

Abbildung molekularer Dynamik
mittels Femtosekunden-
Photoelektronenspektroskopie

Dissertation zur Erlangung des
naturwissenschaftlichen Doktorgrades
der Bayerischen Julius-Maximilians-Universität
Würzburg

vorgelegt von
Thomas Frohnmeier
aus Stuttgart – Bad Cannstatt

Würzburg 2001

Eingereicht am 11. Juli 2001
bei der Fakultät für Physik und Astronomie

1. Gutachter: Prof. Dr. T. Baumert
2. Gutachter: Prof. Dr. G. Gerber
der Dissertation

1. Prüfer: Prof. Dr. T. Baumert
2. Prüfer: Prof. Dr. W. Hanke
der mündlichen Prüfung

Tag der mündlichen Prüfung: 26. November 2001

Doktorurkunde ausgehändigt am

Berichte aus der Physik

Thomas Frohnmeyer

**Abbildung molekularer Dynamik mittels
Femtosekunden-Photoelektronenspektroskopie**

Shaker Verlag
Aachen 2002

Die Deutsche Bibliothek - CIP-Einheitsaufnahme

Frohnmeier, Thomas:

Abbildung molekularer Dynamik mittels Femtosekunden-
Photoelektronenspektroskopie / Thomas Frohnmeier.

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

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	5
2.1	Beschreibung der Dynamik eines Moleküls	5
2.1.1	Born-Oppenheimer-Potentialkurven	5
2.1.2	Ausbildung von Wellenpaketen	9
2.2	Abbildung der Dynamik	10
2.2.1	Pump-Probe-Technik	11
2.3	Wechselwirkung von Licht mit Molekülen	14
2.3.1	Differenzpotentialanalyse nach Mulliken	14
2.3.2	Quantenmechanische Betrachtung	16
2.4	Effekte bei hohen Laserintensitäten	22
2.4.1	Multiphotonenionisation	22
2.4.2	Above-Threshold-Ionisation	22
2.4.3	Ponderomotive Energie und AC-Stark-Shift	23
2.4.4	Rabi-Oszillationen	28
3	Apparativer Aufbau	33
3.1	Femtosekunden-Lasersystem	34
3.2	Molekularstrahlapparatur	37
3.2.1	Präparation des Molekularstrahls	39
3.2.2	Magnetische Flasche	40
3.3	Datenaufnahme	54
3.3.1	Boxcarmessungen	55
3.3.2	Messungen mit dem Oszilloskop	55
3.3.3	Single-Event-Counting	56
4	Vibronische Wellenpakete im Natriumdimer	59
4.1	Abbildung von Wellenpaketen im störungstheoretischen Regime	60
4.1.1	Experiment	60
4.1.2	Messung	62
4.1.3	Diskussion	64
4.1.4	Zusammenfassung	66
4.2	Übergänge in lichtinduzierten Potentialen	66
4.2.1	Eindimensionale Kontrollschemas	67

4.2.2	Experiment	68
4.2.3	Messung	68
4.2.4	Diskussion	73
4.3	Modifikation der Anregungsbedingungen	80
4.3.1	Wellenpaketdynamik im ATI-Signal	81
4.3.2	Selektive Population	84
4.4	Zusammenfassung	86
5	Kernabstandsabhängige Photoionisation	89
5.1	Doppelminimumzustand im Natriumdimer	90
5.2	Experiment	90
5.2.1	Meßaufbau	92
5.2.2	Photoelektronenspektren	93
5.3	Diskussion	97
5.3.1	Kernabstandsabhängige Übergangsmatrixelemente	99
5.3.2	Zeitunabhängiges Elektronensignal	102
5.4	Zusammenfassung	103
6	Dynamik in größeren Molekülen	105
6.1	cis-trans-Isomerisierung in Stilben	106
6.1.1	Potentialenergiefläche	106
6.2	Experimenteller Aufbau	109
6.2.1	Vorexperimente	111
6.3	Wellenpaketdynamik in Stilben	116
6.3.1	Messung	116
6.3.2	Diskussion	119
6.4	Zusammenfassung	123
7	Zusammenfassung	125
A	Dimensionen und Zahlenwerte	129
A.1	Fundamentalkonstanten	129
A.2	Umrechnungen	129
A.3	Parameter für die QM-Rechnungen	131
B	Kalibrierung der Photoelektronen-Spektren	133
B.1	Ortsauflösung bei fs-Messungen	134
B.1.1	Energieauflösung	134
B.1.2	Ortsauflösung	134
B.1.3	Anregung mit Femtosekunden-Laserpulsen	135
C	Aufbereitung von Meßdaten	137
	Literaturverzeichnis	143