

Berichte aus der Physik

Thomas Frohnmeier

**Abbildung molekularer Dynamik mittels
Femtosekunden-Photoelektronenspektroskopie**

Shaker Verlag
Aachen 2002

Die Deutsche Bibliothek - CIP-Einheitsaufnahme

Frohnmeyer, Thomas:

Abbildung molekularer Dynamik mittels Femtosekunden-
Photoelektronenspektroskopie/Thomas Frohnmeyer.

Aachen : Shaker, 2002

(Berichte aus der Physik)

Zugl.: Würzburg, Univ., Diss., 2001

ISBN 3-8322-0657-4

Copyright Shaker Verlag 2002

Alle Rechte, auch das des auszugsweisen Nachdruckes, der auszugsweisen
oder vollständigen Wiedergabe, der Speicherung in Datenverarbeitungs-
anlagen und der Übersetzung, vorbehalten.

Printed in Germany.

ISBN 3-8322-0657-4

ISSN 0945-0963

Shaker Verlag GmbH • Postfach 101818 • 52018 Aachen

Telefon: 02407 / 95 96 - 0 • Telefax: 02407 / 95 96 - 9

Internet: www.shaker.de • eMail: info@shaker.de

Die Femtosekunden-Photoelektronenspektroskopie wird als eine Spektroskopiemethode vorgestellt, die hervorragend zur Beobachtung der Dynamik in molekularen Systemen geeignet ist. Zur Demonstration der Möglichkeiten wurde sie mit den experimentellen Methoden der Femtosekunden-Pump-Probe-Technik und der Molekularstrahlpräparation kombiniert und Untersuchungen an unterschiedlichen molekularen Zuständen und Systemen durchgeführt.

Im einfachen Modellsystem des Natriumdimers wurde die Vibrationsdynamik der Kerne in den angeregten elektronischen Niveaus über die kinetische Energie der Elektronen abgebildet. Die Orts- und Zeitaufösung erweist sich als geeignet, molekulare Dynamik auf einem sub-Ångström-Maßstab zu untersuchen.

In einer Erweiterung des Experiments konnte nachgewiesen werden, daß die Intensität des Abfragelasers innerhalb eines einfachen eindimensionalen Kontrollschemas als leicht zu regulierendes Steuerungselement eingesetzt werden kann. Die molekularen Potentiale lassen sich wegen ihrer auf den Kernabstand sensitiven Abhängigkeit von der Intensität des Lasers so modifizieren, daß elektronische Übergänge auch bei Kernabständen möglich werden, an denen in einem unbeeinflussten System aufgrund der Energieerhaltung und des Franck-Condon-Prinzips ein Übergang nicht erlaubt ist. Ein Vergleich mit durchgeführten quantenmechanischen Rechnungen zeigt, daß dieser Einfluß auf die durch das Lichtfeld deutlich modifizierten elektronischen Potentiale zurückzuführen ist.

Die Sensitivität der Photoelektronenspektroskopie auf Änderungen in den Übergangswahrscheinlichkeiten bei Laseranregung konnte auch am Doppelminimumzustand des Na_2 nachgewiesen werden, der eine Änderung des Bindungscharakters mit dem Kernabstand aufweist. Bei einer solchen Änderung variiert auch das Übergangselement für einen Übergang aus diesem Zustand und die Photoionisation wird vom Kernabstand abhängig. Die resultierende Modulation des Photoelektronensignals konnte am Doppelminimumzustand in einer ersten Untersuchung experimentell gezeigt werden.

An der Isomerisierungsreaktion des Stilbens wurde demonstriert, daß auch in komplexeren Molekülen mit Hilfe der Femtosekunden-Photoelektronenspektroskopie dynamische Prozesse studiert werden können. Die Bewegung des im Zwischenzustand präparierten Wellenpakets konnte in diesem System in verschiedenen Dimensionen verfolgt werden.

Insgesamt erweist sich die Femtosekunden-Photoelektronenspektroskopie als ein experimentelles Instrument, das durch seine Sensitivität auf von der Kernkonfiguration abhängige Änderungen hervorragend dazu geeignet ist, die ultraschnelle Dynamik eines molekularen Systems in Echtzeit zu beobachten.