigentlich unmöglich in Worte zu fassen ist, richtet sich an alle meine Eltern und Schwiegereltern, die uns bedingungslos unterstützen und immer an unserer Seite, aber auch in Sorge sind, ob wir unseren eigenen Weg finden werden. Hoffentlich kann ich euch ein wenig dieser Bedenken nehmen, wenn ich mit Abschluss der Promotion den nächsten Schritt gehe. Danke an meine Geschwister Florian, Hendrik, Malte und Vanessa mit Bryan, jede/r von euch bereichert mein Leben auf seine/ihre Art. Ich kann mich immer hundertprozentig auf euch verlassen, und ihr bedeutet mir mehr, als euch möglicherweise bewusst ist. Der größte Dank gebührt meiner Frau Sonja für ihren uneingeschränkten Rückhalt, ihre bedingungslose Zuneigung und ihre vollkommene Unterstützung mir gegenüber. Ich weiß wirklich nicht, wie ich dir danken soll für all die Jahre, die du mich schon geduldig erträgst und erdest. Ich danke dir von Herzen dafür, dass du mich und mein Leben von Tag zu Tag ein bisschen besser machst! Zu guter Letzt danke ich meinem Sohn Felix dafür, dass er mich die letzten Tage vor Abgabe dieser Arbeit hat schlafen lassen.



## **Erklärung:**

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig verfasst und ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Die verwendeten Hilfsmittel und alle wörtlich oder inhaltlich übernommenen Stellen sind unter Angabe der entsprechenden Quelle gekennzeichnet.

Die Arbeit wurde bisher weder im Inland noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Der Doktorgrad eines Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.) wird gemäß §1 Satz 2 der Promotionsordnung angestrebt.

Duisburg, den 03.09.2021

*Alexander Spolombek*

# DuEPublico

Duisburg-Essen Publications online

UNIVERSITÄT  
DUISBURG  
ESSEN

*Offen im Denken*

ub | universitäts  
bibliothek

Diese Dissertation wird via DuEPublico, dem Dokumenten- und Publikationsserver der Universität Duisburg-Essen, zur Verfügung gestellt und liegt auch als Print-Version vor.

**DOI:** 10.17185/duepublico/75282

**URN:** urn:nbn:de:hbz:464-20220120-101422-4

Alle Rechte vorbehalten.