Beugung von Neon- und Wasserstoffgasstrahlen an einem Transmissionsgitter und Untersuchung des H_2-Dimers

Bachelorarbeit

von
Derya Aslitürk

Institut für Kernphysik,
Johann Wolfgang Goethe-Universität
Frankfurt am Main

Betreuer und Erstgutachter:
Prof. Dr. Reinhard DÖRNER

Zweitgutachter:
Stefan ZELLER

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung **3**

2 Theoretischer Hintergrund **5**
2.1 Moleküle . . . 5
2.1.1 Van-der-Waals-Bindung . . . 6
2.2 Neon und seine Cluster . . . 7
2.3 Wasserstoffatom, Molekül und Cluster . . . 8
2.4 Beugung . . . 12
2.4.1 Licht . . . 12
2.4.2 Materiewelle . . . 14
2.4.3 Materiebeugung . . . 14
2.5 Coulomb-Explosion . . . 17

3 Experimenteller Aufbau **18**
3.1 Gasstrahl . . . 18
3.2 Transmissionsgitter . . . 20
3.3 Lasersystem . . . 21
3.4 COLTRIMS . . . 21
3.5 Spektrometer . . . 21
3.6 Detektoren . . . 22
3.6.1 Micro Channel Plate (MCP) . . . 22
3.6.2 Delayline-Anode . . . 23
3.7 Signalverarbeitung und Datenaufnahme . . . 24

4 Datenanalyse und Kalibration **25**
4.0.1 Flugzeiten und Auftrefforte . . . 25
4.0.2 Ionenimpulse . . . 25
4.0.3 KER . . . 27

5 Auswertung **28**
5.0.4 Flugzeitspektren . . . 28
5.0.5 Beugungsbilder . . . 30
5.0.6 Messungen am (H_2)-Dimer . . . 38
5.0.7 Geometrische Struktur des (H_2)-Dimers . . . 41

6 Zusammenfassung und Ausblick **51**

7 Anhang **52**

8 Danksagungen **53**

1 Einleitung

'Einstein sagte, die Welt kann nicht so verrückt sein. Heute wissen wir, die Welt ist so verrückt.' (Daniel M. Greenberger)

Früher erschien es selbstverständlich, dass sich die Bewegung aller Teilchen durch die Gesetze der klassischen Mechanik beschreiben lässt. Mittlerweile ist bekannt, dass Teilchen Welleneigenschaften haben.
Zuerst belegte Albert Einstein durch den Photoeffekt, dass Licht sowohl Teilchen als auch Welleneigenschaften hat und je nachdem welche Eigenschaft gemessen wird, eines der beiden Modelle die bessere Beschreibung liefert; Wellenmodell (Interferenz, Beugung) und Teilchenmodell (Absorption, Emission). Diese beiden Modelle des Lichtes widersprechen einander nicht. Aus dieser Erkenntnis folgerte Louis de Broglie, einer der bedeutendsten Physiker des 20. Jahrhunderts, dass ebenfalls Teilchen Welleneigenschaften haben müssten. Drei Jahre später (1927) wurde dieses Postulat durch Davisson und Germer mit Elektronen am Doppelspalt bewiesen [Dem05]. Kurz darauf gelang es Estermann und Stern die Beugung von H_2- und He-Molekularstrahlen zu beobachten [Fri33]. Aktueller wurde die Beugung von massiveren Fullerenen C_{60} und C_{70} von der Experimentalphysik–Arbeitsgruppe der Universität Wien aufgenommen [ArNai].
In der vorliegenden Arbeit wird die Welleneigenschaft von Neon- und Wasserstoff durch Beugung eines Gasstrahles an einem Transmissionsgitter mit 100 nm Gitterperiode demonstriert. Die de Broglie Wellenlängen der Teilchen betragen wenige Pikometer. Der Gasstrahl wird durch eine adiabatische Expansion erzeugt und an einem beweglichen Gitter gebeugt. Bei tiefen Temperaturen, weist der Gasstrahl besondere Eigenschaften auf. Aus den atomaren Teilchen bilden sich molekulare Verbunde, auch Cluster genannt, die sehr schwach gebunden sind. Der kleinste Verbund wird als Dimer bezeichnet und hat die doppelte Masse des Atoms. Edelgase und Moleküle, die unter Normalbedingungen keine Bindung eingehen können, kommen in einem gekühlten Gasstrahl in Verbindungen vor. Deshalb werden Beugungsbilder für Neon und Wasserstoff bei jeweils zwei unterschiedlichen Temperaturen aufgenommen um deren Bindungsverhalten bei verschiedenen experimentellen Parametern zu untersuchen. Je nach Wellenlänge, wobei diese von dem Impuls also Masse und Geschwindigkeit abhängt, werden die Teilchen unterschiedlich gebeugt und können räumlich separiert werden.
Die Detektion der Teilchen erfolgt nach dem COLTRIMS-Prinzip. Die Beugungsordnungen werden nacheinander durch Verfahren des beweglichen Gitters auf die Spektrometerachse projiziert und mit einem Laser überlappt. Die durch die Ionisation entstandenen geladenen Fragmente werden mit einem elektrischen Feld auf die Detektoren beschleunigt. Anhand der gemessenen Flugzeiten und Auftrefforte können Rückschlüsse über die Struktur und Größen der ursprünglichen Moleküle gemacht werden.
In dem Beugungsbild für Wasserstoff hat sich die erste Beugungsordnung für Wasserstoffmolekül-Dimere erkennen lassen. Deshalb hat sich eine weitere Zielsetzung der Bachelorarbeit ergeben und zwar die Untersuchung des Dimers hinsichtlich seines intermolekularen und internuklearen Abstandes, seiner Aufbruchsenergie und seiner Struktur. Im Folgenden ist die Arbeit so gegliedert, dass zuerst die Theorie erklärt wird um den physikalischen Hintergrund zu verstehen. Darunter werden Begriffe wie Moleküle, Beugung und Ionisation

erläutert. Im Anschluss wird der experimentelle Aufbau vorgestellt mit der dazugehörigen Elektronik und zum Schluss werden die Ergebnisse vorgestellt.

2 Theoretischer Hintergrund

2.1 Moleküle

Atome bilden Moleküle, wenn es energetisch günstig, also deren potentielle Energie im Molekül niedriger ist. Es gibt theoretische Modelle die zur Beschreibung der Moleküle dienen wie zum Beispiel die LCAO Näherung oder die Methode von Heitler-Londen, die in der Literatur [Hak02] ausführlich nachzulesen ist. Die Idee bei der LCAO Näherung ist die, das Molekülorbital durch die linear Kombination der Wellenfunktionen der atomaren Orbitale Φ_n der beteiligten Atome zu beschreiben.

$$\Psi = \sum_n c_n \Phi_n \tag{2.1}$$

demnach resultiert für die bekannte Schrödinger-Gleichung

$$\widehat{H}\Psi = E\Psi \tag{2.2}$$

für ein diatomares Molekül:

$$\widehat{H}(c_a\Phi_a + c_a\Phi_a) = E(c_a\Phi_a + c_a\Phi_a) \tag{2.3}$$

wobei $\widehat{H}$ der molekulare Hamilton-Operator ist. Versucht man diese Schrödinger Gleichung zu lösen, so ergeben sich zwei unterschiedliche Energieeigenwerte, die einer bindenden und antibinden Wellenfunktion zugeordnet werden können [ATO14]. Die bindende Wellenfunktion wird auch als die gerade Wellenfunktion bezeichnet, bei der die Wellenfunktionen der Atome addiert werden. Dementsprechend wird die Wellenfunktion bei ungerade subtrahiert. Für die Energieeigenwerte folgt:

$$E_\pm = \frac{\alpha \pm \beta}{1 \pm S} \tag{2.4}$$

Dabei nimmt S Werte zwischen 0 und 1 an und ist die Überlappung der Atomorbitale; S = 0 bei unendlichem Abstand, S = 1 bei vollständiger Überlagerung. α ist die Energie im atomaren Zustand und β ist das Bindungsintegral und entspricht der Übergangswahrscheinlichkeit.
Das einfachste Beispiel für eine solche Bindung bildet das Wasserstoffmolekül. Das Wasserstoffatom hat ein Elektron im 1s Zustand. Die Addition der Wellenfunktionen der zwei Atome führt zu einem bindenden Molekülorbital, bei dem die Elektronendichte zwischen den Kernen lokalisiert ist (siehe Abb.2.1 unten). Die Subtraktion der Wellenfunktionen führt zu einem antibindenden Molekülorbital, was zu einer Knotenebene zwischen den Kernen und damit eine gerine Elektronendichte zufolge hat. Dies führt zu einer Abstoßung der Kerne (Siehe Abb. 2.1) [Dem05].

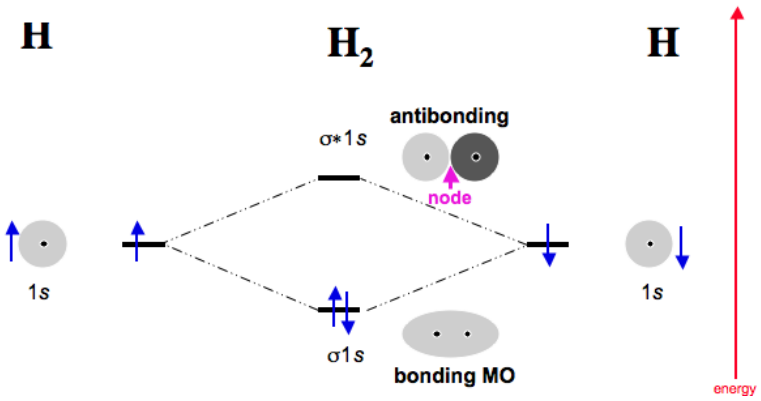

Abbildung 2.1: Mögliche Überlagerungen zweier Atomorbitale. Unten bei gerader Wellenfunktion, oben bei ungerader Wellenfunktion (aus [CheDi])

Ob sich nun Moleküle bilden, hängt von der Lage der Energieniveaus der Molekülorbitale ab. Nach dem Pauli-Prinzip müssen sich die Spins der beiden 1s Elektronen unterscheiden. Sie besetzen in erster Stelle den energetisch niedriegen Zustand und bilden ein σ-Molekülorbital. Wie aus der Abb. 2.1 zu erkennen ist, ist es energetisch günstiger, dass ein Wasserstoff bevorzugt in einen Molekül übergeht als in dem atomaren Zustand zu bleiben. Zu erwähnen ist, dass hierbei auch der Abstand der Atome zueinander eine wichtige Rolle spielt, im Kapitel 2.1.1 wird darauf genauer eingegangen.
Betrachtet man statt des Wasserstoffes ein Edelgas wie Helium, so ist darüber zu sagen, dass Helium vier Elektronen hat und diese auch das antibindenden Sigma Orbital vollständig besetzen, was energetisch sehr ungünstig ist. Deshalb gehen Edelgase keine kovalenten Bindungen ein. Dennoch wirkt zwischen den Edelgasen eine andere Art von Kraft und zwar die van-der-Waals Kraft, diese wird nun genauer erläutert.

2.1.1 Van-der-Waals-Bindung

In diesem Kapitel geht es um die Bindungsfähigkeit von nichtgeladenen Teilchen und Molekülen, die keine kovalenten Bindungen eingehen können. Hierzu zählen unter anderem Edelgase und Moleküle ohne permanentes Dipolmoment. Diese können sich durch die van-der-Waals Wechselwirkung zu Clustern verbinden und bilden die Untersuchungsobjekte dieser Arbeit. Ein neutrales Atom hat im zeitlichen Mittel kein elektrisches Dipolmoment, jedoch ist zu jedem festen Zeitpunkt ein momentanes Dipolmoment zu finden, dessen Richtung sich andauernd ändert [Jah05]. Dieses momentane Dipolmoment kommt durch Elektronenfluktuation in einem Atom zustande, wodurch ein momentanes Feld [Dem05]

$$E_A = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 R^3}(3p_A\cos(\theta_A)\hat{R} - p_A) \sim \frac{1}{R^3} \tag{2.5}$$

entsteht. Dieses induziert ein momentanes Dipolmoment $p_B \sim \alpha E_A$ am Nachbaratom. Dabei ist R der Abstand der Atome voneinander und α die Polarisierbarkeit. Die Polarisierbarkeit ist für homonukleare Moleküle viel geringer als für heteronukleare Molekül, was zur Folge hat, dass das Dipolmoment sehr viel kleiner ist und eine geringe Reichweite hat [Dem05]. Die anziehende Wechselwirkungsenergie zwischen den ungeladenen Teilchen nimmt mit der 6. Potenz des Molekülabstandes ab.

$$E_{pot} \sim -\frac{1}{r_6} \tag{2.6}$$

Insgesamt ist zu sagen, dass diese Bindung nur dann Zustande kommen kann, wenn sich zwei Moleküle oder Atome sehr nahe kommen. Entwickelt man das E-Feld in einer

Multipolentwicklung, fallen bei großen Abständen die ersten zwei Terme (ionisch und permanenter Dipol) für van-der-Waals gebundene Cluster weg. Für kleinere Abstände machen sich dieser Term bemerkbar; es kommt zu einer Abstoßung. Zur Beschreibung der Wechselwirkung zwischen ungeladenen und ungebundenen Atomen wird das Lenard-Jones-Potential verwendet, das sowohl die langreichweitige Anziehung, als auch die kurzreichweitige Abstoßung berücksichtig.

$$E_{pot}(R) = 4\epsilon(\underbrace{(\frac{\sigma}{R})^{12}}_{\text{abstoßend}} - \underbrace{(\frac{\sigma}{R})^{6}}_{\text{anziehend}}) \tag{2.7}$$

Dabei ist σ die Position des Tiefpunktes des Potentials angibt ($V(R) = 0$) und $R_{min} = 2^{1/6}\sigma$ der Gleichgewichtsabstand ist [Ulr11]. Zu erwähnen ist, dass die van-der-Waals gebundenen Teilchen eine Bindungsenergie im Bereich von einigen meV haben, im Vergleich dazu ist die Bindungsenergie des Wasserstoffmoleküls tausenfach größer (eV).
Da in dieser Arbeit Messungen mit Neon und Wasserstoff durchgeführt wurden, geht es nun um die Eigenschaften dieser Teilchen.

2.2 Neon und seine Cluster

Das Neon-Atom ist ein Edelgas, mit der Elektronenkonfiguration: $1s^2 2s^2 2p^6$ im Grundzustand, wobei es in einem Singulett Zustand ist. Auf der Erde ist Neon ein sehr seltenes Element und taucht mit der Masse 20 mit einer Wahrscheinlichkeit von 90,51 % auf, ansonsten ist es als Isotop ^{21}Ne und ^{22}Ne mit einer Häufigkeit von 0,27 % Prozent und 9,22 % vorhanden [PerNe].

Neondimer

Moleküle besitzen im Vergleich zu Atomen zusätzliche Freiheitsgrade, da sie entlang ihrer Molekülachse schwingen und in alle drei Raumrichtungen zur Rotation um den Molekülschwerpunkt angeregt werden können. Das Neondimer welches aus zwei Neonatomen besteht und van-der-Waals gebunden ist, hat einen internuklearen Abstand von 3,1 Å [Jah05]. Der Grundzustand des Neon-Dimers ist gegeben durch $1^1\sum_+^g$ oder durch die Nomenklatur $Ne^{n+}(^{2S+1}L_j)/Ne^{n+}(^{2S+1}L_j)$ die für zwei getrennte schwach gebundene Atome stehen [Ulr11].
Der elektronische Grundzustand des Neondimers hat zwei Vibrationszustände mit einer Energie von 3 meV bzw. 4,4668 meV.[2] .

[2] Vertiefend dazu die Dissertation von Till Jahnke. "Interatomic Coulombic Decay" - Experimentelle Untersuchung eines neuartigen, interatomaren Abregungsmechanismus (2005)

2.3 Wasserstoffatom, Molekül und Cluster

Das Häufigste Element im Universium mit $88,6\%$ ist Wasserstoff [Gre88]. Es ist das Erste und einfachste Element mit der Elektronenkonfiguration $1s^1$ im Periodensystem. Es hat einen atomaren Radius von 0,53 Å [Len12] [Dem05]. Aufgrund seiner Bestandteile aus einem Proton und einem Elektron wird das Wasserstoff dazu verwendet den Aufbau und die Eigenschaften aller Teilchen anzunähern. Das Elektron befindet sich im kugelsymmetrischen Coulombfeld des Atomkerns und ist das einzige neutrale System, für das die quantenmeschanische Schrödinger-Gleichung analytisch gelöst werden kann.

Wasserstoffmolekül

Auf der Erde ist Wasserstoff überwiegend als Wasserstoffmolekül vorhanden. Wie im Kapitel 2.1 bereits erklärt, ist es energetisch günstiger, dass Wasserstoffatome sich zu Molekülen verbinden. Es besteht aus zwei Wasserstoffatomen, die einen internuklearen Abstand von 0,742 Å haben [Dem05]. Genau wie das Wasserstoff ist das Wasserstoffmolekül ein Prototyp für Molekülsysteme. Es ist das einfachste Molekülsystem und kann durch die LCAO Näherung, Heitler London und weiteren Modellen genähert werden. Desweiteren wurden bereits 1929 die Beugungsphänomene von Wasserstoffmolekülen beobachtet. O. Stern und Estermann erforschten Beugung von Helium und Wasserstoff-Molekülen an Festkörperoberflächen (NACl und LiF) [Iba09].
Ende des 20. Jahrhunderts wurde die Beugung von einem Wasserstoffstrahl von Wieland Schöllkopf und Peter Toennies mit einem Nanogitter durchgeführt.

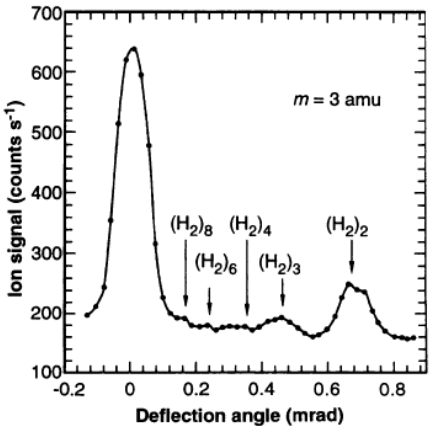

Abbildung 2.2: Beugungsbild aufgenommen mit einem Gitter der Periodizität von 100 nm, einer Temperatur von 40 K und einem Druck von 10 bar (aus [Toe94])

Der Wasserstoffgasstrahl wurde durch eine adiabatische Expansion erzeugt und an einem Gitter gebeugt. Die verschiedenen Beugungsmaxima wurden von einem Massenspektrometer in einer separaten Vakuumkammer aufgenommen. Dabei wurde das Massenspektrometer um kleine Winkel um eine Achse parallel zu den Schlitzen verfahren. Zu beobachten sind Beugungsordnungen von Wasserstoff und seinen Clustern bis hin zu $(H_2)_8$ [Toe94].

Wasserstoffmolekül-Dimer

Das Wasserstoffmolekül-Dimer ist ein typisches van-der-Waals Komplex, das schwach gebunden ist. Es existiert nur in der Gasphase.

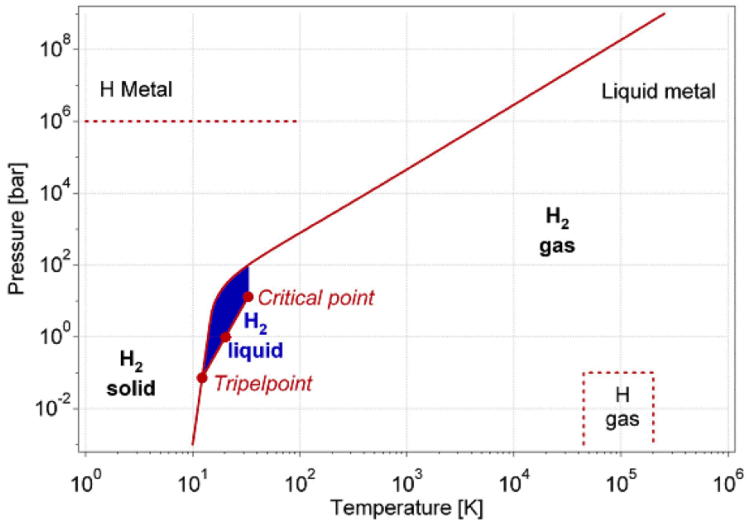

Abbildung 2.3: Phasendiagramm vom Wasserstoffmolekül; der Tripelpunkt und der kritsche Punkt liegen sehr nahe (aus [Hydh2]).

Das Wasserstoffmolekül-Dimer ist im Bereich der Gasphase bei niedrigem Druck und Temperatur vorhanden. Die Existenz des Wasserstoff-Dimers wurde durch viele Experimente belegt. Der erste Nachweis des Dimers wurde bereits 1956 von Becker et al. durch eine adiabatsiche Expansion mit einem Elektronen Impact Ionisations-Spektrometer durchgeführt [Toe08]. Desweiteren wurde wie bereits erwähnt, bei einem Experiment von W. Schöllkopf und Toennies et al. ein Wasserstoffstrahl mit einem Gitter gebeugt und dabei das H_2-Dimer nachgewiesen [Toe94]. Zusätzlich wurde 2008 eine Messung von Toennies und Kornilov durchgeführt. Auch hier wurde ein Gasstrahl durch eine adiabatische Expanison erzeugt. Die Temperatur wurde auf 29,5 K und der Druck auf 0,7 bar eingestellt [Toe08]. Die Parameter der Expansion sind hierbei sehr wichtig, da die verschiedenen Phasen von Wasserstoff in diesem Bereich sehr nahe beieinander liegen (siehe Abbildung 2.3).
Eine interessante Frage zum Dimer ist die mögliche Struktur der zwei Moleküle zueinander und deren intermolekulare und internuklearer Abstand. Mehrere Experimente haben sich der Untersuchungen des Dimers gewidmet. Darunter wurden bereits 1964 Messungen von Wanabe und Welsh durchgeführt. Die Feststellung aus den Messungen ist, dass das Dimer einen Vibrationszustand mit einer Dissozisationsenergie von weniger als $3,5\ cm^{-1}$ hat. Aufgrund der nicht harmonischen Schwingung der Vibration der beiden H_2 Moleküle wurde der intermolekulare Abstand mit 4,2 - 4,6 Å gemessen. Die Werte sind größer als man beim Lennard-Jones Potential (3,3 Å) erwarten würde [Wat64].
Es gibt auch theoretische Untersuchungen zum Dimer. Mit der Struktur haben sich Tapia und Bessis 1971 beschäftigt und folgende Konfigurationen vorgeschlagen:

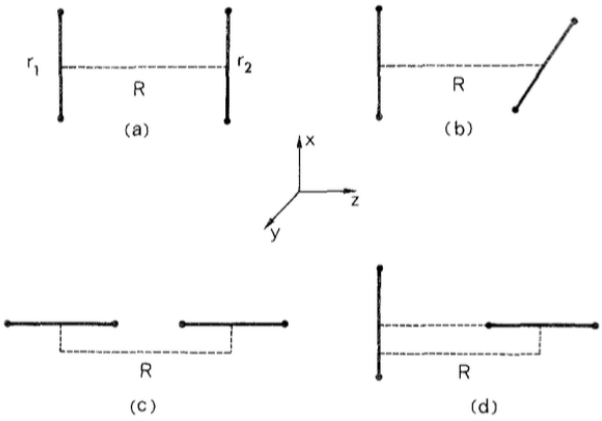

Abbildung 2.4: Konfiguration des $(H_2)_2$ a) parallel b) senkrecht c) linear d) T-förmig, Parameter: R der intermolekular Abstand (center to center), r_1, r_2 der internuklear Abstand (aus [Tap71]).

Dabei haben Tapia und Bessis berücksichtigt, dass eines oder beide Moleküle im ersten Vibrationszustand sein können. Dabei könnte die internuklearen Abstände größer sein. Der internukleare Abstand beträgt im Grundzustand 1,4166 a.u. und für ein gestrecktes Molekül ist r = 1,6 a.u. [Tap71]. Des Weiteren hat Grzegorz Chalasinki sich mit der intermoleklaren Korrelation und der Wechselwirkungsenergie beschäftigt. Nach seinen Berechnungen ist die bevorzugte Konfiguration ebenfalls die T-Struktur [Grz86]. Dabei wurde eine Korrektur aufgrund der intramolekularen Korrelation auf die 1. Ordnung der Wechselwirkungsenergie zwischen den zwei H_2 Molekülen berücksichtigt. Für die vier verschiedenen Geometrien: wie bei Tapia und Bessis, sind die intermolekularen Abstände im Bereich von 4-8 a.u., mit einer Wechselwirkungsenergie von 6,5 a.u.. Die Wechselwirkungsenergie der T-Struktur hat ein Minimum bei der Tiefe von 18 μH für den intermolekularen Abstand von 8 a.u. (center to center Abstand).
Des Weiteren wurden Simulationen für die Wechselwirkungsenergie des Dimers von Masanori Tachikawa, Kazunari Suzuki, Kaoru Iguchi und Tomo Miyazaki mit der zweiten Ordnung der intermolekularen und intermonomeren Störung durchgeführt. Dabei wurde für Berechnungen der Potentiale der experimentelle internukleare Abstand (vibrations Mittelwert) 1,449 a.u. und für R der Abstand zwischen dem Massenschwerpunkt der zwei Moleküle im Intervall von 5,0 a.u. bis 8.0 a.u angenommen [Mas94].

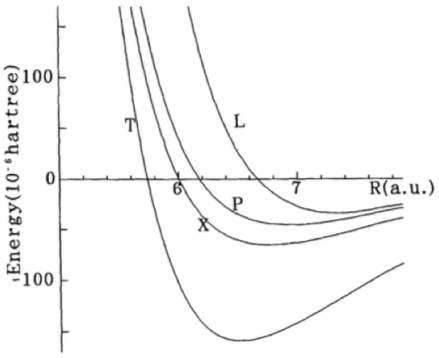

Abbildung 2.5: Simulation der Potentialkurven für vier Strukturen des Wasserstoffmolekül-Dimers (aus [Mas94])

Die Strukturen sind die aus Abb. 2.4. Die T-Struktur ist die stabilste Struktur, danach kommt die X, P und zum Schluss die L Struktur. Dabei ist die letzte instabil. Die Potentialtiefe ist bei einem Abstand für 7,0 (T), 7,5 (X), 6,5 (P) und 7,0 (P) minimal. Ein aktuelleres Paper (Jahr 2000) wurde von der Gruppe: Changsihn Kim, Sang Joon Kim, Yongsik Lee, und Yongho Kim veröffentlicht. Es wurden theoretische Berechnungen der Struktur und der Energie des Wasserstoffmolekül-Dimers mit der Density functional theorie , Multi-Coefficient G2/ G3 durchgeführt. Nach den Rechnungen der MCG2/ MCG3 und DFT-Methode ist die T-Struktur die präferierte Geometrie. Der intermolekulare Abstand für MCG2-Methode ist 0,7424 Å und nach der MCG3 0,7417 Å, mit einem Intermolekularen Abstand von 3,4467 Å und 3,4247 Å. Hierzu sind keine experimentellen Daten vorhanden. Für die beste Struktur sind Werte für die Tiefe mit 23 cm^{-1} und 27 cm^{-1}, MCG2 und MCG3 gegeben [Kim00].

2.4 Beugung

2.4.1 Licht

‚Was ist Licht? Eine Welle oder ein Teilchen oder etwas anderes?' Mit dieser Frage haben sich viele Wissenschaftler und Philosophen beschäftigt, darunter auch Albert Einstein. 1917 schreib er dazu: "Den Rest meines Lebens werde ich darüber nachdenken, was Licht ist!". Es gibt unterschiedliche Meinung dazu [Sexl68]:

- Licht ist ein Strom von Lichtteilchen, die sich geradlinig ausbreiten, vermutete Newton (1669)
- Licht ist eine Welle die sich ähnlich wie eine Wasserwelle verhält, nach Christian Huygen (1677)
- Licht ist eine elektromagnetische Welle, vermutete James Clerk Maxwell (1864)

Eine Antwort auf die Frage fand Albert Einstein im Jahre 1905 und postulierte den Welle-Teilchen-Dualismus.

- 'Licht ist eine Welle und besitzt – ohne jemals beide Naturen zugleich zu zeigen – auch einen atomaren Aufbau'

Seitdem wird das Licht sowohl als Welle als auch als Teilchen angesehen. Je nachdem welche seiner Eigenschaften man misst verhält sich das Licht wie eine Welle oder ein Teilchen.

***W**as ist nun Licht?*
*'Am Montag Mittwoch und **F**reitag ist es eine Welle, am Dienstag, Donnerstag und Samstag ist es ein Teilchen und am Sonntag ruht es'*

2.4.2 Materiewelle

Gleichermaßen folgerte Louis de Broglie, wenn Photonen Teilchen und Welleneigenschaften besitzen, dann müssten auch klassische Teilchen ein solches Verhalten aufweisen. Dabei wird das Teilchen durch die Welle der Form

$$\psi = A \exp(i(\omega t - k\vec{r}))$$

beschrieben, wobei $\vec{r}$ der Ortsvektor im dreidimensionalen, A die Amplitude und ω die Kreisfrequenz und $\vec{k}$ der Wellenvektor ist der Richtung und Wellenlänge der Welle festlegt, ist. Die de Broglie Wellenlänge, die dem Teilchen mit dem Impuls p zuordnet ist gegeben durch

$$\lambda = \frac{h}{p},$$

wobei h das Plancksche Wirkungsquantum und p der Impuls ist, welcher das Produkt aus Ruhemasse (m) und Geschwindigkeit (v) des Teilchens ist. Da in dem Gasjet Cluster aus N Atomen erzeugt werden folgt für die de Broglie Wellenlänge

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{N \cdot v \cdot m_{atom}} \tag{2.8}$$

Aus der Gleichung lässt sich verstehen, dass je höher die Anzahl der Konstituenten im Cluster sind, desto kleiner die Wellenlänge wird, was bei Beugungsexperimenten durch die Beugungsordnungen (kleinere Ablenkungen) sichtbar wird. Die de Broglie Wellenlänge der Cluster bzw. Atome ist zusätzlich abhängig von Temperatur, die sich in der Geschwindigkeit wiederspiegelt.

2.4.3 Materiebeugung

Im letzten Kapitel wurden die Welleneigenschaften der Teilchen eingeführt, wobei diese Erkenntnis bereits durch Beobachtung belegt wurden. Im Jahre 1802 beobachtete T. Young das Interferenzbild von Licht an einem Doppelspalt [Ber93]. Statt zwei Flecken hinter dem Doppelspalt, waren Streifen mit unterschiedlichen Intensitäten zu erkennen, die auch als Interferenzerscheinungen bezeichnet werden. Die Welle wird durch das Hindernis, den Spalt gebeugt, wodurch nach dem Huygen'sches Prinzip Elementarwellen entstehenden, die sich überlagern. Je nach dem wie die Phasen der Wellen sind, entstehen Maxima und Minima. Die Position der Maxima lässt sich über die geometrische Optik herleiten. Es gilt

$$sin(\alpha) = \frac{n\lambda}{d} \tag{2.9}$$

Dabei steht λ für die Wellenlänge, $n\lambda$ ist der Weglängenunterschied der zwei Wellen mit $n = 1, 2, 3\ldots$, d ist die Spaltbreite. Wenn der Weglängenunterschied nun ein ganzzahliges Vielfaches der halben Wellenlänge ist dann tritt destruktive Interferenz auf, das heißt, die Wellen heben sich auf. Für kleine Winkel etwa bis 11° kann die Näherung gemacht werden, dass $sin\alpha \sim \alpha$. [Dem05] Weitere Experimente zeigten, dass Beugungsphänomene nicht nur auf Licht beschränkt sind. Bereits 1929 beobachteten Davisson und Germer, dass durch Reflexionen eines Elektronenstrahles an einer Kristalloberfläche Beugungsringe bzw. Interferenzphänomene zu erkennen sind [Hak02]. 1956 demonstrierte Mollenstedt und Düker ebenfalls die Welleneigenschaft von Elektronen an einem elektrostatischen Biprisma. Das elektrische Feld hat zur Folge, dass die Teilchen abgelenkt werden [Dem05]. Des Weiteren belegten Stern, Frisch und Estermann 1929 diese Eigenschaft von Helium

und Wasserstoff durch Reflexion von Molekülstrahlen an einem LiF-Kristall [Fri33]. Auch diese Experimente standen in Einklang mit der Entdeckung de Broglies. Obendrein gelang es vor 15 Jahren am Institut für Experimentalphysik der Universität Wien Interferenzexperimente mit massiveren Fullerenen C_{60} und C_{70} durchzuführen. Dabei wurde ein intensiver Molekularstrahl erzeugt und an einem Beugungsgitter mit 100 nm gebeugt. Trotz ihrer hohen Massen zeigen die Fullerene eine besonders hohe Stabilität [ArNai]. Bei einem Beugungsgitter gilt für die Maxima die Beziehung

$$sin\alpha = \frac{n\lambda}{g} \tag{2.10}$$

wobei d durch die Gitterkonstante g ersetzt wird. Statt einem Doppelspalt hat man nun n Spalte. Der Unterschied der Interferenzbilder ist, dass es beim Gitter abgesehen von den hohen (Hauptmaxima) noch kleinere Maxima gibt, diese werden auch Nebenmaxima genannt.

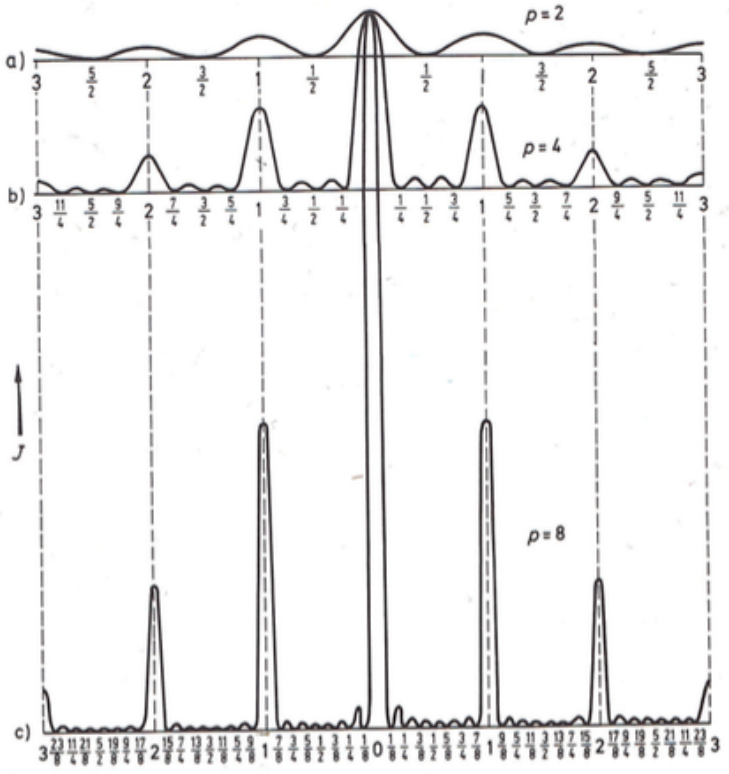

Abbildung 2.6: Intensitätsverteilung für 2, 4, 8 Spalte (aus [Ber93])

Für die Anzahl der Nebenmaxima gilt Z = n-2, wobei n die Zahl der Spalte ist. Nebenmaxima werden erst für n>2 beobachtet. Mit zunehmender Spaltzahl werden die Hauptmaxima immer enger und schärfer.

Um die Intensitäten der Beugungsmaxima zu beschreiben kann die Fraunhofer-Beugungstheorie verwendet werden. Dabei wird angenommen, dass die Quelle parallel einfällt, dies ist der Fall wenn sie quasi als im unendlichen betrachtet wird [Dem05]. Die Herleitung der Intensitätsverteilung ist, verglichen mit der des Lichts, nicht so einfach, da es sich bei Materiewellen nicht um eine em-Welle handelt. Wenn das Beugungsbild in der x,y-Ebene gemessen wird und die z-Richtung die Ausbreitungsrichtung der Wellen angibt, gilt für die komplexe Amplitude an einem beliebigen Punkt: [Bec12]

$$A(x,y,z) \propto \int_O \Theta_n\Big(\frac{a}{2};\frac{a}{2}\Big)e^{-ikr}dx'$$

a ist die Spaltbreite, Θ is die Heavyside Funktion. Wobei über das Beugungsobjekt integriert wird. Dabei wird angenommen, dass entlang der Spalte N identische kohärente Huygens'sche Elementarwellen loslaufen (in z-Richtung) (Term mit der e-Funktion). Die Summe aus der Funktion Θ mit den Kompotenten $(\frac{a}{2}/\frac{a}{2})$, was der gesamten Spaltbreite entspricht, ist eine Heaviside Funktion, die das Gitter beschreibt [Bec12]. Davon ausgehend, dass alle Spalte identisch sind, und dementsprechend die Winkel, so gilt $\Theta_n \sim \Theta$ kann die Funktion vereinfacht werden zu

$$A(\Theta) \propto \sum_{n-1}^{N} e^{-i\cdot k\cdot(n\cdot d\cdot sin\Theta)}\cdot \int_{-\frac{a}{2}}^{\frac{a}{2}} e^{-i\cdot k\cdot sin\Theta\cdot x'}dx'$$

sodass die Summe aus dem Intergral genommen werden kann. Desweiteren kann die Summe durch die Geometrische Funktion ergänzt werden $\sum_{k=1}^{n} = \frac{e^{inx}-1}{e^{ix}-1}$

$$A(\Theta) \propto \frac{e^{-i\cdot k\cdot(N\cdot d\cdot sin\Theta)}-1}{e^{-i\cdot k\cdot(\cdot d\cdot sin\Theta)}-1}\Big[\frac{2}{a\cdot k\cdot sin\Theta}sin\Big(\frac{ak}{2}sin(\Theta sin\Theta)\Big)\Big] \tag{2.11}$$

Um nun die Intensitätsverteilung zu erhalten muss das Betagsquadrat der Gleichung 3.8 normiert werden.

$$I(\Theta) = |\frac{1}{N}\cdot U(\Theta)|^2 = \underbrace{\Big[\frac{1}{N}\cdot\frac{\Big(sin\Big(\frac{d\cdot k}{2}\cdot N\cdot sin(\Theta)\Big)\Big)}{sin\Big(\frac{d\cdot k}{2}\cdot sin(\Theta)\Big)}\Big]^2}_{\text{Gitterfunktion}}\cdot\underbrace{\Big[\frac{sin\Big(\frac{ak}{2}\cdot sin(\Theta)\Big)}{\frac{ak}{2}\cdot sin(\Theta)}\Big]^2}_{\text{Spaltfunktion}}$$

Insgesamt setzt sich die Intensität aus der Gitterfunktion und der Spaltfunktion zusammen. Beim Spalt gilt nur der rechte Term.
Im Vergleich zum Licht gibt es bei Atomen, Molekülen und Clustern leichte Unterschiede in der Intensitätsverteilung. Zwischen dem Spalt und den Teilchen kommt es beim Passieren der Teilchen zu einer Wechselwirkung. Der Grund ist dir schwache atomare elektrische Dipol-Dipol-Wechselwirkung. Beim Durchfliegen wird das Teilchen durch das Potential

$$V = -\frac{C_3}{l^3}$$

abgelenkt. Dabei ist l der Abstand von der Oberfläche eines Gittersteges und C_3 ein teilchenabhängiger Parameter [Gri00]. Dabei muss die Wechselwirkung durch eine zusätzliche Funktion ergänzt werden, und zwar die Spaltfunktion $f_{slit}(\Theta)$, welche ebenfalls in Betragsquadrat gesetzt werden muss [Gri99]. Dadurch ergibt sich für die Intensität

$$I(\Theta) = \left[\frac{1}{N}\cdot\frac{\left(sin\left(\frac{d\cdot k}{2}\cdot N\cdot sin(\Theta)\right)\right)}{sin\left(\frac{d\cdot k}{2}\cdot sin(\Theta)\right)}\right]^2\cdot\left[\frac{sin\left(\frac{ak}{2}\cdot sin(\Theta)\right)}{\frac{ak}{2}\cdot sin(\Theta)}\right]^2\cdot|f_{slit}(\Theta)|^2$$

Genauere Beschreibungen zur Streutheorie ist in der Quelle [Gri99] nachzulesen.

2.5 Coulomb-Explosion

Zum Schluss wird in diesem Kapitel noch die Coulomb Explosion erklärt, um die COLTRIMS-Methode zu verstehen. Durch den Laser werden Teilchen ionisiert, sodass nach der Reaktion positiv geladene Fragmente vorliegen. Diese stoßen sich wegen der gleichnamigen Ladung ab, was aufgrund der Coulomb Wechselwirkung dazu führt, dass sie sich explosionsartig voneinander entfernen. Betrachtet im Schwerpunkt fliegen die Fragmente aufgrund der Impulserhaltung im Falle eines diatomaren Moleküs in entgegengesetzter Richtung voneinander weg. Vor der Reaktion haben die Teilchen die potentielle Energie [Zel11]

$$V_{pot} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0}\frac{q_1 q_2}{r} = \frac{q_1 q_2}{r}a.u. \tag{2.12}$$

Dabei ist $\epsilon_0 = \frac{1}{4\pi}$ in atomaren Einheiten. Die potentielle Energie wird nach der Kollision in die kinetische Energie der Teilchen umgewandet. Die bei der Reaktion freiwerdende Energie wird kinetic energy release (KER) genannt. Wenn es sich um zwei identische Teilchen handelt teilt sich die kinetische Energie gleich auf. Die kinetische Energie der freiwerdenden Elektronen wird dabei wegen der geringen Masse vernachlässigt.

3 Experimenteller Aufbau

In diesem Kapitel geht es um den experimentellen Aufbau. Zunächst wird erklärt wie der Gasstrahl mit Edelgasclustern erzeugt wird. In Kapitel 3.2 wird das Transmissionsnanogitter vorgestellt, mit dem die Edelgascluster massenselektiert wurden. Anschließend wird in Unterkapitel 3.3 der Laser beschrieben, mit dem die Moleküle und Cluster ionisiert wurden. Des Weiteren wird die COLTRIMS-Methode eingeführt, die in Frankfurt am Main entwickelt wurde. Da der Laser Teilchen ionisiert, werden diese durch ein elektrisches Feld auf zwei Detektoren beschleunigt. Die einzelnen Komponenten des Detektors, die Delayline-Anode und das Multi Channel Plate (MCP), werden zusammen mit der Signalverarbeitung und der Datenaufnahme in Kapitel 4.6 kurz erläutert.

3.1 Gasstrahl

Cluster können mit verschiedenen Methoden erzeugt werden. In diesem Experiment wurde der Clusterstrahl durch eine adiabatische Expansion erzeugt. Dabei wird ein Gas unter hohem Druck P_{df} und bei der Temperatur T_d durch eine kleine Öffnung ins Vakuum ausgeströmt (siehe Abb. 3.1). Eine Überschallexpansion entsteht erst ab einer bestimmten Bedingung: Der Druckunterschied zwischen dem Vordruck und Umgebungsdruck muss drei Größenordnungen betragen [Wal12]. Der Vordruck beträgt bei diesem Experiment etwa $p_{df} = 1 - 10\ bar$ und der Druck in der Expansionskammer $p_e = 10^{-1}$ bis 10^{-4} mbar. Der Prozess läuft so schnell ab, dass der Wärmetransport über die Gefäßwand vernachlässigbar ist und man daher einer adiabatischen Situation ausgeht, d.h. $\delta Q = 0$. Für den ersten Hauptsatz der Thermodynamik

$$\delta U = -\delta W + \delta Q \tag{3.1}$$

resultiert in diesem Fall $\delta U = -\delta W$. Aus dieser Gleichung geht hervor, dass die innere Energie $U = \frac{3kT}{2}$ in gerichtete Arbeit $W = \frac{1}{2}mv^2$ umgewandelt wird. Dies bewirkt eine Kühlung des Gases und führt zur Bildung von Clustern. Bei hohen Temperaturen ist die thermische Energien der Teilchen größer.

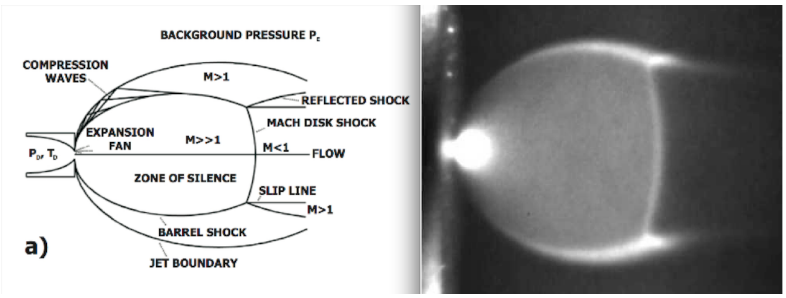

Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der Überschallexpansion. Das Gas expandiert durch eine 5 μm Öffnung ins Vakuum (aus [Zel11])

Im Anschluss an die Expansion bewegen sich die Atome und Moleküle im Gasstrahl kollisionsfrei weiter. Die Geschwindigkeit des Gasstrahls kann dabei seine eigene lokale

Schallgeschwindigkeit überschreiten ($v_{Teilchen} >> v_{Schall}$), das ist im Bereich der Zone of Silence ($M >> 1$) gegeben [Wal12]. Im Experiment ist das Vakuum nicht unendlich gut. Im Bereiche mit einem hohen Druckgradienten bilden sich soganannten Stoßfronten aus. Diese sind in Abb. 3.1 dargestellt und mit 'Mach-Disk-Shock' bzw. 'Barrel-Shock', gekennzeichnet. Da für die Messung der wechselwirkungsfreie Bereich die 'Zone of Silence' relevant ist, wird dieser mit einem sogenannten Skimmer, einem Hohlkegel mit einer spitzen Öffnung von 300 μm herausgeschält. Nach der Expansion haben fast alle Teilchen die gleiche Geschwindigkeit, welche in Expansionsrichtung gegeben ist durch:

$$v_{jet} = \sqrt{\frac{5kT_0}{m}}$$

Dabei ist k die Boltzmann-Konstante, T_0 die Temperatur und m die Masse der Atome. Für die Messungen entspricht das der Teilchengeschwindigkeiten von:

Teilchen	Temperatur in [K]	Geschwindigkeit in $[\frac{m}{s}]$
Neon	300	789,68
Neon	120	499,44
Wasserstoff	29,5	783,07
Wasserstoff	300	2497,20

In dem Gasstrahl befinden sich überwiegend Monomere, sodass die Dimere, Trimere und größere Cluster die Geschwindigkeit des Monomers annehmen.

3.2 Transmissionsgitter

Nachdem nun Cluster jeglicher Größe erzeugt sind, wird das Gas an einem Transmissionsgitter gebeugt. Aufgrund der unterschiedlichen de Broglie-Wellenlänge der Teilchen sind die Beugungsordnungen der Teilchen an unterschiedlichen Positionen, so dass sie gefiltert werden können. Dadurch können Aussagen darüber gemacht werden welche Cluster gemessen wurden. In diesem Experiment wurde ein Transmissionsnanogitter verwendet, welches am MIT mit einem interferometrischen Lithographieverfahren mit einem 193 nm ArF Laser erzeugt wird [ST94]. Es besteht aus drei identischen Gittern mit einer Gitterkonstante von 100 nm. Die Abstände der Gitter voneinander sind 1 mm. Jedes der Gitter hat ein trapezförmiges Stegprofil und wird alle 5 μm von einer Strebe verstärkt [Voi14].

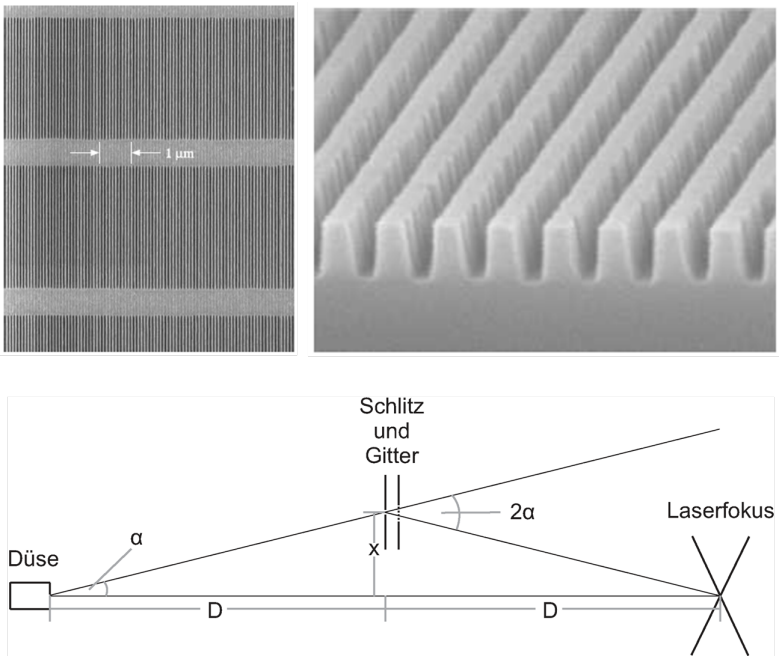

Abbildung 3.2: Unten: Schematische Darstellung des Beugungsprinzips (aus [Voi14]). Oben: Zwei Nahaufnahmen des Gitters mit einem Elektronenmikroskop (aus [Gri00]). Rechts: Gitter mit zwei Strebe. Links: Das Beugungsgitter mit trapezförmigem Stegprofil. Die schmalere Kante wird in Richtung der Düse plaziert.

Das Beugungsgitter ist auf einem Träger fixiert und wurde durch ein Linearmotor verfahrbar angebracht. Durch das Programm COBOLD wird der Linearmotor gesteuert. Zusätzlich ist vor dem Nanogitter eine Halterung von drei unterschiedlichen Spalten mit Breiten von 25 μm, 50 μm und 100 μm angebracht, welche ebenfalls mit dem Linearmotor verfahren werden. Der Spalt hat die Aufgabe den Strahl zu kollimieren um eine ausreichende räumliche Kohärenz zu erzielen. Für die Messungen wurde der Spalt mit 25 μm verwendet. Derjenige Anteil des Gastrahls, welches im Winkel α auf den Spalt, der sich an der Position x befindet, auftrifft gelangt zum Gitter (siehe Abb. 3.2). Er wird in einem Winkel 2α zur Spektrometerachse gebeugt. Je nach Position des Gitters und Spaltes kann so das Beugungsmaxima einer Teilchensorte mit dem Laserfokus zum Überlapp gebracht werden. Das hat insgesamt den Vorteil, dass die Position des Lasers nicht verändert werden muss. Messungen mit dieser Anordnung wurde durchgeführt von Jasper Becht, Jörg Hahnenbruch, Jörg Voigtsberger und Stefan Zeller in Frankfurt am

Main. Eine ähnliche Anordnung mit Gitter jedoch ohne COLTRIMS-System wurde bei den Messungen von Heliumatomen und Cluster von Schöllkopf und J.P.Toennies 1994 durchgeführt. Dabei wurde ein Massenspektrometer verwendet, welches in der Beugungsebene um kleine Winkel beweglich gelagert ist. Eine genauere Beschreibung des Versuches ist in der Literatur [Toe94] zu finden.

3.3 Lasersystem

Das im Experiment verwendete Laser ist ein Titan Saphir Laser (kurz Ti:Sa), mit kurzen Laserpulsen. Unter kurzen Laserpulsen sind Pulse von Picosekunden- bis hin zu wenigen Femtosekunden gemeint [Cos07]. Dadurch wird eine höhere Intensität im Fokus erreicht und kann Teilchen aufgrund des Tunneleffekts leichter ionisieren. Diese Pulse werden im Lasersystem aus einem Oszillator und einen Verstärker erzeugt. Im Wesentlichen erzeugt der Oszillator kurze Laserpulse im femtosekunden Bereich. Zu diesem Zeitpunkt haben die Pulse eine Breite von etwa 10-20 fs und eine Energie von 5 nJ [Voi14]. Im Anschluss gelangen sie zum Verstärker der die Pulse nachverstärkt. Eine genaue Beschreibung ist hier zu finden: [Voi14], [Cos07]. Am Ende hat der Laserpuls eine Breite von 30 fs und eine Energie von 0,9 mJ.

3.4 COLTRIMS

COLTRIMS, steht für **Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy** und ist ein Messverfahren, mit dem die Impulsvektoren der in dem Ionisationsprozess entstehenden Fragmende vermessen werden können. Mit der COLTRIMS Technik ist mit dem man in der Lage, mehrere Fragmente, wie Ionen und Elektronen mit 4π Raumwinkel zu detektieren [Sch02]. Anhand der gemessenen Fragmente kann man auf verschiedene Merkmale der Reaktion zurückschließen. Zunächst wird ein Gasstrahl (das Target) mit einem Projektilstrahl, dem Laser, unter einem 90° Winkel überlappt. Der Laser ionisiert das Target, so dass Ionen und Elektronen als Fragmente entstehen [Sch02]. Durch Anlegen eines elektrischen Feldes, das senkrecht auf der von beiden Strahlen aufgespannten Ebene steht, werden die geladenen Teilchen zum Detektor beschleunigt.

3.5 Spektrometer

Das Spektrometer besteht aus einer Reihe paralleler Kupferplatten, die in einem konstanten Abstand zueinander stehen. Die Kupferplatten ($11,5\ cm$ x $11,5\ cm$ x $0,5\ mm$) [Voi14] haben eine kreisförmige Aussparung, sodass ein zylindrischer Hohlraum gebildet wird. Durch den Hohlraum können die in der Reaktion entstandenen Fragmente auf die Detektoren zufliegen können (siehe Abb. 3.5). Der Abstand zwischen Reaktionszone und Detektor beträgt etwa 37,95 mm.
Im Spektrometer wird ein elektrisches homogenes Feld durch Anlegen einer Potentialdifferenz durch Widerstandsketten zwischen den Platten ermöglicht. Die elektrische Feldstärke betrug $3,12\ V/cm$. Nach den Kupferplatten befindet sich ein feinmaschiges Edelstahlgitter, welches das elektrische Feld des Spektrometers abschließt und Feldeingriffe durch das Nachbeschleunigungsfeld verhindert. [Voi14]. Der Abstand zwischen dem Gitter und dem Detektor beträgt 6 mm. In diesem Bereich werden die Ionen von einem elektrischen Feld der Stärke E= $4266,7\ V/cm$ nachbeschleunigt.

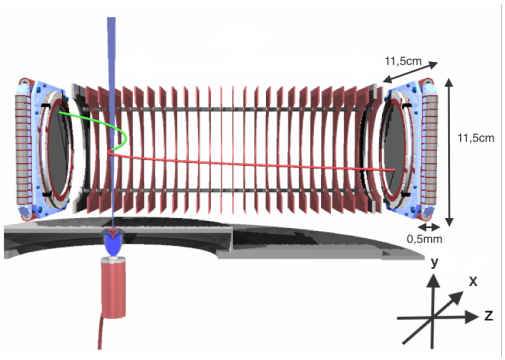

Abbildung 3.3: Querschnitt eines Spektrometers aus [Cza04], die y–Achse entspricht der Ausbreitung des Jets, die x-Achse entspricht der Laserachse. Die nach der Reaktion entstandenen Fragmente fliegen auf die Detektoren in z-Richtung. Das Ion bewegt sich auf das Detektor auf die rechten Seite (rot) und das Elektron die linke Seite (aus [Cza04])

3.6 Detektoren

Die Detektoren setzen sich im Wesentlichen aus zwei Komponenten zusammen: zum einen die Micro-Channel-Plates (MCP) und zum anderen die dahinter angebrachte hexagonale Delayline-Anode. Das MCP dient dabei als Elektronenvervielfacher und ist für die Flugzeitmessung. Die Delayline-Anode ermöglicht zusätzlich eine ortsauflösende Messung. Im Folgenden werden die Funktionsprinzipien dieser Einheiten genauer erläutert.

3.6.1 Micro Channel Plate (MCP)

Beim MCP handelt sich dabei um eine ca. 1 mm dicke Bleiglasscheibe, welche von mikroskopischen Kanälen mit wenigen μm Durchmessern durchsetzt ist. Die Innenseite der Kanäle sind mit einem hochohmigem Material beschichtet, das eine geringe Austrittsarbeit für Elektronen hat. Die Oberfläche des Micro-Channel Plates ist mit einem niederohmigem Material bedeckt, damit beim Anlegen einer Spannung zwischen Vorder- und Rückseite ein homogenes elektrisches Feld innerhalb der Kanäle entsteht. Die Kanäle stehen parallel zueinander und sind 5° bis 12° gegen das Lot zur MCP-Oberfläche gekippt. Damit die Teilchen nicht stoßfrei durch die Kanäle fliegen.

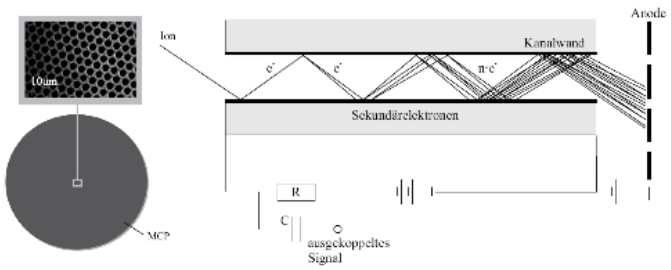

Abbildung 3.4: Links unten: Darstellung eines MCPs von vorne betrachtet. Links Oben: Vergrößerung der Kanäle. Rechts: Funktionsweise des MCP am Beispiel eines Kanals (aus [FP11])

Die Signalverstärkung geschieht dabei wie folgt: Betrachtet man einen einzelnen Kanal kollidiert ein geladenes Teilchen zunächst mit der Kanalwand. Besitzt das Teilchen genügend kinetische Energie, löst es Elektronen heraus, welche durch die angelegte Spannung zwischen Vorder- und Rückseite des MCPs beschleunigt werden. Es kommt insgesamt pro MCP zu einer Verstärkung von 10^3. Statt einem MCP können auch drei MCP's in eine Z Anordnung (Z-Stack) angebracht werden, wie in diesem Experiment, was zu einer Verstärkung von 10^6 bis 10^8 führt [Sch02].

3.6.2 Delayline-Anode

Mit der Delayline-Anode ist man in der Lage zweidimensionale Ortsinformation der Elektronenlawine mittels Laufzeitbestimmung zu erhalten. Sie befindet sich ungefähr im Abstand von 1 cm zum MCP. Im Wesentlichen besteht sie aus einer metallischen Halterplatte auf der jeweils zwei parallel verlaufende Kupferdrähte aufgewickelt wurde. Die Anordnung der aufgewickelten Drähte bezeichnet man als Layer.

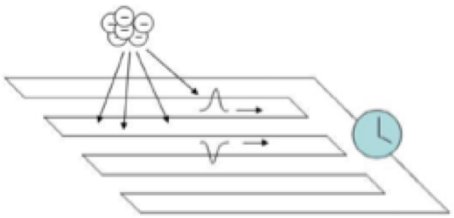

Abbildung 3.5: Funktionsweise der Delayline-Anode (aus [Tri11]). Nachdem Auftreffen der Elektronen auf die Leitung treffen werden Pulse gelöst die sich auf beiden Seiten ausbreiten. Quelle

In Abb. 3.5 ist eine eindimensionale Delayline-Anode dargestellt. Das Prinzip für einen Layer ist: Die aus dem MCP ausgetretene Elektronelawine trifft auf die Delayline-Anode und erzeugt einen elektromagnetischen Puls in beiden Seiten des Layers. Die Signale werden an den Drahtenden 1 und 2 zu den Zeitpunkten t_1 und t_2 gemessen. Die Summe der beiden Laufzeiten, die man an beiden Drahtenden misst ist konstant. Da außerdem die Länge des Drahtes konstant ist, kann man aus den Zeitdifferenzen eine Ortsberechnung durchführen. Die genaue Berechnung ist im Kapitel 4.0.1 zu finden.

3.7 Signalverarbeitung und Datenaufnahme

Die gemessenen analogen Signale, zum einen durch das MCP und zum anderen durch die Delayline-Anode, müssen in digitale Signale umgewandelt werden, um verarbeitet werden zu können. Dies geschieht durch ein Time-to-Digital-Converter (TCD). Dazu werden die Signale in mehreren Schritten aufbereitet (siehe ABB. 3.6) [FP11].

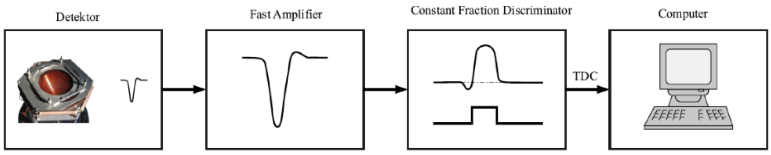

Abbildung 3.6: Signalverarbeitung in Einzelschritten (aus [FP11])

In erster Linie wird jedes Signal, dessen zeitliche Ausdehnung im Nanobereich liegt, durch einen Fast-Amplifier (FA) um einen Faktor 20-100 verstärkt. Im Anschluss werden diese Signale mit unterschiedlichen Pulshöhen durch einen CDF in einen digitialen Normpuls (Rechteckpuls) mit einer festen Pulshöhe umgewandelt. Um eine genaue Zeitauflösung der jeweiligen Pulse zu bekommen, die unabhängig von der Pulshöhe ist, wird der CFD verwendet. Im Folgenden werden die Signale durch den TDC digitalisiert und in den Messrechner eingespeist. Mit dem Programm COBOLD ist es möglich sich die Visualisierung der Daten durch Spektren am PC anzuschauen [FP11].

4 Datenanalyse und Kalibration

4.0.1 Flugzeiten und Auftrefforte

Um den Auftreffort der Ionen zu berechnen sind die absoluten Flugzeiten der Teilchen notwendig, diese müssen zuerst einmal durch die Flugzeitdifferenzen und Laufzeitdifferenzen berechnet werden. Bekannt ist, dass die Längen der Anodendrähte einen konstanten Wert haben. Daraus resultiert eine konstante Zeitsumme für den jeweiligen Layer (u,v oder w), die gegeben ist durch:

$$t_{u,sum} = (t_{u1} - t_{MCP} + t_{u2} - t_{MCP}) = t_{u1} + t_{u2} - 2 \cdot t_{MCP}$$
$$t_{v,sum} = (t_{v1} - t_{MCP} + t_{v2} - t_{MCP}) = t_{v1} + t_{v2} - 2 \cdot t_{MCP}$$
$$t_{w,sum} = (t_{w1} - t_{MCP} + t_{w2} - t_{MCP}) = t_{w1} + t_{w2} - 2 \cdot t_{MCP}$$

Die Zeitsumme ergibt sich aus der Addition der Zeitensignale an den Anoden-Enden t_{u1}, t_{u2} wobei in beiden Fällen die Zeitsignale des MCPs subtrahiert werden müssen, da diese den Zeitpunkt des Aufftreffens des Primärteilchen festlegen. Die Ortsberechnung entlang der Raumrichtung der drei Drahtebenen erfolgt aus der Zeitdifferenz der Anodensignale

$$u = c_u(t_{u1} - t_{u2})$$
$$v = c_v(t_{v1} - t_{v2})$$
$$w = c_v(t_{w1} - t_{w2}) + w_0$$

Dabei sind c_u, c_v und c_w Umrechnungskonstanten mit der Dimension einer Geschwindigkeit. Sie geben die Ausbreitungsgeschwindigkeit in Wicklungsrichtung an. Da zwei der drei Layer bereits einen Ort eindeutig festlegen, benötigt man die Konstante w_0, um einen Versatz der drei Layer zueinander zu korrigieren. Zuletzt muss noch eine Umrechnung in kartesische Koordinaten durchgeführt werden. Dabei wird die Transformation [Ulr11]:

$$X_{u,v} = u \qquad X_{uw} = u \qquad X_{u,v} = u \qquad X_{vw} = v + w$$

verwendet, sodass sich für die Auftrefforte ergibt:

$$Y_{u,v} = \frac{1}{\sqrt{3}}(u - 2v) \qquad Y_{uw} = \frac{1}{\sqrt{3}}(2w - u) \qquad Y_{uw} = \frac{1}{\sqrt{3}}(w - v)$$

4.0.2 Ionenimpulse

Nach dem nun die Flugzeiten der Teilchen bekannt sind, kann man durch die einfache Bewegungsgleichung die Startimpulse der Reaktionspartner bestimmen. Dazu sollte man sich die Koordinaten aus Kapitel 3.5 im Hinterkopf behalten. Im Spektrometer erfährt das geladene Teilchen durch das elektrische Feld eine Coulombkraft, die gegeben ist durch

$$F_c = q\vec{E} \tag{4.1}$$

Auf das Teilchen wirkt dabei die Beschleunigung

$$\vec{a} = \frac{q\vec{E}}{m} \tag{4.2}$$

wobei m die Masse des Teilchens ist. Da das elektrische Feld parallel zur Spektrometerachse ist, wirkt die Beschleunigung nur auf diese Komponente und somit gilt: $\vec{a} = (0, 0, a) = a_z$. Deshalb werden die beiden Raumkoordinaten (x, y) als eine gleichförmige Bewegung betrachtet. Stattdessen wird die z-Komponente analog wie ein schiefer Wurf behandelt. Insgesamt ergeben sich für die drei Komponenten die Bewegungsgleichungen:

$$x = \frac{p_{ox}}{m}t$$
$$y = \frac{p_{oy}}{m}t$$
$$z = \frac{p_{oz}}{m}t + \frac{1}{2}\frac{qEt_2}{m}$$

Dabei ist die z-Komponente die Flugzeitrichtung der Ionen, die der Spektrometerlänge von 37,95 mm (siehe Abb.3.3) entspricht. Nun kann man durch einfache mathemathische Umformung, den Impulsvektor mit seinen Komponenten bestimmen:

$$p_{ox} = \frac{mx}{t}$$
$$p_{oy} = \frac{my}{t}$$
$$p_{oz} = \frac{ms}{t} - \frac{qEt}{2}$$

Relativimpulse des Zweiteilchenaufbruchs

Die eben eingeführte Rechnung wurde im Laborsystem durchgeführt. Um jedoch Aussagen über die Stellung der Molekülachse im Raum und die Aufbruchsenergie (KER) zu machen, müssen die Impulse in das Schwerpunktssystem transformiert werden. Damit bekommt man eine bessere Messgenauigkeit und vereinfacht die Rechnung. Mit der Impulserhaltung kann man leicht überprüfen, ob die ionischen Fragmente aus dem selben Aufbruch stammen. Für den Fall des Zweilteilchenaufbruches gilt $\vec{p_1} + \vec{p_2} = 0$ dabei wird der Rückstoßimpuls der Elektronen in erster Näherung vernachlässigt. In Schwerpunktkoordinaten sind die Anfangsimpulse gegeben durch [Ulr11]

$$p_{rel,x} = m_1 m_2 \frac{x_1 - x_2}{t_2 m_1 + t_1 m_2} \tag{4.3}$$

$$p_{rel,y} = m_1 m_2 \frac{(y_1 - y_2) + v_{jet}(t_2 - t_1)}{t_2 m_1 + t_1 m_2} \tag{4.4}$$

$$p_{rel,z} = \frac{E}{2}\frac{(t_2^2 q_2 m_1 - t_1^2 q_1 m_2)}{t_2 m_1 + t_1 m_2} \tag{4.5}$$

Relativimpulse des Vierteilchenaufbruchs

Für die Analyse der geometrischen Struktur des $(H_2)_2$ wird der Vierteilchenaufbruch angesehen. Dazu sind ebenfalls die Impulse im Schwerpunktsystem notwendig. In der Arbeit von [Ulr11] wurde eine Rechnung für die Relativimpulse des Dreiteilchenaufbruchs durchgeführt. Daran orientiert, ergibt sich für die Transformation von laborfesten Impulsen zu Relativimpulsen:

$$\vec{p}_{CM,i} = \vec{p_i} - m_i \vec{V}_{CM} \tag{4.6}$$

$$\vec{V}_{CM} = \sum_{i=1}^{n} \frac{\vec{p_i}}{m_i}$$

Dabei ist $\vec{V}_{CM}$ die Geschwindigkeit der Ionen im Schwerpunktsystem. Aus der Formel lässt sich erkennen, dass der Relativimpuls das Ergebnis der Subtraktion des jeweiligen Schwerpunktsimpulses $m_i \vec{V_{CM}}$ vom laborfesten Impuls ist.

4.0.3 KER

Nachdem nun die Relativimpulse bekannt sind, kann der KER (die kinetische Energie aller Reaktionsfragmente) berechnet werden.

$$KER = \frac{p_{rel}^2}{2\mu}$$

dabei ist $\mu = \dfrac{m_1 m_2}{m_1 + m_2}$ und p_{rel} der Betrag des Relativimpulses $p_{rel} = \sqrt{p_{rel,x}^2 + p_{rel,y}^2 + p_{rel,z}^2}$. Für den Fall bei mehr als zwei Teilchen wird die kinetische Energie durch die Impulse jedes einzelnen Teilchens im Schwerpunktsystem ausgerechnet.

5 Auswertung

5.0.4 Flugzeitspektren

Mit dem Datenaufnahmeprogramm COBOLD wurden die Rohdaten der Flugzeitenspektren aufgenommen. Je nach Masse-zu-Ladungs Verhältnis unterscheiden sich die Flugzeiten. In einem eindimensionalen Flugzeitspektrum wird die Flugzeit des ersten Recoils gegen die Zahl der Ereignisse auf dem Detektor geplottet. Recoils sind Ionen. Anhand der Häufigkeit der Ereignisse bei einer bestimmten Flugzeit, ist es möglich herauszufinden, welche Teilchensorten vorhandenen sind. Unter anderem können Teilchen wie Protonen oder Sauerstoff vorhanden sein, da das Vakuum nicht unendlich gut ist. Diese Teilchen werden ebenfalls ionisiert.

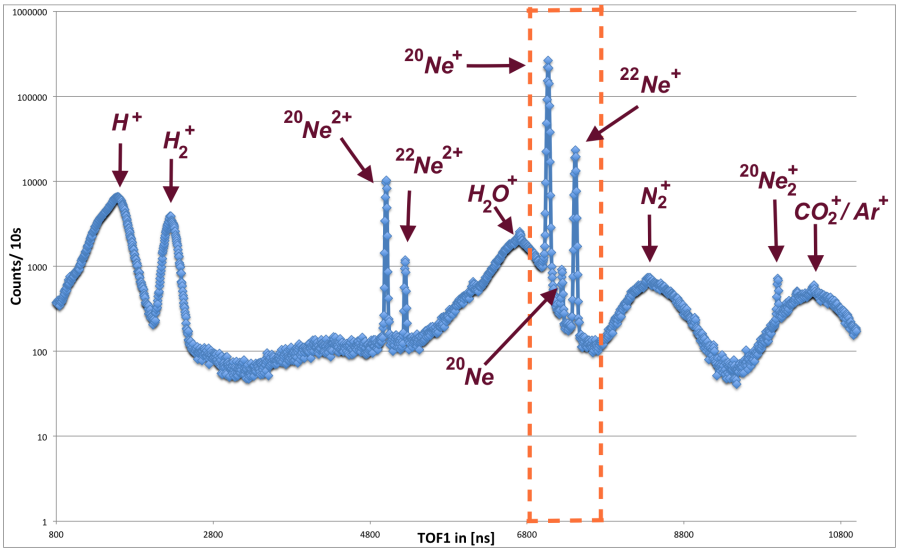

Abbildung 5.1: 1D Flugzeitspektrum für Neon bei 120 K, die gestrichelte Linie zeigt die TOF-Bedingung i6_TOFgate_Ne_120K

Zu sehen sind viele Peaks mit unterschiedlichen Intensitäten. Besonders auffallend ist der Peak bei der Flugzeit von 7070 ns; dieser wird Neon 20 zugeordnet. Der nächstgrößte Peak bei 7415 ns gehört ebenfalls zu Neon, aber zum Neon-Isotop der Masse 22. Bei kleineren Zeiten machen sich kleinere und breitere Peaks bemerkbar: Diese werden unter anderem Protonen t = 1590 ns und zugeordnet. Um nun den Untergrund für die Beugungsbilder zu säubern, werden Flugzeitbedingungen gesetzt. Damit ist gemeint, wie in der Abb. 5.1 zu sehen ist, dass ein Flugzeitfenster gesetzt wird und nur Teilchen mit der passenden Flugzeit im Beugungsbild dargestellt werden.
In dem abgebildeten Flugzeitspektrum für Neon bei tiefer Temperatur wurde die Flugzeit auf

- **Flugzeitbedingungen** i6_TOFgate_Ne_120K: $t \in [6800, 7600]$

gesetzt. Das ist der Bereich, den die Flugzeit des Neons abdeckt (von 6800 ns bis 7600 ns). Ebenfalls wurden für Neon und Wasserstoff Flugzeitbedingungen gesetzt.

- **Flugzeitbedingungen** i2_TOFgate_H2_30K: $t \in [500, 2550]$
- **Flugzeitbedingungen** i4_TOFgate_H2_300K: $t \in [500, 2550]$
- **Flugzeitbedingungen** i5_TOFgate_Ne_300K: $t \in [6900, 7600]$

Die Flugzeiten des Wasserstoffs sind im Vergleich zum Neon viel geringer, da die Flugzeit von geladenen Teilchen der Masse m und der Ladung q in einem elektrischen Feld mit $\sqrt{\frac{m}{q}}$ skalieren. Wie sich nun diese Bedingungen auf das Beugungsbild auswirken, ist im nächsten Kapitel zu sehen. Bevor die Beugungsbilder analysiert werden, wird überprüft, ob Dimere oder Moleküle im Flugzeitspektrum vorhanden sind. Dazu ist es sinnvoll, sich ein korreliertes Flugzeitspektrum (2D) anzuschauen. Es wird auch als PIPICO (Photoion-Photoion-Coincidence) bezeichnet. Dabei werden die Flugzeiten der beiden bei Reaktion entstandenen Ionen gegeneinander dargestellt.

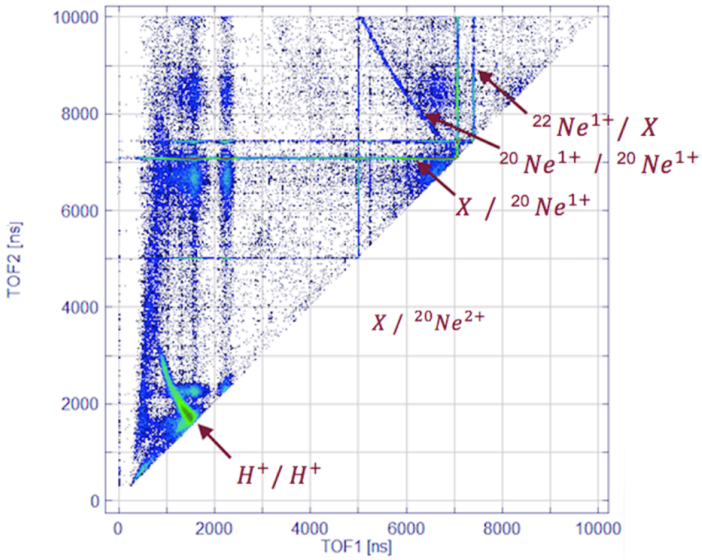

Abbildung 5.2: Pipico-Spektrum für Neon bei 300 K: TOF1 ist die Flugzeit des Teilchens welches zuerst detektiert wird und dementsprechend TOF2 die Flugzeit des zweiten Teilchens. Die Diagonale Linie bei 7070 steht für den Neondimeraufbruch.

Es existiert der Zusammenhang, dass die Zeitsumme der Recoils einen konstanten Wert hat, sodass im Pipico-Spektrum eine Diagonale zu erkennen ist. Je nachdem wie der Aufbruch zum Detektor orientiert ist, verändern sich die Flugzeiten beider Recoils. Wenn beide Recoils gleichzeitig auf den Detektor treffen, war die Molekülachse während des Aufbruchs parallel zum Detektor orientiert. Wenn der Aufbruch senkrecht zum Detektor stattgefunden hat, so ist die Flugzeit des ersten Recoils minimal und die des 2. maximal. Die Diagonale beginnend bei einer Flugzeit von 7070 ns für beide Recoils steht für das Neon-Dimer $^{20}Ne^+/^{20}Ne^+$. Des Weiteren sind im Spektrum horizontale und vertikale Linien zu erkennen. Das ist zu erklären durch zufällige Koinzidenzen, welche durch das Restgas verursacht werden.

5.0.5 Beugungsbilder

Als Erstes wurden Beugungsbilder für Neon bei zwei verschiedenen Temperaturen gemessen. In beiden Fällen wurde der Spalt mit 25 μm und Gitter 2 benutzt und ein sogenannter Scan durchgeführt. Damit ist gemeint, dass Gitter und Spalt parallel automatisiert durchfahren wurden. Alle 2 Schritte wurden 10 s lang gemessen; wobei 1 Schritt $1,56$ μm entspricht.

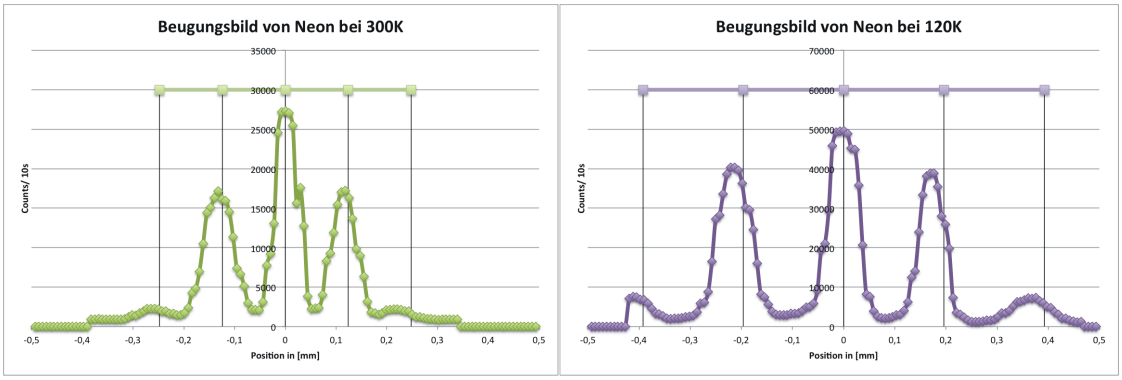

Abbildung 5.3: Links: Beugungsbild für Neon bei 300 K
Rechts: Beugungsbild für Neon bei 120 K

Wie erwartet, wurden Beugungen beobachtet, welche nun miteinander verglichen werden.

- In dem ersten Beugungsbild links sind Maxima von Neon bis zur 2. Beugungsordnungen zu sehen. In dem rechten Bild sind ebenfalls Beugungsordnungen bis zur 2. Ordnungen deutlich zu erkennen, wobei das 2. linke Maximum nicht ganz zu erkennen ist. Dies ist zum einen auf die Temperatur zurückzuführen: Je höher die Temperatur ist, desto mehr Maxima sind feststellbar. Dies lässt sich mit der Gleichung 2.8 erklären. Die Temperatur wiederspiegelt sich in der Geschwindigkeit. Dadurch nähern sich die Maxima an die 0. Ordnung. Zum Anderen spielt auch die Anordnung des Gitters und des Spaltes eine Rolle, da diese nicht unendlich weit durchfahren werden.

- Außerdem ist bei gleicher Größe eines einzelnen Verfahrschrittes zu beobachten, dass bei höheren Temperatur die Intensität und damit die Anzahl der Teilchen weniger wird, was sich durch den Teilchenfluss durch die Düse erklären lässt. Es gilt der Zusammenhang:

$$\frac{p}{T} \sim N \tag{5.1}$$

  Diese Beziehung ist aus der idealen Gasgleichung $pV = Nk_BT$ abgeleitet, dabei ist p der Druck, T die Temperatur, N die Teilchenanzahl, k_B die Avogadro-Konstante und V das Volumen. Die Parameter in der Messung waren: für T = 120 K ist p = 3 bar und für T = 300 K ist p = 3,1 bar.

- Des Weiteren ist die absolute und relative Intensität der Beugungsordnungen zu vergleichen. Ordnung zu vergleichen. Für Neon bei 300 K ist sie etwa bei 2750 Counts und für Neon bei 120 K etwa doppelt so hoch. Jedoch ist die Intensität 1. Ordnung für Neon bei 120 K nicht so stark gesunken wie für Neon bei 300 K, analog dazu sieht es für die Maxima 2. Ordnung aus.

- Ein weiterer Punkt, der deutlich wird ist, dass es in beiden Fällen eine leichte Verschiebung nach links gibt, obwohl die 0. Ordnung auf Position 0 kalibriert wurde.

Durch mehr Messwerte wäre vielleicht eine bessere Kalibrierung möglich. Die Punkte oberhalb des Intereferenzbildes sind die aus der Formel 3.9 errechneten Erwartungen der jeweiligen Ordnungen. Für das rechte Bild stimmen die errechneten Positionen bis zur 1. Ordnung sehr gut überein. Für das linke Bild gibt es schon ab der 1. Ordnung leichte Abweichungen. Im einen Fall ist sie etwas zu viel und im anderen Fall zu wenig, was auf den vorigen Punkt zurückzuführen ist.

Zudem wurden Beugungsbilder für Wasserstoff bei 300 K und 29,5 K gemessen und diese ebenfalls analysiert. Zu erwähnen ist, dass im Pipico-Spektrum für Wasserstoff bei 29,5 K eine Diagonale oberhalb der H^+-Diagonalen zu erkennen ist. Diese Flugzeit entspricht der des H_2^+, was darauf hindeutet, dass Wasserstoffmolekül-Dimere ($(H_2)_2$) vorhanden sind (siehe Anhang). Es wurde - wie bereits zuvor - ein Scan mit dem 25 μm Spalt und Gitter 2 durchgeführt. Die Schrittweite[1] betrug 5 Schritte und wurde 10 s lang bei 300 K und 6 s lang für 29,5 K gemessen. Die Schrittweite bei Wasserstoff wurde höher gesetzt, da die Beugungsordnungen im Vergleich zu Neon bei größeren Abständen zu erwarten sind.

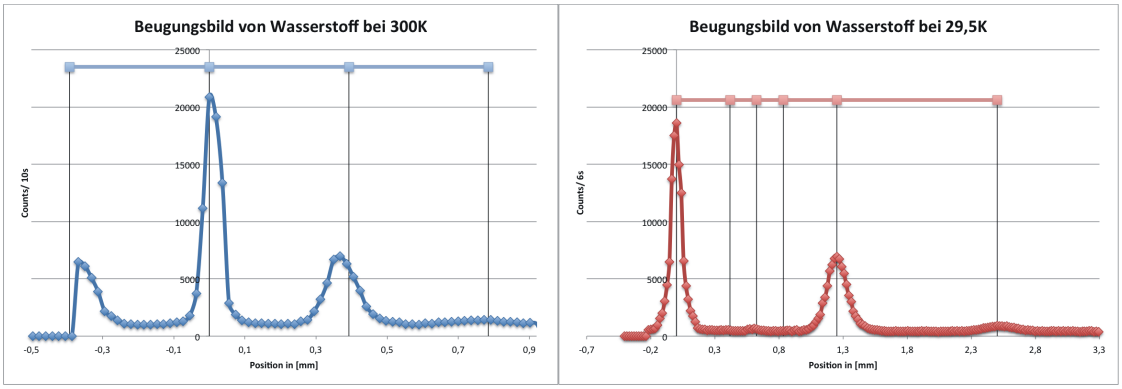

Abbildung 5.4: Links: Beugungsbild für Wasserstoff bei 300 K
Rechts: Beugungsbild für Wasserstoff bei 29,5 K

- In den Beugungsbildern sind Beugungsordnungen bis zur 2. Ordnung (rechte Seiten) zu erkennen. Die linke Hälfte der Beugungsbilder ist im linken Bild nur im Ansatz und im rechten Bild nicht zu erkennen. Das liegt daran, dass an dem Kammereingang eine Blende mt 2 mm Durchmesser ist, welche die Scanweite beschränkt.

- Darüber hinaus sind, die im Pipico-Spektrum (7.1) für das rechte Bild zu erkennenden Wasserstoffmolekül-Dimere (Diagonale bei t = 2270 ns) im Beugungsbild sichtbar. Die 1. Beugungsordnung liegt im halben Abstand von 0. und 1. Ordnung des Wasserstoffmoleküls.

- Des Weiteren ist die Intensität der Beugungsmaxima zu vergleichen. Die Intensität der 0. Ordnung bei 300 K ist mehr als bei 29,5 K. Normalerweise erwartet man - wie davor auch - mehr Counts bei tiefer Temperatur. Hier gilt ebenfalls die Beziehung 9.1. Die Statistik bei 29,5 K ist mehr, da pro Schrittweite 10 s lang gemessen wurde; für 300K wurde pro Schrittweite 6 s lang gemesen. Bei 300 K betrug p = 2,18 bar und bei 29,5 K p = 1,46 bar.

- In dem linken Beugungsbild ist ebenfalls eine leichte Verschiebung nach links zu erkennen. In dem rechten Bild ist diese Verschiebung nicht zu sehen, da nur die eine Hälfte des Beugungsbildes gemessen wurde.

- Durch die tof-Bedingungen ist bei Wasserstoff kaum Untergrund zu erkennen, sodass die Beugungsordnungen für das Monomer und das Dimers sehr gut zu erkennen sind.

[1] 1 Schritt $\widehat{=} 1,56\ \mu m$

- Vergleicht man nun die gemessenen Positionen der Maxima mit den erwarteten Positionen, so ist zu erkennen, dass die Beugungspeaks etwas deformierter aussehen. Die Beugungsordnungen für Wasserstoff bei 29,5 K stimmen sehr gut überein. Dies liegt eventuell daran, dass ausreichend Statistik vorhanden ist. An den Messwerten ist zu vermuten, dass die vertikalen Linien die Spiegelachse des jeweiligen Maxiumums sind.

Da das letzte gemessene Beugungsbild am besten gelungen ist und für die weitere Messung relevant ist, wird dieses logarthmisch dargestellt.

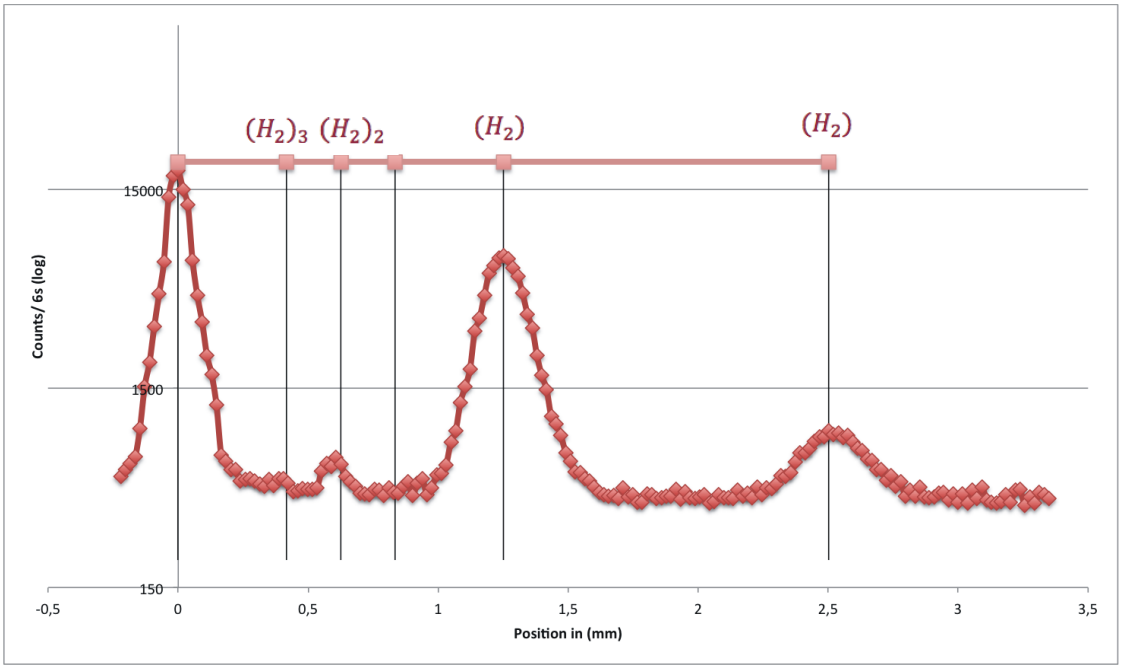

Abbildung 5.5: log-Darstellung des Beugungsbildes für Wasserstoff bei 29,5 K

- Durch diese Darstellung ist das Dimer noch besser zu erkennen und Trimere 1. und 2. Ordnung zu erahnen. Diese befinden sich zwischen der nullten und 1. Ordnung des Dimers und der 1. Ordnung des Dimer und der 1. Ordnung des Monomers.

Insgesamt ist zu sagen, dass mit dieser Methode die Beugungsbilder sehr gut gelungen sind und Wasserstoff-Dimer nachgewiesen werden konnten. Deshalb hat sich die Frage nach den Eigenschaften des Dimers gestellt. Da die Position des Dimers bekannt ist, kann man das Gitter und den Spalt fest positionieren, sodass nur Dimere auf den Laserfokus treffen und mit der COLTRIMS-Methode analysiert werden. Um die Messung wird es in Kapitel 5.0.6 gehen.

Als nächstes wurden die Beugungsbilder bezüglich ihrer Halbwertsbreit (FWHM) untersucht. Unter der Maximumshalbwertsbreite versteht man die Breite der Verteilung bei halbem Maximalwert der Verteilung.

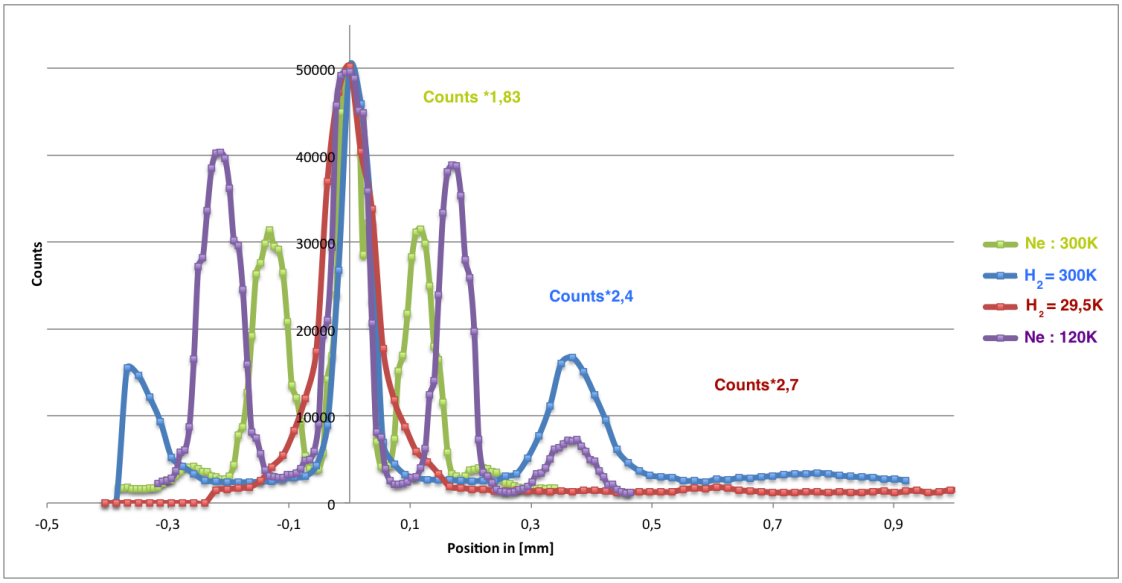

Abbildung 5.6: Zum Vergleich der vier aufgenommenen Beugungsbilder. Dabei wurden die 0. Ordnung auf eine Höhe von 50000 Counts normiert.

Die Gaußfunktion weist eine Symmetrie auf und ist glockenförmig. Da die Beugungspeaks ebenfalls symmetrisch sein sollten, werden sie mit einer Gauß-Funktion gefittet, und dabei die Halbwertsbreite (FWHM) ermittelt.

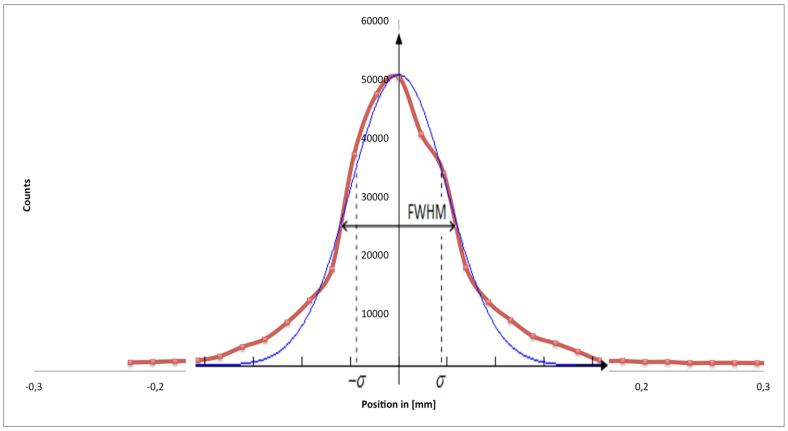

Abbildung 5.7: Die Messwerte der 1. Ordnung des H_2 (rot) wurden durch eine eine Gauß-Funktion aus genähert (blau) [MaEn]

Neon bei Raumtemperatur hat die schmalsten Beugungspeaks mit einer Halbwertsbreite von $46,4\ \mu m$ für die 0. Ordnung. Dabei wird der FWHM-Wert mit höherer Ordnung breiter (1. Ordnung: links: $68,8\ \mu m$, rechts: $59,3\ \mu m$). Wasserstoff bei 29,5 K hat die breitesten FWHM wobei die 0. Ordnung $110\ \mu m$ breit ist. Insgesamt ist in den Beugungsaufnahmen zu erkennen, dass mit höherer Beugungsordnung die FWHM breiter werden, was mit der 'Speedratio' zu erklären ist, die im Weiteren noch erklärt wird.
Als Nächstes wurden die gemessenen FWHM-Werte dazu genutzt, Informationen über die Quellbreite zu erhalten. Wie in Abbildung 5.8 dargestellt erhält man die Breite der

Quellregion mittels Strahlensatz aus der gemessenen Halbwertsbreite, der Spaltgröße und der Abstände von Quelle, Spalt und Nachweisvolumen. Mit dieser Methode wurde in der Bachelorarbeit von Jörg Hahnenbruch [Hah14] für He eine Quellgröße von $58,5\ \mu m$ ermittelt.

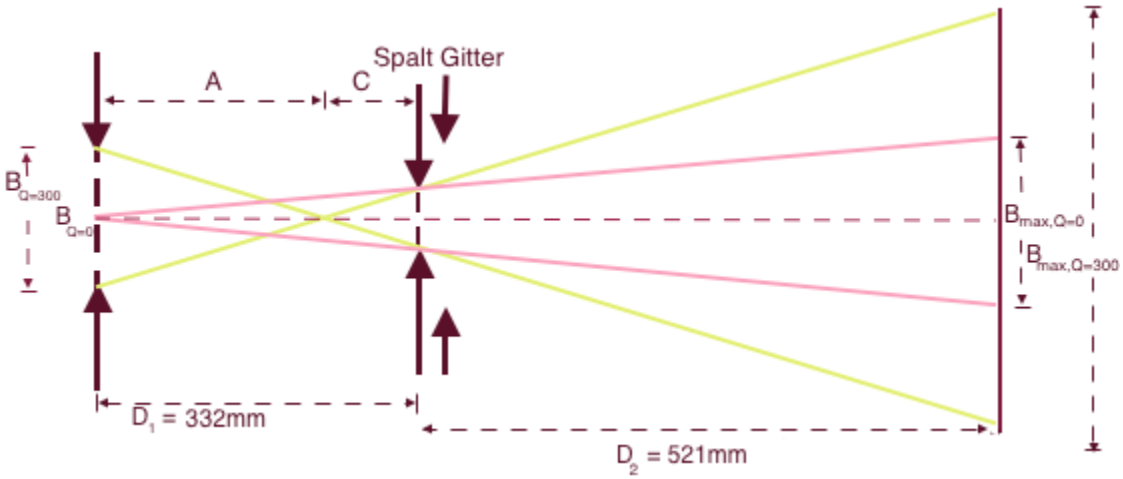

Abbildung 5.8: Strahlenverlauf bei einer punktförmigen Quelle und bei einer Quelle der Breite 300 μm.

Bevor nun die genaue Quellbreite berechnet wird, stellt sich die Frage, welchen maximale und minimale Größe die Quelle annehmen kann. Minimal kann die Breite 0 sein, mit anderen Worten: Die Quelle kann punktförmig sein. Nach dem Strahlensatz gilt demnach die Relation

$$\frac{B_{Spalt}}{D_1} = \frac{B_{max,Q=0}}{D_1 + D_2}$$

dabei ist $B_{max,Q=0} = 64,2\ \mu m$ und die Breite des Spaltes 25 μm, das Gitter wird vernachlässigt. Da der Durchmesser des Skimmers 300 μm ist, kann die Quelle maximal 300 μm sein. Die dazugehörige Maximumsbreite auf der Messebene kann durch die Relation

$$\frac{B_Q}{A} = \frac{B_S}{C} = \frac{B_{Max}}{C + D_2} \tag{5.2}$$

beschrieben werden. Durch Einsetzen der bekannten Größen folgt für $B_{max,Q=300} =$ 535 μm. Damit liegt B_{max} im Intervall von $[64,2; 535]$ für einen Spalt der Breite 25 μm. Durch die Gleichung (9.2) kann die Quelle jeglicher Breite bestimmt werden. Die bekannten Größen im Experiment sind: Die Abstände zwischen Quelle und Spalt und der gesamte Abstand zwischen Quelle und Schirm. Durch das Einsetzen der Größen und das Umformen der Gleichung mit der Relation $A + C = D_1$ folgt [Hah14]

$$B_Q = \frac{D_1}{D_2}(B_{max} - B_S) - B_S \tag{5.3}$$

Nun können die erwarteten Quellbreiten berechnet werden. Dabei ist zu beachten, dass für die geometrische Maximumsbreite B_{max} der doppelte FWHM-Wert genommen werden muss. Für den Idealfall wird die gesamte Maximumsbreite mit doppeltem FWHM-Wert angenommen $B_{max,gemessen} \sim 2$ FWHM. Im nächsten Schritt wird das Augenmerk auf die 0. Beugungsordnungen gelegt. Damit ergeben sich Quellbreiten von:

Spaltbreite	FWHM in $[\mu m]$	B_Q in $[\mu m]$
Neon bei 120 K	94,3	79,3
Neon bei 300 K	46,4	18,2
Wasserstoff bei 29,5 K	110,1	99,4
Wasserstoff bei 300 K	84,2	66,4

In der Arbeit von J.Hahnenbruch wurden Messungen mit der gleichen Apparatur für drei unterschiedlichen Spalte ($25\ \mu m, 50\ \mu m, 100\ \mu m$) durchgeführt. Dazu wurde eine lineare Regression der drei Spalte gegen die gemessenen Halbwertsbreiten geplottet, um die FWHM-Werte bei keinem Spalt herauszubekommen und damit die Quellgröße bestimmt. Da in dieser Arbeit Messungen mit einem Spalt durchgeführt wurden, wird anhand der Werte nachgeschaut, inwiefern der ermittelte Wert aussagekräftig ist.

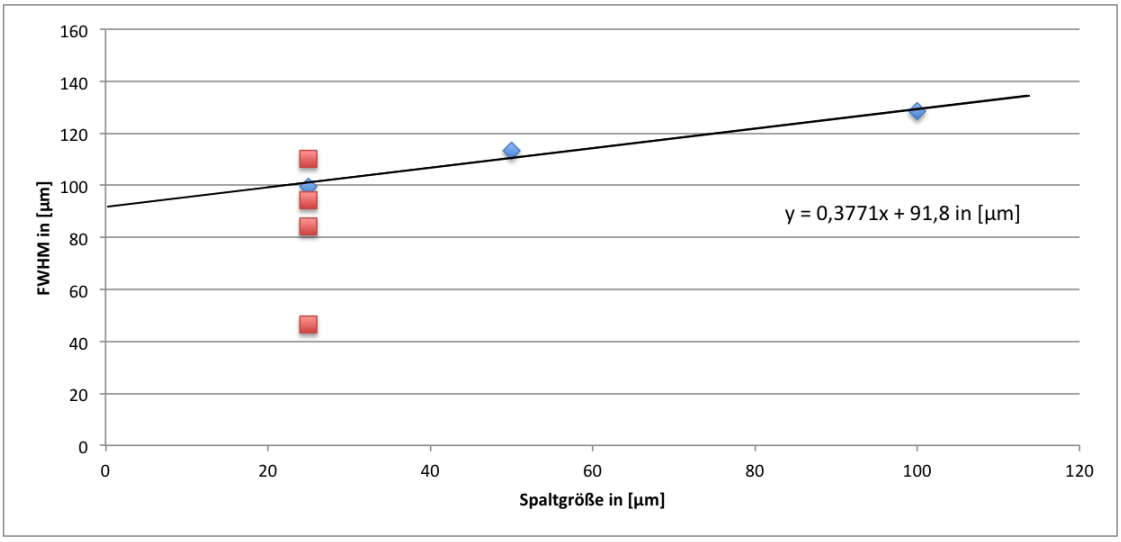

Abbildung 5.9: FWHM bei verschiedenen Spaltgrößen. Bestimmung der Quellgröße durch eine lineare Regression. Die roten Punkte sind die in der Arbeit gemessenen FWHM

Die von ihm bestimmte Quellbreite mit der Halbwertsbreite von $91,8\ \mu m$ entspricht nach Formel 7.3 einer Quellbreite von $58,5\ \mu m$ und liegt im Intervall $[0; 300]$. Anhand der gemessenen Punkte sieht man, dass drei der Punkte relativ nahe der Geraden liegen. Diese Punkte entsprechen von oben: Wasserstoff bei 29,5 K, Neon bei 120 K und Wasserstoff bei 300 K. Der vierte Punkt für Neon bei 300 K liegt sehr weit unten.
Nach Referenz [Wi11] ist die Quellbreite von dem Speedratio und Düsendurchmesser abhängig. Das Speedratio gibt das Verhältnis der mittleren Geschwindigkeit des Gasstrahls zur internen Geschwindigkeitsverteilung an

$$S = \sqrt{\frac{v}{\Delta v}} \tag{5.4}$$

Dabei hängt die Geschwindigkeitsverteilung von der Temperatur und vom Druck ab. Bei tiefen Temperaturen ist die Geschwindigkeitsverteilung des Gasstrahls sehr schmall (Überschallexpansion) und bei hohen Temperaturen dementsprechend sehr breit [Voi14]. Die Quellbreite, auch leuchtende Fläche in der Referenz genannt, ist gegeben durch:

$$a = 0,66 \cdot d \cdot \sqrt{S} \tag{5.5}$$

Dabei ist d der Düsendurchmesser und beträgt im Experiment 5 μm. Für die Quellbreiten sind folgende Werte errechnet:

Spaltbreite	S	B_Q in [μm]	Δv in [m/s]
Neon bei 120 K	15	12,78	41,62
Neon bei 300 K	8,0	9,33	98,71
Wasserstoff bei 300 K	8,8	9,8	283,77

Aus der Tabelle ist abzulesen, dass die relativ Geschwindigkeiten der Teilchen sehr breit sind. Damit sind im Gasstrahl Teilchen mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten vorhanden. Daraus resultiert durch die de-Brogli-Wellenlängen eine gewisse Breite in den Beugungsordnungen. Dies ist in den aufgenommenen Beugungsbildern zu erkennen. Mit ansteigender Ordnung werden die Beugungsordnungen breiter. Bei tiefen Temperaturen ist die Quellbreite größer als bei hohen.
Nun können die errechneten Werte aus den Formeln 5.0.5 und 5.0.5 verglichen werden. Die Größenordnungen in beiden Fällen ist im μm Bereich. Auch hier spiegelt sich diese Tendenz, dass bei tiefen Temperaturen die Quellbreite größer ist wieder, wobei es starke Unterschiede gibt. Die Quellgrößen unterscheidet sich maximal um einen Faktor 8.

5.0.6 Messungen am (H_2)-Dimer

In dem Beugungsbild für Wasserstoff ist die 1. Beugungsordnung des Wasserstoffmolekül-Dimers zu erkennen. Da noch wenig über das Dimer bekannt ist, hat sich die Frage nach der KER-Verteilung und dem intermolekulare Abstand des Dimers gestellt. Dazu wurde eine Messung mit den gleichen Parametereigenschaften durchgeführt: das E-Feld betrug 3,12 V/cm, Düsentemperatur 29,5 K und der Vordruck von 1,46 bar. Der Laser hat eine Fokusintensität von etwa $2 \cdot 10^{15}$ W/cm^2 und war linear in y-Richtung polarisiert ($\phi = 0$ bwz. 180). Der Unterschied zu den vorigen Messungen ist, dass das Gitter und der Spalt ortsfest positioniert sind und nur Dimere nach dem Beugungsprinzip in den Laserfokus abgelenkt. Dadurch werden die Dimere vom Untergrund (Monomere und anderer Cluster) getrennt. Der Dimer-Anteil wird dann mit dem Laser gekreuzt und mittels COLTRIMS-Methode analysiert. Die Positionen des Gitters und des Spaltes sind aus der vorigen Messungen bestimmbar. Das gemessene Pipico-Spektrum ist in Abb. 5.10 links dargestellt.

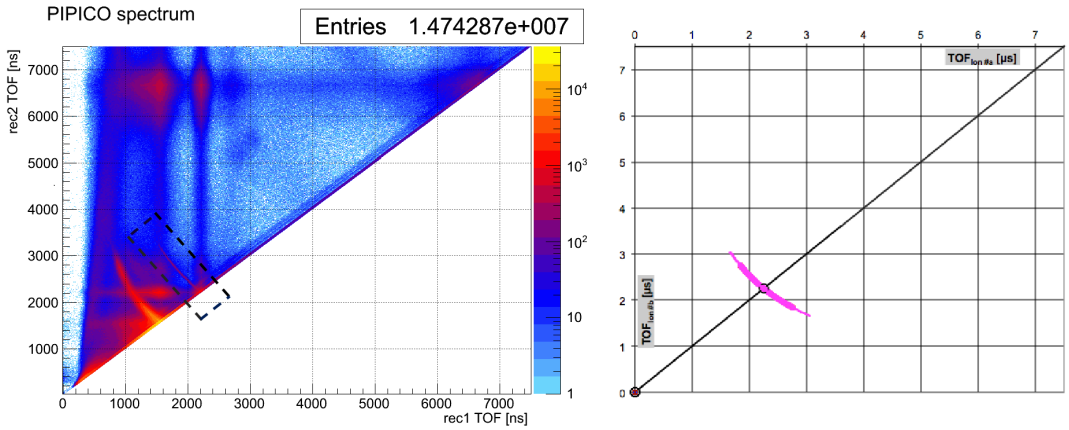

Abbildung 5.10: Links: gemessene Rohdaten Pipico-Spektrum
Rechts: die Erwartung der Pipico-Linie nach der Simulation

Im Pipico-Spektrum ist der Aufbruch des Wasserstoffmoleküls zu $(H_2)^+ + (H_2)^+$ zu erkennen. Die Flugzeit der H^+-Ionen beträgt 1650 ns. Bei höheren Flugzeiten (2279 ns) ist eine weitere Diagonale zu erkennen, die zum $(H_2)_2$-Dimer gehört. Bei der Reaktion entstehen zwei H_2^+-Ionen. Es sind viele Ereignisse in den Rohdaten vorhanden, die nicht zu dem Wasserstoff-Dimer Aufbruch gehören. Deshalb muss der Untergrund aussortiert werden. Zum einen werden nur diejenigen Teilchen verwendet, die zu einem Zweiteilchen-Aufbruch gehören, zum anderen wird für das Dimer-System Impulserhaltung gefordert. Nachdem die Bedingungen gesetzt wurden, sieht die Diagonale folgendermaßen aus:

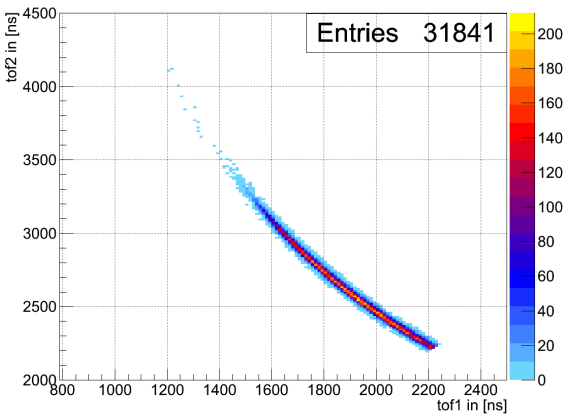

Abbildung 5.11: Pipico-Spektrum nach Forderung von Impulserhaltung für den $H_2^+ + H_2^+$-Aufbruch

Des Weiteren kann die Aufbruchsenergie (KER) betrachtet werden.

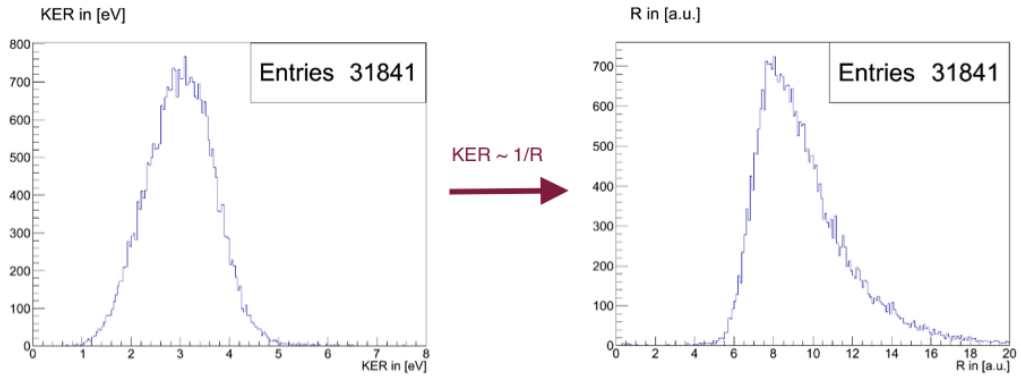

Abbildung 5.12: Links: KER-Verteilung mit der Bedingung von mindestens 0,5 eV. Rechts: Der internukleare Abstand aus dem KER

Der KER beträgt minimal 1 eV, maximal 6 eV und im Mittel 3,006 eV mit einer Standardabweichung von $\sigma_{KER} = 0,6953$. Die Elektronen, die in der Reaktion entstehen, werden vernachlässigt. Da es sich um einen symmetrischen Aufbruch handelt, tragen die Ionen im Mittel eine kinetische Energie von 1,5 eV. Nach der Reflexion Approximation lässt sich aus der KER-Verteilung der intermolekulare Abstand der zwei H_2^+-Molekülionen berechnen. Dieser ist gegeben durch die Inverse des KERs in atomaren Einheiten (R = 1/KER). Der Abstand beträgt minimal 4 a.u., maximal 20 a.u. und im Mittel 9,225 a.u., in SI-Einheiten umgerechnet sind das 10,58 Å und 4,88 Å, wobei die Standardabweichung $\sigma_R = 2,419$ beträgt.
Des Weiteren kann der Einfluss des Lasers auf die Fragmentationsdynamik analysiert werden. Dazu schaut man sich am besten die Position der Teilchen auf dem Detektor an.

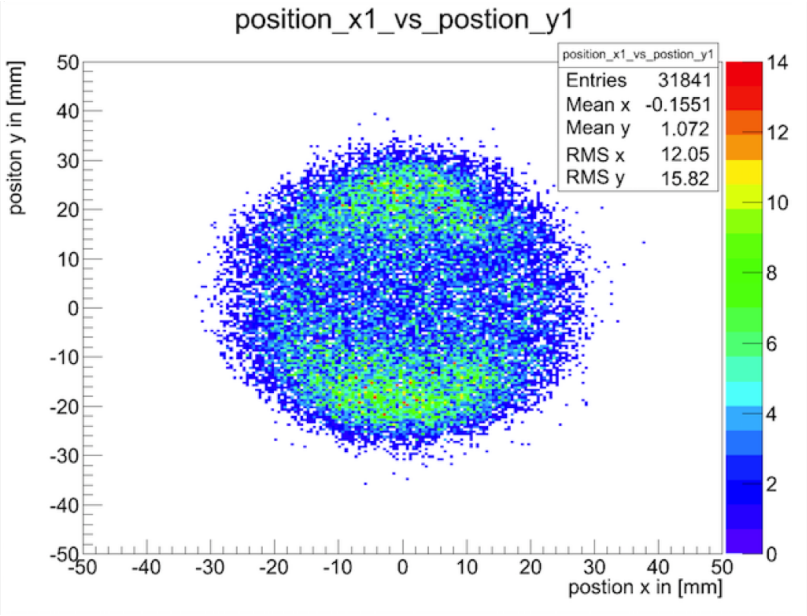

Abbildung 5.13: Position des 1. Ions in der xy-Ebene. Der Detektor ist kreisförmig und hat einen Druchmesser von 60 mm

Wie in Kapitel 3.5 entspricht die x-Achse der Ausbreitungsrichtung des Lasers. Da der Laser linear polarisiert ist, senkrecht zur Ausbreitungsrichtung, wird die Ionisation und damit der Aufbruch in y-Richtung bevorzugt. Bildlich gesehen bewirkt die Laserpolarisation eine starke Verzerrung des Coulomb-Potentials des Teilchns in der y-Ebene. Damit können die Ionen die Bariere leichter durchtunneln. Daraus ist zu entnehmen, dass der Aufbruch abhängig von der Polarisation ist.

5.0.7 Geometrische Struktur des (H_2)-Dimers

Im Folgenden soll die Struktur des (H_2)-Dimers analysiert werden. Dazu betrachen wir den Aufbruch des Dimers in vier Protonen:

$$(H_2)_2 \Longrightarrow H^+ + H^+ + H^+ + H^+$$

Bei dem Vierteilchen-Aufbruch entstehen vier ununterscheidbare Protonen. Mit Hilfe der Impulse der vier Fragmente wird versucht die Struktur zu analysieren, denn falls die Protonen aus einer Reaktion stammen, müssen sie die Impulserhaltung erfüllen. Da sich die Teilchen nach der Reaktion in unterschiedlichen Richtungen bewegen, kann mit Hilfe ihrer Impulse eventuell Aussagen über ihre Struktur getroffen werden. Um zu überprüfen, ob der Prozess stattfand, wird das Vierteilchen-Pipico-Spektrum analysiert.

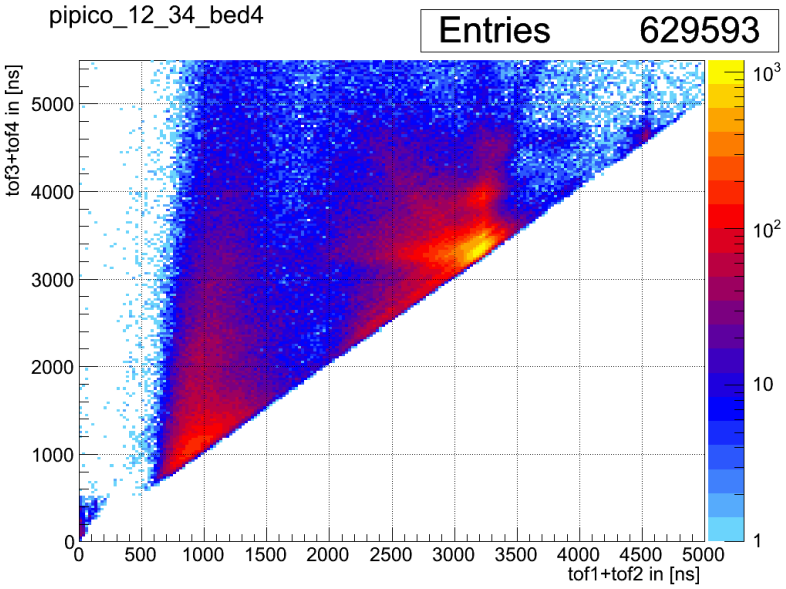

Abbildung 5.14: Vierteilchen-Pipico-Spektrum

Im Vierteilchen-Pipico-Spektrum ist eine Diagonale der Winkelhalbierenden bei einer Flugzeit von 3300 ns für zwei Teilchen zu erkennen (siehe Abb. 5.16); die Flugzeit eines Protons beträgt 1650 ns. Damit ist belegt, dass Vierteilchen-Aufbrüche aus vier Protonen vorhanden sind. Der Aufbruchskanal ist jedoch überlagert von vielen zufälligen Koinzidenzen, wie dem Aufbruch eines Wasserstoffmoleküls und zwei auftreffenden unkorrelierten Protonen und Ähnlichem. Deshalb müssen die Ereignisse des Vierteilchenaufbruchs von diesen separiert werden. Es werden folgende Bedingungen auf die Flugzeit gesetzt wie in Abb. **??** dargestellt.

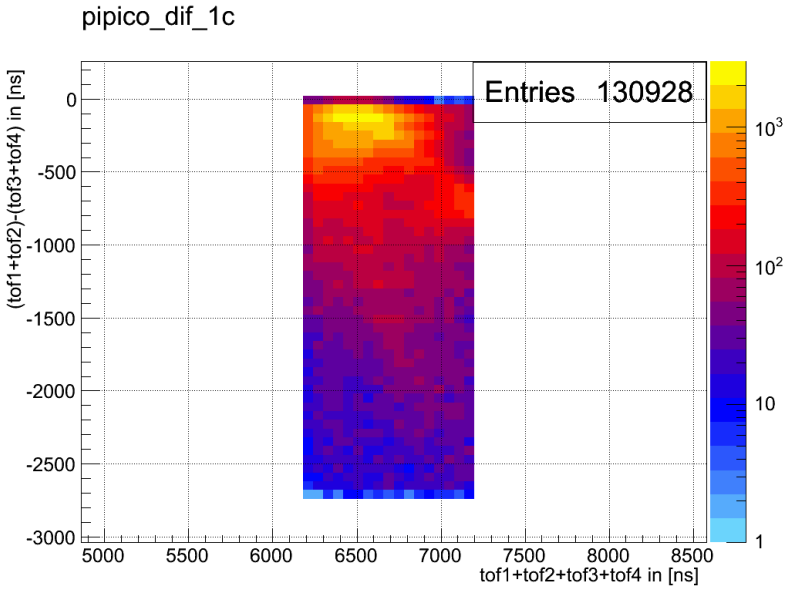

Abbildung 5.15: Bedingung auf die Flugzeiten, $tof1{+}tof2{+}tof3{+}tof4 \in [6200ns; 7200ns]$ und $tof1 + tof - (tof3 + tof4) \in [0ns; -2700ns]$

Überdies müssen gemäß Formel 4.0.2 die Impulse in das Schwerpunktsystem überführt werden um internukleare Abstände und KERs zu bestimmen. Nachdem die Impulse definiert sind, können die Bedingungen auf die Impulse gelegt werden. Gefordert wird, dass der Summenimpuls im Intervall von: $pxsum \in |7|$, $pysum \in [-9; 11]$ und $pzsum \in [-9; 5]$ liegt.

Betrachtung des Aufbruchs in Koordinatensystem A

Um die Struktur der Dimers herauszufinden wird eine Ebene aus den zwei Impulsvektoren zweier Teilchen definiert und die Lage des dritten und vierten Impulses im Bezug auf diese Ebene analysiert. In Abbildung 5.16 sind die Impulsvektoren der Teilchen dargestellt.

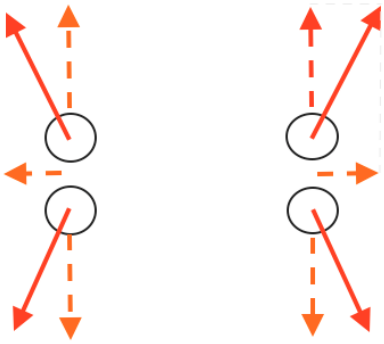

Abbildung 5.16: Impulsvektoren beim Vierteilchen-Aufbruch. Beim Aufbruch des Dimers in zwei Moleküle H_2^+ stoßen sich die Moleküle im Winkel von 180° ab. (kleine gestrichelte Pfeile). Beim Wasserstoffmolekül-Aufbruch stoßen sich beide Atome ebenfalls im 180° Winkel ab (große gestrichelte Pfeile).

Im $(H_2)_2$ befinden sich jeweils 2 der 4 Konstituenten nahe beieinander, während die 2 Paare relativ weit voneinander entfernt sind. Werden alle Konsitituenten ionisiert, so erhält jedes Ion den größten Rückstoßimpuls von seinem naheliegensten Nachbarn. Ein kleiner Rückstoß kommt es von dem entfernter gelegenen Ionenpaar (siehe 5.16). Mit der Vektoraddition kommt es insgesamt zu einer Verschiebung der Impulse.
Zur Vereinfachung wird eine Transformation der Impulse in ein neues Koordinatensystem durchgeführt. Die Vektoren werden in das Laborsystem durch eine Lorentztransformation überführt. Im neuen Koordinatensystem (A) definiert der Impulsvektor des ersten Teilchen die x-Achse und das zweite Teilchen wird in die xy-Ebene gedreht.
Um herauszufinden welche Teilchen zu den einzelnen Molekülen des Dimers gehörten werden die Relativimpulse der Teilchen betrachtet. Hierbei wird ausgenutzt, dass der Relativimpuls innerhalb eines H_2 größer ist als der zwischen den Teilchen des Dimers. Darüber wird eine Zuordnung der Teilchen gemacht, so dass Teilchen 1 und 2, sowie Teilchen 3 und 4 je ein Molekül wiedergeben.
Um diese Sortierung zu kontrollieren wird getestet, ob Teilchen 1 und 2 bzw. 3 und 4 unter einem nahezu gestreckten Winkel, fast unter 180° , aufbrechen.

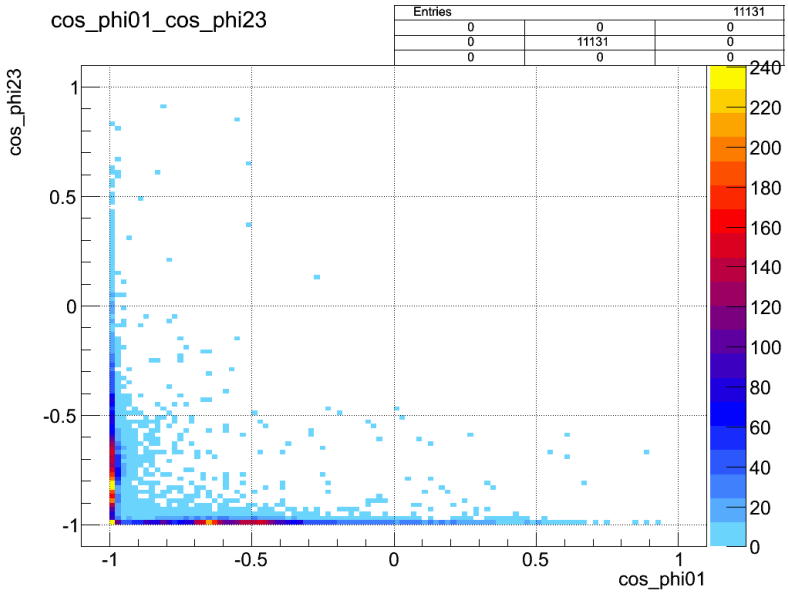

Abbildung 5.17: Winkelverteilung zwischen den Molekülen; Die x-Achse ist der Winkel zwischen Teilchen 1 und 2; Die y-Achse ist der Winkel zwischen Teilchen 3 und 4

Der Vierteilchen-Aufbruch ist bei kleineren Winkeln unter 180° zu erkennen. In dem Aufbruch entstehen vier Protonen, die wie in Abb.5.16 bereits erklärt, sich in einem bestimmten Winkel voneinander entfernen. Des Weiteren ist ein Maximum bei -1 also einem Winkel von 180° zu erkennen. Dieser gehört zum Untergrund und entsteht durch andere Ionisationen, bei denen Protonen entstehen.
Um nun die Orientierung der einzelnen Moleküle herauszufinden wird eine Ebene durch die Impulsvektoren des 1. und 2. Teilchens festgelegt. Dazu wird die Lage des Normalenvektors zu den zwei Impulsvektoren des 3. und 4. Teilchen überprüft.

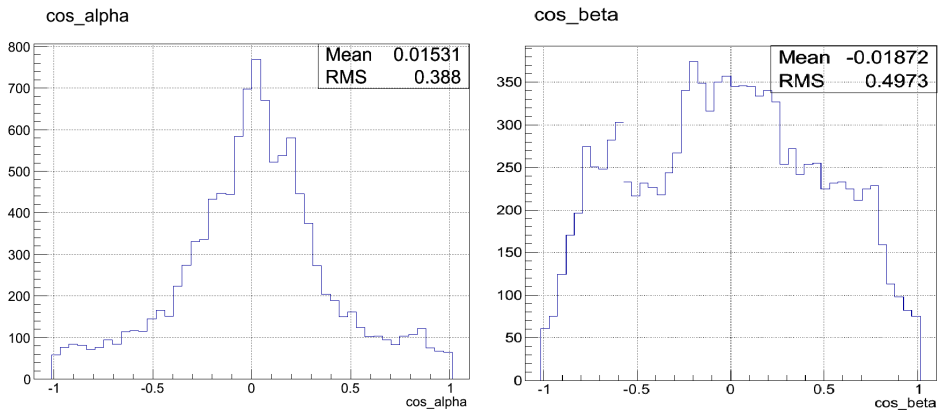

Abbildung 5.18: Links: Der Winkel zwischen dem Normalvektor und dem Impulsvektor des 3. Teilchens; Rechts: Der Winkel zwischen dem Normalenvektor und dem Impulsvektor des 4.Teilchen.

Der Winkel beim 3. Teilchen ist um eine Verteilung um 90° , damit liegt Teilchen 3 um die durch Teilchen 1 und 2 aufgespannten Ebene. Beim 4. Teilchen ist keine direkte Struktur erkennbar.

Um Aussagen über die Güte der gesetzten Bedingungen zu treffen, soll das Vierteilchen-PIPICO unter Anwendung unterschiedlicher Bedingungen vergleichen werden. Das bisherige PIPICO-Spektrum ist an Abb.5.19 dargestellt.

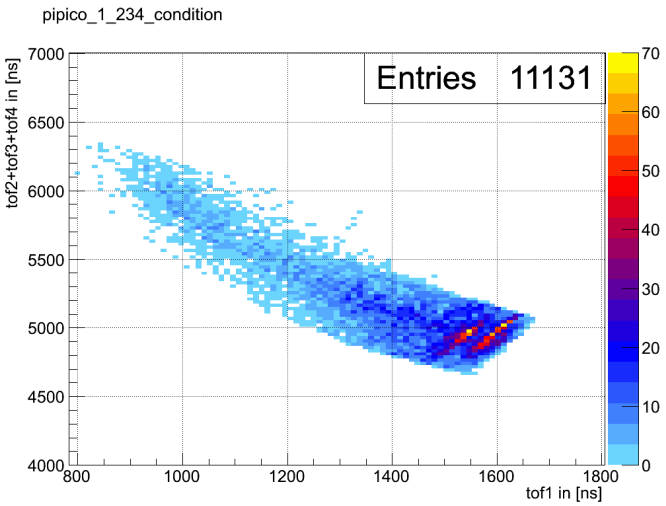

Abbildung 5.19: Vierteilchen-Pipicospektrum mit den bisherigen Conditions

Auffallend sind die zwei parallelen Linien zur Diagonalen, die ein Indiz für eine Häufung von Koinzidenzen darstellen, die nicht durch den zu betrachtenden Prozess entstanden sind. Diese können durch Reflexionen am Anodenende zustande kommen. Deshalb werden im folgenden weitere Bedingungen gesucht, um diese von den echten Ereignissen zu trennen.
Wenn die Fragmente aus einem Aufbruch sind, dann muss die Aufbruchsenergien für beide Moleküle gleich groß sein. Dies wird mit dem Spektrum Abb. 5.20 links überprüft.

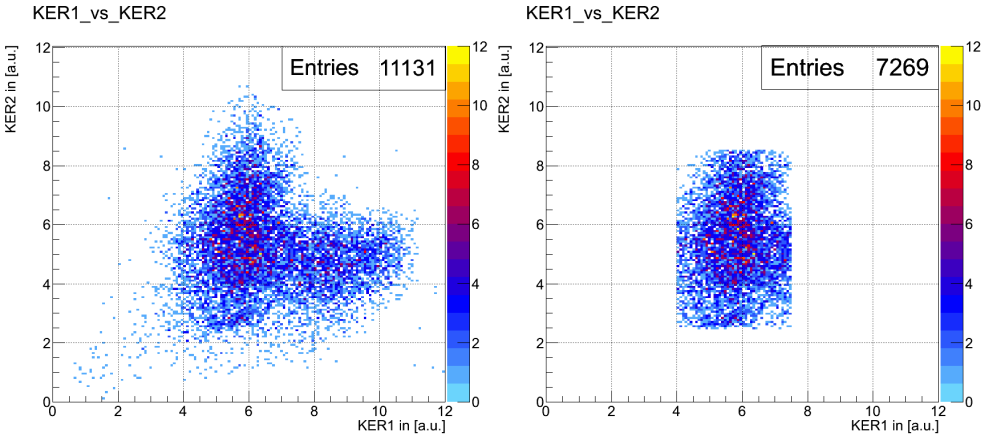

Abbildung 5.20: Links: KER-Verteilung des 1. Teilchen gegen die des 2. Teilchens.
Rechts: mit einer KER-Bedingung

Dabei ist KER1 die KER-Verteilung des 1. und 2. und KER2 die des 3. und 4. Teilchen. Auffallend ist, dass der KER1 besonders hohe Werte annimmt. Deshalb wurde für die KER-Verteilungen eine Bedingung gesetzt: KER1 = 4-7.5 a.u, KER2 = 2-9 a.u. Der Einfluss dieser Bedingung auf das Pipico-Spektrum ist in der Abb. 5.20 zu sehen.

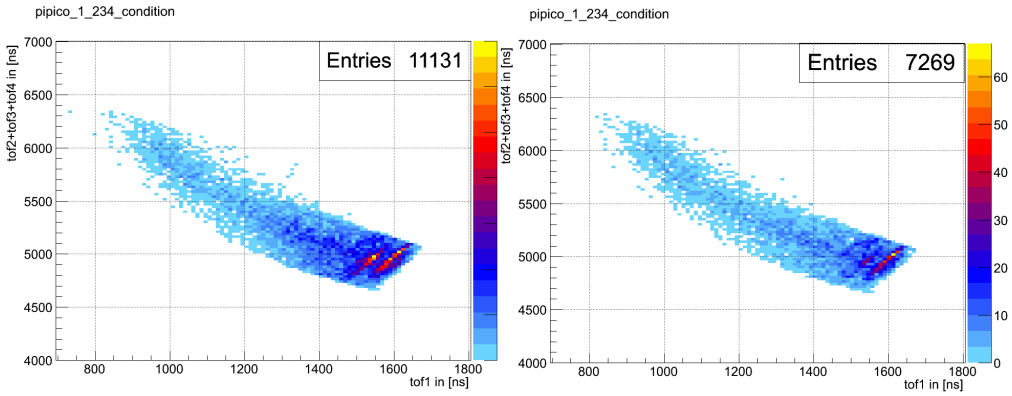

Abbildung 5.21: Vierteilchenpipico-Spektren; links: aus Abb.5.19, rechts mit zusätzlicher der KER-Bedingung

Auch nach Anwendung dieser Bedingung sind die Linien noch zu erkennen. Diese Bedingung hat zu keinem gewünschten Untergrundabzug gebracht. Schaut man sich die Winkelverteilungen an, so ist erkennbar, dass bei der cos-Verteilung bei -0,6 und 0,6 zwei leichte Maxima zu sehen sind; das entspricht einem Winkel zwischen 60° und 160°. Das Maximum bei 90° ist nicht mehr zu erkennen.

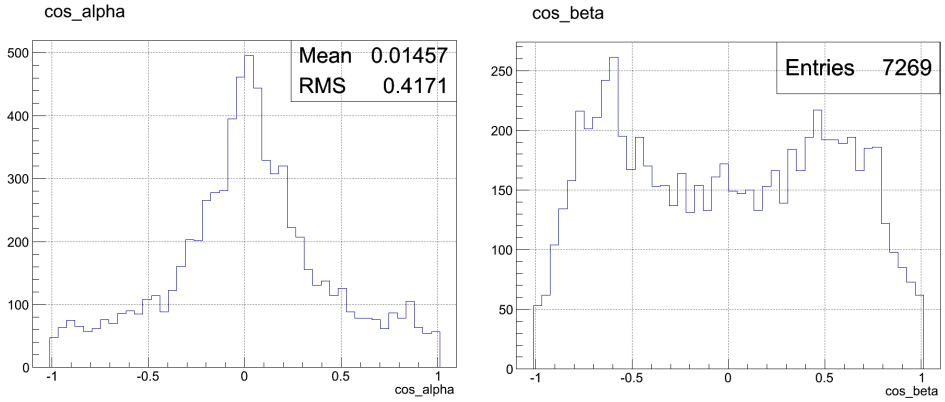

Abbildung 5.22: Die Winkel zwischen dem Normalvektor und den Impulsvektoren Teilchen 3 (links) und 4 (rechts)

Es zeigt sich, dass die Bedingung auf den KER zu keinem guten Untergrundabzug führt. Deshalb wird diese Bedingung in der weiteren Analyse nicht mehr verwendet.

Nachfolgend betrachten wir die Ortsdifferenzen (Positionsdifferenzen) und Zeitdifferenzen der Fragmente auf dem Detektor. Durch Totzeiten des Detektors können falsche Signale entstehen.

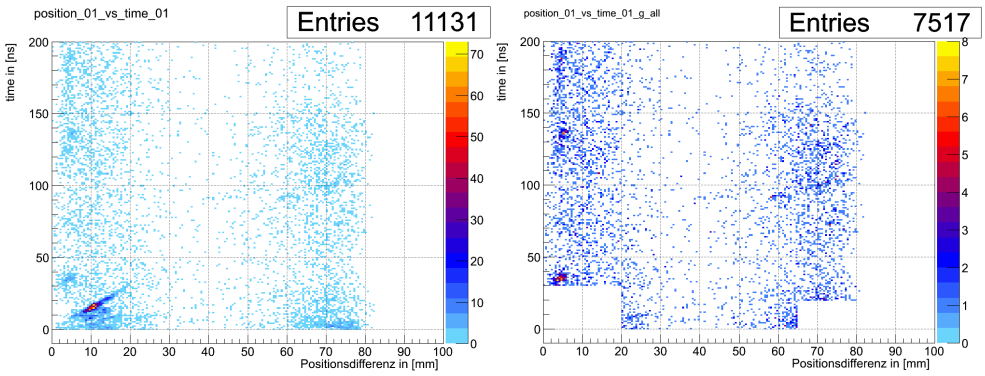

Abbildung 5.23: Positionsdifferenz des 1. und 2. Teilchens.

Der Detektor ist kreisförmig und hat einen Durchmesser von 80 mm. Damit kann die maximale Positionsdifferenz zwischen den Teilchen nicht größer als 80 mm sein. Schaut man sich das linke Bild genauer an, so ist festzustellen, dass eine Häufung von Ereignissen für kleinere Positionsdifferenzen und Zeitdiffrenzen zu erkennen sind. Was auf Reflexionen andeutet. Bei den Positionsdifferenzen für das Teilchen 3. und 4. ist ebenfalls eine leichte Häufung von Ereignissen zu erkennen. Dieser Untergrund wird durch anlegen eines kleinen Kasten an den Stellen gefiltert. Damit sieht das Pipico Spektrum folgendermaßen aus:

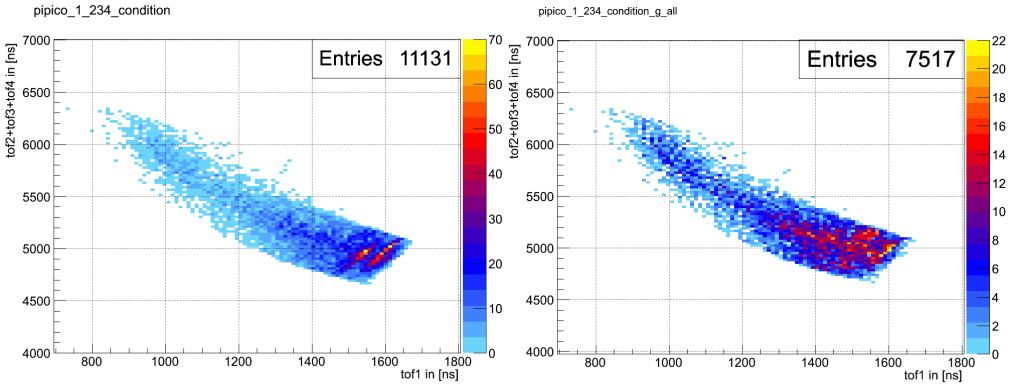

Abbildung 5.24: Vierteilchenpipico-Spektren; links: aus Abb.5.19, rechts mit zusätzlicher Positionsdifferenz-Bedingung für Teilchen 1 und 2

Durch diese Bedingungen wurde erreicht den Untergrund zu reduzieren.

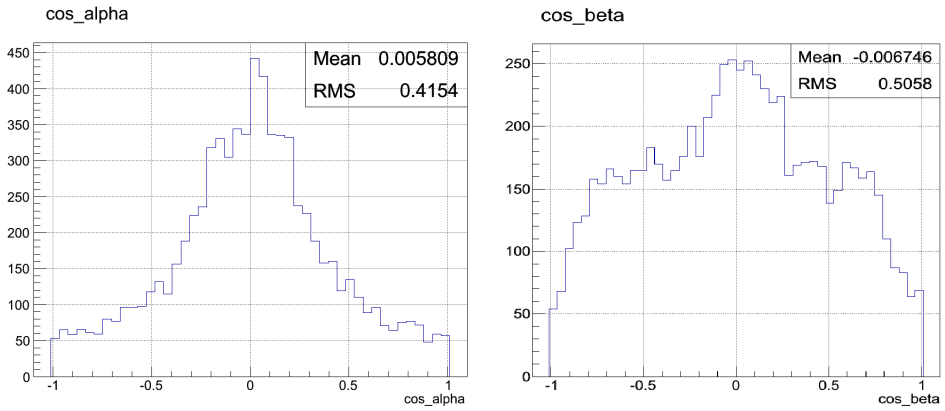

Abbildung 5.25: Die Winkel zwischen dem Normalvektor und den Impulsvektoren Teilchen 3 (links) und 4 (rechts) mit der Bedingung auf die Positionsdifferenzen

Auch in den Winkelvereilungen macht sich das bemerkbar. Die Maxima der cos-Verteilungen bei 0° werden ausgeprägter. Demnach liegen alle vier Teilchen nahezu in einer Ebene. Dazu kann man sich die Auswirkung dieser Bedingung auf den internukearen Abstand anschauen.

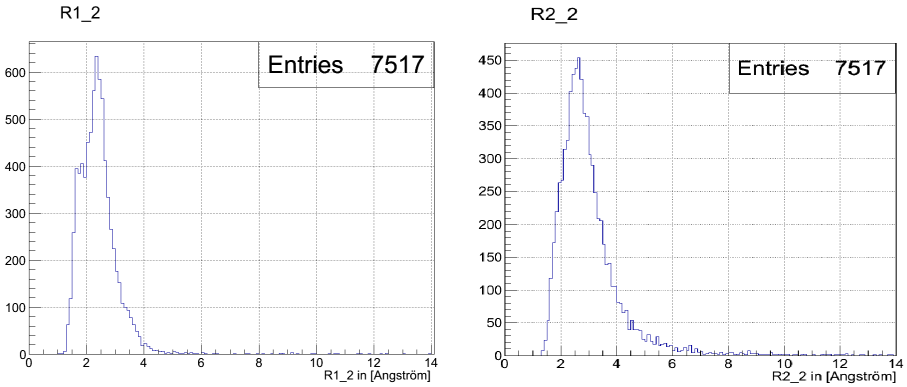

Abbildung 5.26: Internukleare Abstände, links: für das 1. Molekülsystem, rechts: für das 2. Molekülsystem

Der internuklearen Abstand zwischen Teilchen 1 und 2 beträgt 2,424 a.u. mit einer Standardabweichung von 0,8158 a.u..
Für Teilchen 3 und 4 ist der internukleare Abstand 3,027 a.u. mit einer Standardabweichung von 1,217 a.u., wobei dieser internukleare Abstand nicht die real vorliegenden Verteilungung wiederspiegelt, da die Impulspaaren nach der Größe des Impulses sortiert wurden.
Vergleicht man den gemessenen internuklearen Abstand für das erste Teilchenpaar mit der, in der Literatur erhaltenen Werte für die T-Struktur so ist zu sagen, dass der gemessene Abstand höher ist als der Literaturwert. Der maximalste internukleare Abstand in der Literatur ist gegeben mit 1,6 a.u. von [Tap71]. Abschließend ist zu sagen, dass zu berücksichtigen ist, dass der Winkel zwischen Teilchen 1 und 2, sehr nahe an 180° ist und dementsprechend Fehler in der Rekonstruktion der Ebene, welche durch diese Teilchen aufgespannt wird, entstehen können.

Betrachtung des Aufbruchs in Koordinatensystem B

Eine andere Methode zur Bestimmung der geometrischen Struktur des $(H_2)_2$ ist, mit Hilfe des Vierteilchenaufbruch die Lage der Molekülachsen zueinander zu überprüfen. Das Koordinatensystem (B) wird durch folgende Vektoren festgelegt: Der Vektor $\vec{a} = \vec{p_1} - \vec{p_2}$ wird durch die Molekülachse des ersten Teilchens bestimmt. Die 2. Komponente ist $\vec{b} = (\vec{p_3} + \vec{p_4}) - (\vec{p_1} + \vec{p_2})$ und beschreibt den Relativimpuls zwischen den Molekülpaaren. Die 3. Komponente beschreibt die Molekülachse des dritten und vierten Teilchens und damit des zweiten Moleküls $\vec{c} = \vec{p_3} - \vec{p_4}$.

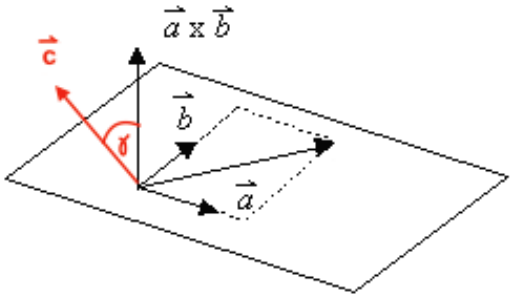

Abbildung 5.27: Bildliche Darstellung der Ebene

Die Ebene wird aufgespannt durch die ersten zwei Vektoren: Die x-Achse ist die Molekülachse der Teilchen 1 und 2 und die y-Achse der Relativimpuls der Molekülpaare. Ziel ist es die relative Lage der Molekülachse des 3. und 4. Teilchens zur Ebene zu untersuchen. Dazu wird der Winkel zwischen dem Normalenvektor der Ebene zur Molekülachse analysiert. Die Verteilung des Winkel ist in Abb. 5.28 dargestellt.

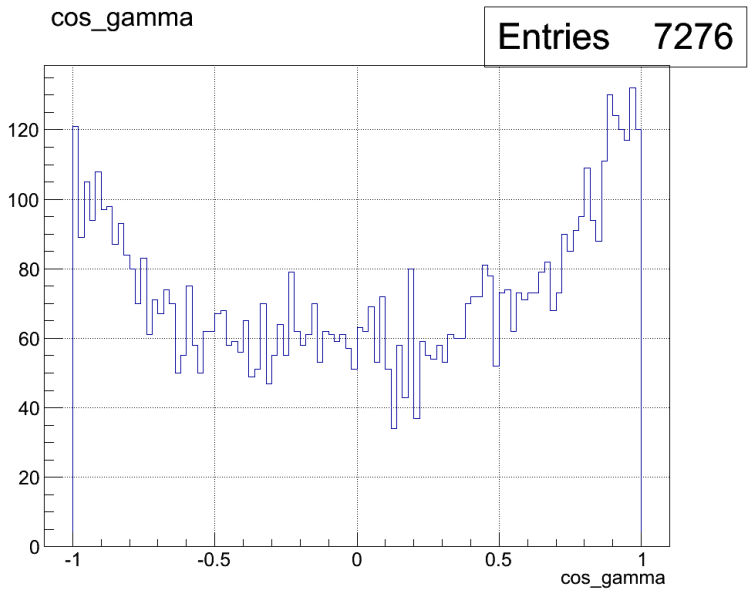

Abbildung 5.28: cos γ-Verteilung, γ ist der Winkel zwischen dem Normalenvektor und der Achse des 2. Moleküls

In diesem Spektrum sind für alle Winkel Ereignisse vorhanden, allerdings sind zwei Häufungen bei -1 und 1 zu erkennen. Dies entspricht einem Winkel von 0° bzw. 180°.

Für diesen Fall steht die zweite Molekülachse steht parallel zum Normalenvektor, der durch die Ebene der Molekülachse des 1. und 2. Teilchen und Relativimpuls zwischen den Paaren definiert wird. Demnach ist die Struktur des Dimers eine X-Struktur.
In den Quellen aus dem Kapitel 2.3 ist die bevorzugte Struktur die T-Struktur. In Koordinatensystem A ist das Ergebniss, dass die beiden Moleküle in einer Ebene liegen. Deshalb kommen die T-Strukur und P-Struktur in Frage. Im Koordinatensystem B zeigt sich, dass die Struktur des Dimers eine X-Struktur ist.

6 Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wird die Beugung von Neon- und Wasserstoff mit einer de Broglie Wellenlänge von wenigen Pikometern an einem Transmissionsgitter der Gitterkonstante 100 nm demonstriert. Durch eine adiabatische Expansion wurde ein Gasstrahl erzeugt, der bei tiefen Temperaturen Cluster bildet. Dieser wird an einem Nanogitter gebeugt, mit einem Laser gekreuzt und die entstehenden Ionen mit der COLTRIMS-Methode nachgewiesen. Die Positionen der gemessenen Beugungsmaxima zeigen sehr gute Übereinstimmungen mit der berechneten Lage der Beugungsmaxima. Des Weiteren wurden die Intensitäten und Halbwertsbreiten der verschiedenen Beugungsmaxima analysiert, wobei die Intensität von der Einstellung der Temperatur und Länge der Aufnahme abhängt. Aus den Halbwertsbreiten wurde die Quellgröße des Targetstrahls ermittelt und mit den Ergebnissen vorheriger Messungen verglichen. Hier konnte nur eine partielle Übereinstimmung gefunden werden.
Des Weiteren hat sich die Frage nach der Struktur des Wasserstoffmolekül-Dimers gestellt. Das H_2-Dimer besteht aus zwei kovalent gebundenen Molekülen, die untereinander van-der-Waals gebunden sind. Es wurde versucht die Stuktur durch den Vierteilchen-Aufbruch mit Hilfe der Impulse der Ionen heraus zu bestimmen. Diese unterscheiden sich in ihren Richtungen und Größen. Werden alle Konsitituenten ionisiert, so erhält jedes Ion den größten Rückstoßimpuls von seinem Molekülnachbarn. Desweiteren bekommen die Ionen einen kleinen Rückstoß durch das andere ionisierte Molekülpaar, so dass die Ionen eines Moleküls sich in einem kleineren Winkel als 180 Grad fortbewegen. Die Idee ist nun, eine Ebene aus den Impulsen zweier Teilchen zu definieren, wobei diese Teilchen zu einem Molekül gehören. Mit dem Normalenvektor der Ebene wird die Lage des 3. und 4. Teilchen analysiert. Anhand der Ergebnisse ist zu vermuten, dass die vier Teilchen nahezu in einer Ebene liegen.
Für eine genauere Strukturanalyse wurde eine weitere Überlegung gemacht. Dazu werden die zwei die Molekülachsen in Gebrauch genommen. Die Idee ist eine Ebene durch die Molekülachse eines H_2 sowie die Verbindungslinie der zwei Molekülschwerpunkte aufzuspannen. Durch den Winkel zwischen dem Normalenvektor auf dieser Ebene und der Molekülachse des zweiten H_2 kann die Lage der Moleküle zueinander bestimmt werden. Als Resultat ist eine Winkelverteilung mit zwei Maxima bei 0 und 180° zu erkennen, was darauf hindeutet, dass es sich um eine X-Struktur handelt.
Ingesamt ist zu sagen, dass durch die Kombination der COLTRIMS-Methode mit einem Nanogitter viele neue Erkenntnisse gewonnen werden können. Durch das Filtern der Teilchen mit dem Gitter ist es möglich auch exotische, selten vorkommende Systeme zu untersuchen. Zum einen durch das Filtern der Teilchen durch das Nanogitter und zum anderen durch die Rekonstruktion der Teilchen durch die COLTRIMS-Methode.
Mit dieser Arbeit wurde gezeigt, dass zukünftig nicht nur Heliumcluster, sondern auch weitere Systeme mit der vorgestellten Apparatur gemessen und untersucht werden können. Dies wurde anhand der Strukturanalyse des $(H_2)_2$ belegt. Die Grenze der Apparatur wurde mit Neon getestet. Im Vergleich zu Helium hat das Neon eine kleinere Wellenlängen, dementsprechend eine kleinere Ablenkung. Trotzdessen können die Beugungsordnungen vom Neon-Dimer und Monomer getrennt werden. Demnach können Beugungsbilder für Teilchen mit größerer Wellenlänge aufgenommen werden.

7 Anhang

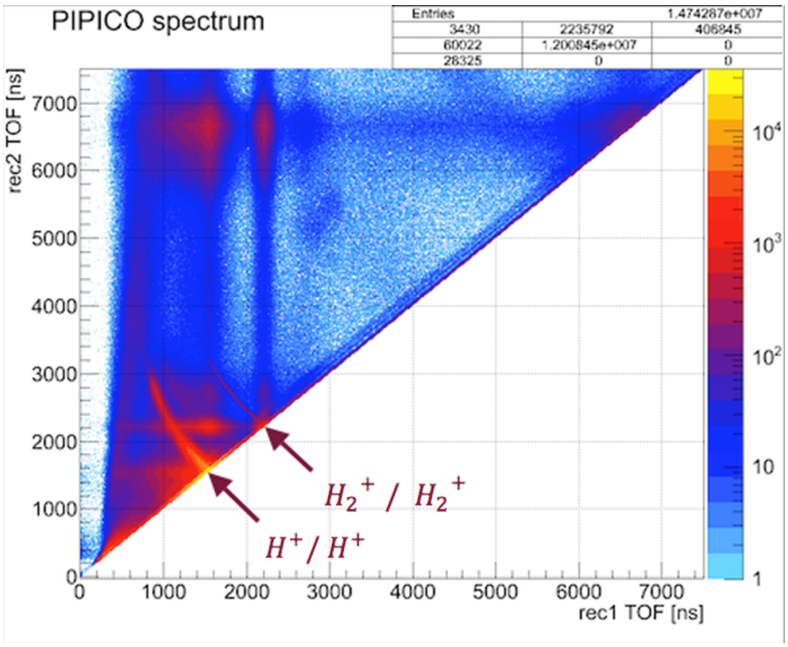

Abbildung 7.1: Pipico-Spektrum für Wasserstoff bei 29,5 K. Die Diagonale für höhere Flugzeiten steht für den Wasserstoffmolekül-Dimer Aufbruch

8 Danksagungen

Zum Ende des Bachelorstudiums erinnert sich man gerne an die Anfänge, die Herausforderungen, Schwierigkeiten und somit gerade jene Persönlichkeiten, die mir zu jener Zeit bei standen. Durchgehend in meinem Studium hat mich das berühmte Zitat Goethes begleitet: »Daß ich erkenne, was die Welt Im Innersten zusammenhält«
Nicht nur als Motivation zur Bewerbung zum Physikstudiums, sondern gerade als Frage formuliert als Begeisterung in der Atomphysik. Trotz meiner Forschung in diesem Fachgebiet und einer persönlich erheblichen Wissenserweiterung, steht diese Frage - zum Glück - weiterhin für mich offen im Raum.
Obwohl die Atomphysik sehr stark erforscht wird, ist noch einiges unbeantwortet. Daher bedürftigt dieser Bereich der Physik weitere Aufmerksamkeit. Einen kleinen Einblick In diese Welt habe Dank Professor Reinhard Dörner bekommen. Die Möglichkeit mit Ihnen zusammenarbeiten hat mir nicht nur meinen Herzenswunsch einen weiteren bescheidenen Schritt weiter gebracht, sondern auch mir diese Erfahrungen in einer sehr erfolgreichen Arbeitsgruppe machen dürfen. Desweiteren möchte ich meinem Betreuer Stefen Zeller danken.
Gerade die Arbeitsatmosphäre in der Arbeitsgruppe verleitet mich meinen Dank weiteren Mitglieder auszusprechen. Immer bin ich offenen Ohren und hilfsbereiten Menschen begegnet. Den Kameraden im meinen Büro - Hong, Flo, Markus und Jörg- habe ich eine sehr angenehme Zeit zu verdanken. Durchgehend standen diese mir zur Beantwortung von vielen Fragen zur Verfügung. Besonders hervorheben möchte ich Jörg, der quasi mein zweiter Betreuer gewesen ist. Vielen Dank für deine aufrichtige Hilfe bezüglich der Programmierung, Auswertung, den inhaltlichen Fragen und Motivation. Desweiteren möchte ich Natascha für das Motivieren danken.
Direkt über meinem Schreibtisch ist der Spruch 'Alles wird gut' auf einem Foto von Till zu lesen. Ich denke, dass das die eine gute Zusammenfassung zum Charakter Tills ist - jederzeit bereit den Mitmenschen zu helfen, motivieren und beruhigen. Vielen Dank Till und tatsächlich wird alles wird gut.
Zum Beginn hat mir Daniel die Gruppe sowie die hier behandelten Themen vorgestellt. Er hat mich motiviert die Bachelorarbeit in dieser Arbeitsgruppe zu verrichten. Dir auch ein Dankeschön, zum einen hast du mich motiviert und zum anderen hast du mir auch immer helfen können, Beispielsweise bei meinem Seminarvortrag.
Wie bereits erwähnt, bildet diese Arbeit einen Meilenstein in meinem Studienverlaufs. Daher ist ein Dank an diejenigen, die sich außerhalb der Arbeitsgruppe befinden, angebracht. Da gibt es viele besondere Menschen die mich in dieser Zeit unterstützt haben und deren Unterstützung von immenser Bedeutung gewesen ist. Fadoua! Sie ist nicht nur meine Kommilitonin, sondern eine sehr gute Freundin. Wir haben zusammen das Studium begonnen und führen es gemeinsam fort. Ihre Beihilfe während des Studiums würden den Rahmen dieses kurzen Textes sprengen.
Zum Schluss möchte ich noch meiner Familie danken: meine Mutter, meinen Vater und meine zwei Brüdern. Sie haben mich in guten sowie in schlechten Phasen begleitet und standen immer hinter mir. Euch vielen herzlichen und liebevollen Dank, dass ich bei euch Trost gefunden habe und neue Energie tanken konnte. In Wahrheit wäre jeglicher Dank an euch viel zu gering.

Zum Schluss möchte ich noch meiner Familie danken, zum einen meine Eltern und meinem zwei Brüdern, die immer hinter mir sind und mich motiviert haben.

Erklärung

Nach § 30 (11) der Prüfungsordnung für den Bachelor- und Masterstudiengang Physik der Johann-Wolfgang-Goethe-Universität Frankfurt am Main erkläre ich, dass diese Arbeit von mir selbständig und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Quellen und Hilfsmittel verfasst wurde. Alle Stellen der Arbeit, die wörtlich oder sinngemäß aus Veröffentlichungen oder aus anderen fremden Texten entnommen wurden, sind als solche kenntlich gemacht. Weiter erkläre ich, dass die Arbeit nicht – auch nicht auszugsweise – für eine andere Prüfung verwendet worden ist.

Frankfurt am Main, den 26. März 2015

(Derya Aslitürk)

Literaturverzeichnis

[ABB14] Markus Schöffler, *Mitschriften der Vorlesung Abbildungsmethoden der modernen Atomphysik*, Goethe-Universität Frankfurt am Main, Fachbereich Physik, WISE 14/15

[ArNai] Markus Arndt und Olaf Nairz, *Grenzgänger: Welle-Teilchen Dualismus C_{60}*, Download unter: http://pluslucis.univie.ac.at/PlusLucis/993/s05_07.pdf am 08.03.15

[ATO13] Reinhard Dörner, *Skript Atomphysik 1*, Goethe-Universität Frankfurt am Main, Fachbereich Physik, SOSE13,

[ATO14] Till Jahnke, *Skript Atomphysik 3*, Goethe-Universität Frankfurt am Main, Fachbereich Physik, SOSE14,

[Bec12] Ute Lenz: Masterarbeit, *Dissoziation von H2-Molekülen,* Goethe-Universität Frankfurt am Main, Fachbereich Physik, 2012

[Ber93] Bergmann Schaefer, *Lehrbuch der Experimentalphysik, Optik*, Band 3, 9. Auflage, Walter de Gruyter, Berlin, New York, 1993

[Bowie87] J. U. Bowie, R. Lüthy and D. Eisenberg: *A Method to Identify Protein Sequences That Fold into a Known Three-Dimensional Structure*, pp 164-170, Science, 1991 (253)

[Bur82] P.G.Burton und U.E. Senf, *Interaction between hydrogen molecules*, Molecular Simulation, J. Chem. Phys, Vol.76, No 12, 1982

[CheDi] The Chemogenesis, *Diatomic Species by Molecular Orbital Theory C60*, Webseite: http://www.meta-synthesis.com/webbook/39)diatomics/diatomics.html abgerufen am 13.03.15

[Cos07] Rui Alexandre Costa Fraga: Diplomarbeit, *Untersuchung laserinduzierter Plasmen unter Verwendung eines kryogenischen H2 Cluster- und Tröpfchentargets*, Goethe-Universität Frankfurt am Main, Fachbereich Physik, 2007

[Cza04] Achim Czasch: Dissertation *Doppelt hoch angeregte Zustände von Helium: Partielle Wirkungsquerschnitte und Winkelverteilungen der Elektronenemission,* Goethe-Universität Frankfurt am Main, Fachbereich Physik, 2004

[FP11] Fortgeschrittenen Praktikum: Anleitung zum Versuch 24 Dissertation *Ionen-Impulsspektroskopie mit einem Delay-Line Detektor*, Goethe-Universität Frankfurt am Main, Fachbereich Physik, 2011

[Dem05] Wolfgang Demtröder, *Atome, Moleküle, Festkörper* 3. Auflage Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 2005

[Fri33] R. Frisch und O.Stern: *Anomalien bei der spiegelnden Reflexion und Beugung von Molekularstrahlen an Kristallspaltflächen*, Zeitschrift für Physik, Volume 84, Issue 7-8, pp 430-442, 1933

[Gri99] R. Grisenti, W. Schöllkopf, J. Toennies, *Determination of Atom-Surface van der Waals Potentials from Transmission Grating Diffraction Intensities* , Phys. Rev. Lett. 83, 1755 1758, 1999

[Gri00] R.E.Grisenti, G.C.Hegerfeldt, T.Köhler und J.P.Toennies, *Quantentheorie der Materiewellenbeugung*, Phys. Blätter 56,53 (2000)

[Gre88] N.N Greenwood, A. Earnshaw, *Chemie der Elemente*, VCH Verlagsgesellschaft mbH, D-6940 Weinheim, 1988

[Grz86] Grzegorz Chałasiński, *Intramolecular correlation correction to the first-order interaction energy between H_2 molecules and its influence on the H2-H2 potential surface* , Molecular Physics: An International Journal at the Interface Between Chemistry and Physics, Volume 57, Issue 2, 1986

[Hah14] Jörg Hahnenbruch: Bacherlorarbeit *Automatisierte Aufnahme von Materiewellen-Beugungsspektren eines Heliumclusterstrahls,* Goethe-Universität Frankfurt am Main, Fachbereich Physik, 2014

[Hes07] Friedrich Tilmann Hess: Diplomarbeit *Design und Aufbau einer COLTRIMS Apperatur zur Untersuchung von Ion-Atomstöße,* Goethe-Universität Frankfurt am Main, Fachbereich Physik, 2007

[Hydh2] The Swiss Hydrogen Association *Hydrogen,* Webseite: http://hydropole.ch/en/hydrogen/abouth2/ abgerufen am 15.03.15

[Hak02] Haken Wolf, *Mokekülphysik und Quantenchemie,* 5. Auflage Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 2002

[Iba09] Ibach Lüth, *Festkörperphysik, Einführung in die Grundlagen*, 7.te Auflage Springer Verlag Berlin Heidelberg 2009

[Jah05] T.Jahnke: Diplomarbeit, *Interatomic Coulombic Decay, Experimentelle Untersuchung eines neuartigen, interatomaren Abregungsmechanismus*, Goethe-Universität Frankfurt am Main, Fachbereich Physik, 2005

[Kim00] Changsihn Kim, Sang Joon Kim, Yongsik Lee, and Yongho Kim, *Quantum Mechanical Study of van der Waals Complex. I. The H2 Dimer Using the DFT and the Multi-Coefficient G2/G3 Methods*, Bull. Korean Chem. Vol.21, No5, 2000

[Leh00] Leo Lehr, *Aus Zeitaufgelöste Photoelektronenspektroskopie an Molekülen und Molekülclustern*, Herbert Utz Verlag GMBH, 2000

[Len12] Jasper Becht: Bachelorarbeit, *Massenselektion von Heliumclustern durch Materiewellenbeugung am Nanogitter*, Goethe-Universität Frankfurt am Main, Fachbereich Physik, 2012

[MaEn] Mathematical Engineering *Gaus-Fit*, Webseite: http://me-lrt.de/u-05-2-faltung-einer-gauss-funktion-mit-sich-selbst, abgerufen am 25.03.15

[Mas94] Masanori Tachikawa, Kazunari Suzuki, Kaoru Iguchi und Tomo Miyazaki, *The Spherical Expansion of H2 Dimer Interaction Energy by Double Symmetry-Adapted Perturbation Theory*, Molecular Simulation, Volume 12, Issue 3-6, 1994

[PerNe] Das Interaktive Periodensystem der Elemente (PSE) *Neon*, Webseite: http://www.periodensystem.info/elemente/neon/ abgerufen am 20.03.15

[Sch02] M. Schöffler: Diplomarbeit, *Entwicklung und Aufbau eines Abbildungssystems zur Messung von Elektronen jenseits niedriger Energien*, Goethe-Universität Frankfurt am Main, Fachbereich Physik, 2002

[Sexl68] Sexl, Roman Ulrich, *Was die Welt zusammenhält: Physik auf der Suche nach dem Bauplan der Natur*, Stuttgart, Deutsche Verlags-Anstalt, 1968

[Tap71] O.Tapia and G.Bessis: *Intermolecular Interactions-Dependence on Inter-and Intra-Molecular Distances. A Configuration Interaction Study oft the H2..H2 System.* G.Theor. Chim. Acta 1972, 25, 130 , 1971

[Tip03] Paul A.Tipler und Ralph A.LIewellyn, *Moderne Physik*, Thema: Das Borsche Modell des Wasserstoffatoms, Oldenbourg Verlag, 2003

[Toe08] J.Peter Toennies und Oleg Kornilov: *Elektron impact ionization of size selected hydrogen clusters $(H_2)_N$: Ion fragment and neutral size distributions*, the Journal of chemical Physics, 2008 (128)

[Toe94] W.Schöllkopf and J.P. Toennies, *Nondestructive mass selecktion of small van der Waals Clusters*, Sience Vol.266 no.5189, 1345-1348, 1994

[Tri11] F.Trinter: Masterarbeit, *Doppelter Auger-Zerfall in Kohlenstoffmonoxid*, Goethe-Universität Frankfurt am Main, Fachbereich Physik, 2011

[Ulr11] Birte Ulrich: Dissertation, *Argon- und Neon-Dimere und Trimere in intensiven Laserfeldern*, Goethe-Universität Frankfurt am Main, Fachbereich Physik, 2011

[Voi14] Jörg Voigtsberger: Doktorarbeit, *Experimentelle Untersuchung von kleinen Heliumcluster mit Hilfe eines Diffraktionsgitters,* Goethe-Universität Frankfurt am Main, Fachbereich Physik, 2014

[Wal12] Walter Müller: Masterarbeit, *Entwicklung, Aufbau und Test eine Molekülstrahlapparatur zur Ausrichtung von Molekülen*, Friedrich-Schiller-Universität Jena, Physikalisch-Astronomische Fakültät Fachbereich Physik, 2012

[Wat64] A.Watanabe and H.L. Welsh, *Direct spectroscopic evidence of bound states of (H_{22}) complexes at low temperatures*, Physical Review Letters, vol. 13, Issue 26, pp. 810-812, 1964

[Web09] Sonja Weber: Diplomarbeit, *Opttische Charakterisierung von Hochinternsitätslaser-Plasma-Wechselwirkungen an Festkörpertargets*, Friedrich-Schiller-Universität Jena, Physikalisch-Astronomische Fakultät, Fachbereich Physik, 2009

[Wi11] Private Kommunikation mit Wieland Schöllkopf, *Speed ratio und sudden freeze radius*, März 2011

[Zel11] Stefan Zeller: Masterarbeit, *Wechselwirkung von langsamen hochgeladenen Argonionen mit kleinsten Heliumclustern,* Goethe-Universität Frankfurt am Main, Fachbereich Physik, 2011