

Johann Wolfgang Goethe Universität Frankfurt am Main
Institut für Kernphysik

Fachbereich Physik

Bachelorarbeit

im Studiengang Physik

Thema: Clustergrößenabhängigkeit des Interatomic Coulombic Decay
am Beispiel des Heliums

eingereicht von: Anna Hellfritzsche <s6733015@stud.uni-frankfurt.de>

eingereicht am: 18. Mai 2015

Erstgutachter: Herr Prof. Dr. Reinhard Dörner

Zweitgutachter: Herr Stefan Zeller



Es ist falsch zu denken, es wäre Aufgabe der Physik herauszufinden, wie die Natur beschaffen ist. Aufgabe ist vielmehr, herauszufinden, was wir über die Natur sagen können.

Niels Bohr

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde der Zusammenhang der ICD-Peaks (ICD - “Interatomic Coulombic Decay“) in der KER-Verteilung für unterschiedlich große Heliumcluster untersucht. Die Daten stammen aus einem Experiment am FLASH-Laser in Hamburg. Hier wurden Heliumcluster erzeugt, selektiert und mit Hilfe jenes Lasers ionisiert, um zu Zerfällen, speziell zum ICD, anzuregen. Es stellt sich heraus, dass der ICD-Peak jeder Clustergröße an der gleichen Position liegt und über die gleiche Form verfügt.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	V
Abbildungsverzeichnis	IX
1 Motivation	1
2 Theoretischer Hintergrund	3
2.1 Helium und seine Cluster	3
2.1.1 Das Heliumatom	3
2.1.2 Die Van-der-Waals-Bindung	4
2.1.3 Bildung von Clustern	5
2.1.4 Selektion der Cluster durch Materiewellenbeugung	8
2.1.5 Das Heliumdimer	10
2.1.6 Das Heliumtrimer	12
2.2 Interaktionen zwischen Atomen und elektromagnetischer Strahlung .	14
2.2.1 Photoionisation	15
2.2.2 Angeregte Zustände und Arten von Zerfällen	17
3 Experimenteller Aufbau	23
3.1 Aufbau des Vakuumkammersystems	23
3.2 Das Nanogitter	25
3.3 Der COLTRIMS-Detektor	25
3.3.1 Das MCP	26
3.3.2 Die Delay-Line-Anode	27
3.4 Signalverarbeitung	29
4 Datenauswertung	31
4.1 Bestimmung des Flugzeitversatzes	31
4.2 Impulsrekonstruktion	33
4.3 Sortieren der Daten nach relevanten Ereignissen	35
4.4 Die KER-Verteilung verschiedener Clustergrößen	41
5 Zusammenfassung und Ausblick	45
Danksagung	47
Literaturverzeichnis	49
Appendix	52

Abbildungsverzeichnis

2.1	Schematische Darstellung der “Zone of Silence“ [Sch02]	6
2.2	Parameter für Gleichung 2.15 [Bre11]	12
2.3	Wahrscheinlichkeitsdichte des Grundzustandes und des angeregten Zustandes des Heliumtrimers in Abhängigkeit des effektiven Hyper-radius [KT07]. Der Hyperradius R hängt von Abständen r_{ij} von je zwei Kernen i und j wie folgt ab: $R = \sqrt{r_{12}^2 + r_{13}^2 + r_{23}^2}$	12
2.4	Bressanini und Morosi berechneten die Winkelverteilung zweier Winkel zwischen den gedachten Geraden, welche je zwei Atome des Trimeres verbinden. Zwei der drei Winkel sind ausreichend, um die Form festzulegen. Im rechten Bild ist die Winkelverteilung im Heliumtrimer dargestellt und es wird ersichtlich, dass alle Formen bis zur Linearität angenommen werden können. Im Vergleich dazu ist im linken Bild die Verteilung für ein Neontrimer zusehen, welche einen scharfen Peak bei $(\frac{\pi}{3}, \frac{\pi}{3})$ aufweist und somit oszilliert dieses Trimer geringfügig um die Form eines gleichseitigen Dreiecks.[BM11]	13
2.5	Emissionswinkelverteilung für linear polarisiertes Licht und verschiedene Anisotropieparameter β [Jah05]	16
2.6	Schematische Darstellung der beiden ICD-Abregungsprozesse im Neondimer [Jah05]	18
2.7	Schematische Darstellung der ICD-Prozesse im Neondimer für “Shake-up“-Zustände [Hav10]	19
2.8	Schematische Darstellung des ICD-Prozesses im Heliumdimer [Hav10]	20
2.9	Schematische Darstellung des ICD-Zerfalls anhand der Potentialkurven im Heliumdimer [Hav10]. In Schritt a) wird das System durch Photoionisation vom Potential des neutralen Heliumdimers in das Potential des einfach positiven Dimerions gehoben. Dieses Potential ist stärker gebunden, so dass in Teil b) eine Kernbewegung zu kleineren internuklearen Abständen hin einsetzt. Dabei steigt die Wahrscheinlichkeit für ICD mit $\frac{1}{R^6}$ bis dieser Zerfall in c) stattfindet. Abschließend dissoziieren die beiden Kerne in d) auf der Kurve des He^+-He^+ -Potentials.	21
2.10	Theoretische Berechnung der KER-Verteilung für Heliumcluster bis zur Größe $n=7$ [Sis]	21
2.11	Vergleich einer quantenmechanischen Berechnung des ICD in der KER-Verteilung bei Heliumimeren ,dargestellt als rote Linie, mit der äquivalenten semiklassischen Berechnung in Form von schwarzen Balken nach Dr. Nicolas Sisourat. [Sis13]	22

3.1	Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus mit Jetrichtung von links nach rechts [Hah14]	24
3.2	Abbildung des Versuchsaufbau mit Jetrichtung von rechts nach links [Hah14]	24
3.3	Schematische Darstellung des Spektrometers	26
3.4	MCP, Funktionsweise, aus [Sch06] bearbeitet	27
3.5	Delay-Line-Anode bestehend aus 3 Schichten [Ato]	28
4.1	Flugzeitdiagramm einer Heliumtrimermessung mit Gaußfit für den Peak bei $tof = 1160ns$ welcher dem Heliumtrimer entspricht	32
4.2	Bestimmung des Zeitversatzes	33
4.3	Anpassung der Parameter Feldstärke, Auftreffort, Spektrometerlänge und Flugzeitversatz dargestellt in Diagrammen, vor (oben) und nach (unten) der nötigen Korrektur	36
4.4	PIPICO-Spektrum vor und nach der Aussortierung von Daten	37
4.5	Vergleich der Summen- und Relativimpulse vor (oben) und nach (unten) der Datenselektion	39
4.6	KER-Verteilung von He_2 (links) und He_3 (rechts)	40
4.7	KER gegen φ für Heliumdimere	40
4.8	dt-dr-Diagramm von He_2 vor und nach Datenaussortierung	40
4.9	Vergleich der KER-Vertelungen aus Heliumdimerdaten aus drei verschiedenen Experimenten: Dr. Tilo Havermeier (blau-rote Kurve) [Hav10], Stefan Zeller (blaue Kurve) [Zel], Daten des in dieser Arbeit präsentierten Experimentes (schwarze Kurve)	41
4.10	KER-Verteilungen verschieden großer Cluster im Vergleich	42
4.11	Clustergrößenabhängigkeit des ICD bei Heliumclustern	43
4.12	Differenzen zwischen den KER-Verteilungen von Dimeren und Trimeren (links), von Dimeren und Tetra- und Pentameren (rechts, sowie von Dimeren und Heliumcluster der Größe $n = 6, 7, 8, 9$ (unten)	44
.1	KER-Verteilung der Heliumdimere	56
.2	KER-Verteilung der Heliumtrimere	56
.3	KER-Verteilung der Heliumtetramere und -pentamere	57
.4	KER-Verteilung der Heliumcluster mit $n = 6, 7, 8, 9$	57

1 Motivation

Seit Jahrhunderten dienen die Naturwissenschaften dem Wissenszuwachs und damit auch dem technologischen und medizinischen Fortschritt. Ohne Alexander Fleming und die Entdeckung des Penicillins im Jahre 1928 wären vielleicht noch heute zahlreiche bakterielle Infekte nicht heilbar [20115]. Ohne Wilhelm Conrad Röntgen der 1895 die Röntgenstrahlung entdeckte könnten wir heute keine Knochenbrüche und ähnliche innere Verletzungen von außen untersuchen [DES15]. So lässt sich die Reihe wichtiger medizinischer Errungenschaften beliebig fortsetzen. Auch heute ist die medizinische Forschung sehr bedeutend und aufgrund des heutigen umfangreichen Wissens in den Naturwissenschaften nimmt die Zusammenarbeit verschiedener naturwissenschaftlicher Disziplinen im Rahmen der Medizin zu, was die Entstehung von Fachrichtungen wie Medizinphysik zeigt.

Krebserkrankungen stellen einen Bereich dar, in welchem man intensiv nach neuen Therapiemöglichkeiten sucht. Bisher werden vor allem Chemo-Therapie und Strahlentherapie mit Röntgenstrahlung oder Protonen- und Schwerionenstrahlung, erzeugt in einem Beschleuniger, oder mit radioaktiver Strahlung angewandt [Kre15]. Allerdings greifen diese Methoden das umliegende Gewebe oder den gesamten Körper stark an. Besser wäre es, wenn man einen kleinen Strahler, welcher nicht dauerhaft von außen versorgt werden muss, direkt zum Tumor bringen könnte. Von Vorteil ist hierbei, dass Untersuchungen gezeigt haben, dass auch Elektronen mit geringen kinetischen Energien als Zellgift wirken [BCH⁺00]. Wie können jedoch niederenergetische Elektronen im Körper erzeugt werden?

Einen Weg könnte der 1997 von Cederbaum et al. [CZT97] prognostizierte und mittlerweile für verschiedene Stoffe nachgewiesene “Interatomic Coulombic Decay“ (ICD) bieten. Hierbei handelt es sich um eine Zerfallsart von angeregten schwach-gebundenen Molekülen, bei welcher niederenergetische Elektronen erzeugt werden. Mit kinetischen Energien von weniger als 10 eV können diese Einzel- oder Doppelstrangbrüche der DNA verursachen und somit Zellen zerstören [BCH⁺00].

Aufgrund des hohen Potentials des ICD für die Krebsheilung ist es notwendig, diesen Effekt so gut wie möglich zu verstehen. Einen Beitrag hierzu liefert auch das in dieser Arbeit beschriebene Experiment, welches zudem mehr Aufschluss über das Element Helium gibt. Es wurde ICD bei verschiedenen großen Heliumclustern am FLASH-Laser in Hamburg untersucht mit dem Ziel, die Unterschiede in der Verteilung des sogenannten “kinetic energy release“ (der beim Zerfall frei werdenden Energie) zwischen den unterschiedlich großen Clustern zu ermitteln.

In dieser Arbeit wird zunächst auf die Beschaffenheit und Bildung von Heliumclustern, sowie auf Zerfallsarten eingegangen. Daran schließt sich die Beschreibung des experimentellen Aufbaus an, bevor in detaillierten Schritten beschrieben wird, wie die gewonnenen Daten verarbeitet wurden und welche Ergebnisse erzielt werden konnten.

2 Theoretischer Hintergrund

2.1 Helium und seine Cluster

2.1.1 Das Heliumatom

Helium ist das leichteste unter den Edelgasen und besitzt die Kernladungszahl 2. Dieses Element kommt in zwei verschiedenen stabilen Isotopen vor, als ${}^4_2\text{He}$ und als ${}^3_2\text{He}$. Zudem existieren 6 weitere kurzlebige Radioisotope.

Unter den stabilen Isotopen ist das ${}^4_2\text{He}$ -Isotop das mit 99,99986 % am häufigsten auftretende der Isotope. Es verfügt im Kern über zwei Protonen und zwei Neutronen, welche im Grundzustand jeweils entgegengesetzte Spins haben und das 1s-Orbital für Protonen oder Neutronen besetzen. Somit ist sowohl der Gesamtspin S gleich Null als auch der Gesamtbahndrehimpuls L . Der ${}^4\text{He}$ -Kern ist folglich ein Boson. Das Isotop ${}^3\text{He}$ tritt dahingegen nur mit einer Häufigkeit von 0,00014 % auf und sein Kern besteht aus zwei Protonen und nur einem Neutron. Der Spin des Neutrons ist ungepaart und es ergibt sich ein Gesamtspin von $S = \frac{1}{2}$ für den Kern, welcher daher ein Fermion ist.

Das Heliumatom besitzt zwei Elektronen in seiner Hülle, welche interessanterweise 2 verschiedene Termsysteme bilden. Eines dieser Systeme ist als Singulett-System oder auch als Parahelium bekannt. Die Spins der Elektronen sind hier antiparallel ausgerichtet, so dass der Gesamtspin S und das magnetische Moment μ_S jeweils Null sind. Der Grundzustand dieses Systems hat die Konfiguration 1^1S_0 . Beide Elektronen befinden sich in diesem Zustand im 1s-Orbital und die äußere Schale ist abgeschlossen. Das andere System bezeichnet man als Triplett-System oder als Orthohelium. Die Elektronenspins sind hier parallel ausgerichtet, so dass der Gesamtspin S gleich eins und das magnetische Moment μ_S von Null verschieden ist. Der Grundzustand dieses Systems hat die Konfiguration 2^3S_0 . Aufgrund des Pauli-Prinzips können in diesem Grundzustand nicht beide Elektronen im 1s-Orbital verbleiben, wenn ihre Spins parallel sind. Das beruht darauf, dass die Ortsanteile antisymmetrisch werden müssen, wenn die Spinanteile der Wellenfunktion unter Teilchenvertauschung symmetrisch sind. Daher weicht eines der Elektronen in das 2s-Orbital aus. Der Gesamtspin S hat in diesem System drei Einstellmöglichkeiten gegenüber dem inneren Magnetfeld $\vec{B}$. Aufgrund der Spin-Bahn-Kopplung führt dies zu einer dreifachen Feinstrukturaufspaltung, welche dem System auch seinen Namen gibt.[HH00]

Neben den faszinierenden atomaren Eigenschaften verfügt das Element Helium ebenfalls über seltene Charakteristika im makroskopischen Bereich. Helium wird erst bei sehr niedrigen Temperaturen und hohen Drücken flüssig und ist daher ein sehr gutes Kühlmittel für tiefste Temperaturen. Zudem verfügt es über zwei flüssige Aggregat-

zustände: Helium I und Helium II. Helium II ist superfluid und weißt somit keine Viskosität mehr auf. Diese superfluide Phase kann als makroskopischer Quantenzustand aufgefasst werden.

Das Heliumatom kann quantenmechanisch als ein Drei-Teilchen-System bestehend aus dem Kern und zwei Elektronen, in welchem nur Coulombwechselwirkung auftritt, beschrieben werden. Der Hamiltonoperator eines solchen Systems ist [BJ03]:

$$\hat{H} = \sum_{i=1,2} \left(\frac{\hat{p}_i^2}{2\mu} + V_{K,e^-}(r_i) \right) + V_{e^-,e^-} \quad (2.1)$$

$V_{K,e^-}(r_i) = \frac{Ze^2}{(4\pi\epsilon_0)r_i}$ ist hierbei das Potential des Kerns, welches beide Elektronen spüren. Zudem sieht jedes Elektron das Potential $V_{e^-,e^-}(r_{12}) = \frac{e^2}{(4\pi\epsilon_0)r_{12}}$ aufgrund der Anwesenheit des anderen Elektrons. $r_{12} = |\vec{r}_1 - \vec{r}_2|$ ist der Abstand zwischen den Elektronen. μ steht für die reduzierte Masse eines Elektrons unter Einfluss des Kerns: $\mu = \frac{M_{Kern} \cdot m_e}{M_{Kern} + m_e}$. Da die Masse des Kerns wesentlich größer ist, als die des Elektrons, lässt sich näherungsweise annehmen, dass $\mu \approx m_e$. Somit ergibt sich die folgende Schrödingergleichung [BJ03]:

$$\left[\sum_{i=1,2} \left(-\frac{\hbar^2}{2m_e} - \frac{Ze^2}{(4\pi\epsilon_0)r_i} \right) + \frac{e^2}{(4\pi\epsilon_0)r_{12}} \right] \psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = E\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \quad (2.2)$$

Diese Gleichung kann auch in atomaren Einheiten (atomic units = a.u.) angegeben werden [BJ03]:

$$\left[-\frac{1}{2}\nabla_{r_1}^2 - \frac{1}{2}\nabla_{r_2}^2 - \frac{Z}{r_1} - \frac{Z}{r_2} + \frac{1}{r_{12}} \right] \psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = E\psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \quad (2.3)$$

Die Schrödingergleichung 2.2/2.3 ist analytisch nicht lösbar. Mit Hilfe verschiedener Näherungsmethoden lässt sich jedoch beispielsweise eine Wellenfunktion für eines der beiden Elektronen aufstellen. Unter der Annahme, dass die Elektronen ununterscheidbar und radialsymmetrisch verteilt sind und unter Vernachlässigung der Wechselwirkung zwischen den Elektronen ergibt sich folgende Näherung [BJ03]:

$$\psi(r_1, r_2) = \frac{Z^3}{\pi} e^{-Z(r_1+r_2)} \quad (2.4)$$

Helium kommt zumeist als Parahelium vor, welches, wie bereits erwähnt, sehr stabil ist und aufgrund seiner vollbesetzten äußeren Elektronenhülle weder Ionen- noch Elektronenpaarbindungen eingeht. Dennoch sind Dipol-Dipol-Wechselwirkungen, welche auch Van-der-Waals-Wechselwirkungen genannt werden, zwischen Heliumatomen möglich.

2.1.2 Die Van-der-Waals-Bindung ¹

Im zeitlichen Mittel ist die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der beiden Elektronen in der Hülle des Heliumatoms kugelsymmetrisch um den Kern verteilt. Dadurch schirmen sich die negativ geladenen Elektronen und die positiv geladenen Protonen nach

¹ Das Kapitel orientiert sich an [IL09] Seite 15/16

außen ab und im zeitlichen Mittel verfügt das Heliumatom weder über eine Nettoladung q noch über ein Dipolmoment $\vec{\mu}$. Allerdings befindet sich die Elektronenhülle in ständiger Oszillation und so treten häufig kurzzeitige Verschiebungen zwischen den Ladungsschwerpunkten von Hülle und Kern auf. Hierdurch bildet sich ein Dipolmoment $\vec{\mu} = q \cdot \vec{d}(t)$, welches wiederum ein Dipolfeld erzeugt:

$$|\vec{E}_{Dipol}| \propto \frac{|\vec{\mu}|}{r^3} \quad (2.5)$$

q steht hierbei für eine an einer bestimmten Position kurzzeitig auftretende Teilladung. $\vec{d}$ ist der Abstandsvektor zwischen der negativen und der positiven Ladung und r bezeichnet den Abstand der beiden Dipole.

Das entstandene Dipolfeld kann in einem nahegelegenen Atom wiederum ein Dipolmoment induzieren: $|\vec{\mu}_{ind}| = \alpha \cdot |\vec{E}_{Dipol}|$. α ist hier die Polarisierbarkeit des Atoms. Die beiden Dipolmomente sind einander entgegen gerichtet.

Würde das 1. Atom festgehalten werden, so befände sich das zweite in einem attraktiven Potential:

$$\varphi_a \propto \frac{|\vec{\mu}| \cdot |\vec{\mu}_{ind}|}{r^6} \propto \frac{\mu^2}{r^6} \quad (2.6)$$

Dieses Potential fällt mit der sechsten Potenz des Abstandes der wechselwirkenden Dipole ab und somit ist die Van-der-Waals-Wechselwirkung sehr kurzreichweitig im Vergleich z.B. zur Ionenbindung, deren attraktives Potential nur mit r^{-1} abklingt. Neben den attraktiven Kräften zwischen den positiven Kernladungen und den negativen Elektronenladungen existieren bei der Van-der-Waals-Wechselwirkung auch repulsive Kräfte zwischen den beteiligten Atomen:

$$\varphi_r = \frac{A}{r^n} \approx \frac{A}{r^{12}} \quad (2.7)$$

Die Potenz in der Näherung geht aus experimentellen Ergebnissen hervor.

Durch Zusammenführung des repulsiven und des attraktiven Potentials, ergibt sich das sogenannte Lennard-Jones-Potential, welches der Beschreibung der Van-der-Waals-Bindung dient:

$$\varphi(r) = \frac{A}{r^{12}} - \frac{B}{r^6} \quad (2.8)$$

Hierbei sind A und B experimentell zu bestimmende Werte.

2.1.3 Bildung von Clustern

Heliumatome können sich wie unter 2.1.2 beschrieben aufgrund der Van-der-Waals-Wechselwirkung zu Molekülen zusammenfügen. Allerdings verfügen diese sogenannten Helium-Cluster über sehr geringe Bindungsenergien und sind somit wenig stabil. Die Energie der Atome bei Raumtemperatur oder Stöße mit anderen Teilchen sind bereits ausreichend, damit das geringe Potential überwunden werden kann. Daher sind niedrige Temperaturen für ihre Bildung erforderlich. Des Weiteren werden hinreichend viele Stöße und somit zahlreiche Stoßpartner benötigt, was mittels hohem

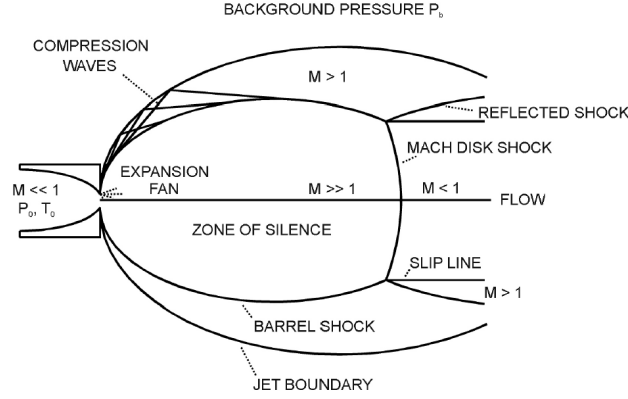


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der “Zone of Silence” [Sch02]

Druck oder großer Düse erreicht werden kann.

Diese Rahmenbedingungen sind beispielsweise bei der Überschall-expansion von gekühltem Heliumgas durch eine kleine Düse in ein gutes Vakuum gegeben. Die Expansion erfolgt dabei adiabatisch, wobei der Vordruck p_0 im Heliumreservoir viel größer sein muss, als der Umgebungsdruck p_E in der Kammer, in welche das Gas expandiert. Bei der Expansion wird nahezu alle thermische Energie in gerichtete Bewegungsenergie umgewandelt, wodurch eine sehr starke Kühlung erfolgt. [Sch02] Es wird angenommen, dass sich die Cluster relativ früh in der Expansionsphase bilden, in der sogenannten “sudden freeze zone“. In dieser Phase ist der Druck noch hoch und Kollisionen sind somit wahrscheinlicher als nach dem Fortschreiten der Expansion. Innerhalb eines Abstandes, welcher dem doppelten Düsendurchmesser entspricht, erfolgen typischerweise mehrere hundert Zwei-Körper-Stöße und etwa zehn Drei-Körper-Stöße pro Atom. Im weiteren Verlauf nimmt die Zahl der Kollisionen, welche proportional zu Vordruck p_0 und Düsendurchmesser d_0 und antiproportional zur Temperatur an der Düse T_0 ist, wesentlich ab. [BST02]

Die entstandenen Cluster haben alle in etwa die gleiche Geschwindigkeit und treten so in die sogenannte “Zone of Silence“ ein. Innerhalb dieser Zone bewegen sich die Teilchen parallel. Daher treten hier keine Kollisionen auf und die Cluster bleiben erhalten. In den Randbereichen der “Zone of Silence“ kommt es zu Kollisionen mit den Restgas-Teilchen des Vakuums, wodurch die Teilchen des Jets abgebremst und eventuell Cluster zerstört werden. Daher schneidet man den für Experimente benötigten Gasjet mit Hilfe eines Skimmers aus der Ruhezone heraus. [Sch02] In Experimenten ist es von Vorteil die Durchschnittsgeschwindigkeit und die finale Temperatur im Jet zu kennen. Zur Herleitung dieser soll hier die Enthalpie h_0 entlang einer isentropen Stromlinie der Expansion für ein Atom betrachtet werden [BST02]:

$$h_0 = \frac{1}{2}mv^2 + \frac{5}{2}k_B T_\infty \quad (2.9)$$

Unter der Annahme, dass die Temperatur T_∞ im Jet viel kleiner ist, als die Temperatur T_0 im Heliumreservoir und mit der Enthalpie $h_0 = \frac{5}{2}k_B T_0$ für ideale Gase,

lässt sich die durchschnittliche Geschwindigkeit im Jet, schreiben als [BST02]:

$$v = \sqrt{\frac{5k_B T_0}{m}} \quad (2.10)$$

Die Geschwindigkeitsverteilung im Jet wird im Allgemeinen durch das “speed ratio“ S beschrieben [BST02]:

$$S = \left(2\sqrt{\ln 2}\right) \frac{v}{\Delta v} \quad (2.11)$$

Mit den Gleichungen 2.10 und 2.11 lässt sich nun die Temperatur T_∞ im Jet nähern [BST02]:

$$T_\infty \approx 2,5 T_0 S^{-2} \quad (2.12)$$

Mit Hilfe dieser Formel ergibt sich die finale Temperatur im Jet aus dem experimentell bestimmbaren “speed ratio“ S .

Bei der Expansion von Helium können im Jet weitaus tiefere Temperaturen erreicht werden, als bei anderen Gasen. Gegen Ende der Expansion erreicht der Wirkungsquerschnitt der He-He-Streuung aufgrund der geringen Bindungsenergie des ^4He -Dimers einen enorm großen Wert, welcher auf etwa $250000 \text{ \AA}^2$ für $T \rightarrow 0\text{K}$ geschätzt wird. Dieser enorme Anstieg des Wirkungsquerschnittes führt zu einer verbesserten Kühlung des Heliumstrahls und somit auch zu sehr schmalen Halbwertsbreiten bei der Verteilung der Geschwindigkeiten der Teilchen Δv um die Durchschnittsgeschwindigkeit v : $\frac{\Delta v}{v} \approx 1\%$ [BST02]

Des Weiteren hängt die Bildung von Dimeren, Trimeren und Tetrameren von dem Druck an der Düse ab, wie Bruch, Schöllkopf und Toennies 2002 herausfanden [BST02]. Der Stoffmengenanteil von Dimeren erreicht bereits bei Drücken sein Maximum, bei welchen der Stoffmengenanteil der Trimere noch sehr klein ist und jener der Tetramere gerade erst in Messungen sichtbar wird.

Eine weitere interessante Eigenschaft der Helium-Oligomere fanden Kornilov et al. 2007 [KT07]. Bei ihren Experimenten stellte sich heraus, dass nach der Clusterbildung in einer Überschallexpansion Oligomere der Größe 10, 11, 14, 22, 26 und 44 häufiger auftreten als andere. Diese Zahlen werden daher auch als “magic numbers“ bezeichnet. Zur Erklärung führten Sie an, dass entlang des Heliumstrahls die Dichte sehr schnell abfällt und somit das thermodynamische Gleichgewicht verloren geht. Nach dem sogenannten “point of no return“ gibt es keine Kollisionen mehr und die Cluster frieren sozusagen aus. Das Clusterwachstum wird im Allgemeinen durch folgende Formel beschrieben [KT07]:



Jede dieser Reaktionen hat eine Gleichgewichtskonstante K , welche gegeben ist durch das Verhältnis der Verteilungsfunktionen von Clustern mit N Atomen zu Clustern mit $(N-1)$ Atomen. Führt ein zusätzliches Heliumatom in einem Cluster zu einem zusätzlichen gebundenen Zustand, so steigt die Verteilungsfunktion des

größeren Clusters und somit auch die Gleichgewichtskonstante der Bildungsreaktion. Hat He_N also einen gebundenen Zustand mehr als $He_{(N-1)}$, so steigt $K(N)$. Allerdings haben nun He_N und $He_{(N+1)}$ die gleiche Anzahl gebundener Zustände und daher ist $K(N+1) \approx K(N-1)$. Diese Sprünge in den Gleichgewichtskonstanten stimmen mit den sogenannten “magic numbers“ überein. [KT07]

2.1.4 Selektion der Cluster durch Materiewellenbeugung

Um Informationen über Cluster einer bestimmten Größe zu erhalten, ist es notwendig, diese aus den anderen nach einer Überschallexpansion im Gasstrahl vorhandenen Clustern herauszufiltern. Hierfür wird die Materiewellenbeugung genutzt.

Im Allgemeinen gilt für jedes Teilchen der Welle-Teilchen-Dualismus. Dies besagt unter anderem, dass jedem Teilchen eine bestimmte Wellenlänge, De-Broglie-Wellenlänge $\lambda_{deBroglie}$ genannt, zugeordnet werden kann:

$$\lambda_{deBroglie} = \frac{h}{p} \quad (2.14)$$

In dieser Gleichung ist h das Plancksche Wirkungsquantum und p der Impuls.

Bei der Betrachtung eines Clusters mit dem Impuls $p = Nmv$, wobei N die Anzahl der Atome des Clusters und m deren Masse ist, so ist die De-Broglie-Wellenlänge dieses Clusters antiproportional zu N [ST94]:

$$\lambda_{deBroglie} = \frac{h}{N \cdot m \cdot v} \quad (2.15)$$

Fliegen die Teilchen durch ein Gitter, entstehen analog zur klassischen Wellenoptik Maxima bei den folgenden Winkeln [ST94]:

$$\sin(\vartheta_n) = n \frac{\lambda}{d} = n \frac{h}{N \cdot m \cdot v \cdot d} \quad (2.16)$$

Hierbei ist n die Beugungsordnung und d der Gitterparameter.

Mit der Kleinwinkelnäherung, d.h. in dem Fall, dass ϑ_n sehr klein ist, ergibt sich:

$$\sin(\vartheta_n) \approx \vartheta_n \quad (2.17)$$

$$\vartheta_n \approx n \frac{\lambda}{d} = n \frac{h}{N \cdot m \cdot v \cdot d} \quad (2.18)$$

Die Gleichungen 2.16 und 2.17 zeigen, dass der Beugungswinkel von der Anzahl der Atome des Clusters abhängt. Daher ist es möglich, verschiedene Clustertypen durch Beugung an einem Gitter anhand ihres Ablenkungswinkels zu separieren.

Neben der eben beschriebenen Interferenz der Teilchenbündel, welche durch die einzelnen Spalte laufen, ist auch die Beugung an jedem einzelnen Spalt zu berücksichtigen, da sie die Intensitätsverteilung ebenso beeinflusst. In der Wellenoptik wird dieser Effekt als Fraunhofer-Beugung bezeichnet.

Allgemein lässt sich die entstehende Intensitätsverteilung nach Beugung wie folgt herleiten. Es werden N Oszillatoren mit Abstand d auf der x -Achse betrachtet. Diese regt eine entlang der z -Achse laufenden Welle zu Schwingungen an und daher

senden sie neue Wellen aus. Nun soll die Gesamtamplitude der von allen Oszillatoren in Richtung ϑ gestreuten Welle ermittelt werden. Jede Teilwelle durchläuft dabei einen unterschiedlich langen Weg, welcher einen Phasenunterschied zwischen benachbarten Teilwellen zur Folge hat [Dem08]:

$$\Delta \varphi = \frac{2\varpi}{\lambda} d \cdot \sin(\vartheta) \quad (2.19)$$

Somit folgt für die Gesamtamplitude bei N streuenden Objekte bei gleichen Teilamplituden A [Dem08]:

$$E = A \cdot \sum_{j=1}^N e^{i(\omega t + \varphi_j)} = A \cdot e^{i\omega t} \cdot \sum_{j=1}^N e^{i \cdot (j-1) \Delta \varphi} \quad (2.20)$$

Wobei die Phase der ersten Teilwelle gleich null gesetzt wurde: $\varphi_1 = 0$.

In Gleichung 2.20 kommt die geometrische Reihe vor, so dass wie folgt umgeschrieben werden kann [Dem08]:

$$E = A \cdot e^{i\omega t} e^{i \frac{N-1}{2} \Delta \varphi} \frac{\sin\left(\frac{N}{2} \Delta \varphi\right)}{\left(\sin \frac{\Delta \varphi}{2}\right)} \quad (2.21)$$

Für die Intensität $I = c\varepsilon_0 |E|^2$ der Welle in Richtung ϑ ergibt sich daher [Dem08]:

$$I(\vartheta) = I_0 \cdot \frac{\sin^2\left(N\pi\left(\frac{d}{\lambda}\right)\sin\vartheta\right)}{\sin^2\left(\pi\left(\frac{d}{\lambda}\right)\sin\vartheta\right)} \quad (2.22)$$

Diese Gleichung kann nun auf einen Spalt der Breite b angewendet werden. Entsprechend des Huygensschen Prinzips ist jeder Raumpunkt P im Spalt Ausgangspunkt einer neuen Kugelwelle und diese überlagern sich. Jeder Sender aus der anfänglichen Überlegung wird jetzt durch eine Strecke Δb mit kontinuierlich verteilten Sendern ersetzt. Im Spalt gibt es $N = \frac{b}{\Delta b}$ solcher Abschnitte und diese verfügen über eine Amplitude $A = N \cdot A_0 \cdot \frac{\Delta b}{b}$. Für die Intensitätsverteilung an einem Spalt ergibt sich somit [Dem08]:

$$I(\vartheta) = N^2 I_0 \left(\frac{\Delta b}{b}\right)^2 \frac{\sin^2\left(\pi\left(\frac{b}{\lambda}\right)\sin\vartheta\right)}{\sin^2\left(\pi\left(\frac{\Delta b}{\lambda}\right)\sin\vartheta\right)} \quad (2.23)$$

Liegt ein Beugungsgitter vor, so muss zusätzlich in der Intensitätsverteilung der Effekt der Überlagerung der Teilstrahlen aus mehreren Spalten berücksichtigt werden [Dem08]:

$$I(\vartheta) = I_S \cdot \frac{\sin^2\left(\pi\left(\frac{b}{\lambda}\right)\sin\vartheta\right)}{\left(\pi\left(\frac{b}{\lambda}\right)\sin\vartheta\right)^2} \cdot \frac{\sin^2\left(N\pi\left(\frac{d}{\lambda}\right)\sin\vartheta\right)}{\sin^2\left(\pi\left(\frac{d}{\lambda}\right)\sin\vartheta\right)} \quad (2.24)$$

Hierbei ist b die Spaltbreite, d ist der Abstand zwischen den Spalten und I_S ist die von einem Spalt durchgelassene Intensität. Der zweite Faktor wird als Spaltfunktion

und der dritte als Gitterfunktion bezeichnet.

Soll statt Licht Materie an Gittern gebeugt werden, so ist Gleichung 2.24 noch nicht vollständig. Die Teilchen des Strahls werden aufgrund ihrer Polarisierbarkeit mit den Atomen und Molekülen des Gitters wechselwirken. Es entsteht ein attraktives Van-der-Waals-Potential zwischen dem Gitter und dem jeweiligen Teilchen [GST⁺99]:

$$V = -\frac{C_3}{r^3} \quad (2.25)$$

Zudem werden bei der Materiewellenbeugung Gitter mit trapezförmigen Stegen verwendet, welche dem Jet mit der schmalen Seite zugewandt sind. Optische Gitter verfügen über rechteckige Stege. Der Neigungswinkel der Stegseiten gegenüber der Jetachse und die Stärke des Potentials C_3 beeinflussen die Spaltfunktion.

R.E. Grisenti, W. Schöllkopf und J.P. Toennies ermittelten 1999 eine geeignete Spaltfunktion, mit welcher sich Folgendes für die Intensität ergibt [GST⁺99]:

$$I(\vartheta) = I_S \cdot \frac{\sin^2 \left(N\pi \left(\frac{kd}{2} \right) \sin \vartheta \right)}{\sin^2 \left(\pi \left(\frac{kd}{2} \right) \sin \vartheta \right)} 4 \frac{\cos^2 \vartheta}{\lambda} \cdot e^{-k^2 \sin^2 \vartheta R_2} \cdot \frac{\sin^2 \left(k \sin \vartheta \left(\frac{b}{2} R_1 \right) \right)}{k^2 \sin^2 \vartheta} \quad (2.26)$$

Dabei wurde verwendet, dass $\lambda = \frac{2\pi}{k}$ ist. R_1 und R_2 sind die von β und C_3 abhängigen Größen.

2.1.5 Das Heliumdimer

Das Heliumdimer ${}^4\text{He}_2$ wurde bereits 1928 von Slater vorhergesagt [Sla28] und konnte 1994 von Schöllkopf und Toennies mittels der Materiewellenbeugung nachgewiesen werden [ST94]. Das Dimer ${}^4\text{He}^3\text{He}$ hingegen ist theoretischen Berechnungen mit der Monte-Carlo-Methode zufolge ungebunden [BZMM00].

Für Größe und Bindungsenergie wurden je nach für die Kalkulation verwendetem Potential 46,18 Å bzw. 52 Å und 1,7 mK bzw. 1,3 mK prognostiziert [KMS11]. Damit ist es das größte bisher bekannte diatomare Molekül und sogar größer als der Durchmesser eines DNA-Stranges. Theoretiker erwarten für das Dimer nur einen Grundzustand und keine vibrations- oder rotationsangeregten Zustände, da die Nullpunktsenergie bei 0,9465 meV [Hav10] liegt und das interatomare Van-der-Waals-Potential von Helium lediglich eine Tiefe von 0,9477 meV [HBV07] hat. Zudem ist der prognostizierte Abstand etwa 3,5-mal größer als der klassische Umkehrpunkt dieses Moleküls und somit existiert es größtenteils im klassisch verbotenen Bereich [KT07]. In der Atom- und Kernphysik wird solch ein Zustand auch als “Halo State“ bezeichnet. Die Wellenfunktion Ψ des Heliumdimers vereinfacht sich in dem klassisch verbotenen Bereichen auf [KT07]:

$$\Psi(r) \longrightarrow \frac{e^{kr}}{r} \quad \text{mit} \quad k = \frac{\sqrt{2\mu E_b}}{\hbar} \quad (2.27)$$

Hierbei ist μ die reduzierte Masse. Für den Erwartungswert des Abstandes zwischen den Atomen des Dimers lässt sich nun berechnen [KT07]:

$$\begin{aligned}
 \langle r \rangle &= \frac{\int \Psi^* r \Psi}{\int \Psi^* \Psi} \\
 &= \frac{\int_0^\infty r \cdot \frac{e^{-2kr}}{r^2} \cdot r^2 dr \int d\Omega}{\int_0^\infty \frac{e^{-2kr}}{r^2} \cdot r^2 dr \int d\Omega} \\
 &= \frac{4\pi \int_0^\infty r \cdot \frac{e^{-2kr}}{r^2} \cdot r^2 dr}{4\pi \int_0^\infty \frac{e^{-2kr}}{r^2} \cdot r^2 dr} = \frac{1}{2k}
 \end{aligned} \tag{2.28}$$

In dieser Gleichung wurde angenommen, dass die Wellenfunktion bei $R = 0$ beginnt. Dies ist aufgrund der Abstoßung der Atome eine Näherung.

Grisenti und Schöllkopf [GST⁺00] konnten 2000 die Größe des Heliumdimers mit $\langle r \rangle = (52,4 \pm 4)$ Å und seine Bindungsenergie mit $|E_b| = 1,1_{-0,2}^{+0,3}$ mK experimentell bestimmen. Das Experiment beruhte dabei auf der nachfolgend beschriebenen Methode. Bei der Streuung von Heliumatomen und -dimeren an einem Gitter unterscheiden sich ihre Spaltfunktionen beträchtlich. Dimere können bei der Materiewellenbeugung an den Seiten eines Spaltes zerstört werden, daher ist ihre effektive Spaltbreite s_{eff} gegenüber jener von Heliumatomen s_0 reduziert. Der Unterschied in den Spaltbreiten kann, wie im Folgenden beschrieben, bestimmt werden. Durch Projektion des Ergebnisses aus Gleichung 2.28 entlang einer kartesischen Koordinate senkrecht zu den Gitterbalken des Gitters, an welchem die Heliumdimere gestreut werden, ergibt sich:

$$\langle x \rangle = \frac{\int \int |x| \sin \vartheta d\vartheta d\varphi}{\int \int \sin \vartheta d\vartheta d\varphi} = \frac{1}{2} \langle r \rangle \tag{2.29}$$

Hieraus folgt: $s_0 - s_{eff} = \frac{1}{2} \langle r \rangle$

Durch Vergleich der Spaltbreite aus der Messung mit Heliumatomen mit der effektiven Spaltbreite aus der Heliumdimermessung in einem Experiment, lässt sich ein Wert für $\langle r \rangle$ ermitteln, wie bei Grisenti und Schöllkopf [GST⁺00] geschehen.

Die Schrödingergleichung des Heliumdimers ist nicht exakt lösbar. Das Potential und die Wellenfunktion können jedoch mittels Störungstheorie, Hartree-Fock-Methode oder Variationsprinzip genähert werden. Ein großer Schritt auf dem Weg zu einer sehr guten Näherung, war die Berücksichtigung relativistischer Effekte im Van-der-Waals-Potential durch Luo et al. im Jahre 1993 [LKM⁺93]. Aufgrund der großen Distanz zwischen den Atomen im Dimer muss die Laufzeit der Dipolfelder, welche sich gegenseitig beeinflussen, berücksichtigt werden.

Das heute beste Modell für die Wellenfunktion stammt von Bressanini [Bre11]:

$$\Psi(r) = \exp \left(d_0 e^{-d_1 r} + \frac{p_5}{r^5} + \frac{p_2}{r^2} + p_0 \ln(r) + p_1 r \right) \tag{2.30}$$

Die Konstanten sind in Tabelle 2.2 gegeben. Diese Wellenfunktion reproduzierte bei Bressanini [Bre11] 98% der zum Vergleich verwendeten experimentellen Daten.

Parameter	
p_5	-1485,60098
p_2	-6,146323
p_1	-0,005390
p_0	-1,013632
d_1	-1,007803
d_0	-76,371281

Abbildung 2.2: Parameter für Gleichung 2.15 [Bre11]

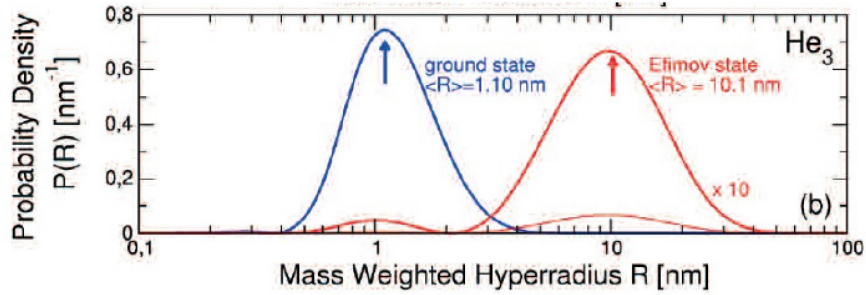


Abbildung 2.3: Wahrscheinlichkeitsdichte des Grundzustandes und des angeregten Zustandes des Heliumtrimers in Abhängigkeit des effektiven Hyperradius [KT07]. Der Hyperradius R hängt von Abständen r_{ij} von je zwei Kernen i und j wie folgt ab: $R = \sqrt{r_{12}^2 + r_{13}^2 + r_{23}^2}$

2.1.6 Das Heliumtrimer

Heliumtrimere wurden ebenso wie Dimere 1994 von Schöllkopf und Toennies experimentell nachgewiesen [ST94]. Die Theorie sagt für Trimere zwei stabile Formen vorher: ${}^4\text{He}_3$ und ${}^3\text{He}^4\text{He}_2$. Das ${}^4\text{He}^3\text{He}_2$ -Trimer ist laut diesen Berechnungen nicht existent [BZMM00]. Im Gegensatz zum Heliumdimer wurde für das Heliumtrimer neben einem Grundzustand auch ein angeregter Zustand prognostiziert, welcher eine Bindungsenergie von $|E_e| = 2,28 \text{ mK}$ [KMS11] und eine He-He-Bindungslänge von $\langle r \rangle = 79,7 \text{ Å}$ [BKK⁺05] aufweisen soll. Bindungsenergie und Bindungslänge im Grundzustand betragen laut diesen Berechnungen $|E_g| = 126 \text{ mK}$ [KMS11] und $\langle r \rangle = 9,6 \text{ Å}$ [BKK⁺05]. Der angeregte Zustand ist somit ähnlich groß und schwach gebunden wie das Heliumdimer. Abbildung 2.3 stellt die Wahrscheinlichkeitsverteilung von Grundzustand und angeregtem Zustand dar.

2005 konnten Toennies et al. [BKK⁺05] den Mittelwert der He-He-Bindungslänge in Trimeren experimentell mit $\langle r \rangle = 11_{-5}^{+4} \text{ Å}$ bestimmen. Im gleichen Jahr lieferte die selbe Gruppe ebenfalls die experimentelle Evidenz für ${}^3\text{He}^4\text{He}_2$ [KKST05]. Der Ionisierungsquerschnitt von Heliumtrimeren bei Elektronenstoßionisation wurde bereits 1994 von Schöllkopf und Toennies auf das etwa 3,2-fache desjenigen von Heliumatomen bestimmt. Dieser Wert liegt nah an der 3,0, welche erwartet wird, da

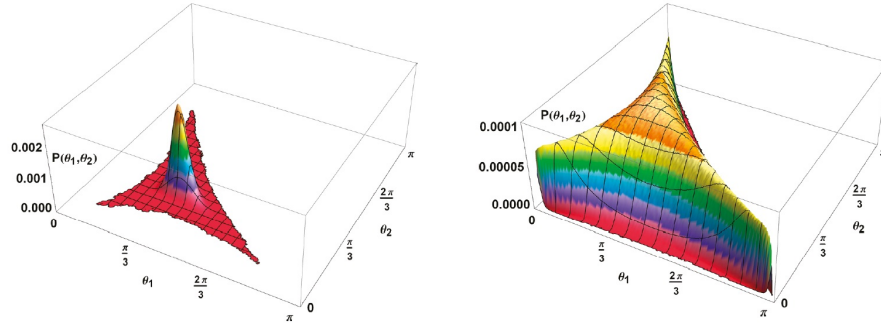


Abbildung 2.4: Bressanini und Morosi berechneten die Winkelverteilung zweier Winkel zwischen den gedachten Geraden, welche je zwei Atome des Trimers verbinden. Zwei der drei Winkel sind ausreichend, um die Form festzulegen. Im rechten Bild ist die Winkelverteilung im Heliumtrimer dargestellt und es wird ersichtlich, dass alle Formen bis zur Linearität angenommen werden können. Im Vergleich dazu ist im linken Bild die Verteilung für ein Neontrimer zusehen, welche einen scharfen Peak bei $(\frac{\pi}{3}, \frac{\pi}{3})$ aufweist und somit oszilliert dieses Trimer geringfügig um die Form eines gleichseitigen Dreiecks.[BM11]

der Ionisierungsquerschnitt bei kleinen Clustern lediglich von der Anzahl der Atome abhängen sollte. Das experimentelle Ergebnis bestätigt somit, dass auch Trimere schwach gebunden sind [ST94].

Unklarheit herrschte lange Zeit bezüglich der räumlichen Konfiguration des Heliumtrimers. Bressanini und Morosi prognostizierten 2011 aufgrund theoretischer Berechnungen, dass signifikante Wahrscheinlichkeiten sowohl für eine lineare Form als auch für eine Konfiguration als gleichseitiges Dreieck existieren, wobei letztere die geringfügig wahrscheinlichere räumliche Aufteilung ist. Ihre Ergebnisse sind in Abbildung 2.4 dargestellt [BM11].

Voigtsberger et al. konnten 2014 mit einem Experiment Aufschluss über die genaue Form des Trimers geben. Es stellte sich dabei heraus, dass es hierbei wesentliche Unterschiede zwischen dem $^4\text{He}_3$ -Trimer und dem $^3\text{He}^4\text{He}_2$ -Trimer gibt. Die Struktur des $^4\text{He}_3$ ähnelt einer Wolke in welcher alle Strukturen zwischen linear und gleichseitigem Dreieck möglich sind. Eine Gleichgewichtsstruktur ist somit kaum definiert. In $^3\text{He}^4\text{He}_2$ hingegen ist der Winkel bei ^3He wesentlich kleiner, als die anderen beiden Winkel des Dreiecks bei den beiden ^4He -Atomen. Zudem liegen diese beiden Atome recht nah beieinander, wohingegen sich das ^3He -Atom in der Tunnelregion hinter dem klassischen Umkehrpunkt aufhält. Insgesamt formt dieses Trimer daher ein spitzwinkliges Dreieck [VZB⁺14].

Der angeregte Zustand des Heliumtrimers ist von großem Interesse in der aktuellen Forschung, da vermutet wird, dass es sich bei ihm um einen sogenannten Efimov-Zustand handelt. Der theoretische Physiker Vitaly N. Efimov prognostizierte 1970 einen neuartigen Typ von Bindung für Teilchentupel einer bestimmten Form. Laut

Efimov existiert eine unendliche Anzahl gebundener Zustände, sogenannte Efimov-Zustände, im Dreikörpersystem, wenn mindestens zwei Bosonen im Zweikörperuntersystem ungebunden sind und eine unendliche Boson-Boson-Streulänge aufweisen. [KMS11] Teilchen mit unendlichen Streulängen sind nicht bekannt, doch es gibt Systeme aus drei identischen Teilchen von denen je zwei einen gebundenen Zustand sehr niedriger Energie aufweisen. Diese kleinen Bindungsenergien haben große Streulängen zur Folge, wie sie beispielsweise für den angeregten Zustand von Heliumtrimern vermutet werden. Die Anzahl der Efimov-Zustände eines solchen Systems ist über folgende Gleichung abschätzbar [KMS11]:

$$N_{Ef} \approx \frac{\omega_0}{\pi} \ln \left| \frac{l_{sc}}{r_0} \right| \quad (2.31)$$

Hierbei ist l_{sc} die Boson-Boson-Streulänge. Mit Hilfe dieser Abschätzung wurden für die Zahl der Efimov-Zustände im Heliumtrimer Werte zwischen 0,6 und 1,3 errechnet [KMS11]. Der Nachweis des Efimov-Zustandes ist Kunitzki et al. 2015 mit der für dieser Arbeit verwendeten Apparatur gelungen ??.

2.2 Interaktionen zwischen Atomen und elektromagnetischer Strahlung ²

Materie und elektromagnetische Strahlung können auf verschiedene Arten miteinander interagieren. Ein Photon kann beispielsweise von einem Atom absorbiert werden, wobei die kinetische Energie des Photons zur elektrischen Anregung des Atoms führt. Ist die Energie des Photons größer als die Bindungsenergie von Elektronen im Atom, so kann ein Elektron das Atom verlassen. Dieser Prozess wird als Photoionisation bezeichnet. Die kinetische Energie des ausgesandten Photoelektrons entspricht dabei der Differenz aus Photonenenergie und Bindungsenergie des Elektrons im Atom. Die Energie eines Photons kann zudem ausreichend sein, um das Atom nicht nur zu photoionisieren sondern zusätzlich auch anzuregen. Es wird also ein Elektron herausgeschlagen und ein Weiteres in einen höheren Zustand angeregt. Angeregte Atome streben stets den energetisch günstigsten Zustand an und können ihre Anregungsenergie z.B. über ein Photon abgeben. Dessen Energie ergibt sich aus der Differenz der Energie des angeregten Zustandes und der Energie des Zustandes nach der Abregung.

All diese Prozesse sind quantenmechanisch beschreibbar, wobei diese Berechnungen für große Cluster sehr komplex werden. Hier sei daher nur auf die Beschreibung des Heliumdimers eingegangen, um eine Idee für das Berechnungsprinzip zu geben. Das Dimer kann dabei aufgrund seiner großen räumlichen Ausdehnung, wie zwei Heliumatome behandelt werden.

Die Grundlage für die nun folgenden, quantenmechanischen Betrachtungen ist die Hamilton-Funktion für ein geladenes Teilchen im elektromagnetischen Feld [BJ03]:

$$H = \frac{1}{2m} \left(\vec{p} - q\vec{A} \right)^2 - V(\vec{r}) \quad (2.32)$$

² Dieses Kapitel orientiert sich an der Vorlesung Atomphysik 3 [Jah14], sowie an den Dissertationen von PD Dr. Till Jahnke (Kapitel 2.3) [Jah05] und Dr. Tilo Havermeier (Kapitel 2.3 und 2.4) [Hav10].

Dabei ist $\vec{p}$ der generalisierte Impuls des Teilchens und $\vec{A}$ das Vektorpotential des elektromagnetischen Feldes.

Für die quantenmechanische Betrachtung werden nun die Vektoren für Impuls $\vec{p}$ und Ort $\vec{r}$ durch die Operatoren $\hat{p} = \frac{\hbar}{i} \vec{\nabla}$ und $\hat{r}$ ersetzt. Zudem kann die Wechselwirkung zwischen dem Kern und dem elektromagnetischen Feld vernachlässigt werden, da die Masse des Kerns wesentlich größer als die Masse des Elektrons ist und sich die reduzierte Masse mit der Elektronenmasse nähern lässt. In die Betrachtung geht jedoch das Coulomb-Potential $V(r) = -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 r}$ ein, welches die Kräfte zwischen Elektronen und Kern berücksichtigt. Es ergibt sich mit Hilfe dieser Näherungen der folgende Hamiltonian [BJ03]:

$$\hat{H}(t) = -\frac{\hbar^2}{2m} \vec{\nabla}^2 - \frac{Ze^2}{(4\pi\epsilon_0)r} - i\hbar \frac{e}{m} \vec{A} \vec{\nabla} + \frac{e^2}{2m} \vec{A}^2 \quad (2.33)$$

Hierbei fällt auf, dass der Hamiltonoperator aus einem zeitunabhängigen und feldfreien Teil

$$\hat{H}_0 = -\frac{\hbar^2}{2m} \vec{\nabla}^2 - \frac{Ze^2}{(4\pi\epsilon_0)r} \quad (2.34)$$

und einem zeitabhängigen Teil

$$\hat{H}_{WW} = -i\hbar \frac{e}{m} \vec{A} \vec{\nabla} + \frac{e^2}{2m} \vec{A}^2 \quad (2.35)$$

besteht.

Letzterer beschreibt die Interaktionen zwischen dem Atom und dem elektromagnetischen Feld. Hierbei hängt der erste Summand linear von dem Vektorpotential $\vec{A}$ ab und stellt die einfache Wechselwirkung, erzeugt durch ein Photon, dar. Der zweite Term ist proportional zum Quadrat des Vektorpotentials und beschreibt die zweimalige Interaktion zwischen Atom und Feld. Dieser Term ist somit bei der Betrachtung von An- und Abregung, sowie von Photoionisation vernachlässigbar. Der verbliebene Teil von $\hat{H}_{WW}$ kann mittels der Störungsrechnung in die quantenmechanische Betrachtung eingebunden werden.

Die Übergangswahrscheinlichkeit von einem Zustand $|a\rangle$ zu einem Zustand $|b\rangle$ ist durch Fermi's Goldene Regel gegeben [Jah05]

$$W_{a \rightarrow b} = \frac{2\pi}{\hbar} |M_{ba}|^2 \delta(E_b - E_a) \quad (2.36)$$

Hierbei ist $M_{ba} = \langle b | \hat{H}_{WW} | a \rangle$ das Übergangsmatrixelement. Dieses kann beispielsweise für Übergänge wie Photoionisation genauer bestimmt werden.

Mit Hilfe von Gleichung 2.36 können Übergänge zwischen zwei Zuständen durch Wechselwirkung mit Photonen nun relativ einfach beschrieben werden. Im Folgenden wird dies für Photoionisation exemplarisch gezeigt.

2.2.1 Photoionisation

Absorbiert ein Atom ein Photon unter Aussendung von Elektronen, so liegt, wie bereits erwähnt, Photoionisation vor. Die kinetische Energie des Photons geht dabei

vollständig in die kinetische Energie und die Bindungsenergie sowie in den Rückstoßimpuls des Ions über.

Das Übergangsmatrixelement für Photoionisation ist nach Bransden wie folgt gegeben [BJ03]:

$$M_{ba} = \langle \psi_b | \exp(i \vec{k} \cdot \vec{r}) \hat{\varepsilon} \cdot \vec{\nabla} | \psi_a \rangle = \int \psi_b^*(\vec{r}) \exp(i \vec{k} \cdot \vec{r}) \cdot \hat{\varepsilon} \cdot \vec{\nabla} \psi_a(\vec{r}) d\vec{r} \quad (2.37)$$

Für die Berechnung der Übergangswahrscheinlichkeit oder den Wirkungsquerschnitt für diese Interaktion muss das Übergangsmatrixelement genähert werden. Hierfür wird meist die sogenannte Dipol-Näherung verwendet. Als erster Schritt dieser Näherung erfolgt die Entwicklung von $\exp(i \vec{k} \cdot \vec{r})$ in einer Reihe [BJ03]:

$$\exp(i \vec{k} \cdot \vec{r}) \approx 1 + (i \vec{k} \cdot \vec{r}) + \frac{1}{2!} (i \vec{k} \cdot \vec{r})^2 + \dots \quad (2.38)$$

Die Wellenzahl $\vec{k} = \frac{2\pi}{\lambda}$ wird beispielsweise für optische Übergänge mit $\lambda \approx 100 \text{ nm}$ sehr klein ($k \approx 10^{-5} \text{ cm}^{-1}$). $\vec{r}$ liegt für Übergänge dieser Art meist in der Größenordnung des Bohrschen Radius ($r \approx 10^{-8} \text{ cm}$). Somit wird der Faktor $\vec{k} \cdot \vec{r}$ ebenfalls sehr klein und kann gegenüber 1 vernachlässigt werden. Es folgt $\exp(i \vec{k} \cdot \vec{r}) \approx 1$ [Hav10]. Wendet man diese Entwicklung auf das Übergangsmatrixelement an, so vereinfacht sich dieses zu $M_{ba} = \hat{\varepsilon} \cdot \langle \psi_b | \nabla | \psi_a \rangle$. $\hat{\varepsilon}$ gibt hierbei die Polarisation des verwendeten Lichtes wieder.

Unter Verwendung von Fermis Goldener Regel kann aus diesem Übergangsmatrixelement der partielle Wirkungsquerschnitt für Photoionisation gewonnen werden [Jah05]:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta) = \frac{\sigma}{4\pi} (1 + \beta P_2(\cos\theta)) \quad (2.39)$$

$P_2(\cos\theta) = \frac{3}{2}\cos^2(\theta) - \frac{1}{2}$ ist das Legendre-Polynom 2. Grades und β ist der Anisotropieparameter, welcher die Form der Winkelverteilung wesentlich beeinflusst, wie in Abbildung 2.5 zusehen ist.

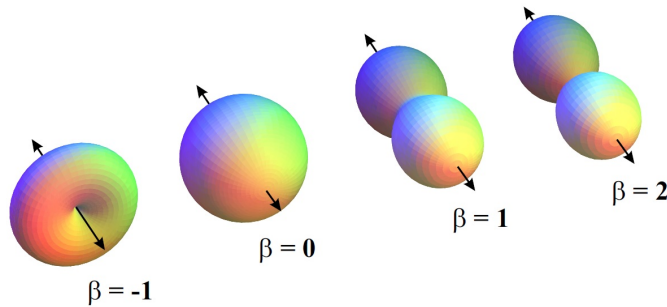


Abbildung 2.5: Emissionswinkelverteilung für linear polarisiertes Licht und verschiedene Anisotropieparameter β [Jah05]

2.2.2 Angeregte Zustände und Arten von Zerfällen

Wie bereits erwähnt können Photonen neben der Photoionisation auch für die Anregung von Elektronen eines Atoms in höhere Energieniveaus sorgen, wobei ebenso mehrere Elektronen eines Atoms gleichzeitig angeregt werden können. Liegen Zwei-Elektronen-Systeme wie bei einem Heliumatom vor, so sind die verschiedenen Energieniveaus des Teilchens durch folgenden Term gegeben [BJ03]:

$$E_{nl,\pm} \approx -\frac{Z^2}{2} \left(1 + \frac{1}{n^2}\right) + J_{nl} \pm K_{nl} \quad (2.40)$$

Hierbei ist J_{nl} das sogenannte Coulombintegral und K_{nl} das Austausch-Integral. Jeder angeregte Zustand strebt das Erreichen des energetisch günstigsten Zustandes an und versucht überschüssige Energie abzugeben. Besonders häufig tritt dabei der sogenannte Auger-Zerfall auf. Führt ein Photon zu einer Vakanz in einer inneren Schale des Atoms, so kann diese durch ein Elektron aus einer äußeren Schale gefüllt werden. Dabei wird die frei werdende Energie auf ein anderes Elektron der äußeren Schale übertragen, welches dadurch ins Kontinuum entweichen kann. Auger-Zerfall kann bei doppelt angeregten Zuständen des Heliumatoms auftreten:

$$h\nu + He(1s^2) \rightarrow He^{**} \rightarrow e^- + He^+ \quad (2.41)$$

Der Auger-Zerfall ist jedoch nicht immer möglich. Dies wird am Beispiel des Neons sehr gut deutlich. Füllt in einem Neon-Atom ein 2p-Elektron eine 2s-Vakanz auf, so wird hierbei nicht genügend Energie frei, damit ein Elektron ausgesandt werden kann. Derartige Zustände können somit nur über den strahlenden oder auch radiativen Zerfall überschüssige Energie abgeben. Hierbei wird ein Photon $h\nu = E_x - E_y$ ausgesandt, während das System von seinem energetischen Zustand E_x in den energetisch tieferen Zustand E_y oder in den Grundzustand E_0 übergeht. Das System muss hierbei jedoch zusätzlich den Drehimpuls des Photons aufbringen, so dass sich bei erlaubten Übergängen dieser Art immer die Parität ändert.

Wichtig für diese Arbeit sind die “Shake - up“-Zustände, in welchen in einem Atom Photoionisation und Anregung auftritt. Dies ist für Heliumatome beispielsweise ab Photonenenergien von 65,4 eV der Fall [Hav10]. Solche Zustände können direkt oder über einen Zwischenschritt über doppelt angeregte Zustände erzeugt werden [Hav10]:

$$h\nu + He(1s^2) \rightarrow e^- + He^{+*}(2s, 2p, \dots) \quad (2.42)$$

$$h\nu + He(1s^2) \rightarrow He^{**} \rightarrow e^- + He^{+*}(2s, 2p, \dots) \quad (2.43)$$

Ein Elektron des Atoms geht ins Kontinuum über, während das andere in einem angeregten Zustand des He^+ verbleibt. Es liegt nun folglich ein angeregtes Helumion vor, welches wasserstoffähnlich ist und somit folgende Energieniveaus aufweist:

$$E_n = E_0 Z^2 \left(1 - \frac{1}{n^2}\right) \quad (2.44)$$

Wobei in diesem Fall $E_0 \approx 13,6$ eV und $Z=2$ ist. Die angeregten Zustände streben wiederum einen stabilen Zustand an, welchen sie mittels strahlendem Zerfall erreichen können.

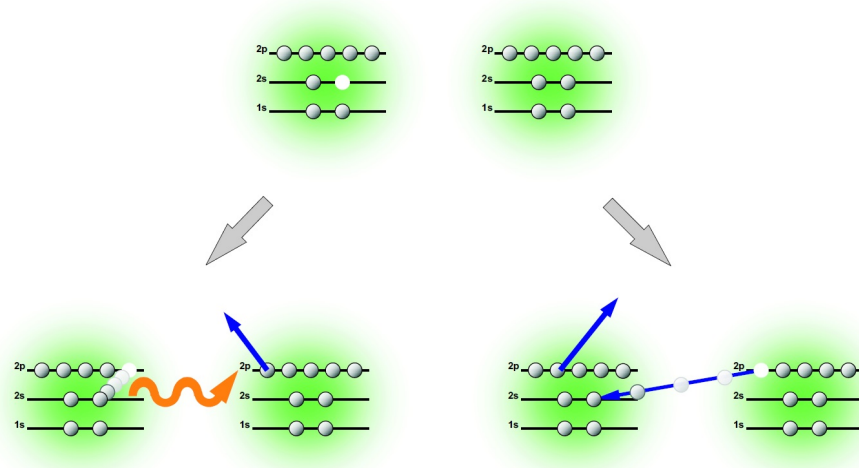


Abbildung 2.6: Schematische Darstellung der beiden ICD-Abregungsprozesse im Neondimer [Jah05]

Eine etwas veränderte Situation liegt in Clustern vor. Als Beispiel werden hier Dimere betrachtet. In diesen kann natürlich ebenfalls Anregung und Photoionisation eines beteiligten Atoms oder sogar beider auftreten. Allerdings weisen Cluster veränderte Energieniveaus gegenüber den ursprünglichen “allein stehenden” Atomen auf. Hierdurch existiert in derartigen Verbänden ein weiterer Zerfallstyp, der sogenannte Interatomic Coulombic Decay. Dieser Prozess tritt somit beispielsweise im Neondimer auf (siehe Abb. 2.6), in welchem wie oben beschrieben Auger-Zerfall energetisch verboten ist. Interatomic Coulombic Decay wurde erstmals 1997 von Cederbaum et al. theoretisch vorhergesagt [CZT97] und stellte eine Abregungsmöglichkeit dar, wenn ein Atom innerhalb eines Verbundes bzw. Clusters eine Vakanz in einer inneren Schale aufweist. Ein Elektron aus einer äußeren Schale kann diese Auffüllen und die frei gewordene Energie wird über ein virtuelles Photon an das Nachbaratom im Cluster abgegeben, welches dabei ionisiert wird. Die beiden positiven Ionen des Clusters stoßen sich nun ab und die schwache Clusterbindung bricht auf. Alternativ kann die Vakanz des einen Atoms auch durch ein Elektron des Nachbaratoms aufgefüllt werden.

ICD konnte bisher in Neon-Clustern [JCS⁺04], Wasser-Clustern [JSH⁺10], Argon-Dimeren [MLS⁺06], Krypton- und Xenon-Dimeren [LAH⁺07] und auch in Helium-Dimeren [HJK⁺10] experimentell nachgewiesen werden.

Interatomic Coulombic Decay kann nicht nur wie in Abbildung 2.6 zu sehen in Clustern mit einem einfach ionisierten Atom auftreten, sondern kommt auch bei “Shake-up“-Zuständen vor, wie in Abbildung 2.7 ebenfalls am Beispiel des Neons zu sehen ist. Bevor ICD in einem Heliumdimer auftreten kann, muss dieses ebenfalls ionisiert und angeregt werden. Ein Elektron verlässt mittels Energiezufuhr durch ein Photon das Atom und das andere bleibt in einem angeregten Zustand zurück. Das angeregte

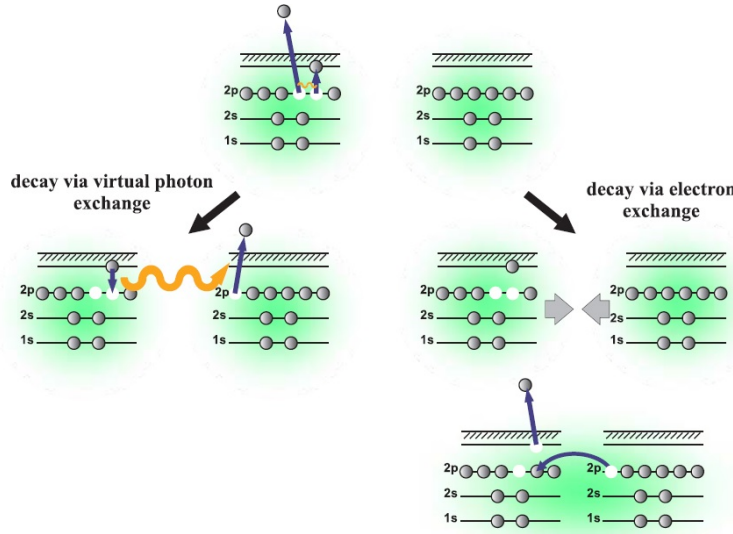
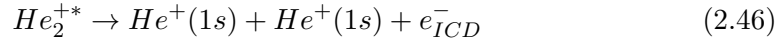


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung der ICD-Prozesse im Neondimer für “Shake-up“-Zustände [Hav10]

He^{+*} -Ion kann seinen Grundzustand dann wieder mittels ICD erreichen [Hav10]:



Die Übergangsrate für den ICD-Prozess ist proportional zum Beitrag zweier Matrixelemente welche auch als “direktes“ und als “Austausch“-Integral bezeichnet werden, da sie entweder den Prozess des virtuellen Photons oder den des Elektronenaustausches beschreiben [Hav10]. Die Matrixelemente unterscheiden sich vor allem in ihrer unterschiedlichen Abhängigkeit vom internuklearen Abstand R . Der Austauschprozess fällt exponentiell mit R und der direkte Prozess verfügt über eine $\frac{1}{R^6}$ -Abhängigkeit. Sie treten somit bei unterschiedlichen Abständen R auf, wodurch es Jahnke et al. 2007 gelang die beiden Prozesse in der KER-Verteilung von Neondimeren zu separieren [JCS⁺07]. Der KER (kinetic energy release) ist dabei die Summe der kinetischen Energien aller molekularer Fragmente. Er ist antiproportional zum internuklearen Abstand.

Bei dem Elektronenaustauschprozess ist ein signifikanter Überlapp zwischen den elektronischen Wellenfunktionen erforderlich. Daher ist beispielsweise im Heliumdimer der Prozess mittels virtuellem Photon dominant, da diese Dimere im Regelfall enorm große internukleare Abstände aufweisen und die 1s-Elektronen stark lokalisiert sind. Somit existiert kaum ein Überlapp.

Statt ICD ist natürlich meist auch ein strahlender Zerfall möglich, allerdings ist der Interatomic Coulombic Decay der bevorzugte Prozess, da er schneller abläuft als dieser strahlende Zerfall. Bei einem Neondimer dauert der ICD-Prozess beispielsweise ca. 10^{-12} s wohingegen der strahlende Zerfall 10^{-8} s in Anspruch nimmt [Jah05].

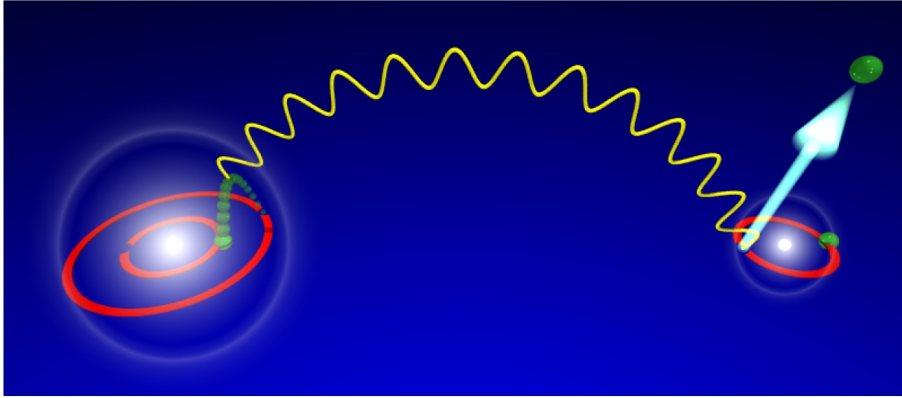


Abbildung 2.8: Schematische Darstellung des ICD-Prozesses im Heliumdimer [Hav10]

Ein sehr interessanter Effekt bei ICD in Heliumdimeren wurde 2010 von Havermeier et al. nachgewiesen [Hav10]. Nach der Photoionisation eines Atoms im Dimer findet eine Kernbewegung statt. Das He_2^+ -Ion ist stärker gebunden, so dass die Kerne nach Aussendung des Photoelektron näher zusammenlaufen, bis ICD stattfindet. Während der Annäherung führen sie gegebenenfalls mehrere Schwingungen aus. Dieser Prozess ist in Abbildung 2.9 dargestellt. ICD wird da stattfinden, wo der Überlapp zwischen einem vibrationsangeregtem Zustand des He_2^+ -Potentials und dem Grundzustand des He_2 -Potentials besonders groß ist. Dies ist für Heliumdimere erst bei Vibrationswellenfunktionen der Fall, die “außerhalb“ des Potentialtopfes liegen, da sich auch die Grundzustandswellenfunktion des Dimers weit in den verbotenen Bereich erstrecken kann. Das System “fällt“ dann bei kleinem internuklearen Abstand von jenem vibrationsangeregten Zustand auf das dissoziierende He^+-He^+ -Potential. Aufgrund dieses Verhaltens sind in der KER-Verteilung des Heliumdimers und auch in jener größerer Heliumcluster Schwingungen bzw. Knoten der einzelnen Vibrationswellenfunktionen zu sehen.

Es ist zu erwarten, dass sich die Lage der Knoten für verschieden große Cluster unterscheidet, da der Überlapp zwischen Grundzustandswellenfunktion und Vibrationswellenfunktion für größere Cluster schon bei weniger ausgedehnten vibrationsangeregten Zuständen für einen Zerfall ausreichend sein sollte. Diese einfache Überlegung findet sich durch Berechnungen von Sisourat et al. [Sis] bestätigt. Sie berechneten die KER-Verteilung für Heliumcluster bis zur Größe $n=7$. Ihre Resultate sind in Abbildung 2.10 graphisch dargestellt. Es ist gut zu erkennen, dass sich die Lage der Peaks für größere Cluster verschiebt. Das in 2.10 zu sehende Diagramm basiert auf den folgenden Annahmen. Die Kernbewegung wurde klassisch beschrieben, indem das propagierende Wellenpaket durch eine klassische Trajektorie ersetzt wurde. Zudem betrachteten Sisourat et al. [Sis] nur paarweise Potentiale, d.h. in einem größeren Cluster sieht ein Atom A ein anderes Atom B so als gäbe es keine weiteren Atome. A empfindet C ebenfalls als wären sie nur ein Paar. Analog gilt dies für alle möglichen Paarkombinationen im Cluster. Die 3-, 4-, ... Teilcheneffekte werden also

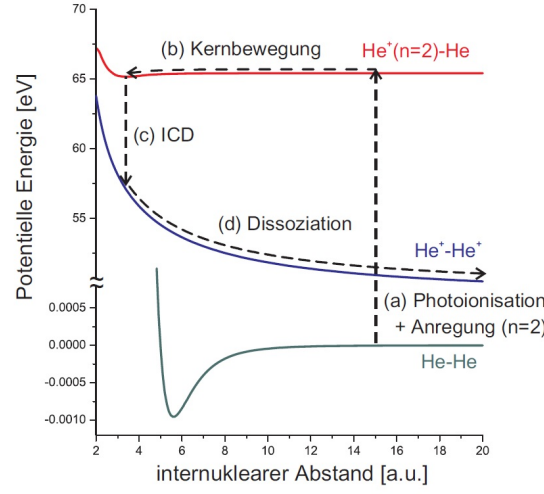


Abbildung 2.9: Schematische Darstellung des ICD-Zerfalls anhand der Potentialkurven im Heliumdimer [Hav10]. In Schritt a) wird das System durch Photoionisation vom Potential des neutralen Heliumdimers in das Potential des einfach positiven Dimerions gehoben. Dieses Potential ist stärker gebunden, so dass in Teil b) eine Kernbewegung zu kleineren internuklearen Abständen hin einsetzt. Dabei steigt die Wahrscheinlichkeit für ICD mit $\frac{1}{R^6}$ bis dieser Zerfall in c) stattfindet. Abschließend dissoziieren die beiden Kerne in d) auf der Kurve des He^+-He^+ -Potentials.

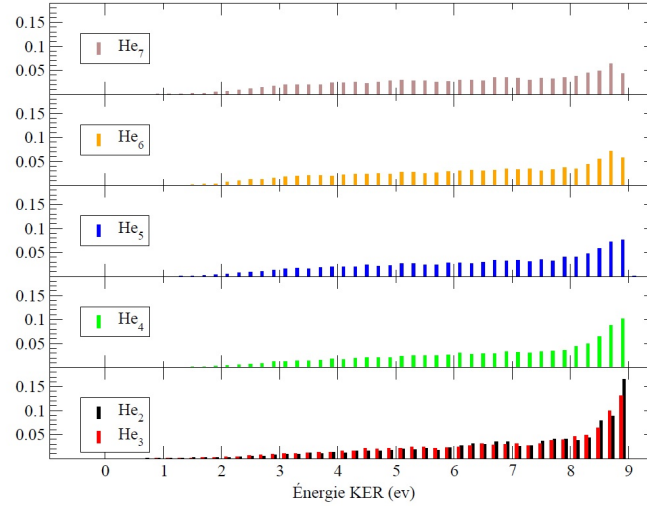


Abbildung 2.10: Theoretische Berechnung der KER-Verteilung für Heliumcluster bis zur Größe $n=7$ [Sis]

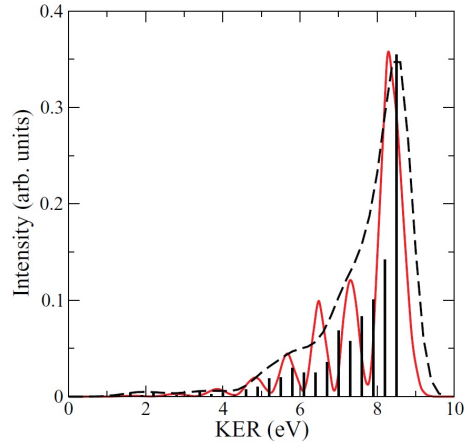


Abbildung 2.11: Vergleich einer quantenmechanischen Berechnung des ICD in der KER-Verteilung bei Heliummimeren ,dargestellt als rote Linie, mit der äquivalenten semiklassischen Berechnung in Form von schwarzen Balken nach Dr. Nicolas Sisourat. [Sis13]

vernachlässigt.

Die Qualität dieser semiklassischen Näherung wird sehr gut durch Abbildung 2.11 verdeutlicht. In dieser Grafik hat Dr. Nicolas Sisourat seinen semiklassischen Ansatz mit einer korrekten quantenmechanischen Rechnung für Heliumdimere verglichen. Gute Übereinstimmung wird dabei im Bereich des ICD-Peaks erreicht. Die aus der Vibrationswellenfunktion resultierenden Knotenpunkte können jedoch von dem semiklassischen Modell nicht reproduziert werden.

Ziel dieser Arbeit ist es, aus experimentell erhaltenen Daten die KER-Verteilungen für verschieden große Cluster zu ermitteln, um diese mit den theoretischen Vorhersagen aus Abbildung 2.10 vergleichen zu können. Daher wird nun im Folgenden das durchgeführte Experiment beschrieben.

3 Experimenteller Aufbau

Das Experiment wurde am DESY in Hamburg durchgeführt. Dort stand der Freielektronen-Laser FLASH zur Verfügung. Dieser liefert hochintensive, ultrakurze Röntgenpulse, welche mittels eines supraleitenden Beschleunigers erzeugt werden. Dabei werden schnelle Elektronen durch einen Undulator geschossen, so dass Laserpulse entstehen. Diese verfügen über sehr hohe Photonendichten, welche dem Experimentatoren zur Verfügung stehen und für hohe Ionisierungswahrscheinlichkeiten im Experiment sorgen. FLASH erzeugt dabei Wellenlängen zwischen 4,2 und 45 nm, Pulslängen zwischen 30 und 300 fs und Pulsenergien zwischen 1 und 500 μJ . Für das in dieser Arbeit beschriebene Experiment wurde eine Wellenlänge von 18,5 nm verwendet, welche einer Photonenenergie von 67 eV entspricht. Diese Energie wird benötigt, um über der Schwelle von 65,4 eV für Ionisation und Anregung zu sein (siehe Kapitel 2.2.2). Im Folgenden wird nun die Versuchsanordnung beschrieben, in welche der Laser eingespeist wurde.

3.1 Aufbau des Vakuumkammersystems

Der hier dargestellte Versuchsaufbau ist so auch schon bei Hahnenbruch [Hah14] zu finden.

Der gesamte Versuchsaufbau besteht im Wesentlichen aus 6 miteinander in Verbindung stehenden Vakuumkammern: der Expansionskammer, der Kammer für differentiell Pumpen, der Gitterkammer, der Kollimationskammer, der Reaktionskammer und dem sogenannten “Jet Dump“. Das gasförmige Helium mit einer Reinheit von 99,9999% wird in die Expansionskammer eingeleitet. Es stammt aus einer normalen Gasflasche und wird über ein einstellbares Ventil (Druckminderer) und einen Kryostaten in die Kammer geführt, wo es expandiert und sich Heliumcluster entwickeln.

Im Abstand von etwa 10 bis 20 mm zum Beginn der Expansionskammer befindet sich ein Trichter, dessen Öffnung dem Heliumstrahl entgegen gerichtet ist. Dieser sogenannte Skimmer, welcher über einen Öffnungsdurchmesser von 300 μm verfügt, schneidet den mittleren Teil des Heliumjets in der sogenannten Zone of Silence heraus.

In der folgenden Kammer wird differentiell gepumpt. Es ist wichtig, dass die Hochvakuumbereiche durch Ventile und Vorvakuumbereiche gut voneinander getrennt sind. Bei unabhängigem Pumpen von Expansionskammer und 2. Kammer von der darauffolgenden Kammer ist es später auch möglich, die einzelnen Kammerteile voneinander zu trennen und einen Teil zu belüften, ohne das Vakuum in den anderen zu verlieren.

Die zweite Kammer ist über ein kleines Rohr mit einer Länge von 60 mm und einem Durchmesser von 8 mm mit der dritten Kammer, welche als Gitterkammer be-

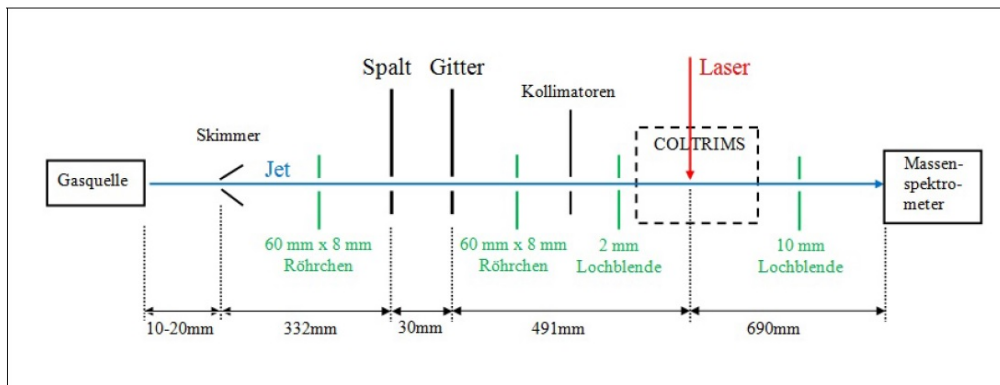


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus mit Jetrichtung von links nach rechts [Hah14]

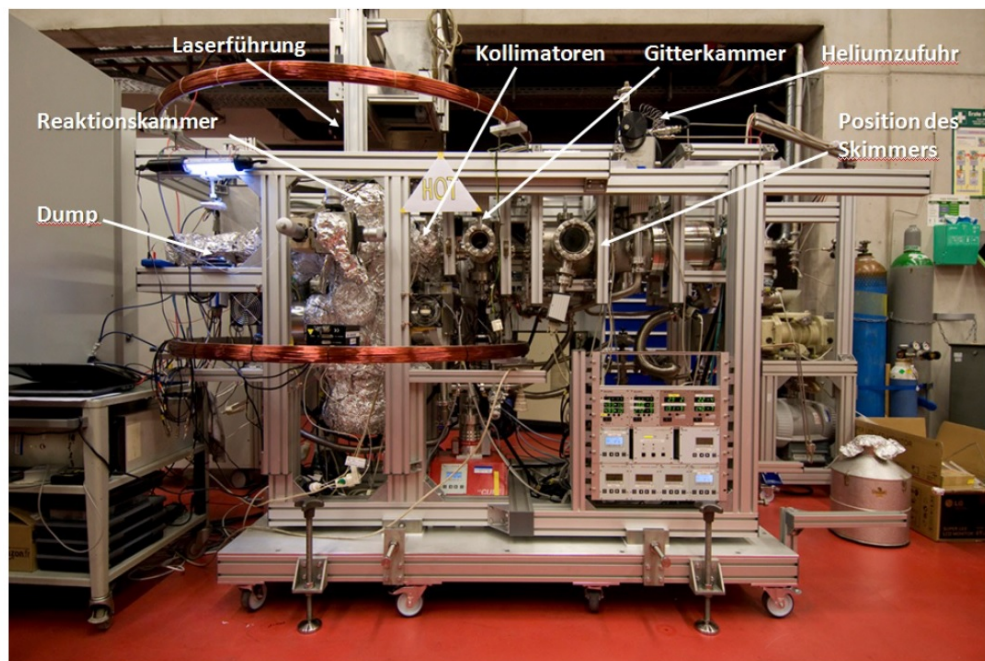


Abbildung 3.2: Abbildung des Versuchsaufbau mit Jetrichtung von rechts nach links [Hah14]

zeichnet wird, verbunden. Dieses Rohr soll die mögliche Rückdiffusion zwischen den beiden Kammern begrenzen, da in ihnen verschiedenartige Vakua erzeugt werden. Diese werden nur so gut, wie es der Gasfluss erlaubt, da abgesaugte und einströmende Teilchen immer ein Gleichgewicht bilden.

Die Nanogitter und die drei Schlitzblenden, welche sich in der Gitterkammer befinden, sind an verfahrbaren, computergesteuerten Manipulatoren angebracht. Die Schlitzblenden dienen dazu, den Heliumjet zu begrenzen und auf genau ein Nanogitter zu lenken. Je nachdem, welche Position das Gitter einnimmt, können bestimmte Clustertypen aussortiert und andere in die nächste Kammer weiter gelenkt werden. Die Gitter werden dabei stets so eingestellt, dass der Clustertyp, mit welchem experimentiert werden soll, in Richtung der nächsten Kammer abgelenkt wird. Dies wird im nachfolgenden Kapitel genauer beschrieben.

Die vierte Kammer ist mit der vorherigen ebenfalls über ein 60 mm langes Rohr mit einem Durchmesser von 8 mm verbunden. Diese Kammer beinhaltet zwei Paare von verstellbaren Kollimatoren, welche senkrecht zur Jet - Achse und senkrecht zu einander angebracht sind.

Eine Lochblende mit einem Durchmesser von 2 mm markiert den Übergang von der Kollimations- zur Reaktionskammer. Das COLTRIMS-Spektrometer, welches in Kapitel 3.4 genauer erläutert wird, ist in dieser fünften Kammer installiert.

Die letzte Kammer und die Reaktionskammer sind über eine Lochblende mit einem Durchmesser von 10 mm miteinander verbunden. In dieser sechsten Kammer welche auch als "Jet Dump" bezeichnet wird, soll möglichst alles anfallende Gas abgepumpt werden, um einen Rückfluss in die Reaktionskammer zu verhindern.

3.2 Das Nanogitter

Heliumcluster entstehen, wie bereits in Abschnitt 2.1.3 beschrieben, während der Überschallexpansion des gekühlten Heliumgases durch eine kleine Düse in ein Vakuum. In diesem Experiment wird das Gas auf 8 K gekühlt und expandiert in ein Vakuum von etwa $5 \cdot 10^{-6}$ mbar.

In diesem Prozess bilden sich Cluster verschiedener Größe in unterschiedlicher Anzahl und es ist nicht möglich nur einen bestimmten Typen zu erzeugen. Daher wird wie in Kapitel 2.1.4 bereits erläutert die Materiewellenbeugung genutzt, um die für das Experiment benötigten Clustertypen herauszufiltern.

Vor jeder Messung nimmt man ein Beugungsbild der Cluster am Nanogitter auf und ermittelt anhand dieses Bildes zu welcher Position die zu untersuchenden Cluster gestreut werden. Für das Experiment werden dann nur Cluster aus diesem Bereich verwendet.

3.3 Der COLTRIMS-Detektor

Der Name dieses Spektrometers stellt eine kurze Beschreibung seiner Funktionsweise dar: **C**old **T**arget **R**ecoil **I**on **M**omentum **S**pectroscopy.

In dem zylinderförmigen Spektrometer, welches in Abbildung 3.3 schematisch dargestellt ist, werden mit Hilfe eines Lasers geladene Fragmente aus ungeladenen Teilchen

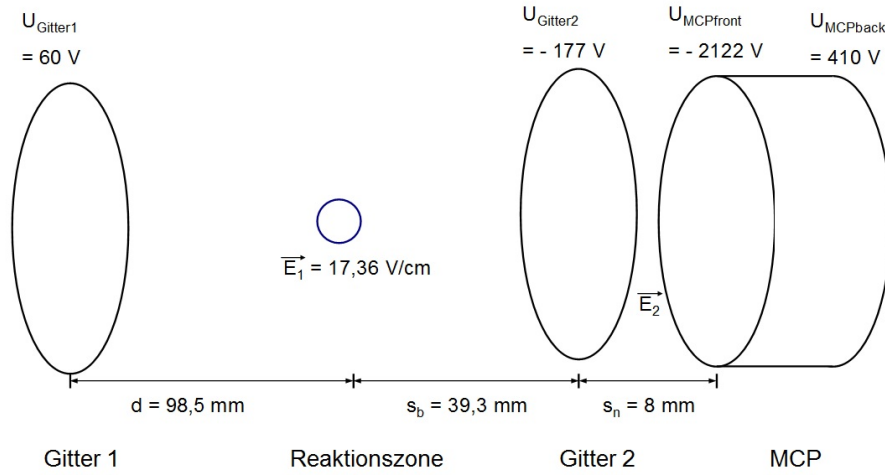


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung des Spektrometers

erzeugt. Elektrische und magnetische Feldern leiten diese auf Detektoren, wo sie zeit- und orts aufgelöst detektiert werden.

Im hier beschriebenen experimentellen Aufbau treffen der Freie-Elektronen-Laser FLASH und der Helium Jet unter einem rechten Winkel in der Mitte des Spektrometers aufeinander. Der Überlappungsbereich der beiden Strahlen definiert die Reaktionszone. Die entstehenden Elektronen und Heliumionen werden aufgrund ihrer entgegengesetzten Ladung durch das homogene, elektrische Feld in gegensätzliche Richtungen abgelenkt. Die Elektronen sind jedoch wesentlich schneller als die Ionen und werden durch das E-Feld, welches zur Ablenkung der Heliumionen nötig ist, kaum beeinflusst. Daher liegt meistens zugleich ein magnetisches Feld an, um die Elektronen auf die Detektoren zu führen. Im hier beschriebenen Experiment werden keine Elektronen detektiert und es ist somit auch kein Magnetfeld nötig. Aufgrund der enormen Leistung des FLASH werden extrem viele Elektronen erzeugt, welche mit sehr kurzem zeitlichen Abstand zueinander auf den Detektor treffen und kaum voneinander trennbar sind.

Die geladenen Ionen werden entlang einer Beschleunigungsstrecke von 39,3 mm Länge mit einem Feld der Stärke 17,36 eV beschleunigt. Diese Werte wurden mittels Eichmessungen ermittelt (siehe Kapitel 4.2).

Im System werden zwei verschiedene Detektoren verwendet: ein sogenanntes Micro-Channel-Plate (MCP) für die Zeitmessung und die Vervielfachung von Elektronen, sowie eine Delay-Line-Anode für die Ortsmessung.

3.3.1 Das MCP

Das MCP ist eine Glasplatte, welche mit zahlreichen Kanälen mit Durchmessern in der Größenordnung von wenigen μm und mit Abständen von einigen $100\mu\text{m}$ zwi-

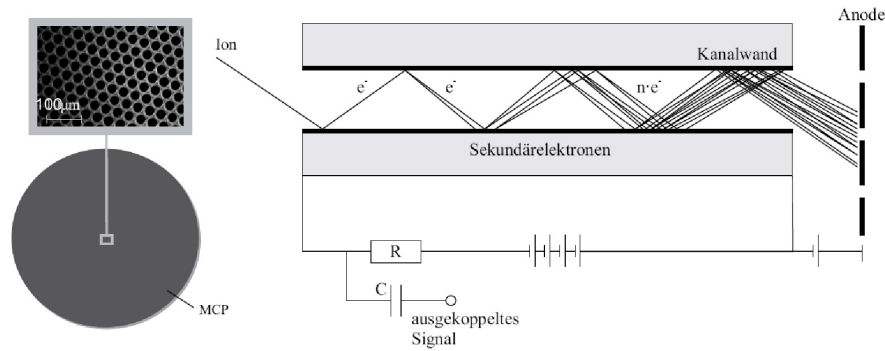


Abbildung 3.4: MCP, Funktionsweise, aus [Sch06] bearbeitet

schen einander durchgezogen ist. Die Kanäle sind im Inneren mit einem hochohmigen Material bedampft, wohingegen sich auf Vorder- und Rückseite des MCPs eine niederohmige Chrom-Nickel-Schicht befindet. Daher lässt sich ein Potential zwischen den beiden Seiten aufbauen.

Die Auslösearbeit für die Elektronen im aufgedampften Material in den Kanälen ist sehr gering, so dass hineinfliegende, geladene Teilchen sehr leicht Sekundärelektronen herauslösen können, welche wiederum bei einer anliegenden Spannung beschleunigt werden und ebenfalls Sekundärelektronen erzeugen. Es entsteht eine Elektronenlawine. Die Kanäle sind um etwa 10° gegenüber dem Normalenvektor auf der MCP-Ebene geneigt, um zu verhindern, dass Teilchen die Kanäle durchfliegen, ohne Elektronen herauszulösen. Um eine besonders starke Verstärkung des Signals zu erreichen, d.h. eine große Elektronenlawine zu erzeugen, welche auf der Anode gut messbar ist, wurden in diesem Experiment 3 MCPs hintereinander geschaltet.

Eine kurzzeitige Änderung des Potentials an Vorder- oder Rückseite dient als Startsignal für die sogenannte “time-of-flight“-Messung (tof; Flugzeitmessung). Das MCP ist sehr schmal (~ 1 mm), daher macht die Verwendung des Vorderseiten- oder des Rückseitensignals kaum einen Unterschied. Nach der Bildung einer Elektronenlawine sind die Kanalwände aufgrund des Elektronenmangels positiv geladen. Es dauert eine kurze Zeit bis dieser Zustand durch die anliegende Spannung kompensiert wurde. In dieser Zeitspanne sind keine weiteren Messungen möglich.

3.3.2 Die Delay-Line-Anode

Die Delay-Line-Anode befindet sich etwa in einem Abstand von 1 cm hinter dem MCP. Die Ortsmessung mit Hilfe dieses Anodentyps basiert auf einer Laufzeitmessung. Die Anode besteht aus drei Schichten von jeweils zwei parallelen Drähten, welche in einem Abstand von 1 mm zueinander aufgewickelt sind und auf einer Potentialdifferenz von etwa 50 V gehalten werden. Die verschiedenen Schichten sind jeweils um einen Winkel von 60° gegeneinander verdreht.

Ein Draht pro Schicht wäre ausreichend, um eine Laufzeitmessung durchzuführen, doch der zweite Draht bietet die Möglichkeit Hintergrundrauschen zu unterdrücken. Zu dem Zeitpunkt an welchem die Elektronenlawine, welche das MCP verlassen hat,

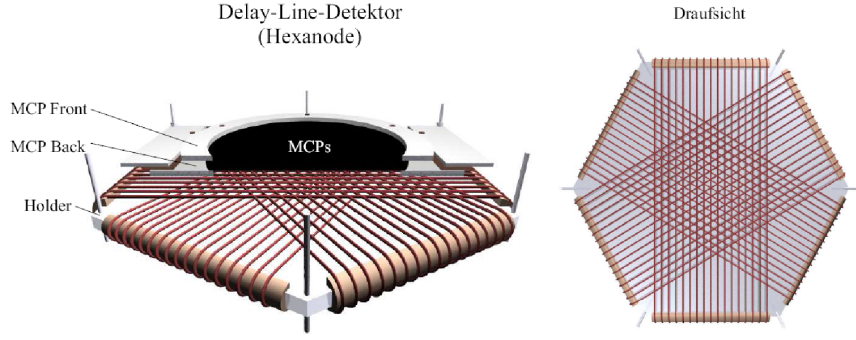


Abbildung 3.5: Delay-Line-Anode bestehend aus 3 Schichten [Ato]

auf dem positiveren der beiden Drähte einer Schicht auftrifft, beginnt sich ein Signal in beide Richtungen des Drahtes auszubreiten. Der andere Draht liefert das Hintergrundrauschen. Durch Berechnung der Differenz der Signale beider Drähte, ergibt sich ein rauschfreies Signal, wobei angenommen wird, dass das Hintergrundrauschen auf beiden Drähten in gleichem Maße vorhanden ist.

Der Ort, an welchem die Elektronen auf die Anode treffen, wird aus den Laufzeitunterschied der beiden Hochfrequenzsignale bis zum Ende des Drahtes bestimmt. Treffen die Elektronen “etwas mehr rechts“ auf eine Schicht, so ist die Laufzeit bis zum rechten Ende des Drahtes kürzer als jene zur linken Seite. Die Summe der Laufzeiten ist stets konstant, daher ist es möglich die Position des Auftreffortes in einer Dimension mit Hilfe dieser beiden Signale zu bestimmen. Durch Verwendung einer zweiten Schicht, ist die Position in zwei Dimensionen bestimmbar. Die Anode verfügt ebenso wie das MCP über eine gewisse Totzeit, während welcher kein neues Signal am gleichen Auftreffort nachgewiesen werden kann. Mit Hilfe einer dritten Drahtlage kann der räumliche Bereich, in welchem diese Totzeit auftritt, verringert werden, da diese Lage noch ein Signal aufnehmen kann, auch wenn die anderen Schichten das in diesem Moment an diesem Ort nicht könnten.

Der Auftreffort wird wie folgt bestimmt:

$$t_{usum} = (t_{u1} - t_{MCP}) + (t_{u2} - t_{MCP}) = t_{u1} + t_{u2} - 2t_{MCP} \quad (3.1)$$

$$t_{vsum} = (t_{v1} - t_{MCP}) + (t_{v2} - t_{MCP}) = t_{v1} + t_{v2} - 2t_{MCP} \quad (3.2)$$

$$t_{wsum} = (t_{w1} - t_{MCP}) + (t_{w2} - t_{MCP}) = t_{w1} + t_{w2} - 2t_{MCP} \quad (3.3)$$

$$u = c_u(t_{u1} - t_{u2}) \quad (3.4)$$

$$v = c_v(t_{v1} - t_{v2}) \quad (3.5)$$

$$w = c_w(t_{w1} - t_{w2}) + w_0 \quad (3.6)$$

Dabei sind u , v , w die Wicklungsrichtungen der Drähte und c_u , c_v , c_w die Geschwindigkeiten der Signale. w_0 korrigiert einen möglichen Offset zwischen den Schichten. Mit Hilfe dieser Gleichungen lässt sich die Position in kartesischen Koordinaten her-

leiten:

$$x_{uv} = u \quad (3.7)$$

$$y_{uv} = \frac{1}{\sqrt{3}}(u - 2v) \quad (3.8)$$

$$x_{uw} = u \quad (3.9)$$

$$y_{uw} = \frac{1}{\sqrt{3}}(2w - u) \quad (3.10)$$

$$x_{vw} = v + w \quad (3.11)$$

$$y_{vw} = \frac{1}{\sqrt{3}}(w - v) \quad (3.12)$$

3.4 Signalverarbeitung

Die Ausgangssignale der Detektoren (ein MCP-Signal und 6 Anoden-Signale) werden zunächst mit einem Verstärker auf Höhen von etwa 0,1 - 0,5 V verstärkt, anschließend mittels eines Analog-to-Digital-Converters (ADC) auf gleiche Pulse genormt und in digitale Signale umgewandelt, welche von dem Computer verarbeitet werden können. Alle diese Daten verarbeitet zunächst das Programm COBOLD.

Die 7 Eingangssignale werden in die 7 Kanäle des ADC geleitet. Dieses speichert die Form der ankommenden Pulse in dem es aller 800 ps die Höhe des Pulses misst. Eine Software invertiert und verzögert diese einzelnen Signale, um neue Signale mit Nulldurchgang zu erzeugen, wobei dessen zeitliche Position unabhängig von der Höhe der Pulse ist. Der Zeitpunkt des Nulldurchganges wird gespeichert und so in einen digitalen Zeitpunkt umgewandelt.

Eine alternative Methode zum ADC stellt die Verwendung eines Constant-Fraction-Discriminator (CFD), welcher die Signale normt und Signale mit Nulldurchgang erzeugt und eines Time-to-Digital-Converter (TDC), welcher die Signale in digitale Signale umwandelt, dar. Diese Bauteile befinden sich außerhalb des Computers und führen das aus, was bei der ADC-Methode größtenteils eine Software übernimmt. Der Vorteil der zweiten Vorgehensweise liegt darin, dass es möglich ist, Einstellungen im Nachhinein anzupassen bzw. zu optimieren, wodurch Fehlerquellen reduziert werden. Für dieses Experiment wurde daher ein ADC benutzt.

4 Datenauswertung

Wie bereits im vorangegangenen Abschnitt beschrieben, werden mit Hilfe des COLTRIMS-Systems ADC-Daten als Rohdaten erzeugt. Eine Software produziert im Anschluss Zeitpunkte aus welchen wiederum Flugzeiten und Auftrefforte der Teilchen ermittelt werden können. Diese Schritte wurden bereits bei einem anderen Projekt von Stefan Zeller ausgeführt. Für die Auswertung in dieser Arbeit lagen die Daten somit bereits in Form von Zeiten und Orten vor.

Während des in dieser Arbeit beschriebenen Experiments wurden Messungen für Heliumdimere, Heliumtrimere, Heliumtetramere und -pentamere sowie für Clustergrößen mit $n = 6, 7, 8, 9$ durchgeführt. Aus den gewonnenen Daten sollen die KER-Verteilungen der verschiedenen Clustergrößen ermittelt und verglichen werden. Das Vorgehen bei der entsprechenden Datenauswertung wird im Folgenden beschrieben.

4.1 Bestimmung des Flugzeitversatzes

Die Flugzeit (im Folgenden häufig mit tof - “time of flight“ abgekürzt) ist die Zeit, welche zwischen der Entstehung des Teilchens bzw. des Ions im Überlappungsgebiet von Gasjet und Laser und dem Auftreffen des Teilchens auf dem Detektor vergeht. Die Beamline gibt ein Signal aus, wenn dem Experiment ein Laserpuls zugeführt wird. Dieses sogenannte “Bunchmarker“-Signal wurde mitgeschrieben und dient als Startpunkt für die Zeitmessung. Allerdings ist nicht bekannt, inwieweit Beamline-Signal und Laserpuls zeitlich versetzt sind. Der Zeitversatz soll nun im Folgenden bestimmt werden.

Wie in Abbildung 3.3 dargestellt bestand das in dieser Arbeit verwendete Spektrometer aus einer Beschleunigungsstrecke $s_b=39,3$ mm in der ein Feld $E_1=17,36$ eV eingestellt wurde und einer kurzen Nachbeschleunigung $s_n=8$ mm in der ein Feld E_2 die Ionen auf das MCP beschleunigte. Die Flugzeit der Ionen in dieser kurzen Nachbeschleunigungsstrecke ist in sehr guter Näherung unabhängig von der Startgeschwindigkeit der Ionen im Spektrometer. Diese Konstante wird daher im Weiteren mit den anderen Konstanten beispielsweise aus Kabel-oder Elektronikverarbeitungszeiten zusammengefasst und nicht weiter diskutiert. Mit tof wird dann die Flugzeit, die die Teilchen in der Beschleunigungsstrecke der Länge s_b verbringen bezeichnet, hierfür gilt:

$$s_b = \frac{1}{2}a \cdot \text{tof}^2 + v \cdot \text{tof} \quad (4.1)$$

Somit folgt für die Flugzeit:

$$\text{tof} = -\frac{v_0}{a} + \sqrt{\frac{v_0^2 + 2s_b a}{a^2}} + t_0 \quad (4.2)$$

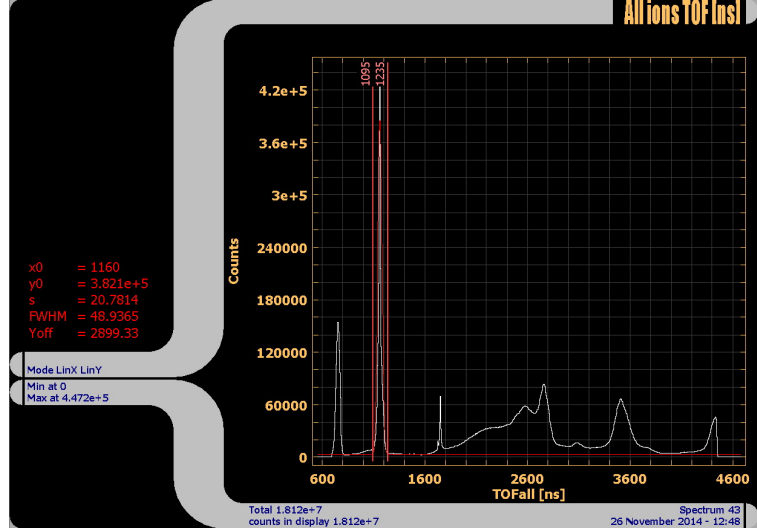


Abbildung 4.1: Flugzeitdiagramm einer Heliumtrimermessung mit Gaußfit für den Peak bei $tof = 1160\text{ ns}$ welcher dem Heliumtrimer entspricht

Wobei $a = \frac{qE}{m}$ die Beschleunigung im elektrischen Feld ist, v_0 die Anfangsgeschwindigkeit der Teilchen und t_0 der gesuchte Zeitversatz. Durch die Annahme von $v_0 = 0$ ergibt sich:

$$tof = \sqrt{\frac{2s_b}{E}} \cdot \sqrt{\frac{m}{q}} + t_0 \quad (4.3)$$

Die Flugzeit skaliert folglich für Teilchen ohne Startgeschwindigkeit mit $\sqrt{\frac{m}{q}}$. Der Zeitversatz t_0 kann bestimmt werden, indem die Flugzeiten verschiedener Stoffe gegen ihr Masse-Ladung-Verhältnis aufgetragen werden und ein linearer Fit durchgeführt wird. Bei Betrachtung der Flugzeitspektren von Neon und Helium, welche ebenfalls aus den Experimenten am FLASH stammen, können einigen scharfen Peaks³ unter Verwendung von Gleichung 4.3 und dem Wissen über die potentiell vorhandenen Teilchen die entsprechenden Massen und Ladungen zugeordnet werden. Das Flugzeitspektrum einer Heliumtrimermessung ist in Abbildung 4.1 zusehen. Die exakte Flugzeit am jeweiligen Peak lässt sich am besten mittels eines Gauß-Fits im Programm COBOLD bestimmen. Die gefundenen Wertepaare werden in Excel in ein $tof - \sqrt{\frac{m}{q}}$ -Diagramm gezeichnet. s_b und E werden als unbekannte Konstanten betrachtet und so lässt sich eine lineare Funktion bestimmen, welche alle Masse-Ladung-Verhältnisse der verwendeten Teilchen sehr gut reproduziert. Diese ist in Abbildung 4.2 dargestellt. Für den Zeitversatz ergibt sich $t_0 = (286,5 \pm 6,5) \text{ ns}$.

³ Ein Peak bezeichnet einen lokalen Spitzenwert in einem Diagramm.

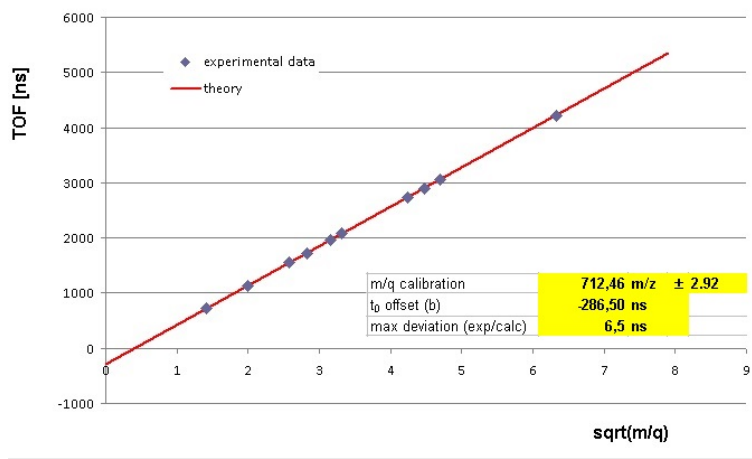


Abbildung 4.2: Bestimmung des Zeitversatzes

4.2 Impulsrekonstruktion ⁴

Anhand der gemessenen Rohdaten und der unter 4.1 bestimmten Flugzeit lassen sich die Impulse der positiv geladenen Fragmente bestimmen. Hierfür werden zuerst die Bewegungsgleichungen aufgestellt. Für die Auftrefforte auf dem Detektor gilt:

$$x(tof) = \frac{p_x}{m_i} \cdot tof \quad (4.4)$$

$$y(tof) = \frac{p_y}{m_i} \cdot tof \quad (4.5)$$

Das verwendete Koordinatensystem liegt dabei so, dass der Photonenstrahl in x-Richtung und der Heliumjet in y-Richtung verläuft.

Die Beschleunigungsstrecke ergibt sich aus:

$$s_b(tof) = \frac{qE}{2m_i} tof^2 + \frac{p_z}{m_i} tof \quad (4.6)$$

Mit Hilfe dieser Gleichungen lassen sich die Impulse in jeder Raumrichtung ermitteln, wobei in diesen Gleichungen die Nachbeschleunigung aus Gründen der Vereinfachung nicht berücksichtigt wurde:

$$p_x = \frac{m_i x}{tof} \quad (4.7)$$

$$p_y = \frac{m_i y}{tof} \quad (4.8)$$

$$p_z = \frac{m_i s_b}{tof} - \frac{qE \cdot tof}{2} \quad (4.9)$$

Das Programm lmf2root, mit welchem die Datenanalyse durchgeführt wurde, rekonstruierte die Impulse unter Berücksichtigung der Nachbeschleunigung.

⁴ Dieses Kapitel orientiert sich an der Dissertation von PD Dr. Till Jahnke, Kapitel 4.2 und 4.3.1 [Jah05]

Wichtig für die weitere Auswertung ist vor allem der Relativimpuls zwischen den beiden detektierten Fragmenten. Dieser errechnet sich aus:

$$\vec{p}_{rel} = \vec{p}_1 - \vec{p}_2 = \begin{pmatrix} p_{x1} \\ p_{y1} \\ p_{z1} \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} p_{x2} \\ p_{y2} \\ p_{z2} \end{pmatrix} \quad (4.10)$$

Mit Hilfe des Relativimpulses lässt sich auch der KER (“kinetic energy release“) berechnen:

$$KER = \frac{|\vec{p}_{rel}|^2}{2\mu} \quad (4.11)$$

Hierbei ist $\mu = \frac{m_1 \cdot m_2}{m_1 + m_2}$ die sogenannte reduzierte Masse.

Ein Problem bei der Auswertung der Daten stellt die Unsicherheit im Reaktionsort dar. Der Ort der Photoionisation und Anregung ist nur bis auf das Überlappungsvolumen des Heliumjets und des Photonenstrahls bekannt. Dies wirkt sich auch auf die Flugzeitmessung aus, da die Ionen über unterschiedlich lange Beschleunigungsstrecken mit unterschiedlichen Startorten in z-Richtung verfügen. Eine größere Genauigkeit ist durch Veränderungen am experimentellen Aufbau nur schwer zu erreichen. Es lassen sich jedoch für koinzidente Messungen ⁵ Gleichungen für die Relativimpulse aufstellen, welche unabhängig vom Reaktionsort sind. Hierbei wird davon ausgegangen, dass die folgende Gleichung gilt:

$$\vec{p}_{rel} = \vec{p}_1 = -\vec{p}_2 \quad (4.12)$$

Dies bedeutet, dass der Gesamtimpuls der Fragmente die Relativbewegung bewirkt und der gemeinsame Schwerpunktsimpuls zu vernachlässigen ist. Damit dies näherungsweise erfüllt ist, wird der mittlere Impuls von der y-Komponente des Impulses abgezogen. Dieser mittlere Impuls resultiert aus der gerichteten Geschwindigkeit der Teilchen im Gasstrahl $v_{Jet} = \sqrt{\frac{5}{2} \frac{k_B T}{m}}$. Wird die eben beschriebene Änderung unter Berücksichtigung des Startortes der Fragmente (x_0, y_0) auf die Gleichungen 4.7, 4.8 und 4.9 angewandt, so ergibt sich:

$$p_{i,x} = \frac{m_i(x_i - x_0)}{tof_i} \quad (4.13)$$

$$p_{i,y} = \frac{m_i(y_i - y_0)}{tof_i} - v_{Jet} m_i \quad (4.14)$$

$$p_{i,z} = \frac{m_i s_b}{tof} - \frac{Eq_i tof_i}{2} \quad (4.15)$$

⁵ Bei einer koinzidenten Messung werden nur Daten gespeichert bei welchen zwei (oder mehr) Ereignisse innerhalb einer bestimmten festgelegten Zeitspanne registriert wurden. Das erhöht die Wahrscheinlichkeit, dass diese zeitlich nah beieinander liegenden Ereignisse der gleichen Ursache (in diesem Fall dem gleichen Aufbruch) zuzuordnen sind.

Mit Gleichung 4.12 erhält man durch Umformen die nachfolgenden, von dem Reaktionsort unabhängigen Gleichungen für die Relativimpulse:

$$p_{rel,x} = m_1 m_2 \frac{x_1 - x_2}{tof_2 m_1 + tof_1 m_2} \quad (4.16)$$

$$p_{rel,y} = m_1 m_2 \frac{(y_1 - y_2) + v_{Jet}(tof_2 - tof_1)}{tof_2 m_1 + tof_1 m_2} \quad (4.17)$$

$$p_{rel,z} = \frac{E}{2} \left(\frac{tof_2^2 q_2 m_1 - tof_1^2 q_1 m_2}{tof_2 m_1 + tof_1 m_2} \right) \quad (4.18)$$

Diese Gleichungen verwendet das für die Auswertung verwendete Programm `lmf2root`. Für die Auswertung der Daten benötigt man weiterhin Werte für die Spektrometerlänge, welche der Beschleunigungsstrecke s_b entspricht, und das elektrische Feld. Die Spektrometerlänge wurde von Stefan Zeller für einen anderen Versuch am gleichen Aufbau bereits mit 39,04 mm bestimmt. Er verglich hierfür die Daten einer Stickstoffmessung, welche viele scharfe Peaks aufwies, mit der Theorie und Daten aus anderen Messungen. Dabei wurden Feldstärke und Spektrometerlänge so angepasst, dass die ausgewählten Peaks letztendlich mit den Vergleichsdaten übereinstimmten. Weitere Anpassungen der Parameter nahm ich über Betrachtung der in Abbildung 4.3 gezeigten Diagramme vor. Das elektrische Feld wurde mit einem finalen Wert von 17,36 eV so angepasst, dass der ICD-Peak sein Maximum bei 8,5 eV hat. Dieser Wert stammt aus einer Messung von Dr. Tilo Havermeier für Heliumdimere, welche zur Kalibration genutzt wurde. [Hav10] Die waagerechten Linien im $KER - \cos\theta$ - Diagramm sollen möglichst gerade sein. Dies wird über den sogenannten Stretch-Faktor erreicht, welcher den Auftreffort auf dem Detektor korrigiert. Zudem wird dieser Auftreffort auf so angepasst, dass die Summenimpulse in x- und y-Richtung bei Null liegen. Die entsprechende Anpassung in z-Richtung erfolgt über Flugzeitversatz und Spektrometerlänge. Dabei ergab sich, dass $t_0=280,5$ ns beträgt, wobei dieser Wert innerhalb des Fehlers des unter 4.1 bestimmten Zeitversatzes liegt. Die Spektrometerlänge wurde auf 39,3 mm korrigiert. Die Abweichung um 0,26 mm ist gerechtfertigt, da der Reaktionsort der Heliummessungen gegenüber jenem der Stickstoffmessungen verschoben sein kann.

4.3 Sortieren der Daten nach relevanten Ereignissen

In dieser Arbeit soll die Abhängigkeit der KER-Verteilung von der Größe der Heliumcluster untersucht werden. Daher sind nur Daten interessant, welche von Fragmenten eines Zweiteilchenaufbruchs eines Heliumclusters stammen. Aufgrund der hohen Intensität von $3 \cdot 10^{13} \frac{W}{cm^2}$ bei FLASH wurden viele (etwa 5 - 20) Ionen pro Puls erzeugt. In dieser Vielzahl detektierter Ionen müssen Zweiteilchenaufbrüche von Heliumclustern identifiziert werden. Diese Selektion geschieht über die in den Flugzeiten kodierten Massen und die Impulserhaltung zwischen zwei Heliumionen. Alle nicht relevanten Daten werden aus den Datensätzen der 4 verschiedenen Messungen aussortiert, da sie das Ergebnis verfälschen würden.

Zunächst wird hierfür das sogenannte PIPICO-Spektrum (Photoion-Photoion- Coincidence-Spektrum) betrachtet. In diesem sind die Flugzeiten der beiden detektierten

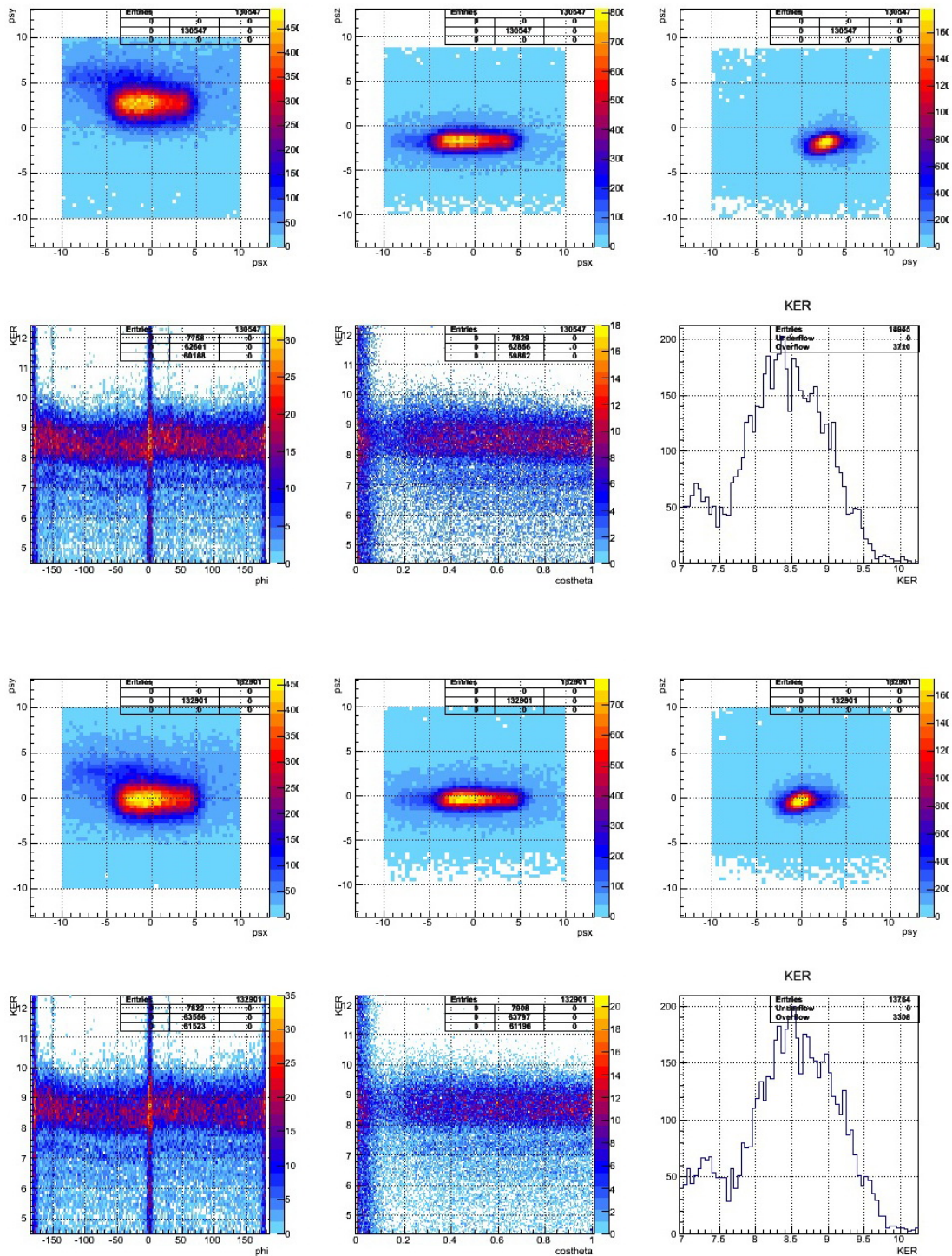


Abbildung 4.3: Anpassung der Parameter Feldstärke, Auftreffort, Spektrometerlänge und Flugzeitversatz dargestellt in Diagrammen, vor (oben) und nach (unten) der nötigen Korrektur

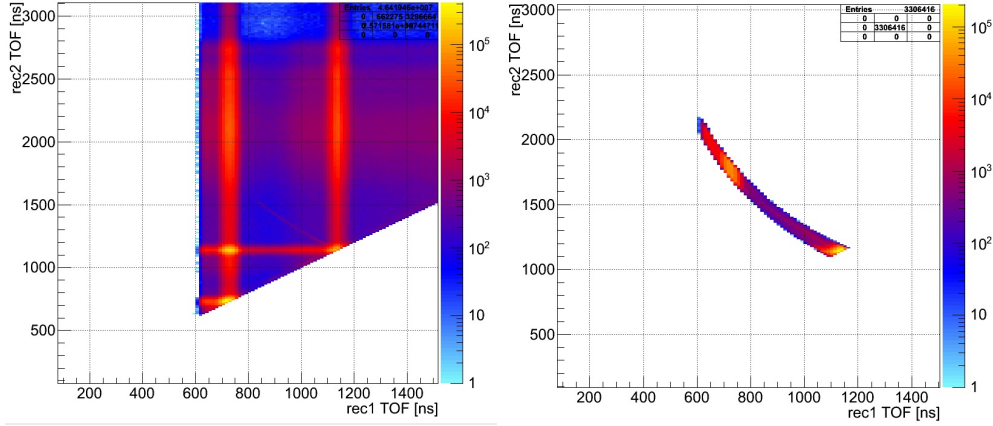


Abbildung 4.4: PIPICO-Spektrum vor und nach der Aussortierung von Daten

Ionen gegeneinander aufgetragen. Die Flugzeitverteilung eines einfach geladenen Heliumions ist durch das Wissen über die Ausmaße des Detektors und die Stärke des Feldes bekannt. Die Flugzeit ist minimal, wenn das Teilchen zum Detektor hin startet und maximal, wenn seine Bewegungsrichtung anfangs vom Detektor weg weist. Die Flugzeit des zweiten Fragments lässt sich aus der des ersten leicht bestimmen, wenn man Impulserhaltung voraussetzt. Es kann davon ausgegangen werden, dass die Beträge der Impulse der beiden Fragmente betragsmäßig gleich groß und einander entgegen gerichtet sind. Bei Betrachtung der Flugzeitverteilung beider Fragmente ist eine charakteristische, abfallende Linie im PIPICO-Spektrum zusehen, welche auf einen Heliumaufbruch mit zwei He^+ -Fragmenten hinweist. Die Daten, welche nicht im Umkreis dieser Linie liegen, können verworfen werden. Dies ist in Abbildung 4.4 dargestellt.

Im nächsten Schritt der Sortierung ist es notwendig Summen- und Relativimpulse genauer zu betrachten. Für die Summenimpulse gilt:

$$p_{sumx,y,z} = p_{x1,y1,z1} + p_{x2,y2,z2} \quad (4.19)$$

Es ist bekannt, dass die Impulse der bei einem Aufbruch entstehenden Fragmente näherungsweise betragsmäßig gleich groß, einander jedoch entgegengerichtet sind. Die Summenimpulse müssten somit bei Null liegen. Mit Hilfe des Programmes `lmf2root` können die Summenimpulse jeweils gegeneinander in einem Diagramm aufgetragen werden und es ist möglich, jene Daten auszusortieren, welche sich außerhalb eines bestimmten um den Ursprung gelegten Gebietes befinden.

Ähnlich wird mit den Relativimpulsen verfahren. Diese werden ebenfalls mit `lmf2root` gegeneinander dargestellt, wobei sich charakteristische Kreise oder Halbkreise ergeben sollten. Die Fragmente starten alle im Fokus, also im Überlappungsgebiet von Heliumjet und Laserstrahl. Es wird ein Aufbruch mit zwei He^+ -Fragmenten erwartet, dessen maximale Energie theoretisch berechnet werden kann. Sie liegt bei etwa 10 eV, welche sich gleichermaßen auf beide Teilchen verteilen. Der maximale Relativimpuls für diesen Aufbruch ist also bekannt und bildet eine Kugeloberfläche im dreidimensionalen Raum der Relativimpulse. Alle Relativimpulse innerhalb dieser

Kugel gehören zu relevanten Ereignissen. Alle Ereignisse deren Relativimpulse außerhalb liegen sind irrelevant und stammen beispielsweise aus Ionisationen außerhalb des Fokus, welche zufällig paarweise vom Detektor gemessen wurden.

In Abbildung 4.5 ist die eben beschriebene Aussortierung dargestellt. Und in Abbildung 4.6 sind die KER-Verteilungen von Heliumdimeren und -trimeren aus den verbliebenen Daten zu sehen.

Beide Diagramme verfügen bei etwa 8,5 eV über ein Maximum. Dieser Peak resultiert aus dem ICD-Prozess. Im Diagramm für Heliumtrimere ist jedoch auch ein starker Peak bei 1,4 eV zu sehen. Dieser ist einem anderen Prozess zuzuordnen. Bei jenem werden gleichzeitig zwei Atome im Cluster ionisiert und stoßen sich somit aufgrund ihrer nun positiven Ladung ab. Die positiven Fragmente, welche wie beim ICD etwa zeitgleich detektiert werden führen zu jenem Peak. Bei Heliumdimeren ist jedoch kein separierter Peak sondern nur eine von $KER = 0$ eV monoton abfallende Verteilung bei kleinen Energien zu finden. Bei etwa 1,2 eV scheint hier der Untergrund zu beginnen. Bei Dimeren ist jedoch zu bedenken, dass der KER bei der Abstoßung zweier positiver Heliumionen extrem kleine Werte annehmen kann, da der internukleare Abstand im Dimer sehr groß werden kann und stets gilt: $KER \approx \frac{1}{R}$. Der gesuchte Peak aus der gleichzeitigen Ionisation beider Atome überschneidet sich somit vermutlich mit dem Untergrund. Daher sollte dieser noch weiter reduziert werden. Das lässt sich durch setzen weiterer Bedingungen erreichen. Beispielsweise wurde bei dieser Analyse der KER in Abhängigkeit des Winkels φ , welcher zwischen dem relativen x- und dem relativen y-Impuls liegt, betrachtet. Das Diagramm ist für Dimere in Abbildung 4.7 dargestellt. Dieses Diagramm sollte nur waagerechte Linien aufweisen an eben jenen Stellen, an denen der KER Maxima hat. Der Raumwinkel wirkt sich nicht auf den KER aus, da die Teilchen mit gleicher Wahrscheinlichkeit in alle Raumrichtungen starten. Dennoch sind zwei senkrechte Balken in Abbildung 4.7 zu sehen. Diese Linien resultieren somit aus nicht relevante Ereignisse und können durch setzen der folgenden Bedingungen für φ aussortiert werden:

$$-100 < \varphi < -80 \quad (4.20)$$

$$80 < \varphi < 100 \quad (4.21)$$

Des Weiteren ist es möglich Einschränkungen für Zeit- und Ortsabweichung der beiden Fragmente eines Ereignisses zu finden. Hier wurde Folgendes gewählt:

$$dr \leq 4mm \quad (4.22)$$

$$dt \leq 30ns \quad (4.23)$$

In dem mit diesem Rahmen ausgeschlossenen Bereich liegen Cluster mit Teilchenabständen größer als 300 Å. (Dieser Wert wurde theoretisch berechnet.) Da diese sehr selten sind, kann dieser Bereich ausgeschlossen werden, ohne zahlreiche relevanten Ereignisse zu verlieren. Allerdings befindet sich in ihm viel Hintergrund, welcher durch Ausschluss minimiert werden kann. In Abbildung 4.8 ist die Aussortierung graphisch dargestellt. Die abschließend erhaltenen KER-Verteilungen werden im nächsten Abschnitt dargestellt und genauer beschrieben.

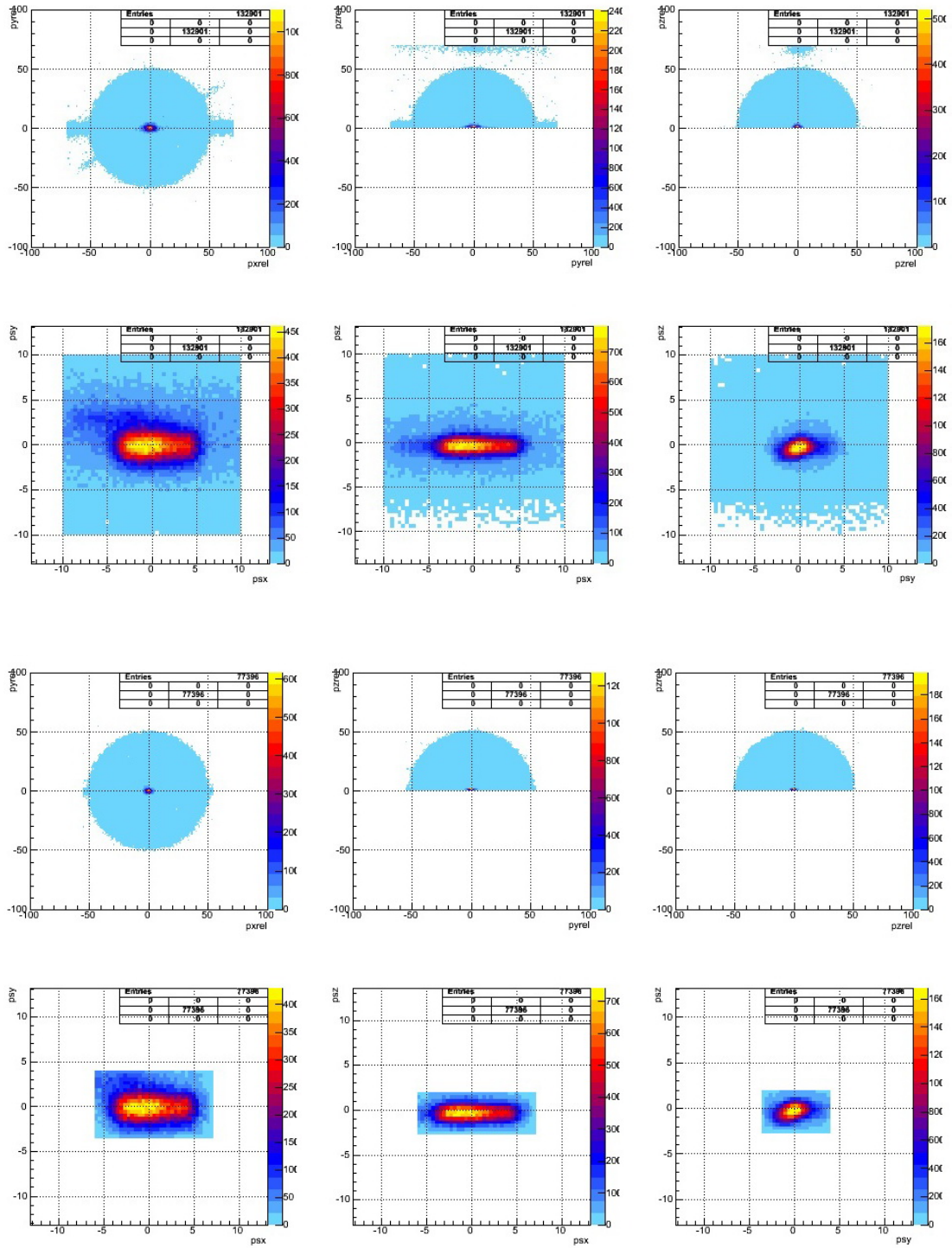


Abbildung 4.5: Vergleich der Summen- und Relativimpulse vor (oben) und nach (unten) der Datenselektion

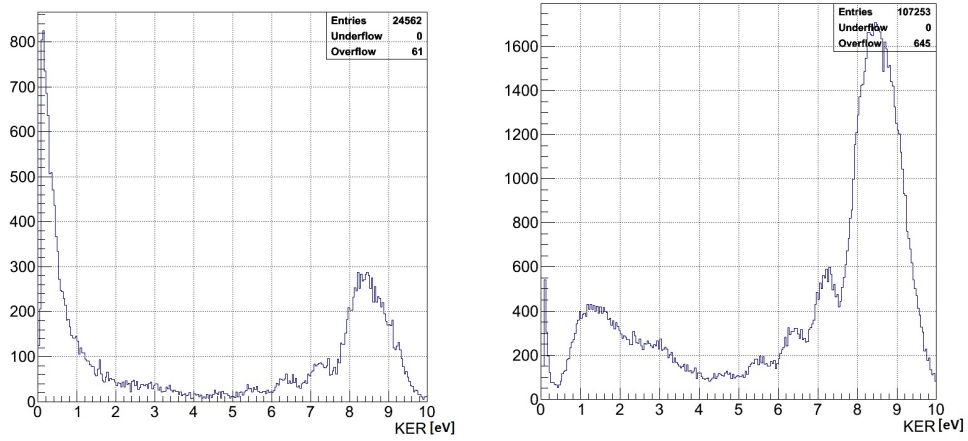


Abbildung 4.6: KER-Verteilung von He_2 (links) und He_3 (rechts)

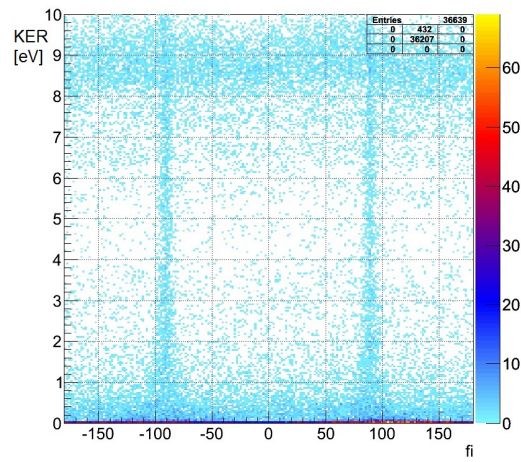


Abbildung 4.7: KER gegen φ für Heliumdimere

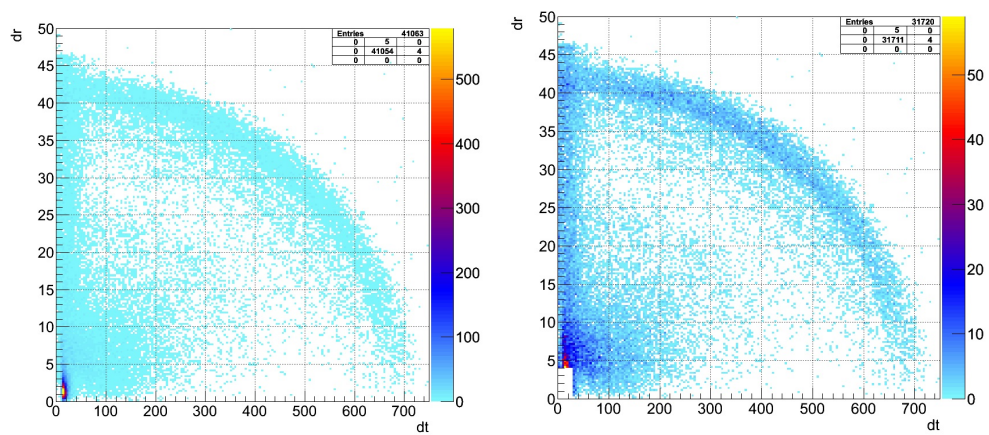


Abbildung 4.8: dt-dr-Diagramm von He_2 vor und nach Datenauswertung

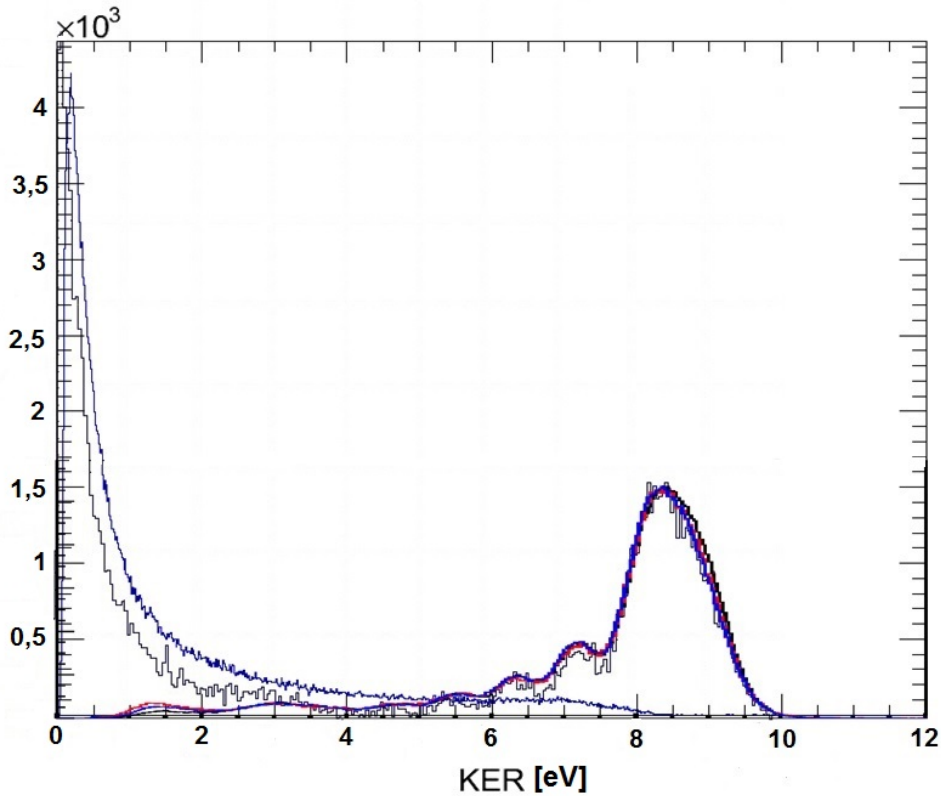


Abbildung 4.9: Vergleich der KER-Verteilungen aus Heliumdimerdaten aus drei verschiedenen Experimenten: Dr. Tilo Havermeier (blau-rote Kurve) [Hav10], Stefan Zeller (blaue Kurve) [Zel], Daten des in dieser Arbeit präsentierten Experimentes (schwarze Kurve)

4.4 Die KER-Verteilung verschiedener Clustergrößen

Wie im vorangegangenen Kapitel erwähnt sind in den Abbildungen 1 bis 4 im Appendix die abschließend erhaltenen KER-Verteilungen für Dimere, Trimere, Tetra- und Pentamere sowie für die Hexa-, Hepta, Okta- und Ennamere zu sehen.

In Abbildung 4.9 ist der Vergleich zwischen den hier gewonnenen experimentellen Daten mit Graphen aus anderen Experimenten für Heliumdimere zu sehen. Die blau-rote Kurve stammt dabei aus einer ICD-Messung von Dr. Tilo Havermeier [Hav10]. Die blaue Kurve wurde von Stefan Zeller [Zel] bei einer Doppelionisationsmessung aufgenommen. Der schwarze Graph entstammt dem hier ausgewerteten Experiment. Er bildet etwa die Summe der beiden anderen Graphen.

Die erhaltenen Daten des in dieser Arbeit beschriebenen Experimentes der verschiedenen Clustergrößen wurden in ein gemeinsames Diagramm mit Hilfe des Programmes Qtiplot übertragen. Dieses ist in Abbildung 4.10 zu sehen. Es fällt auf, dass der linke Peak für die verschiedenen Clustergrößen wandert. Der KER ist antiproportional zum internuklearen Abstand. Dieser ist für verschieden große Cluster

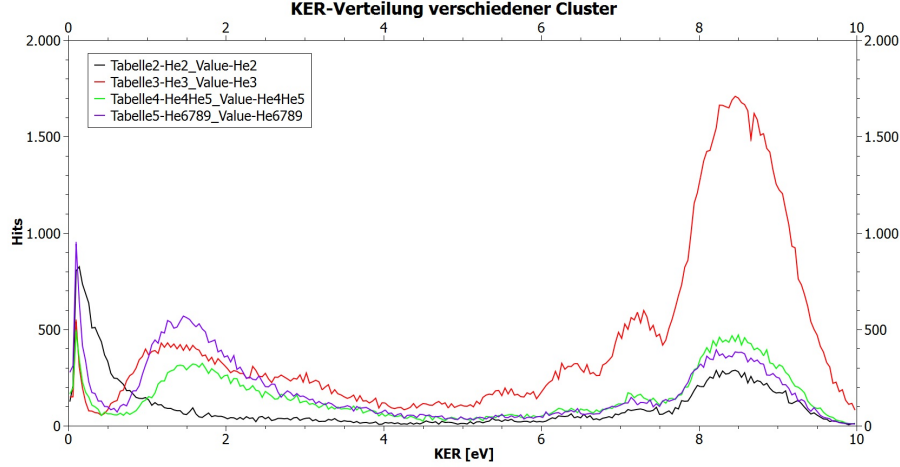


Abbildung 4.10: KER-Verteilungen verschieden großer Cluster im Vergleich

unterschiedlich verteilt, wobei das Maximum für größere Cluster bei geringeren Abständen liegt, da hier stärkere attraktive Kräfte zwischen den Teilchen auftreten bzw. die Atome stärker gebunden sind. Somit sollte der niederenergetische Peak in der KER-Verteilung für größere Cluster zu höheren Energien wandern. Dies trifft für Dimere, Trimere und Tetra- und Pentamere zu. Allerdings ist der Peak für die größten gemessenen Cluster gegenüber dem Peak für $n = 4, 5$ nach links verschoben. Dies könnte daran liegen, dass bei der Sortierung der Cluster durch die Nanogitter während des Experimentes auch einige Dimere in die Richtung gestreut wurden, in welcher die hohen Cluster erwartet wurden. Bei der Beugung der Cluster reichen die Peaks nullter Ordnung der großen Cluster sehr nah an den Monomer-Peak erster Ordnung und an den Dimer-Peak erster Ordnung heran. An manchen Positionen kommt es auch zu Überlagerungen.

Ziel dieser Arbeit ist, wie bereits erwähnt, der Vergleich der ICD-Peaks bei verschiedenen Clustergrößen. Dieses Ziel ist hier fast erreicht. Bisher verfügen die interessanten Peaks über zu unterschiedliche Anzahlen an registrierten Ereignissen. Durch Normierung auf den jeweils hochenergetischsten Peak können die Peakformen jedoch leicht verglichen werden. Hierfür wurde in Abbildung 4.10 über eben jenen Peak jedes Graphen integriert und jeder Datensatz anschließend mit

$$\frac{\text{Fläche des hochenergetischen } He_3 \text{ Peak}}{\text{Fläche des hochenergetischen Peaks des jeweiligen Datensatzes } (He_2, He_4He_5, He_{6789})}$$

multipliziert. Die gewichteten Daten wurden in Abbildung 4.11 dargestellt. Die ICD-Peaks aller Clustergrößen sind somit laut den Ergebnissen dieses Experiments sehr ähnlich. Die Peaks, welche aus der Kernbewegung resultieren und die Schwingungen der Vibrationswellenfunktion darstellen, sind in Abbildung 4.11 ebenfalls sehr gut zu erkennen und Überlagern sich für verschiedene Clustergrößen in Diagramm 4.11. Besonders gute Übereinstimmung zwischen den Peaks herrscht für jene mit dem Maximum bei etwa 8,5 eV. Die Unterschiede zwischen den KER-Verteilungen der verschiedenen Clustergrößen sind in den Abbildungen 4.12, in welchen gewichtete

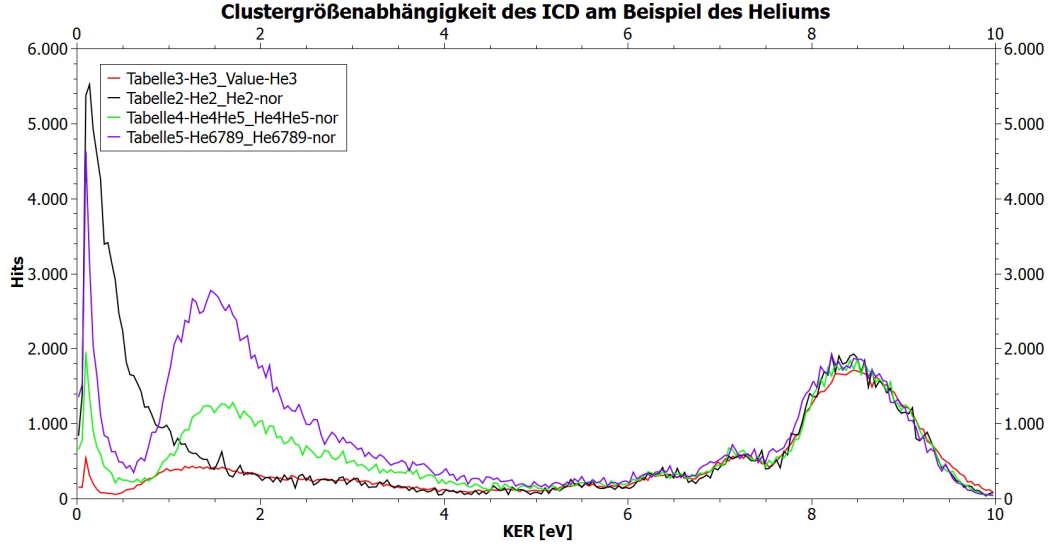


Abbildung 4.11: Clustergrößenabhängigkeit des ICD bei Heliumclustern

Differenzen zwischen den KER-Verteilungen gebildet wurden, besser erkennbar. Besonders im Bereich zwischen 7 eV und 9 eV liegen die gebildeten Differenzen sehr nah bei Null und aufgrund der hohen Zahl an gemessenen Ereignissen bei diesen KERs, sind die Fehler gering. In den KER-Verteilungen befinden sich die ICD-Peaks und die aus der Kernbewegung resultierenden Peaks ebenfalls zum größten Teil zwischen 7 eV und 9 eV. Der Abfall der Differenzen zwischen Dimeren und Clustern der Größe $n = 6, 7, 8, 9$ basiert vermutlich darauf, dass der Peak im niederenergetischen Bereich in der KER-Verteilung der großen Cluster bis in den Bereich zwischen 5 eV und 7 eV hineinreicht (siehe Abbildung 4.11).

Eine Verschiebung der Peaks in den KER-Verteilungen mit größer werdenden Clustern, wie von Sisourat et al. [Sis] prognostiziert, ist nicht beobachtbar. Das Modell auf welchem die Ergebnisse aus Abbildung 2.10 beruhen, wurde bereits in Abschnitt 2.2.2 beschrieben. Es vereinfacht die Beziehungen in einem quantenmechanischen Mehrteilchensystem stark, indem die Kernbewegungen klassisch betrachtet und lediglich Paarpotentiale verwendet werden. Es ist eventuell notwendig mehr quantenmechanische Effekte zu berücksichtigen, um die Ergebnisse des in dieser Arbeit beschriebenen Experimentes zu reproduzieren.

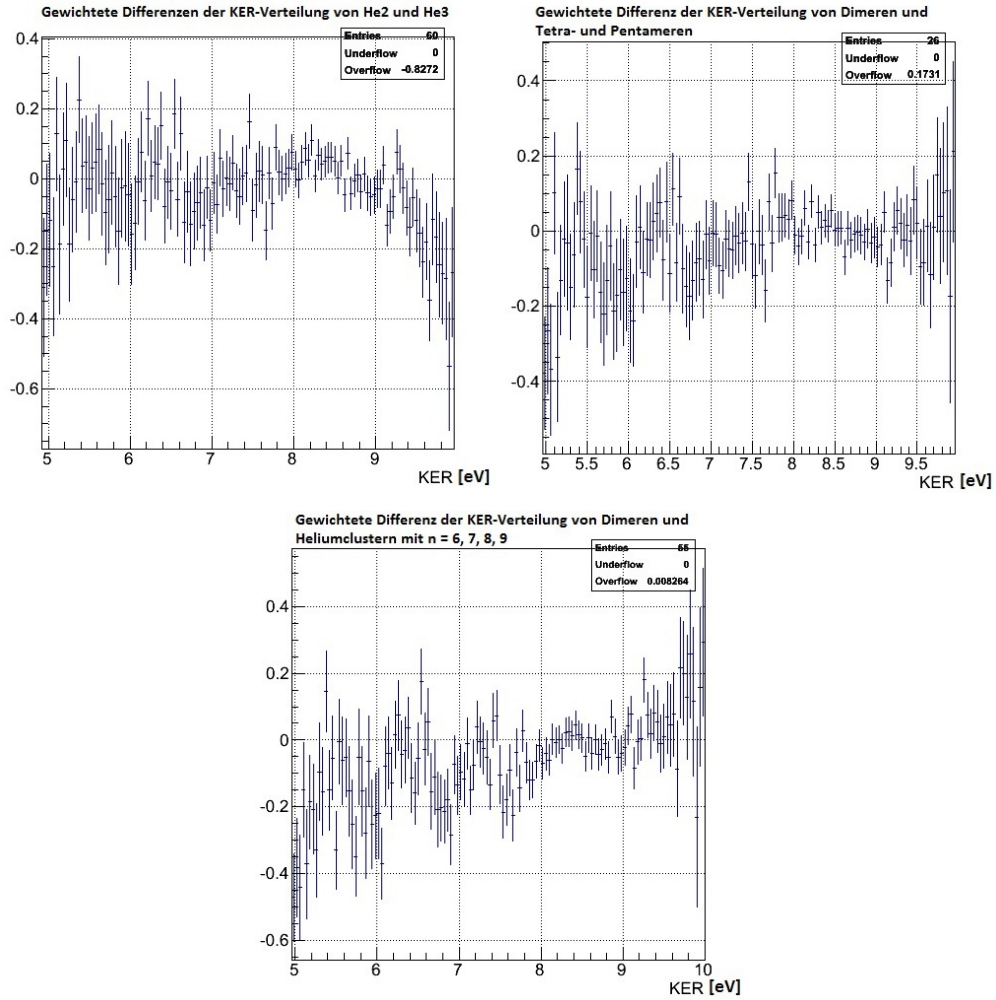


Abbildung 4.12: Differenzen zwischen den KER-Verteilungen von Dimeren und Trimern (links), von Dimeren und Tetra- und Pentameren (rechts), sowie von Dimeren und Heliumclustern der Größe $n = 6, 7, 8, 9$ (unten)

5 Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden Form und Lage der ICD-Peaks in der KER-Verteilung bei unterschiedlich großen Heliumclustern untersucht und miteinander verglichen.

Die Daten für diese Untersuchung stammen aus einem Experiment, welches am Freie-Elektronen-Laser FLASH in Hamburg statt fand. Hierbei wurden Heliumcluster erzeugt und mit Hilfe von Nanogittern entsprechend ihrer Größe separiert. Der Heliumjet kreuzte innerhalb eines Spektrometers den Laserstrahl, wodurch Heliumatome ionisiert und durch elektrische Felder auf Detektoren gelenkt wurden. Anhand der Flugzeiten und Auftrefforte der Fragmente konnten ihre Impulse sowie der “kinetic energy release” rekonstruiert werden. Die somit erhaltenen KER-Verteilungen für unterschiedlich große Cluster wurden miteinander verglichen. Überraschenderweise zeigte sich, dass sie alle über Peaks bei den gleichen Energien verfügen und diese etwa formgleich sind. Dies weicht von den theoretisch vorhergesagten Verteilungen von Sisourat et al. ab, welche eine Veränderung der Lage der Peaks in eV für größere Cluster beinhalteten [Sis]. Die beobachtete Unabhängigkeit der KER Verteilung nach ICD von der Clustergröße kann nur von verbesserten theoretischen Ansätzen aufgeklärt werden.

In einem weiterführenden Experiment könnte untersucht werden, wie wahrscheinlich ICD bei verschiedenen Clustergrößen ist. Die Wahrscheinlichkeit, ein ICD-Ereignis zu beobachten, hängt von Clusterdichte, Photonendichte, Pulse pro Zeit und verschiedenen Wirkungsquerschnitten ab. So gelten die folgenden Gleichungen für die Anzahl von ICD-Ereignissen bei He_2 und He_6 :

$$N_{ICD,He_2} = n_{Puls} \cdot D \cdot \binom{2}{1} (\sigma_{He^+(n=2)} \cdot n_\gamma) \cdot (1 - \sigma_{He^+(n=2)} \cdot n_\gamma) \cdot P_{ICD,He_2} \quad (5.1)$$

$$N_{ICD,He_6} = n_{Puls} \cdot D \cdot \binom{6}{1} (\sigma_{He^+(n=2)} \cdot n_\gamma) \cdot (1 - \sigma_{He^+(n=2)} \cdot n_\gamma)^5 \cdot P_{ICD,He_6} \quad (5.2)$$

Analog gelten diese Gleichungen für alle Heliumcluster. Sind Anzahl N_{ICD,He_X} , Clusterdichte D , Photonendichte n_γ und Pulse pro Zeit n_{Puls} bekannt, sind die jeweiligen Wahrscheinlichkeiten für ICD berechenbar. Konkrete Zahlenwerte für diese Variablen sind vermutlich schwer ermittelbar. Es ist jedoch möglich mittels des Doppelionisationsprozesses, welcher in der KER-Verteilung im niederenergetischen zu sehen ist, Verhältnisse zu bilden, in welchen sich bestimmte Variablen heraus

kürzen. So gilt:

$$N_{Ion2,He2} = n_{Puls} \cdot D \cdot \binom{2}{2} (\sigma_{He^+(n=1)} \cdot n_\gamma)^2 \quad (5.3)$$

$$N_{Ion2,He6} = n_{Puls} \cdot D \cdot \binom{6}{2} (\sigma_{He^+(n=1)} \cdot n_\gamma)^2 \cdot (1 - \sigma_{He^+(n=1)} \cdot n_\gamma)^4 \quad (5.4)$$

Die Zahl der Pulse pro Zeit und die Clusterdichte sind für beide Prozesse gleich, sodass die Gleichungen nach diesen Variablen aufgelöst und gleichgesetzt werden können. Umstellen nach den ICD-Wahrscheinlichkeiten ergibt dann:

$$P_{ICD,He2} = \frac{N_{ICD,He2} \binom{2}{2} (\sigma_{He^+(n=1)} \cdot n_\gamma)^2}{N_{Ion2,He2} \binom{2}{1} (\sigma_{He^+(n=2)} \cdot n_\gamma)(1 - \sigma_{He^+(n=2)} \cdot n_\gamma)} \quad (5.5)$$

$$P_{ICD,He6} = \frac{N_{ICD,He6} \binom{6}{2} (\sigma_{He^+(n=1)} \cdot n_\gamma)^2 (1 - \sigma_{He^+(n=1)} \cdot n_\gamma)^4}{N_{Ion2,He6} \binom{6}{1} (\sigma_{He^+(n=2)} \cdot n_\gamma)(1 - \sigma_{He^+(n=2)} \cdot n_\gamma)^5} \quad (5.6)$$

Die Wirkungsquerschnitte wurden bereits für verschiedene Photonenenergien experimentell ermittelt. Für die bei diesem Experiment auftretenden Energien von $E_\gamma = 67\text{eV}$ ist $\sigma_{He^+(n=1)} = 1,08 \cdot 10^{-18}\text{cm}^2$ [MW76] und $\sigma_{He^+(n=2)}(2s) = (29,9 \pm 0,5) \cdot 10^{-21}\text{cm}^2$ bzw. $\sigma_{He^+(n=2)}(2p) = (74,1 \pm 0,5) \cdot 10^{-21}\text{cm}^2$ [WS82]. Die Anzahlen an Ereignissen N_X sind durch Integration über die entsprechenden Peaks in der KER-Verteilung ermittelbar. Die Photonendichte n_γ zu jedem Zeitpunkt war im in dieser Arbeit beschriebenen Experiment jedoch unbekannt. Daher sollte diese bei einem zukünftigen Experiment mit aufgezeichnet bzw. ermittelt werden. Dann ist es möglich noch genauere Aussagen über den ICD-Prozess bei unterschiedlichen Clustergrößen zu treffen.

Danksagung

All die vorangegangenen Seiten wären wohl ohne die Mithilfe vieler Unterstützer, Berater und Freunde nie gefüllt worden. Daher möchte ich hier die Gelegenheit nutzen und mich bei all jenen bedanken.

Ein besonders großer Dank geht an Prof. Dr. Reinhard Dörner, welcher mir diese Arbeit inklusive der Teilnahme am Aufbau des Experimentes am DESY in Hamburg ermöglicht hat. Du konntest mich sofort für dieses Thema begeistern und standest mir während der gesamten Arbeit stets helfend und motivierend zur Seite, vor allem dann, wenn Stefan und ich auch nicht mehr weiter wussten.

Bei meinem Betreuer Stefan Zeller möchte ich mich ebenfalls herzlich bedanken. Du hast mich in die Arbeitsgruppe eingeführt, mir Experiment und alle nötigen Programme wie root und lmf2root erklärt und da wir im gleichen Büro saßen, konnte ich dich ständig nerven. Danke für deine Geduld! Zudem danke ich dir für das mehrfache Korrektur lesen meiner Arbeit und deinen nie endenden Optimismus!

Ein weiteres großes Dankeschön geht an die anderen festen Mitglieder meines Büros: Miriam und Christian. Miriam, zu dir konnte ich mit allen Fragen kommen und du hast mir stets Sicherheit bezüglich meines Zeitplanes vermittelt. Zudem verdanke ich dir Qtiplo!. Christian, du warst oft mein Retter in der Not, wenn mein Computer mal gar nicht wollte und standest mir sofort mit Rat und Tat zur Seite.

Außerdem danke ich PD Dr. Till Jahnke für die Interpretation meiner Graphen und die Hilfe bei lmf2root. Weiterer Dank geht an Dr. Maksim Kunitzki und sein GUI.

Der gesamten Arbeitsgruppe Atomphysik danke ich dafür, dass ich so wunderbar aufgenommen wurde und dass jeder gern alles stehen und liegen ließ, um mir bei Problemen egal welcher Art zu helfen. Danke euch allen!

Ich möchte außerdem meinen Kommilitonen Nils, Niko, Flo, Max, Marco, Patrick und Boris danken. Ohne euch wäre ich über vielen Aufgaben verzweifelt, hätte viel weniger Spaß gehabt und wäre wohl nie wirklich in Frankfurt angekommen.

Abschließend möchte ich mich bei meiner Familie und vor allem bei Raoul bedanken. Ohne euch wäre ich nicht, wer ich bin!

Literaturverzeichnis

- [20115] Nobel Media AB 2014. Sir alexander fleming - biographical @ONLINE. http://www.nobelprize.org/nobel_prizes/medicine/laureates/1945/fleming-bio.html, Mai 2015.
- [Ato] Gruppe Atomphysik. *Versuch24:Ionen-Impulsspektroskopie mit einem Delay-Line-Detektor*. Goethe Universität Frankfurt am Main.
- [BCH⁺00] Badia Boudaiffa, Pierre Cloutier, Darel Hunting, Michael A Huels, and Léon Sanche. Resonant formation of dna strand breaks by low-energy (3 to 20 ev) electrons. *Science*, 287(5458):1658–1660, 2000.
- [BJ03] B.H. Bransden and C.J. Joachain. *Physics of Atoms and Molecules*. Pearson Education. Prentice Hall, 2003.
- [BKK⁺05] R Brühl, A Kalinin, O Kornilov, JP Toennies, GC Hegerfeldt, and M Stoll. Matter wave diffraction from an inclined transmission grating: Searching for the elusive h 4 e trimer efimov state. *Physical review letters*, 95(6):063002, 2005.
- [BM11] Dario Bressanini and Gabriele Morosi. What is the shape of the helium trimer? a comparison with the neon and argon trimers. *The Journal of Physical Chemistry A*, 115(40):10880–10887, 2011.
- [Bre11] D Bressanini. An accurate and compact wave function for the 4he dimer. *EPL (Europhysics Letters)*, 96(2):23001, 2011.
- [BST02] Ludwig W. Bruch, Wieland Schöllkopf, and J. Peter Toennies. The formation of dimers and trimers in free jet 4he cryogenic expansions. *The Journal of Chemical Physics*, 117(4):1544–1566, 2002.
- [BZMM00] Dario Bressanini, Matteo Zavaglia, Massimo Mella, and Gabriele Morosi. Quantum monte carlo investigation of small[^] 4he clusters with a[^] 3he impurity. *Journal of Chemical Physics*, 112(2):717–722, 2000.
- [CZT97] LS Cederbaum, J Zobeley, and F Tarantelli. Giant intermolecular decay and fragmentation of clusters. *Physical review letters*, 79(24):4778, 1997.
- [Dem08] W. Demtröder. *Experimentalphysik 2. Experimentalphysik / Wolfgang Demtröder*. Springer Berlin Heidelberg, 2008.
- [DES15] DESY. Wilhelm conrad röntgen und die entdeckung der x-strahlen@ONLINE. http://www.desy.de/expo2000/deutsch/dhtmlbrowser/webthemen/05_roentgen/roentgen_druck.htm, Mai 2015.

- [GST⁺99] RE Grisenti, W Schöllkopf, JP Toennies, GC Hegerfeldt, and T Köhler. Determination of atom-surface van der waals potentials from transmission-grating diffraction intensities. *Physical review letters*, 83(9):1755, 1999.
- [GST⁺00] RE Grisenti, W Schöllkopf, JP Toennies, GC Hegerfeldt, T Köhler, and M Stoll. Determination of the bond length and binding energy of the helium dimer by diffraction from a transmission grating. *Physical review letters*, 85(11):2284, 2000.
- [Hah14] Jörg Hahnenbruch. Automatisierte aufnahme von materiewellenbeugungsspektren eines heliumclusterstrahls. 2014.
- [Hav10] Dr. Tilo Havermeier. *Photoionisation von Heliumdimeren*. Goethe Universität Frankfurt am Main, 2010.
- [HBV07] Robert Hellmann, Eckard Bich, and Eckhard Vogel. Ab initio potential energy curve for the helium atom pair and thermophysical properties of dilute helium gas. i. helium–helium interatomic potential. *Molecular Physics*, 105(23-24):3013–3023, 2007.
- [HH00] Hans Christoph Wolf Hermann Haken. *The Physics of Atoms and Quanta; 7. Aufl.* Springer-Lehrbuch. Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 2000.
- [HJK⁺10] T Havermeier, T Jahnke, K Kreidi, R Wallauer, S Voss, M Schöffler, S Schössler, L Foucar, N Neumann, J Titze, et al. Interatomic coulombic decay following photoionization of the helium dimer: Observation of vibrational structure. *Physical review letters*, 104(13):133401, 2010.
- [IL09] H. Ibach and H. Lüth. *Festkörperphysik Einführung In Die Grundlagen*. Springer-Lehrbuch. Springer Berlin Heidelberg, 2009.
- [Jah05] PD Dr. Till Jahnke. *Interatomic Coulombic Decay- Experimentelle Untersuchung eines neuartigen, interatomaren Abregungsmechanismus*. Goethe Universität Frankfurt am Main, 2005.
- [Jah14] PD Dr. Till Jahnke. *Atomphysik3, Vorlesung*. 2014.
- [JCS⁺04] T Jahnke, A Czasch, MS Schoffler, S Schossler, A Knapp, M Kasz, J Titze, Ch Wimmer, K Kreidi, RE Grisenti, et al. Experimental observation of interatomic coulombic decay in neon dimers. *Physical review letters*, 93:163401–163401, 2004.
- [JCS⁺07] T Jahnke, A Czasch, M Schöffler, S Schössler, M Käs, J Titze, K Kreidi, RE Grisenti, A Staudte, O Jagutzki, et al. Experimental separation of virtual photon exchange and electron transfer in interatomic coulombic decay of neon dimers. *Physical review letters*, 99(15):153401, 2007.

- [JSH⁺10] T Jahnke, H Sann, T Havermeier, K Kreidi, C Stuck, M Meckel, M Schöffler, N Neumann, R Wallauer, S Voss, et al. Ultrafast energy transfer between water molecules. *Nature Physics*, 6(2):139–142, 2010.
- [KKST05] Anton Kalinin, Oleg Kornilov, Wieland Schöllkopf, and J Peter Toennies. Observation of mixed fermionic-bosonic helium clusters by transmission grating diffraction. *Physical review letters*, 95(11):113402, 2005.
- [KMS11] Elena A Kolganova, Alexander K Motovilov, and Werner Sandhas. The 4he trimer as an efimov system. *Few-Body Systems*, 51(2-4):249–257, 2011.
- [Kre15] Deutsche Krebsgesellschaft. Strahlentherapie@ONLINE. <http://www.krebsgesellschaft.de/onko-internetportal/basis-informationen-krebs/therapieformen/strahlentherapie-bei-krebs.html>, Mai 2015.
- [KT07] Oleg Kornilov and J Peter Toennies. Matter-wave diffraction of quantum magical helium clusters. *Europhysics News*, 38(1):22–27, 2007.
- [LAH⁺07] P Lablanquie, T Aoto, Y Hikosaka, Y Morioka, F Penent, and K Ito. Appearance of interatomic coulombic decay in ar, kr, and xe homonuclear dimers. *The Journal of chemical physics*, 127(15):154323–154323, 2007.
- [LKM⁺93] Fei Luo, Geunsik Kim, George C McBane, Clayton F Giese, and W Ronald Gentry. Influence of retardation on the vibrational wave function and binding energy of the helium dimer. *The Journal of chemical physics*, 98(12):9687–9690, 1993.
- [MLS⁺06] Y Morishita, X-J Liu, N Saito, T Lischke, M Kato, G Prümper, M Oura, H Yamaoka, Y Tamenori, IH Suzuki, et al. Experimental evidence of interatomic coulombic decay from the auger final states in argon dimers. *Physical review letters*, 96(24):243402, 2006.
- [MW76] GV Marr and JB West. Absolute photoionization cross-section tables for helium, neon, argon, and krypton in the vuv spectral regions. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 18(5):497–508, 1976.
- [Sch02] Markus S. Schöffler. *Entwicklung und Aufbau eines Abbildungssystems zur Messung von Elektronen jenseits niedriger Energie*. Goethe Universität Frankfurt am Main, 2002.
- [Sch06] Dr. Markus S. Schöffler. *Grundzustandskorrelationen und dynamische Prozesse untersucht in Ion-Helium-Stößen*. Goethe Universität Frankfurt am Main, 2006.
- [Sis] Dr. Nicolas Sisourat. persönlicher kontakt.
- [Sis13] N Sisourat. Nuclear dynamics of decaying states: A semiclassical approach. *The Journal of chemical physics*, 139(7):074111, 2013.

- [Sla28] J. C. Slater. The normal state of helium. *Phys. Rev.*, 32:349–360, Sep 1928.
- [ST94] Wieland Schöllkopf and J Peter Toennies. Nondestructive mass selection of small van der waals clusters. *science*, 266(5189):1345–1348, 1994.
- [VZB⁺14] Jörg Voigtsberger, Stefan Zeller, Jasper Becht, Nadine Neumann, Felix Sturm, H-K Kim, Markus Waitz, Florian Trinter, Maksim Kunitski, Anton Kalinin, et al. Imaging the structure of the trimer systems 4he3 and 3he4he2. *Nature communications*, 5, 2014.
- [WS82] Pamela R Woodruff and James AR Samson. Measurements of partial cross sections and autoionization in the photoionization of helium to he+(n= 2). *Physical Review A*, 25(2):848, 1982.
- [Zel] Stefan Zeller. persönlicher kontakt.

Appendix

Weitere Graphen

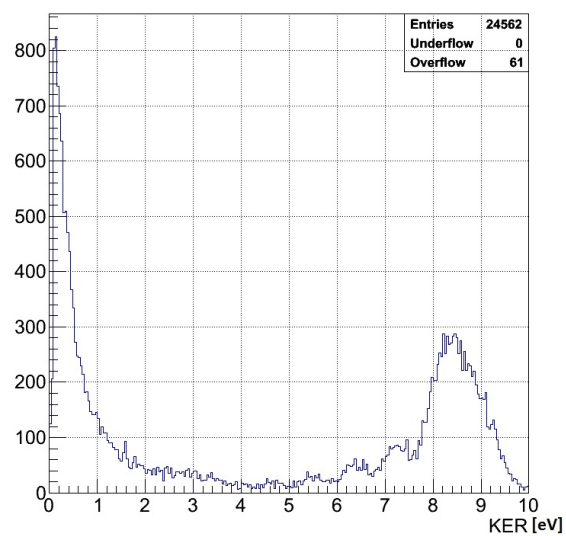


Abbildung .1: KER-Verteilung der Heliumdimere

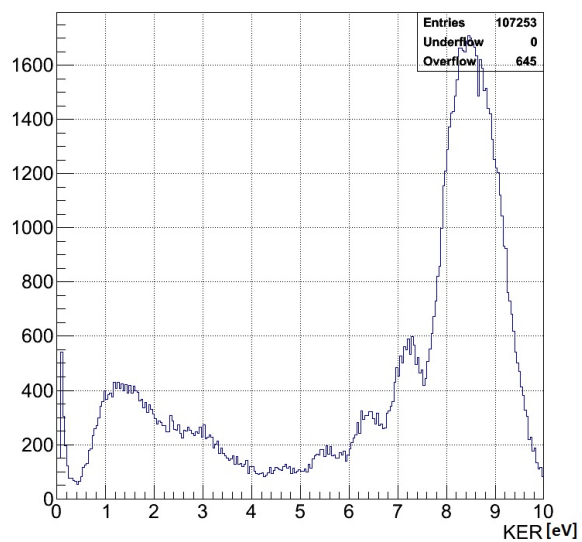


Abbildung .2: KER-Verteilung der Heliumtrimere

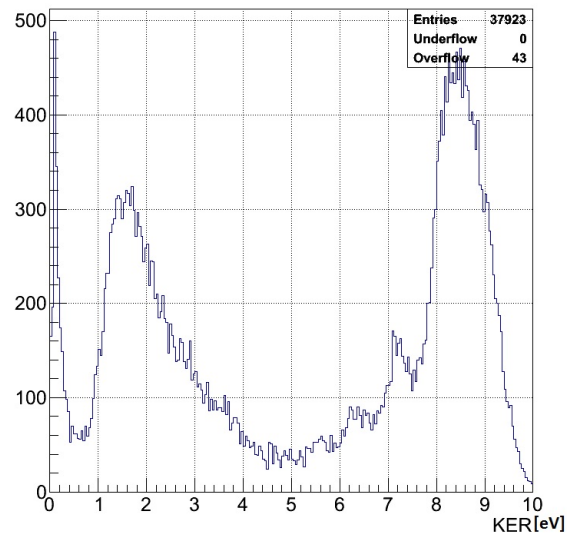


Abbildung .3: KER-Verteilung der Heliumtetramere und -pentamere

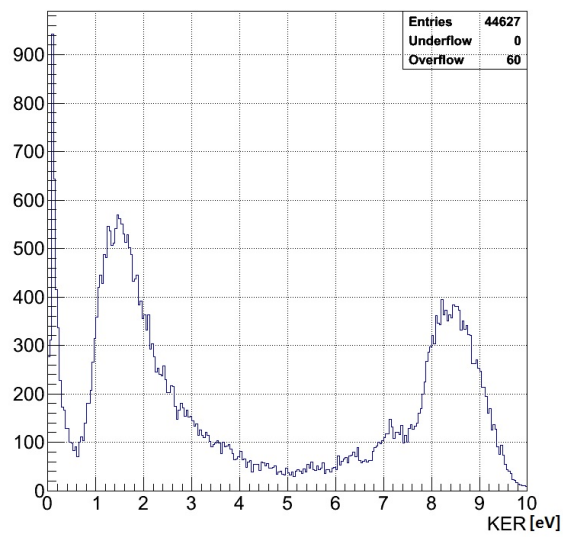


Abbildung .4: KER-Verteilung der Heliumcluster mit $n = 6, 7, 8, 9$

Software in use

Excel

Analyse- und Plotting-Software.

Qtiplot

Analyse- und Plotting-Software

COBOLD

Software zur Erstanalyse der Daten.

lmf2root

Diese Software wurde größtenteils für die Analyse der Daten verwendet. $\LaTeX$

Mit Latex wurde diese Bachelorarbeit erstellt.

Selbstständigkeitserklärung

nach § 28 (12) der Ordnung des Fachbereichs Physik an der Johann Wolfgang Goethe-Universität für den Bachelor-und Masterstudiengang Physik vom 20.07.2011

Hiermit erkläre ich, Anna Hellfritzsich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig, ohne fremde Hilfe und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Die aus fremden Quellen (einschließlich elektronischer Quellen) direkt oder indirekt übernommenen Gedanken sind ausnahmslos als solche kenntlich gemacht. Die Arbeit ist in gleicher oder ähnlicher Form oder auszugsweise im Rahmen einer anderen Prüfung noch nicht vorgelegt worden.

Frankfurt am Main, 13. Mai 2015