

**Teilprojekt A2: Ultraschnelle Vibrationsanregung und Femtochemie an
molekularen Modellsystemen in der Gasphase**

Teilprojektleiter: **Prof. Dr. Ingolf V. Hertel**

Dienstanschrift: Max-Born-Institut (MBI)
Max-Born-Straße 2A, 12489 Berlin und
Freie Universität Berlin, Fachbereich Physik,
Arnimallee 14, 14195 Berlin

Kommunikation: Tel: 0049 30 6392 1200 Fax: 0049 30 6392 1209
E-Mail: hertel@mbi-berlin.de
Internet: <http://staff.mbi-berlin.de/hertel>

Teilprojektleiter: **Dr. Georg Korn**

Dienstanschrift: seit 1.9. 2001 Katana Technologies GmbH
14532 Kleinmachnow, Albert-Einstein-Ring 7

Vertretung: Dr. C. P. Schulz
Dienstanschrift: Max-Born-Institut (MBI)
Max-Born-Straße 2A, 12489 Berlin

Kommunikation: Tel: 0049 30 6392 1252 Fax: 0049 30 6392 1259
E-Mail: cps@mbi-berlin.de
Internet: <http://staff.mbi-berlin.de/cpschulz>

Fachgebiet und **Experimentalphysik, Chemische Physik**

Arbeitsrichtung: **Ultrakurzzeitphysik, Reaktionsdynamik**

Keywords: Ionisationsdynamik von C₆₀, Rydberg-Zustände,
Echtzeituntersuchung der Dissoziation von H₂O

Summary of results in the period 2001-2003

In the last period we continued our investigation of the excitation, ionisation, and fragmentation processes of gas phase C₆₀ fullerenes and water with intensive and ultrashort laser pulses. The experiments with C₆₀ were more focused on the primary photo absorption process and the resulting electron dynamics. One example is the excitation dynamics of the Rydberg states, which have been observed in the above threshold ionisation (ATI) photo electron

peaks. We have studied these Rydberg states intensively to understand their excitation mechanism. Although many questions remain open, we can now identify nonadiabatic multielectron dynamics (NMED) and efficient electron phonon coupling through a doorway state as a key to understanding the experimental observation. Our studies of water aimed towards a selective vibrational excitation by intensive IR pulses in order to control the fragmentation of the asymmetric HDO isotopomer. We were able to excite about 2% of the molecules with an IR fs pulse at an intensity of 10^{12} W/cm². A selective detection of OH and OD was not feasible with the low density of excited molecules. On the other hand, the combination of IR and UV pulses enables us to study the fragmentation dynamics of the electronically excited B, C and D state of water in great detail.

Übersicht über Ergebnisse aus den Jahren 2001-2003

In vergangenen Förderperiode wurden weiterhin die Anregungs-, Ionisations- und Fragmentationsprozesse von C₆₀-Fullerenen und Wasser in der Gasphase mit intensiven, ultrakurzen Laserimpulsen untersucht. Die Experimente am C₆₀ konzentrierten sich zunehmend auf den primären Photoabsorptionsprozess und die damit verbundene Elektronendynamik. Die von uns erstmals beobachteten Rydberg-Zustände wurden intensiv studiert, um deren Besetzungsmechanismus zu verstehen. Auch wenn es hier noch eine Reihe offener Fragen gibt, so sind wir in der vergangenen Förderperiode ein gutes Stück vorangekommen. Die Anregung der Rydberg-Zustände verläuft vermutlich über eine Multielektronenanregung eine „Doorway“, Zustands mit nachfolgender effizienter Kopplung der Elektronenbewegung ans Kerngerüst. Die Arbeiten am Wasser konzentrierten sich zunächst auf die selektive Vibrationsanregung mit Hilfe von intensiven IR-Impulsen, um so z.B. die Fragmentation des asymmetrischen HDO Isotopomers zu steuern. Es gelang bei 10^{12} W/cm² ca. 2% der Moleküle anzuregen, jedoch war eine selektiver Nachweis von OH und OD bei dieser geringen Anregungsdichte nicht möglich. Er zeigte jedoch sich, dass mit Hilfe der IR-Impulse und zusätzlicher UV-Impulse die Fragmentationsdynamik der elektronischen B-, C- und D-Zustände sehr detailliert untersucht werden kann.

Einzelberichte aus dem letzten Berichtszeitraum (2001-2003)

UP1: Steuerung von Ionisations- und Fragmentationsprozessen durch selektive Vibrationsanregung mit ultrakurzen Lichtimpulsen

M. Boyle, C. P. Schulz, I. V. Hertel

Im Mittelpunkt der Untersuchungen der letzten Förderperiode standen auch weiterhin die Anregungs-, Ionisations- und Fragmentationsprozesse von C_{60} . Dabei rückte zunehmend die Frage nach dem primären Photoabsorptionsprozess und der damit einhergehenden Elektronendynamik in den Vordergrund. Ein Beispiel für die durch die Wechselwirkung mit Femtosekunden-Lasern induzierte Elektronendynamik sind die in den „Above Threshold Ionisation“ ATI-Peaks der Photoelektronen entdeckten Rydberg-Zustände des C_{60} [BHS01].

Im Berichtszeitraum wurde die Rydberg-Zustände mit unterschiedlichen Laserparametern wie z.B. Pulsdauer, Chirp, Polarisation und Wellenlänge sehr detailliert untersucht. Ein Beispiel für die beobachteten Photoelektronenspektren bei Ionisation von C_{60} mit unterschiedliche linear-gechirpten Laserimpulsen zeigt Abb. 1. Man sieht eine deutliche Verschiebung der Rydberglinien zwischen positiv und negativ gechirpten Impulsen. Die Verschiebung entspricht etwa der Laserbandbreite. Aus diesem und den weiteren Messungen schließen wir auf folgende Eigenschaften der beobachteten Rydberg-Serien [BHS02]: Die Besetzung erfolgt nicht-resonant, d.h. ohne ausgeprägte, rasch veränderliche Wellenlängenabhängigkeit. Ob-

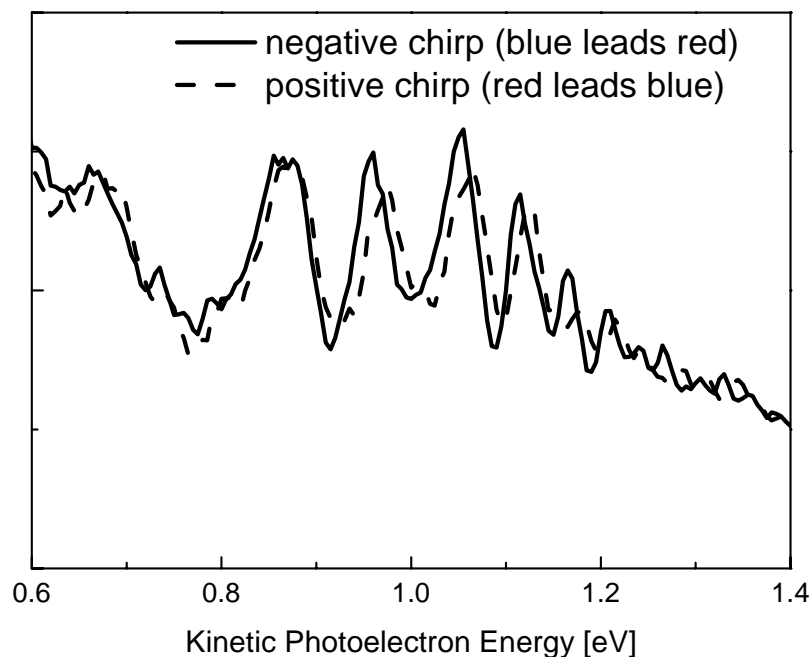


Abb. 1:
Photoelektronenspektren von C_{60} mit unterschiedlich gechirpten Laserimpulsen. Die Verschiebung der Rydberglinien entspricht etwa der Laserbandbreite. Die Rydbergzustände werden im ersten Teil des Laserimpulses besetzt und vorwiegend am Ende des Impulses ionisiert. Die Anregung erfolgt bei 800 nm.

wohl die Rydberglinien am deutlichsten bei niedriger Laserintensität (ca. 10^{11} bis 10^{12} W/cm²) beobachtbar sind, erfolgt die Besetzung auch bei höheren Laserintensitäten. Der Besetzungsprozess muss sehr schnell erfolgen, da die Rydberg-Serien auch durch sehr kurze (25fs) Laserimpulse angeregt werden (wenn auch entsprechend der Unschärferelation verbreitert).

Um die energetische Lage der beobachteten Rydbergserien quantitativ zu verstehen, wurde die Bindungsenergie der Elektronen mit Hilfe der radialen Schrödinger Gleichung im einfachen Zwei-Teilchen-System berechnet. Als Modellpotenzial wurde ein leicht modifiziertes Potenzial von Puska und Nieminen [1] verwendet. Das Ergebnis in Abb. 2 zeigt, dass die von uns beobachteten Rydberglinien im wesentlichen drei Serien mit den Drehimpulsen $l = 3, 5$ und 7 entsprechen [BSH01].

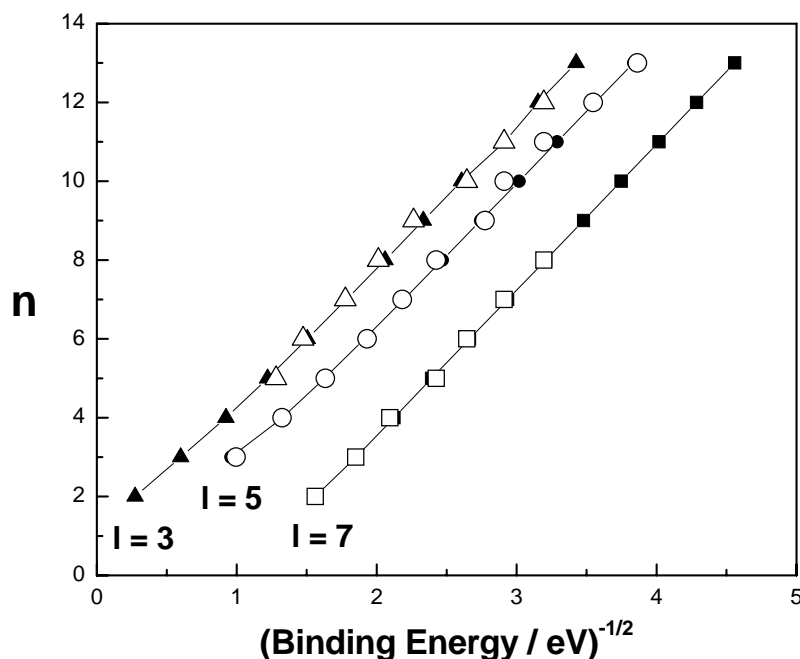


Abb. 2:
Vergleich zwischen berechneten (volle Symbole) und gemessenen (volle Symbole) Energien der Rydberglinien. Es werden drei Serien mit den Drehimpulsen $l = 3, 5$ und 7 beobachtet.

Offen blieb bei dieser Untersuchung bislang, wie die Besetzung der Rydberg-Zustände erfolgt. Ein Ansatz geht davon aus, dass der Wärmehalt der C₆₀ Cluster eine wesentliche Rolle spielt. Wir haben daher in Zusammenarbeit mit der Gruppe von E.E.B. Campbell (Göteborg) vergleichende Messungen an „heißen“ C₆₀ (interne Temperatur ca. 770K) und „kalten“ C₆₀ mit einer inneren Temperatur von 77K durchgeführt. Abb. 3 zeigt einen Vergleich der gemessenen Photoelektronenspektren. Die Rydberg-Anregung ist für kalte Cluster

deutlich reduziert. Auch wenn diese Ergebnisse auf den ersten Blick eine direkte Umwandlung von interner Schwingungsenergie in elektronische Anregung nahe legen, so sprechen

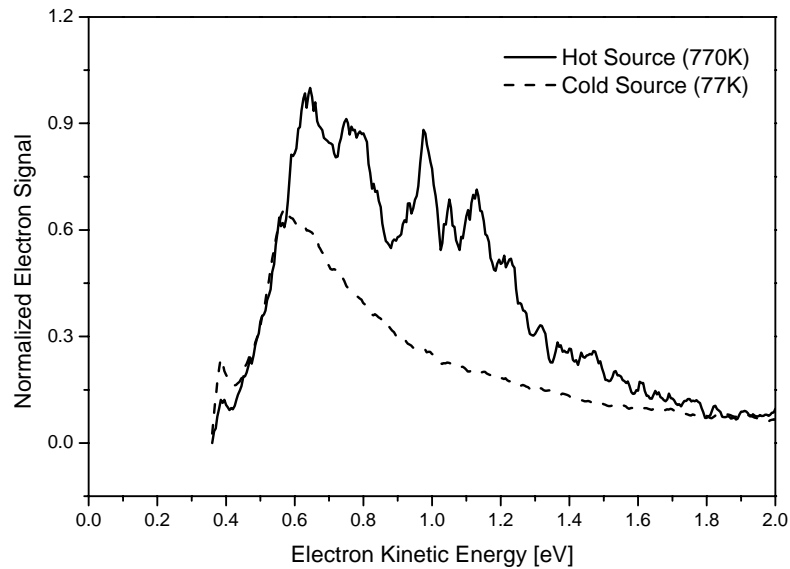


Abb. 3: Vergleich der Photoelektronenspektren von heißem und kaltem C₆₀. Die Anregung erfolgt in beiden Fällen mit $5 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ bei 800 nm.

doch Franck-Condon Argumente stark gegen diese Erklärung.

Wir vermuten dagegen, dass die höhere Schwingungsanregung zu einer stärkeren Elektronen-Phononen-Kopplung führt, wie dies auch z. B. bei 2-Photonen-Photoelektronen Experimenten an Silber-Oberflächen beobachtet wurde [2]: am C₆₀ mit seinen vielen äquivalenten Valenzelektronen kann man den Übergang vom Bild des „Single active electron“ zum Bändermodell, welches bei Oberflächen anzuwenden ist, bereits sehr deutlich beobachten. Als weiteren, nicht resonanten Anregungsmechanismus für die Rydbergzustände muss man schließlich auch die *radiative Rekombination* der Elektronen diskutieren. Dieser Prozess ist z.B. stets ein begleitender Mechanismus bei der Erzeugung von höheren Harmonischen – ohne dass dort in der Regel davon gesprochen wird. Damit stünde Rydberganregung, Ionisationsprozess und die Erzeugung von höheren Harmonischen in sehr engem Zusammenhang. Es wird weiterer, sehr selektiver Untersuchungen bedürfen, die Mechanismen für Energie-Eintrag und -Umverteilung auch nur semiquantitativ zu verstehen, um sie sodann steuern zu können.

In einem ersten Schritt zum weiteren Verständnis der Elektronen- und der daraus resultierenden Kerndynamik wurden im Berichtszeitraum erstmals Pump-Probe-Messungen an C₆₀ er-

folgreich durchgeführt. Sehr aufschlussreich sind dabei Zweifarben-Pump-Probe Untersuchungen der Rydberganregung. Ein Beispiel zeigt Abb. 4. Hier ist die Photoelektronenausbeute als Funktion der kinetischen Energie und der Verzögerung zwischen einem 800nm- und einem 400nm-Laserimpuls dargestellt. Man erkennt deutlich die Rydberglinien, die von der Mitte des Bildes ausgehend nach links in ihrer Intensität abnehmen. Die Besetzung erfolgt in diesem Fall durch den führenden 400nm-Impuls und die Ionisation durch den 800nm-Impuls. Bei umgekehrter Reihenfolge der Impulse werden bei den gewählten Laserintensitäten keine Rydberglinien beobachtet. Eine detaillierte Auswertung zeigt, dass die Rydbergzustände sehr schnell besetzt werden, die Elektronenausbeute innerhalb von ca. 300 fs um ca. 10–50% (je nach Laserintensität) abnimmt und dann für einige ps konstant bleibt. An einer Interpretation dieser Befunde wird derzeit - auch in Lichte neuer theoretischer Ergebnisse [3] - gearbeitet [BSH]. Nichtadiabatische-Multielectron-Dynamik und effiziente Elektron-Phonon Kopplung ist hierbei vermutlich der Schlüsselmechanismus.

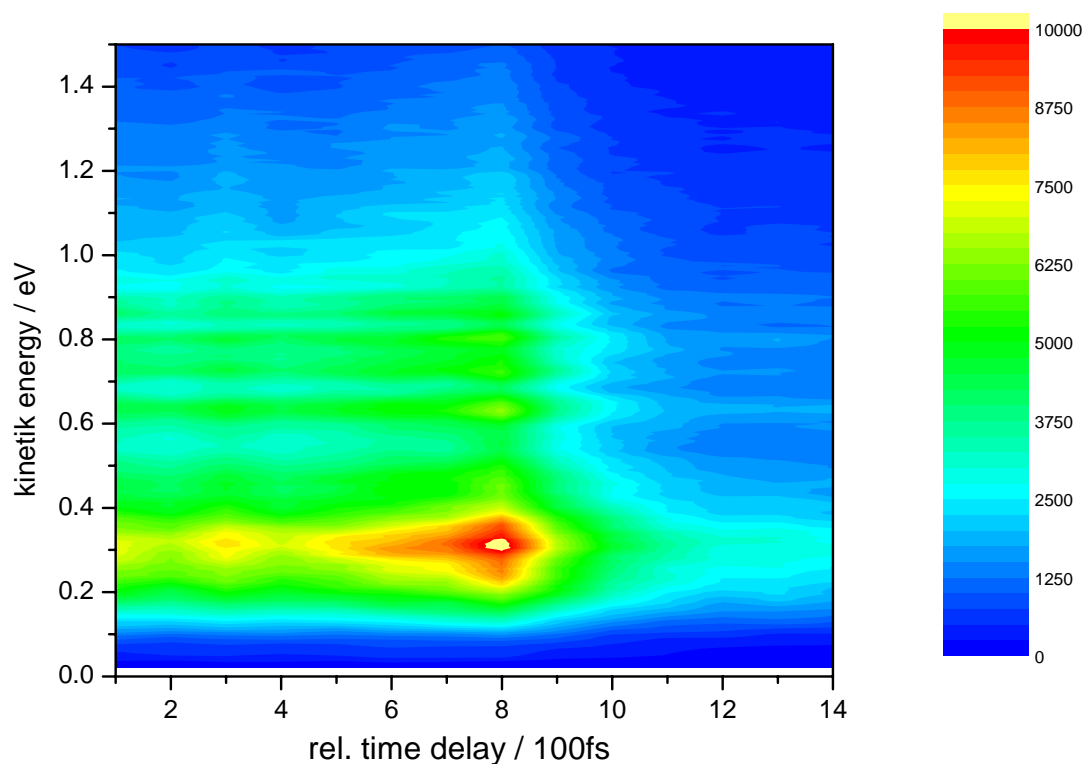


Abb. 4: Photoelektronenausbeuten als Funktion der kinetischen Energie und Verzögerung zwischen einem 400nm und einem 800nm Laserimpuls. Die beiden Impulse überlappen ($t = 0$) bei 800 fs relativer Verzögerungszeit. Auf der linken Seite erfolgt die primäre Anregung durch den 400nm Impuls und die Ionisation durch den 800nm Impuls, auf der rechten Seite ist die Reihenfolge vertauscht. Die Rydberglinien werden nur bei Anregung durch den 400nm Impuls beobachtet.

Ein weiteres, sehr interessantes Ergebnis unserer Pump-Probe Messungen ist die beobachtete direkte Bildung kleiner C_n -Fragmente ($n < 4$) aus (vermutlich) neutralem C_{60} . Wie in Abb. 5 gezeigt, werden die von uns beobachteten kleinen Fragmente nach ca. 10 bis 20 ps gebildet, im Gegensatz zu der üblicherweise beobachteten statistischen Fragmentation (C_2 „Abdampfen“), deren Zeitkonstanten durch die Exploration des Phasenraums (RRKM) im Bereich von Nanosekunden bis Mikrosekunden liegt. Zeitabhängige Dichtefunktional-Rechnungen von Frauenheim und Mitarbeitern [4] sowie Arbeiten, die in Teilprojekt C4 durchgeführt wurden [5] zeigen ebenfalls die Bildung kleiner Fragmente nach Photoanregung. Diese Rechnungen wurden allerdings bei anderen Laserparametern durchgeführt und sind daher nicht direkt mit unseren Messungen vergleichbar. Für die Planung künftiger weiterer Experimente und deren Interpretation wird die mit den theoretischen Teilprojekten C2 und C6 für die kommende Förderperiode abgesprochene, direkte Unterstützung außerordentlich wertvoll sein.

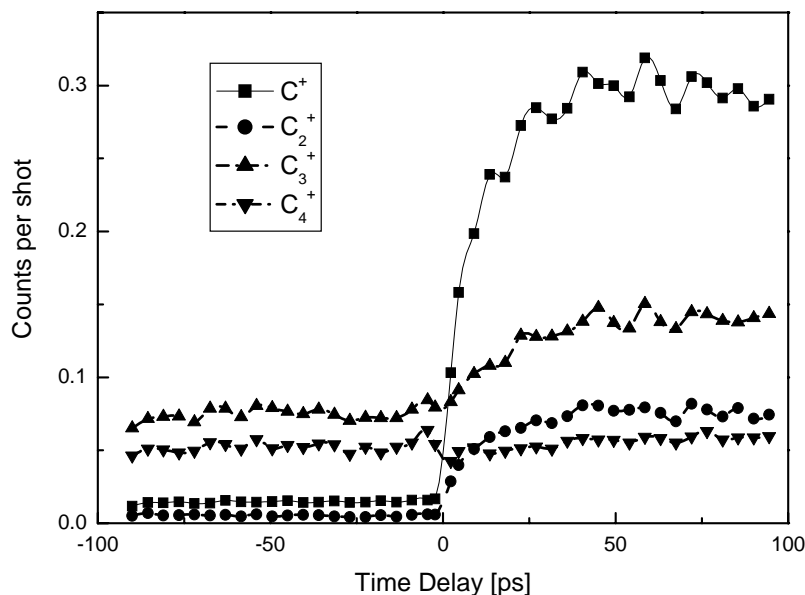


Abb. 5:

Bildung kleiner C_n -Fragmente nach Anregung mit $1,8 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (Pumpimpuls) und Ionisation mit $5,0 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (Probepuls). (Wellenlänge: 800 nm)

Die Winkelverteilung der Photoelektronen gibt einen weiteren Einblick in die Anregungs- und Ionisationsdynamik. Wir haben die Winkelverteilung für die ATI-Peaks vermessen und dabei charakteristische Unterschiede je nach Anzahl der oberhalb der Ionisationsschwelle absorbierten Photonen beobachtet. Eine Interpretation der Ergebnisse wird derzeit gemeinsam mit E. Cormier (Bordeaux) erarbeitet.

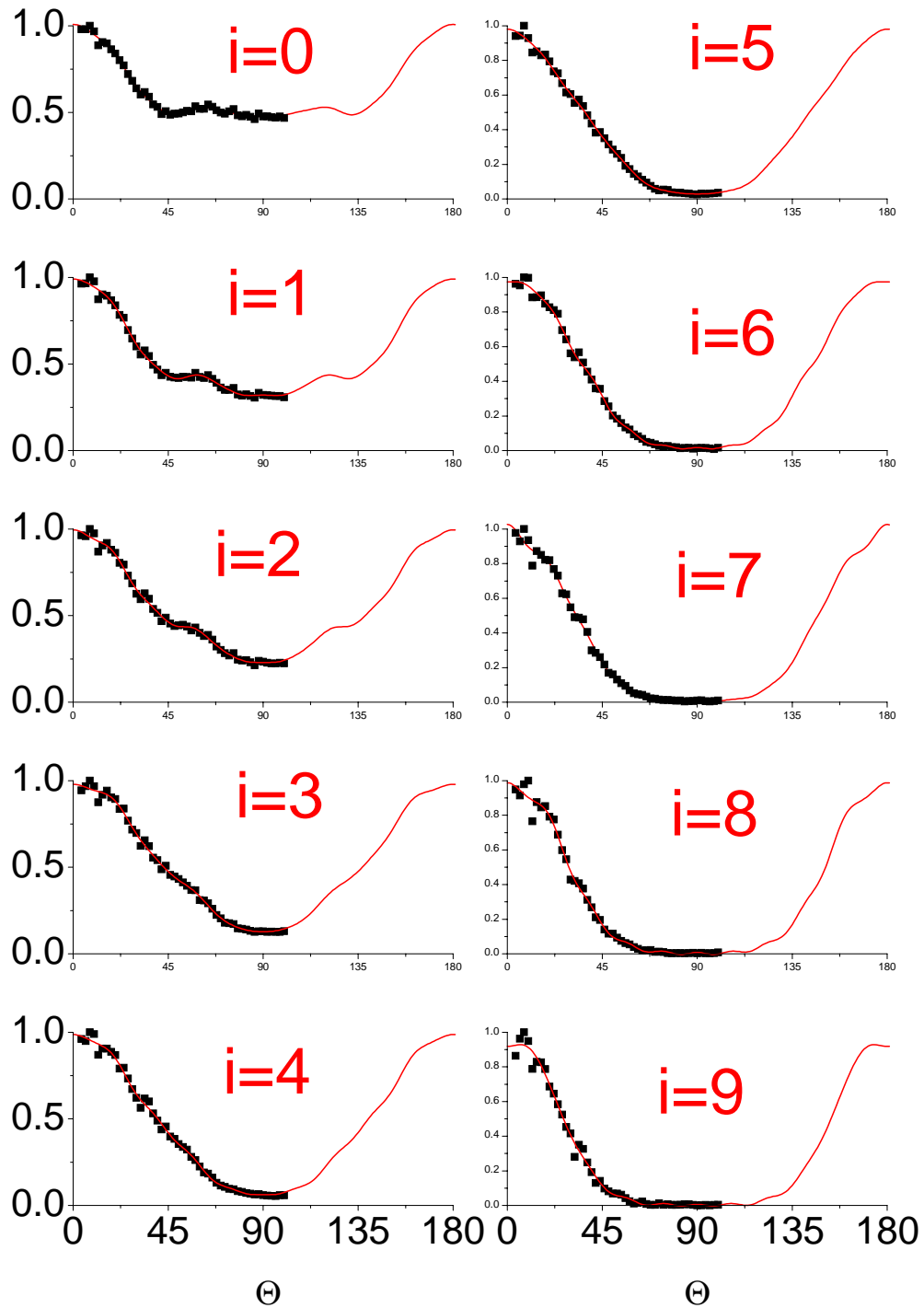
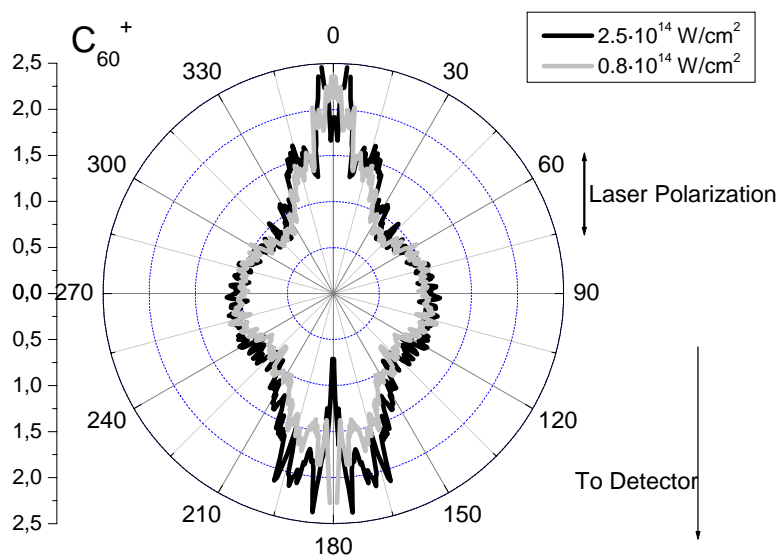


Abb. 6: Winkelverteilung der Photoelektronen für verschiedene ATI-Peaks i oberhalb der Ionisationsschwelle (Wellenlänge: 790 nm)

**Abb. 7:**

Winkelverteilung der Photoelektronen im Energiebereich zwischen 0,5 und 1,1 eV für zwei verschiedene Laserintensitäten (Wellenlänge: 790 nm). Die Registrierung der Photoelektronen erfolgte in Koinzidenz mit dem C_{60}^+ Ion.

Während bei diesen ersten Messungen alle Photoelektronen registriert wurden, konnten wir kürzlich erste korrelierte Photoelektronen-Photoionen-Spektren aufnehmen, wie beispielhaft in Abb. 7 gezeigt. Die Experimente wurden gemeinsam mit H. Rottke von unserem Institut durchgeführt. Diese ersten vielversprechenden Messungen ergaben eine Fülle von Daten, die derzeit ausgewertet werden.

UP2: Erprobung der Pump-Control Technik am Beispiel der modenspezifischen Anregung und Dissoziation von HDO

O. Steinkellner, W. Radloff, G. Korn, I. V. Hertel

Ursprüngliches Ziel dieses Unterprojektes war es, die Dissoziationsdynamik des freien H_2O - bzw. HDO - Moleküls in der Gasphase zu untersuchen und durch Voranregung selektiv zu modifizieren. Dafür sollte insbesondere impulsive Ramananregung, aber auch, aufbauend auf theoretischen Vorhersagen aus Teilprojekt C1, direkte IR Anregung im Grundzustand erprobt werden. Die im Rahmen des SFB etablierte, kontinuierliche Diskussion mit TP C1 wie auch mit TP A4 erwies sich als sehr hilfreich und stimulierend.

Für die impulsive Ramananregung konnten Laserimpulse eingesetzt werden, die durch Selbst-

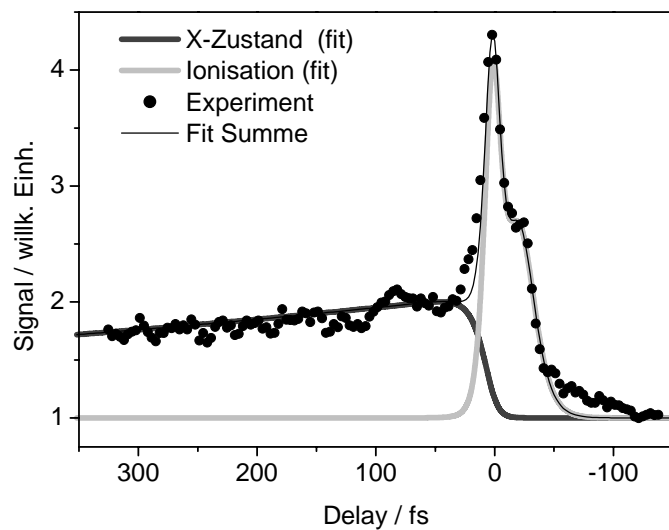


Abb. 8:

Transientes HDO^+ Ionensignal als Funktion der Verzögerung zwischen Pump- (800 nm, 8 fs) und Abtastimpuls (400 nm). Pulsdauer des Pumpimpulses: 15 fs, Impulsenergie: 70 μJ

phasenmodulation in mit Edelgas gefüllten Hohlfasern auf Impulsdauern von 15 fs bei 800 nm und 8 fs bei 400 nm verkürzt wurden. Die Impulsdauern liegen damit in der Größenordnung einer molekularen Schwingungsperiode, ihre Energie (70 μJ) bei 800 nm erlaubt eine intensive Vibrationsvoranregung von H_2O , D_2O und HDO durch impulsive Ramanstreuung. Als Nachweis diente hierbei Multiphotonenionisation bei 400 nm. Wie in Abb. 8 illustriert, kann durch die Einstrahlung der Laserpulse bei 800 nm mit einer Intensität von bis zu 10^{14} W/cm^2 in der Tat Wasser vorangeregt werden, was zu einer deutlich erhöhten Ionisationsrate führt.

Zusätzlich treten weitere dynamische Effekte auf, welche sich in einer Lebensdauer dieser Signalüberhöhung von 900 fs manifestieren, deren Ursache bislang noch nicht eindeutig geklärt werden konnte. Diese sehr vielversprechenden Arbeiten [SWK01] konnten durch den unerwarteten Weggang von zwei Haupterfahrungsträgern des MBI (Dr. Wittmann und Dr. Korn, Teilprojektleiter) leider nicht mehr mit der wünschenswerten Intensität vorangetrieben werden, sollen aber in Zukunft mit in der kommenden Förderperiode mit neuen Konzepten wieder aufgenommen werden. Komplementär zu diesem Teilprojekt gelang Korn aber in der letzten Phase seiner Tätigkeit am MBI die Erzeugung kürzester Impulse mit einem Rekord bei 3.8 fs [6] im Rahmen eines im Normalverfahren der DFG geförderten Vorhabens. Dr. Zhavoronkov wird in der neuen Förderperiode im SFB mitwirken, so dass die Früchte und Erfahrungen aus jener Arbeit unmittelbar in das Programm für die kommende Förderperiode einfließen werden. Offen ist u.a. die interessante Frage, ob es sich bei dem am Wassermolekül

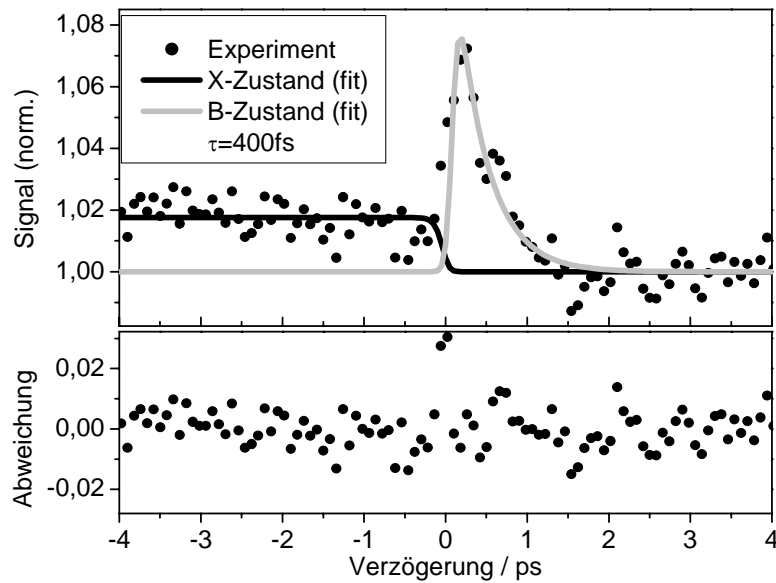


Abb. 9: Transiente OH/OD-Fluoreszenzsignale aus HDO, Anregung: 3630 nm; Dissoziation: 254 nm – Die experimentellen Messpunkte werden durch ein Dreizustandsmodell (optische Blochgleichungen mit zusätzlichen Relaxationstermen für den angeregten B-Zustand) beschrieben, welches bei Annahme einer Vibrationsanregung des Grundzustands von 2% zu guter Übereinstimmung mit dem Experiment führt.

beobachteten Phänomen um „rotational alignment“ und dessen Relaxation handelt, was ggf. auch interessante Perspektiven für die Erzeugung ultrakurzer Impulse hat (s. z.B. [7]).

Dagegen kann die Untersuchung der Möglichkeiten zur direkten Voranregung von Vibrationszuständen im Grundzustand des H_2O durch Infrarotabsorption als abgeschlossen betrachtet werden, wobei wir hier an die Grenzen des technisch und physikalisch Erreichbaren gestoßen sind (s. [Ste2003]): Für die direkte IR Anregung konnten wir eine am MBI entwickelte Technik einsetzen. Diese basiert auf einem optisch parametrischer Verstärker mit $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ [8]. Das System erzeugt intensive Laserimpulse im mittleren Infrarot ($3.6 \mu\text{m}$) mit einer Energie von $25 \mu\text{J}$ bei einer Impulsdauer unter 100 fs. Der Nachweis der Anregung erfolgte hier über Fluoreszenz des angeregten OH-Radikals, das nach weiterer Photoanregung als Dissoziationsprodukt entsteht. Zur kohärenten Kontrolle der Dissoziation von HDO ist die Voranregung eines vibrationellen Superpositionszustands notwendig. Dies wurde durch Anregung der Kombinationsschwingungen (030)-(110) um 4100 cm^{-1} und (020)-(100) um 2750 cm^{-1} mit ultrakurzen Laserimpulsen bei Wellenlängen von $2.4 \mu\text{m}$ und $3.6 \mu\text{m}$ getestet. Die Dissoziation erfolgte hier über den zweiten elektronisch angeregten Zustand (B-Zustand). Da bei diesem Niveau ein Fragmentationskanal existiert, der OH/OD im elektronisch angeregten Zustand liefert, kann die Fragmentation über die spontane Fluoreszenz von OH(A)/OD(A) verfolgt werden. Zudem sind die Übergänge ($A^2\Sigma, v=0$) \rightarrow ($X^2\Pi, v=1$) von

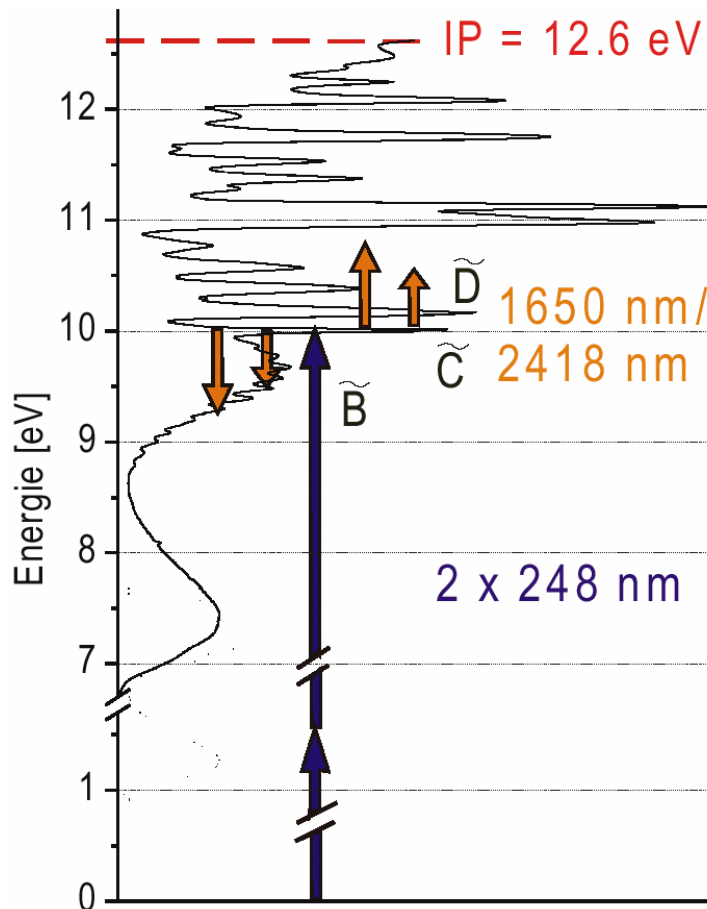


Abb. 10:

Absorptionsspektrum von Wasser (nach [9], [10] und [11]) und Pump-Probe-Anregungsschema zur Untersuchung des C-Zustands von Wasser (H_2O bzw. D_2O). Der Nachweis erfolgte über die Fluoreszenz des Dissoziationsprodukts OH bzw. OD bei 308 nm. Ein analoges Pump-Probe-Schema wurde für die Untersuchung des D-Zustands verwendet, wobei zwei 244nm Photonen zur Anregung des Zustands führten.

OH und OD spektral deutlich getrennt, was die massenselektive Detektion erleichtern sollte. Wie in Abb. 9 illustriert,

ergaben sich mit Anregungsintensitäten im Infraroten von bis zu 10^{12} W/cm^2 Signalerhöhungen von etwa 2% bei Detektion der (nicht massenselektierten) Fluoreszenz zwischen den vibrationellen Grundzuständen, die zudem teilweise durch eine Verschiebung der Reaktion hin zu dem spontan fluoreszierenden Dissoziationskanal bedingt sind. Damit kann zwar eine vibrationelle Voranregung nachgewiesen werden, eine selektive Detektion von OH und OD ist jedoch nicht möglich. Eine Variation der Dissoziationswellenlänge hingegen macht den Einfluss nichtadiabatischer Kopplungsprozesse deutlich: Abhängig von der Dissoziationswellenlänge kann mit Hilfe eines zusätzlichen Photons im infraroten Spektralbereich entweder der spontan fluoreszierende Kanal bevorzugt angesteuert oder der Durchgang durch eine konische Durchschneidung stimuliert werden. Bei HDO konnten Durchgangszeiten von 0.7 ps bei einer Anregung mit 9.48 eV und von 1.2 ps bei einer Anregung mit 9.39 eV ermit-

telt werden. So konnte im Zuge dieser Untersuchungen – etwas über das ursprüngliche Thema

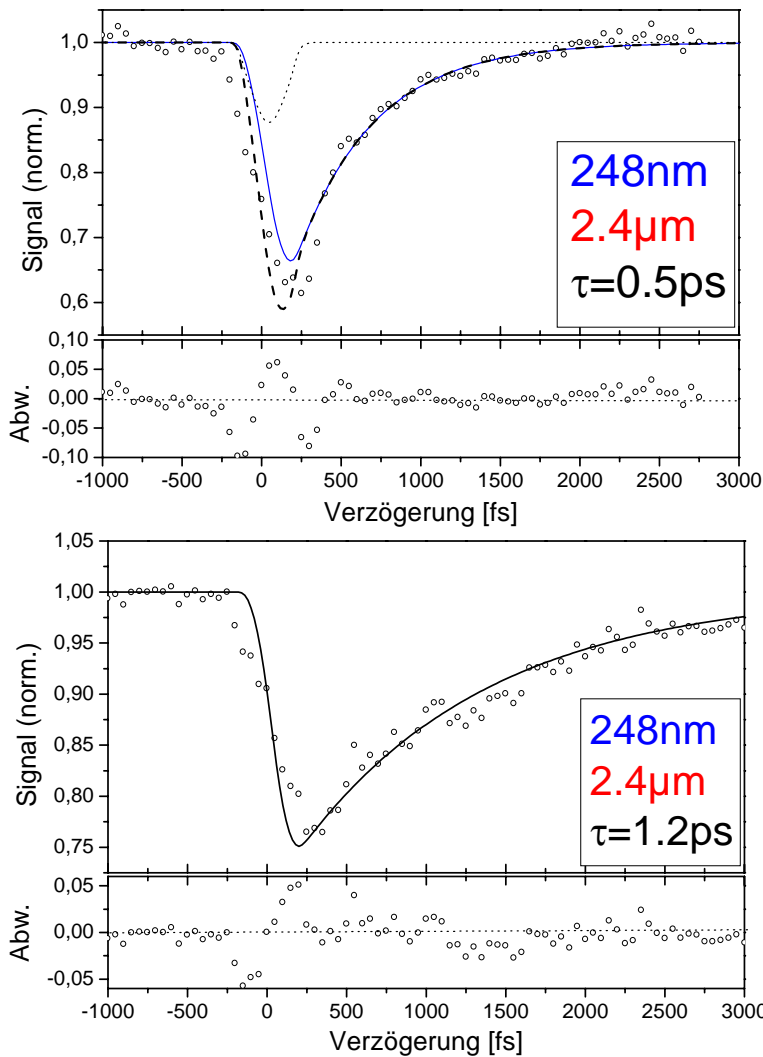


Abb. 11: *Transiente OH/OD-Fluoreszenzsignale aus H₂O bzw. D₂O aufgenommen nach dem Anregungsschema aus Abb. 10. Die relativ lange Lebensdauer im ps-Bereich kann durch eine Rotations-Prädissoziation erklärt werden.*

hinausgehend – eine ganze Reihe neuer Informationen über die Dissoziationsdynamik von Wasser und seinen Isotopomeren in den ersten angeregten Zuständen gewonnen werden.

Diese Untersuchungen wurden schließlich auch auf die ersten beiden Rydberg-Zustände (C- und D-Zustand) ausgedehnt. Dabei wurden beide Niveaus durch Zweiphotonen Absorption angeregt und mit infraroten Laserpulsen unterschiedlicher Wellenlänge abgetastet, wie dies in Abb. 10 für den C-Zustand skizziert ist. Dies führt in allen Fällen zu einer Entvölkerung des spontan fluoreszierenden Dissoziationskanals. Der Vergleich der transienten Fluoreszenzsignale bei den unterschiedlichen Isotopomeren erlaubt Rückschlüsse auf die Prädissoziations-

mechanismen: Dem C-Zustand kann eine durch Rotation vermittelte heterogene Prädissoziation mit Reaktionszeiten von 0.5 ps bei H₂O und 1.2 ps bei D₂O zugeordnet werden (siehe Abb. 11). Der D-Zustand zeigt dagegen die aus spektral hochaufgelösten Messungen bekannte und durch die starke Kopplung zum B-Zustand bedingte homogene Prädissoziation mit Reaktionszeiten unter 100 fs. Die Ergebnisse sind in [Ste03] zusammengefasst.

Aufbauend auf den bisherigen Ergebnissen dieses Unterprojekts lässt sich zusammenfassend feststellen: a) die impulsive Ramananregung von Wasser und seinen Isotopomeren mit sehr kurzen Impulsen weist sehr interessante Perspektiven für die kontrollierte Steuerung der Dynamik dieses so grundlegenden Systems auf, b) eine direkte Infrarotanregung zur Steuerung mit den derzeit verfügbaren fs Lichtquellen beim System Wasser wurde als nicht sehr erfolgversprechend identifiziert; c) ein systematisches Studium der ultraschnellen Dissoziationsdynamik des ersten angeregten Zustands des isolierten Wassermoleküls und von Wasserclustern stellt nach wie vor eine große, interessante Herausforderung dar, die vor allem signifikante Fortschritte bei den Laserquellen hin zu deutlich kürzeren Impulsdauern im vakuumultravioletten Spektralbereich erfordert. Solche Entwicklungen werden derzeit am MBI vorangetrieben. Entsprechende dynamische Untersuchungen mit diesen Quellen sind für die kommenden Förderperiode als wesentlicher Programmpunkt dieses Teilprojekts geplant.

Referenzen:

- [1] M.J. Puska, R.M. Nieminen, *Phys. Rev. A* **47**, 1181 (1993).
- [2] E. Knoesel, A. Hotzel, T. Hertel, M. Wolf, G. Ertl, *Surf. Sci.* **368**, 76 (1996).
- [3] G. P. Zhang, X. Sun and T. F. George, *Phys. Rev. B* **68**, 15 (2003).
- [4] B. Torralva, T. A. Niehaus, M. Elstner, S. Suhai, T. Frauenheim, and R. E. Allen, *Phys. Rev. B* **64**, 153105 (2001).
- [5] H. O. Jeschke, M. E. Garcia and J. A. Alonso, *Chem. Phys. Lett.* **352**, 154-62 (2002)
- [6] N. Zhavoronkov and G. Korn, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 203901 (2002).
- [7] R. A. Bartels, T. C. Weinacht, N. Wagner, M. Baertschy, C. H. Greene, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 013903 (2002).
- [8] V. Petrov, F. Rotermund, and F. Noack, *Appl. Opt.* **37**, 8504 (1998).

- [9] J. H. Fillion, R. van Harrevelt, J. Ruiz, M. Castillejo, A. H. Zanganeh, J. L. Lemaire, M. C. van Hemert, and F. Rostas, *J. Phys. Chem. A* **105**, 11414 (2001).
- [10] K. Yoshino, J. R. Esmond, W. H. Parkinson, K. Ito, and T. Mat-sui, *Chem. Phys.* **211**, 387 (1996).
- [11] K. Yoshino, J. R. Esmond, W. H. Parkinson, K. Ito, and T. Mat-sui, *Chem. Phys.* **215**, 429 (1997).

Veröffentlichungen des Teilprojekts

- [BHS01] M. Boyle, K. Hoffmann, C. P. Schulz, I. V. Hertel, R. D. Levine, and E. E. B. Campbell, *Excitation of Rydberg series in C₆₀*, *Physical Review Letters* **87**, 273401/1 (2001).
- [BHS02] M. Boyle, K. Hoffmann, C. P. Schulz, I. V. Hertel, and E. E. B. Campbell, *First experimental observation of Rydberg series in C₆₀*, in *Femtochemistry and Femtobiology*, edited by A. Douhal and J. Santamaria (World Scientific, Singapore, 2002), p. 126.
- [CHR01] E. E. B. Campbell, K. Hoffmann, H. Rottke, and I. V. Hertel, *Sequential ionization of C₆₀ with femtosecond laser pulses*, *The Journal of Chemical Physics* **114**, 1716 (2001).
- [CHH01] E. E. B. Campbell, K. Hoffmann, and I. V. Hertel, *The transition from direct to delayed ionisation of C₆₀*, *The European Physical Journal D* **16**, 345 (2001).
- [HHC03] K. Hansen, K. Hoffmann, and E. E. B. Campbell, *Thermal electron emission from the hot electronic subsystem of vibrationally cold C₆₀*, *Journal of Chemical Physics* **119**, 2513 (2003).
- [SWK01] O. Steinkellner, M. Wittmann, G. Korn, and I. V. Hertel, *Two-color pump-probe ionization spectroscopy of gaseous water enhanced by preliminary impulsive Raman excitation*, *Applied Physics B* **73**, 279 (2001).
- [BSH] M. Boyle, C.P. Schulz, I.V. Hertel, *Internal Energy Dependence of the Population of Rydberg Series in C₆₀*, in Vorbereitung.

Dissertationen:

[Ste03] O. Steinkellner, *Ultraschnelle Vibrationsanregung und zeitaufgelöste Untersuchungen zur Dissoziation von Wasser in der Gasphase*, Fachbereich Physik der FU Berlin, Dec. 2003), Betreuer: I.V. Hertel

Mitarbeiter:

Prof. Dr. Ingolf V. Hertel, Dr. G. Korn (bis Sept. 2001), Prof. Dr. W. Radloff, Dr. C.P. Schulz, M.Boyle, I. Shchatsinin (seit Sept. 2003), A. Stalmashonak (seit Okt. 2003), O. Steinkellner, A. Thoß (bis Nov. 2002),