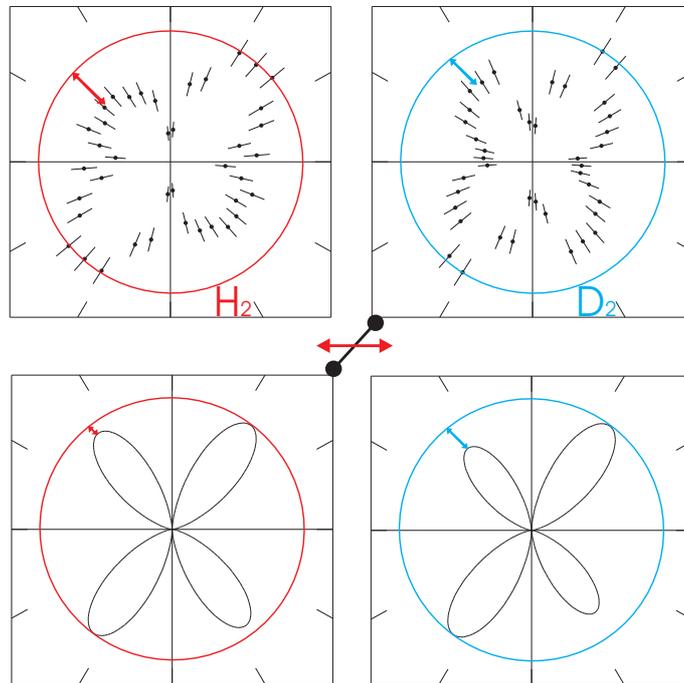


# Photodoppelionisation von $H_2$ und $D_2$



Ute Lenz

Bachelorarbeit

am

Institut für Kernphysik

Fachbereich Physik



Oktober 2009



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Physikalischer Hintergrund</b>	<b>3</b>
2.1	Moleküle . . . . .	3
2.1.1	Das Wasserstoffmolekül . . . . .	3
2.1.2	Photodoppelionisation von Wasserstoff und Deuterium . . . . .	5
2.2	Doppelspaltexperimente mit Molekülen . . . . .	6
2.3	Vorangegangene Experimente . . . . .	8
2.3.1	Photodoppelionisation von $D_2$ . . . . .	8
2.3.2	Interferenz und Verschränkung in der Photodoppelionisation von $H_2$ . . . . .	10
2.3.3	Interferenz im Elektronensummenimpuls bei der Photodoppelionisation von $H_2$ . . . . .	12
2.3.4	Abhängigkeit des Interferenzbilds vom internuklearen Abstand . . . . .	14
2.4	Theoretische Vorhersagen . . . . .	15
<b>3</b>	<b>Experimenteller Aufbau</b>	<b>19</b>
3.1	Die COLTRIMS-Methode . . . . .	19
3.2	Die Reaktion . . . . .	21
3.3	Die Ausrichtung der Messapparatur und das Koordinatensystem . . . . .	21
3.4	Die Vakuumapparatur . . . . .	21
3.5	Der Gasjet . . . . .	22
3.6	Der Photonenstrahl . . . . .	22
3.7	Das Spektrometer . . . . .	23
3.7.1	Flugzeitfokussierung . . . . .	24
3.8	Die Detektoren . . . . .	24
3.9	Die Datenaufnahme . . . . .	25
<b>4</b>	<b>Datenauswertung</b>	<b>27</b>
4.1	Die Kalibration . . . . .	27
4.1.1	Der Zeitnullpunkt . . . . .	27
4.1.2	Der Detektor . . . . .	28
4.1.3	Das elektrische Feld . . . . .	28
4.2	Die Berechnung der Impulse und Energien . . . . .	29
4.3	Das Aussortieren von falschen Koinzidenzen . . . . .	30
<b>5</b>	<b>Ergebnisse und Vergleich mit der Theorie</b>	<b>33</b>
5.1	Isotopeneffekt im KER . . . . .	33
5.2	Winkelverteilung der Photoelektronen . . . . .	34
5.2.1	Festlegung der Koordinaten . . . . .	34
5.2.2	Messung und Theorie . . . . .	35

<b>6 Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>41</b>
<b>A Atomare Einheiten</b>	<b>43</b>
<b>Danksagung</b>	<b>45</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>i</b>

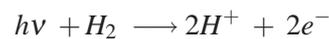
# Kapitel 1

## Einleitung

Moleküle sind aus Atomen aufgebaut. Sie sind meistens nur einige  $10^{-10}$  m groß und können deshalb unter keinem optischen Mikroskop beobachtet werden. Da ihre Dynamik dennoch grundlegende Informationen über mindestens eine der vier Fundamentalen Kräfte -die Elektromagnetische Kraft- enthält, ist es interessant, sie zu untersuchen.

Das leichteste und elementarste Molekül ist das Wasserstoffmolekül. Es besteht aus zwei Wasserstoffatomen, die jeweils aus einem positiv geladenen Proton im Atomkern und einem negativ geladenen Elektron aufgebaut sind. Das nächst schwerere Molekül, das Deuteriummolekül (Deuterium ist ein Isotop von Wasserstoff), besitzt zusätzlich noch jeweils ein Neutron im Kern. Damit haben beide Moleküle dieselben elektromagnetischen Eigenschaften, jedoch unterschiedliche Massen. Findet man Unterschiede in der Ionisationsdynamik beider Moleküle, wäre dies ein spektakulärer neuer Befund.

In dieser Arbeit werden deshalb molekularer Wasserstoff und Deuteriummoleküle durch linear polarisierte Photonen doppelionisiert, die Winkelverteilung des Summenimpulses beider Elektronen ausgewertet und mit einer theoretischen Vorhersage von J. Feagin [Fea08] verglichen.



Durch die Absorption des Photons durch das Molekül werden beide Elektronen aus dem Verbund ins Kontinuum gehoben und verlassen das System mit einem im dreidimensionalen Raum stehenden Impuls. Das zurückbleibende zweifach positiv geladene Molekülion bricht auseinander und zwei einfach positiv geladene Atomionen mit kinetischer Energie entstehen.

Wir werden uns die Energie dieser Ionen anschauen, die Informationen über den internuklearen Abstand beider Atome im Molekül zum Zeitpunkt der Photoabsorption enthält.

Damit man die dynamischen Prozesse auf molekularer Ebene überhaupt untersuchen kann, kann man z.B. ein sogenanntes Reaktionsmikroskop [UMD<sup>+</sup>03] benutzen, mit dem man Impulsspektroskopie nach der COLTRIMS-Technik (COLd Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy) betreiben kann [DMJ<sup>+</sup>02].

Um den Prozess der Photodoppelionisation beschreiben zu können, werden die Impulse der Reaktionsprodukte durch Impulsspektroskopie gemessen. Da es schwer ist, den kompletten Raumwinkel von  $4\pi$  abzudecken, werden alle geladenen Teilchen mittels elektrischer und magnetischer Felder auf einen kreisscheibenförmigen orts- und zeitauflösenden Detektor projiziert. Bei bekannter Flugstrecke und Feldern liefern die gemessenen Flugzeiten und Auftrefforte so die Startimpulse der Teilchen.

Bei einem COLTRIMS-Experiment verwendet man sogar zwei Detektoren: einen Ionen- und einen Elektronendetektor, auf die die jeweiligen Teilchen durch elektrische und magnetische Felder gelenkt werden. Aus einer Koinzidenzmessung erhält man alle Impulse und daraus auch die Energien und Emissionsrichtungen, sowie die Ausrichtung der Moleküle im Laborsystem.

Damit kann man dann die Winkelverteilung der Photoelektronen im Molekülsystem grafisch darstellen und im Summenimpuls beider Elektronen nach Isotopeneffekten zwischen Wasserstoff und Deuterium suchen.

In Kapitel 2 werden kurz die physikalischen Grundlagen dieses Experiments und bereits vorangegangene Experimente, deren Resultate verwendet werden sollen, sowie theoretische Vorhersagen diskutiert. Der Aufbau und die Messapparatur werden in Kapitel 3 beschrieben. Kapitel 4 enthält eine kurze Einführung in die Auswertung der Daten und in Kapitel 5 werden schließlich die Ergebnisse präsentiert. Kapitel 6 schließt mit einer Zusammenfassung der Ergebnisse und einem Ausblick auf zukünftige Messungen.

# Kapitel 2

## Physikalischer Hintergrund

„Die Physik ist eine Naturwissenschaft. Sie beschäftigt sich mit den grundlegenden Erscheinungen und Gesetzen in unserer natürlichen Umwelt, ihren elementaren Bausteinen und deren Wechselwirkungen und ermöglicht die Erklärung und Voraussage zahlreicher Phänomene in Natur und Technik.“ (Meyers Lexikon).

Es handelt sich bei der Physik also um eine weitreichende Wissenschaft, die sich auf Grund ihres großen Umfangs in Teilgebiete gliedert. In dieser Arbeit werden Aspekte der experimentellen Atomphysik untersucht. Zu ihr findet sich in Meyers Lexikon folgendes: „Die Atomphysik ist ein um 1900 entstandenes Teilgebiet der Physik, das sich mit den Atomen und allen mit dem Atomkonzept erklärbareren physikalischen Erscheinungen befasste. Heute versteht man unter Atomphysik im Allgemeinen die Physik der Atomhülle und der in ihr ablaufenden Vorgänge.“ Hier wird die Wechselwirkung zwischen Atomhülle und -Kern betrachtet.

Bei der in diesem Experiment durchgeführten Photodoppelionisation von zwei ähnlich aufgebauten Molekülen, die sich hauptsächlich in ihrer Masse unterscheiden, wird untersucht, ob die elektromagnetische Wechselwirkung zwischen Atomkern und Hüllenelektron durch diese Masse beeinflusst wird.

### 2.1 Moleküle

Unsere Materie ist aus Atomen aufgebaut, die wiederum aus einem Atomkern, einem Verbund aus positiv geladenen Protonen und ungeladenen Neutronen, und einer Hülle aus Elektronen bestehen. Die Anzahl der Protonen bestimmt die chemischen Eigenschaften des Atoms und legt fest, um welches Element es sich handelt.

Atome können sich zu größeren Gebilden über mindestens eine von vier möglichen chemischen Bindungen zusammenschließen. Es gibt die ionische-, kovalente-, metallische-, oder Van-der-Waals-Bindung. Wasserstoff und Deuterium-Moleküle sind kovalent gebunden. Zwischen allen Atomen herrschen auch Van-der-Waals-Kräfte, die allerdings so schwach sind, dass sie hier keine Rolle spielen.

#### 2.1.1 Das Wasserstoffmolekül

Das *Wasserstoffatom* (chemisches Symbol  $H$ ) ist das einfachste Atom. Es besteht aus einem positiv geladenen Proton und einem negativ geladenen Elektron, die elektromagnetisch miteinander wechselwirken. Die Bewegung des Elektrons im kugelförmigen  $1s$ -Orbital um den Kern herum kann durch eine Wellenfunktion  $\Phi_{1s}$  beschrieben werden. Dabei charakterisiert  $|\Phi(R)|^2$  die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektrons im Abstand  $R$  zum Proton.

Nähern sich zwei Wasserstoffatome ( $A$  und  $B$ ) einander an, so können die Wellenfunktionen beider Elektronen ( $\Phi_{1s}(A)$  und  $\Phi_{1s}(B)$ ) überlappen. Man erhält entweder einen symmetrischen  $\Phi_+ \propto \Phi_{1s}(A) + \Phi_{1s}(B)$

oder einen antisymmetrischen  $\Phi_- \propto \Phi_{1s}(A) - \Phi_{1s}(B)$  Zustand (siehe Abb. 2.1). Im symmetrischen Fall ist die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen zwischen den beiden Atomkernen erhöht: aus den beiden Atomorbitalen ist ein bindendes Molekülorbital, das sogenannte  $\Sigma$ -Orbital geworden. Der Zustand ist stabil -und damit natürlich auch das Orbital- da es durch die Anziehung zwischen Kernen und Elektronen zu einer Absenkung der Coulombenergie kommt. Die größte Bindungsenergie wird erreicht, wenn sich beide Elektronen im symmetrischen Zustand befinden. Man erhält ein  $H_2$ -Molekül, das kovalent gebunden ist.

Der antisymmetrische Zustand erzeugt ein antibindendes Molekülorbital, bei dem die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen zwischen den beiden Kernen reduziert ist.

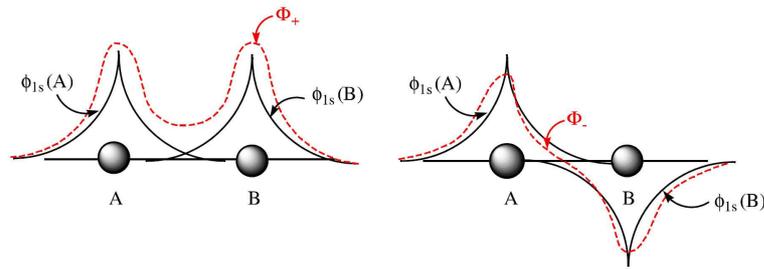


Abbildung 2.1: Überlappung der beiden  $1s$ -Elektronenorbitale ( $\Phi_{1s}(A)$  und  $\Phi_{1s}(B)$ ) von zwei Wasserstoffatomen (A und B) aus [Web03]. Links entsteht ein bindendes Molekülorbital ( $\Phi_+$ ) und rechts ein antibindendes ( $\Phi_-$ ).

Im Grundzustand schwingen diatomare homonukleare Moleküle näherungsweise wie ein harmonischer Oszillator. Die Eigenfunktionen  $\Phi_n(\vec{x})$  eines solchen quantenmechanischen Systems sind somit Lösungen folgender Schrödingergleichung [Nol04]:

$$\frac{\hbar^2}{2m} \vec{\nabla}^2 \Phi_n(\vec{x}) + \frac{1}{2} m \omega^2 \vec{x}^2 \Phi_n(\vec{x}) = E_n \Phi_n(\vec{x}). \quad (2.1)$$

Für den Grundzustand erhält man als Lösung eine gaußförmige Wellenfunktion

$$\Phi_0(x) = \left( \frac{m\omega}{\hbar\pi} \right)^{\frac{1}{4}} \cdot e^{-\frac{1}{2} \frac{m\omega}{\hbar} x^2} \quad (2.2)$$

zur mittleren Energie

$$E_0 = \frac{1}{2} \hbar \omega. \quad (2.3)$$

Der mittlere internukleare Abstand oszilliert also um den Gleichgewichtsabstand und damit besitzt die Grundzustandsenergie zwar ein eindeutig erkennbares Maximum, allerdings auch eine nicht vernachlässigbare Breite. Sie hängt nach Gleichung 2.2 von der Masse ab.

Vergleicht man Deuteronen (D) mit Wasserstoffatomen, so haben sie die gleichen Kernladungszahlen aber unterschiedliche Massen. Deuterium ist ein Isotop des Wasserstoffs und besitzt zusätzlich zu dem einem Proton noch ein ungeladenes Neutron im Kern.

Die gaußförmige Verteilung der Grundzustandsenergie von Wasserstoffmolekülen muss deshalb aufgrund der halben Masse um einen Faktor  $\sqrt{2}$  breiter als die von Deuteriummolekülen sein.

## 2.1.2 Photodoppelionisation von Wasserstoff und Deuterium

### Der Photoeffekt

Der Photoeffekt, auch lichtelektrischer Effekt genannt, bezeichnet die Befreiung von Elektronen aus Metallen mit Hilfe von Licht. Er wurde Ende des 19. Jahrhunderts von Hallwachs und Hertz entdeckt und 1905 von Einstein mit der Lichtquantenhypothese gedeutet [HW96].

Lichtquanten -Photonen- treffen auf Atome und werden jeweils von einem gebundenen Elektron absorbiert (siehe Abb. 2.2). Reicht die Energie eines Photons aus, um die Bindung zwischen Elektron und Atom zu trennen, so wird das Elektron ins Kontinuum gehoben. Die restliche Energie erhält es dann in kinetischer Form. Je höher die Intensität des Lichts, desto mehr Atome werden ionisiert.

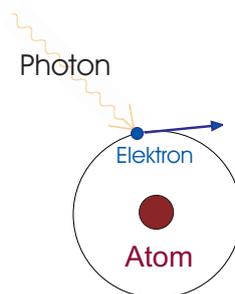


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung des Photoeffekts: Ein Photon greift an einem Atom an und ionisiert es.

Die Energie des Photons teilt sich auf in die Austrittsarbeit ( $E_{\text{Austritt}}$ ) und die kinetische Energie des Photoelektrons ( $E_e$ ):

$$h\nu = E_{\text{Austritt}} + E_e \quad (2.4)$$

### Mechanismen der Photodoppelionisation

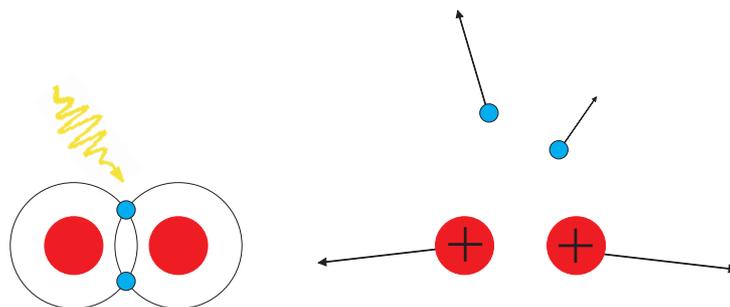


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der Photodoppelionisation von  $X_2$  ( $X \in \{H, D\}$ ):  
 $X_2 + \gamma \rightarrow X^+ + X^+ + 2e^-$

Anschaulich erwartet man auf den ersten Blick, dass ein Photon maximal für die Emission eines Elektrons verantwortlich sein kann. Dies geschieht auch in den meisten Fällen. Mit zwei verschiedenen Modellen kann man aber auch die selten stattfindende Photodoppelionisation erklären, die in dieser Arbeit untersucht wird:

Beim *Two-Step-Prozess (TS1)* überträgt das Photon seine gesamte Energie erst auf ein Elektron, welches dann mit dem anderen wechselwirkt und es über einen stoßähnlichen Prozess aus dem Molekülverband mitreißt.

Das Modell des *Shake-Off-Prozesses* (SO) geht auch von einer Übertragung der kompletten Energie des Photons auf das erste Elektron aus, allerdings verlässt dieses sofort das Molekül und das andere Elektron wird durch Reaktion des übriggebliebenen Systems auf die äußere Störung ins Kontinuum befördert. Bei Photonenenergien von 160eV, die in diesem Experiment verwendet wurden, sind beide Prozesse etwa gleich wahrscheinlich [Dör08].

In beiden Fällen absorbiert das Molekül ein Photon und wird dadurch bei genügend hoher Energie ionisiert, so dass beide  $H_2/D_2$ -Elektronen ins Kontinuum gehoben werden. Die Energie des Photons  $h\nu$  wird aufgeteilt in die Bindungsenergie beider Elektronen ( $E_{B1}$ ,  $E_{B2}$ ), die kinetische Energie der Rückstoßionen im Schwerpunktsystem, den Kinetic Energy Release (**KER**), und die kinetische Energie der Elektronen nach der Reaktion:

$$h\nu = E_{B1} + E_{B2} + E_{KER} + E_e$$

### Energie der Photoelektronen

Bei Wasserstoff und Deuterium beträgt die Doppelionisationsenergie etwa  $E_{B1} + E_{B2} \approx 31,6eV$  ([Kre05, S.20]), hängt jedoch vom internuklearen Abstand des Moleküls bei der Absorption des Photons ab. Aus der Gleichung 2.5 für die Energieerhaltung bleiben somit bei einer Photonenenergie von  $h\nu = 160eV$  und einem mittleren KER von  $E_{KER} \approx 19,42eV$  (siehe Ende Abschnitt 2.1.2) noch etwa  $E_e \approx 109eV$  an kinetischer Energie für die Elektronen übrig.

Da die Elektronen viel leichter als die Atomkerne sind ( $\frac{m_{Elektron}}{m_{Proton}} = \frac{1}{1836}$ ), reagieren sie auch viel schneller auf äußere Einflüsse. Deshalb kann man sich das Molekül während der Doppelionisation als ein starres System vorstellen. Gemäß der Born-Oppenheimer-Näherung kann man die gemeinsame Wellenfunktion von Atomkernen und Elektronen als Produkt beider schreiben. Erst nachdem die Elektronen im Kontinuum sind, reagiert das restliche Molekülion auf die Veränderung [HW03]. Die beiden Protonen/Deuteronen sind einfach positiv geladen und stoßen sich deshalb voneinander ab. Es kommt zu einer sogenannten "Coulombexplosion".

### KER - kinetische Energie der Rückstoßionen

Betrachtet man die beiden Ionen als geladene Punktteilchen, so kann man ihre elektrische Wechselwirkung näherungsweise über ein Coulombpotential beschreiben:

$$V(r) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{q_1 q_2}{r} \quad (2.5)$$

Darüber kann man aus einem gemessenen KER den ursprünglichen Abstand der Atome bei Absorption des Photons berechnen (siehe auch Abb. 2.4). Die  $H_2/D_2$ -Ionen sind einfach positiv geladen und bei einem internuklearen Abstand von  $R \approx 0,742\text{\AA}$  erhält man einen mittleren KER von  $V(R) \approx 19,42eV$ .

## 2.2 Doppelspaltexperimente mit Molekülen

Das klassische Doppelspaltexperiment im Bereich der Optik wurde erstmals von Thomas Young im Jahre 1802 durchgeführt [HW96]. Er entdeckte die Welleneigenschaften des Lichts, indem er einen kohärenten monochromatischen Lichtstrahl durch eine Doppelspaltanordnung führte und in der Intensitätsverteilung dahinter Minima und Maxima beobachtete (siehe Abb. 2.7(A)). 1961 gelang Claus Jönsson das erste echte Doppelspaltexperiment mit Elektronen [Jön61]. Ein Interferenzmuster entstand hierbei nicht nur durch die Überlagerung mehrerer Elektronenwellen, sondern durch die Interferenz der beiden möglichen Wege einer einzigen Elektronenwelle.

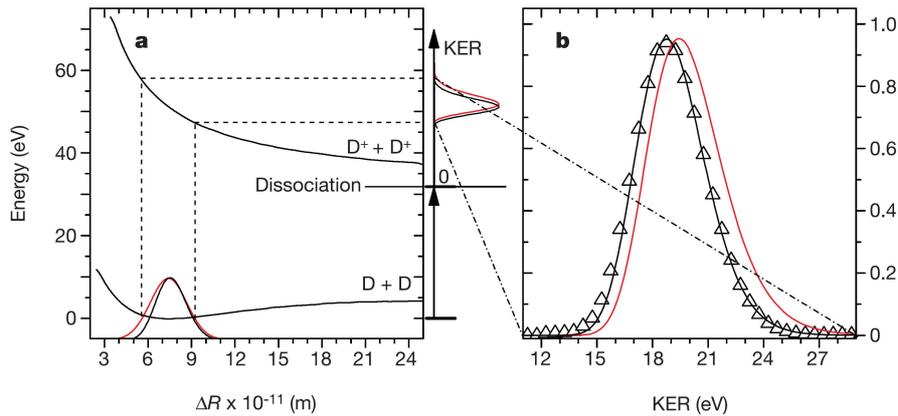


Abbildung 2.4: Abbildung der Grundzustandsverteilung des internuklearen Abstands auf die kinetische Energie im Endzustand aus [WCJ<sup>+</sup>04]. Festlegung des internuklearen Abstands  $\Delta R$  im Grundzustand von  $D_2$  durch Messung des KERs nach der Photodoppelionisation mit linear polarisiertem Licht (hier mit einer Energie von 75.5eV). In **a** wird das Quadrat der Wellenfunktion des Grundzustands an der repulsiven  $D^+ + D^+$ -Potentialkurve auf den KER (vergrößert dargestellt in **b**) gespiegelt. Die roten Kurven sind die Vorhersagen eines harmonischen Oszillatorpotentials, die schwarzen Linien eines Morsepotentials und die Dreiecke die experimentellen Daten.

Die Interferenz kann man nur beobachten, wenn man keine Informationen über den Weg des Teilchens hat. Schließt man einen der beiden Spalte oder verschafft man sich anderweitig die Information über den Weg des Teilchens (z.B. durch unterschiedlich polarisierte Wellen und Polarisationsfilter), so verschwinden die Maxima und Minima.

Die Lage der Interferenzminima und -maxima eines klassischen Doppelspaltexperiments kann man mathematisch berechnen, indem man die Superposition von zwei von den beiden Spalten ausgehenden Kugelwellen betrachtet. Es ergibt sich für konstruktive ( $\phi_{max}, r_{max}$ ) bzw. destruktive Wellenaddition ( $\phi_{min}, r_{min}$ ):

$$\sin(\phi_{max}) = n \cdot \frac{\lambda}{r_{max}} \quad (2.6)$$

$$\sin(\phi_{min}) = \frac{2n-1}{2} \cdot \frac{\lambda}{r_{min}} \quad (2.7)$$

mit der Wellenlänge  $\lambda$  des Lichts und  $n \in \mathbb{N}_0$ .  $r$  ist der Spaltabstand und  $\phi$  der Steuwinkel relativ zur Spaltachse (siehe auch [Ako08, S.24-26]).

Man erkennt, dass es nur zur Interferenz kommt, wenn die Wellenlänge von der Größenordnung des Spaltes ist.

Ein homonukleares diatomares Molekül, z.B.  $H_2$ , hat die beiden Atomkerne als zwei Zentren, die einen internuklearen Abstand voneinander entfernt sind. Betrachtet man nun ein solches System mit nur einem Elektron, so bleibt die Wellenfunktion des negativ geladenen Teilchens unter Spiegelung am Mittelpunkt der Molekülachse invariant. Man kann das Elektron keinem Atomkern zuordnen.

Ionisiert man nun das Molekül, so kann das Photoelektron mit gleicher Wahrscheinlichkeit von jedem der beiden Zentren aus starten und ins Kontinuum gehoben werden. Beide möglichen Wege interferieren miteinander.

Misst man die Stellung der Molekülachse zum Zeitpunkt der Ionisation und betrachtet nur bestimmte Ereignisse, so kann man das Molekül im Laborsystem festhalten und beobachten, in welche Richtung

der Impuls des Photoelektrons zeigt. Man befindet sich dann in der Situation eines klassischen Doppelspaltexperiments, bei dem die Elektronenwelle von jedem der beiden Kerne emittiert werden kann.

Wenn  $\phi$  der Winkel zwischen Photoelektron (oder Summenimpuls zweier Elektronen) und Molekülachse,  $\vec{R}$  der internukleare Abstandsvektor und  $\vec{k}$  der Wellenzahlvektor des Elektrons ist, erhält man durch Approximation mit ebenen Wellen bei zirkular polarisiertem Licht folgende Winkelverteilung für das Elektron [SKA<sup>+</sup>08]:

$$I(\phi) = \cos^2 \left( \vec{k} \cdot \frac{\vec{R}}{2} \right) = \cos^2 \left[ k \cdot \frac{R}{2} \cos(\phi) \right] \quad (2.8)$$

Verwendet man linear polarisiertes Licht, so zwingt der elektrische Feldvektor dem Molekül eine *zusätzliche Winkelverteilung* auf, die man mathematisch durch die Dipolnäherung beschreiben kann:

$$c_\beta(\theta) = 1 + \beta \left( \frac{3}{2} \cos^2(\theta) - \frac{1}{2} \right) \quad (2.9)$$

Dabei ist  $\theta$  der Winkel zwischen dem Photoelektron und der Polarisationsachse des Lichts.

Der Parameter  $\beta$  beschreibt die Abweichung der Winkelverteilung von der Isotropie und wird deshalb oft *Anisotropie oder Asymmetrie Parameter* genannt. Für  $\beta = 0$  (im Falle von zirkular polarisiertem Licht) erhält man eine isotrope Verteilung, für  $\beta = 2$  ergibt sich eine ideale Dipolverteilung und für  $\beta = -1$  eine donutförmige Verteilung.

Da die Orientierung der Molekülachse in diesem Experiment gemessen werden kann, wird noch die bevorzugte Emissionsrichtung der Elektronen entlang der Molekülachse berücksichtigt. Multipliziert man demnach Gleichungen 2.8 und 2.9, so bekommt man schließlich die Winkelverteilung des Photoelektrons, ionisiert durch linear polarisierte Photonen [SKA<sup>+</sup>08]<sup>1</sup>:

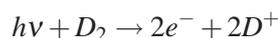
$$I(\phi) = \cos^2 \left[ k \frac{R}{2} \cos(\phi) \right] \left[ 1 + \beta \left( \frac{3}{2} \cos^2(\theta) - \frac{1}{2} \right) \right] \quad (2.10)$$

## 2.3 Vorangegangene Experimente

2007 haben D. Akoury et al. gezeigt, dass die Photodoppelionisation eines  $H_2$ -Moleküls ein Doppelspaltexperiment darstellt [AKJ<sup>+</sup>07] (siehe Abschnitt 2.3.2). Ein Elektron kann bei der Absorption des Photons von beiden Atomen aus starten. Diese beiden möglichen Ionisationswege interferieren miteinander (Abb. 2.7(B)). 2008 haben K. Kreidi et al. beobachtet, dass es sogar ausreicht den Summenimpuls beider Photoelektronen zu beobachten, um ein Interferenzbild zu sehen [KAJ<sup>+</sup>08] (siehe Abschnitt 2.3.3).

### 2.3.1 Photodoppelionisation von $D_2$

Die erste koinzidente Messung der Impulse beider Ionen und beider Elektronen bei der Photodoppelionisation von Deuteriummolekülen wurde 2004 von Thorsten Weber et al. durchgeführt [WCJ<sup>+</sup>04]:



In einer COLTRIMS-Apparatur (siehe Abschnitt 3.1) wurde ein Überschall- $D_2$ -Gasjet mit einem Photonenstrahl der Lawrence Berkeley National Laboratory (LBNL) Advanced Light Source (ALS) gekreuzt und so die Impulsvektoren aller Teilchen für jedes Event in Koinzidenz gemessen.

In Abbildung 2.5 ist die Abhängigkeit der Winkelverteilung der Elektronen von der Polarisationsrichtung der Photonen und der Orientierung der Molekülachse gezeigt. Dabei wird der Impulsvektor des zweiten

<sup>1</sup>In Gleichung 2 aus [SKA<sup>+</sup>08] fehlt eine Klammer.

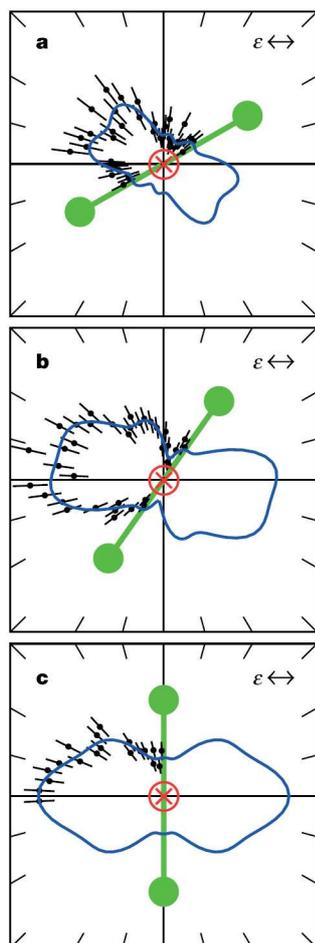


Abbildung 2.5: Elektronenwinkelverteilung der Photodoppelionisation von  $D_2$  als Funktion der Orientierung der Molekülachse aus [WCJ<sup>+</sup>04]. Die schwarzen Punkte mit den Fehlerbalken zeigen Mittelwert  $\pm$  Standardabweichung der Winkelverteilung eines Elektrons in der von Polarisationsrichtung des Lichts ( $\epsilon$ ) und Molekülachse (grüne Hantel) aufgespannten Ebene für eine Photonenenergie von 75.5eV. Der Winkel zwischen Molekül- und Polarisationsachse beträgt  $30^\circ$ (a),  $55^\circ$ (b) und  $90^\circ$ (c). Das andere Photoelektron bewegt sich orthogonal aus der Ebene heraus (rotes Kreuz). Beide Elektronen haben eine Energie von 12,25eV. Da die beiden Ionen identisch sind, sind die Winkelverteilungen punktsymmetrisch. Die blauen Linien zeigen einen Fit mit Kugelflächenfunktionen ( $l \in [1, 4], m \in [0, 1]$ ).

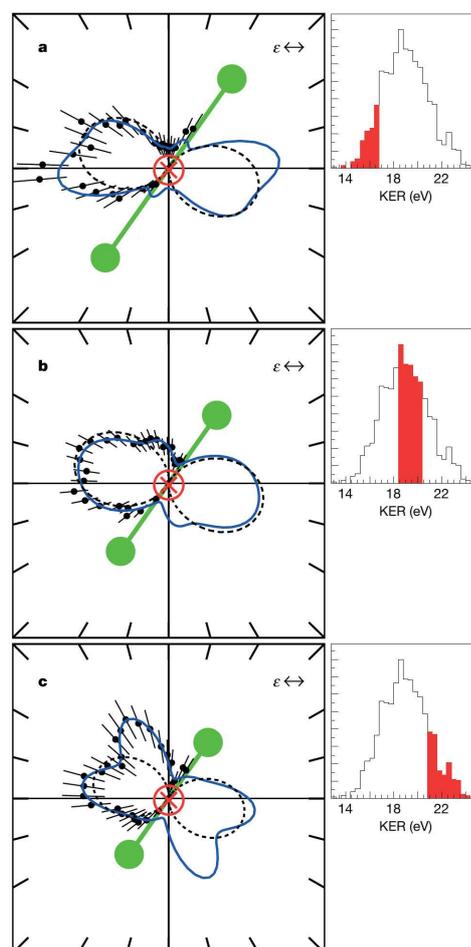


Abbildung 2.6: Winkelverteilung als Funktion des KERs aus [WCJ<sup>+</sup>04]. Der Winkel zwischen Molekül und Polarisationsachse des Photons wird auf  $55^\circ$  festgehalten, der KER wird zwischen drei Bereichen variiert (a,b,c, rechts). Kleiner KER (a) bedeutet großer internuklearer Abstand  $\Delta R$  zum Zeitpunkt der Photoabsorption. Die gepunktete schwarze Linie zeigt Berechnungen mit einem einfachen Modell, das Zwei-Zentrum-Elektron-Nukleon-Interaktion nach der Ionisation vernachlässigt.

Elektrons senkrecht zur Ebene aus Molekülachse und Polarisationsvektor des Lichts festgehalten und ein Elektron-Elektron-Winkel von  $90^\circ$  gefordert. In dieser Geometrie ist die Interaktion zwischen den beiden Elektronen minimiert.

Linear polarisierte Lichtfelder erzwingen eine dipolartige Elektronenwinkelverteilung um die Achse des Photonenvektors, das Coulombfeld des Moleküls generiert bei der gewählten Photonenenergie eine ähnliche Verteilung, jedoch relativ zur Molekülachse. In Abb. 2.5 sieht man die Überlagerungen der beiden Dipolverteilungen und noch zusätzliche „Öhrchen“, die durch Drehimpulseinflüsse höherer Ordnung zustande kommen.

In Abb. 2.6 wird der Winkel zwischen Molekülachse und Polarisationsvektor des Lichts konstant auf  $55^\circ$  gehalten und der KER variiert. Bei kleinem KER hatte das Molekül bei der Absorption des Photons einen großen internuklearen Abstand. Man erkennt, dass die korrelierte Bewegung der Elektronen von diesem Abstand abhängt.

Da die Nukleonen sehr schwer im Vergleich zu den Elektronen sind, kann man die Born-Oppenheimer-Näherung anwenden: Erst nachdem die Elektronen das System verlassen haben, gibt es eine Coulombexplosion des Molekülions und die Kerne nehmen eine vom Kernabstand bei der Absorption des Photons abhängige kinetische Energie (KER) mit (siehe auch Abbildung 2.4).

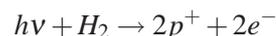
In beiden Grafiken sieht man komplexe Strukturen, die je nach molekularer Orientierung und Größe variieren. Wahrscheinlich hängen die Winkelverteilungen von der Wellenfunktion im Anfangszustand, Beugung und Elektron-Elektron-Korrelation ab. Sie zeigen jedoch unerwartetes Verhalten, das noch nicht verstanden war.

### 2.3.2 Interferenz und Verschränkung in der Photodoppelionisation von $H_2$

Wenn Teilchen mit ihrer Umgebung koppeln, kann sich ihre Wellenfunktion ändern. Es kommt zu Dekohärenz, Phaseninstabilität und einem Übergang von quantenmechanischen zu klassischen Eigenschaften. 2007 haben D. Akoury et al. gezeigt, dass bereits ein Photoelektron und zwei Protonen ein minimales Teilchen-Spalt-System und ein weiteres Elektron eine minimale Umgebung darstellen [AKJ<sup>+</sup>07]. Interferenzerscheinungen in der Winkelverteilung eines Elektrons werden durch Coulomb-Wechselwirkung mit einem zweiten Elektron zerstört.

Die Idee des Doppelspaltexperiments mit homonuklearen Molekülen geht bis in das Jahr 1966 zurück. Das ursprünglich vorgeschlagene Experiment eines Doppelspaltversuchs durch Photoeinfachionisation von  $H_2$  wurde nicht durchgeführt, da man über die Messung eines einzigen Elektrons und des  $H_2^+$ -Ions oder eines  $H^+$ -Ions aus dem Dissoziationsprozess von  $H_2^+$  keine Informationen über die Orientierung der Molekülachse und damit des Doppelspalts gewinnen kann.

Die Idee wurde jedoch von Akoury et al. von der Einfach- zur Doppelionisation erweitert und die Zwei-Teilchen-Interferenz eines Elektronenpaares gemessen, das das  $H_2$ -Molekül durch Absorption eines zirkular polarisierten Photos emittierte:



Wie bei T. Weber et al. [WCJ<sup>+</sup>04] wurde ein Überschall- $H_2$ -Gasjet mit einem Photonenstrahl gekreuzt und die entstandenen Fragmente mit einer COLTRIMS-Apparatur gemessen. Die Photonen waren zirkular polarisiert und hatten eine Energie von 240eV im einen oder 160eV im anderen Experiment. Da die kinetische Energie der  $H^+$ -Ionen nach der Photodoppelionisation bei einem Gleichgewichtsabstand von  $1.4a_0 = 0.742\text{\AA}$  jeweils etwa 10eV und die Bindungsenergie der beiden Elektronen zusammen etwa 30eV beträgt, bleiben noch 190eV bzw. 110eV kinetische Energie übrig, die unter den Elektronen aufgeteilt werden. In den meisten Fällen erhält man ein hochenergetisches (185-190eV) und ein sehr langsames (0-5eV) Elektron.

Die gemessenen Daten zeigen in der Winkelverteilung des ersten Elektrons, wenn es das Molekül in einer zum Lichtstrahl orthogonalen Ebene verlässt, einen starken Interferenzeffekt (Abb. 2.7D), den man auch bei der Berechnung der Überlagerung zweier kohärenter Kugelwellen erhält (Abb. 2.7E, blaue Linie). Die Intensitätsverteilung  $I$  in Abhängigkeit des Winkels zwischen Elektron und Molekülachse ist gegeben durch:

$$I(\Phi_{e-mol}) = C \cdot \cos^2 \left[ \frac{\vec{k}_e \cdot \vec{R} \cdot \cos(\Phi_{e-mol})}{2} \right] \quad (2.11)$$

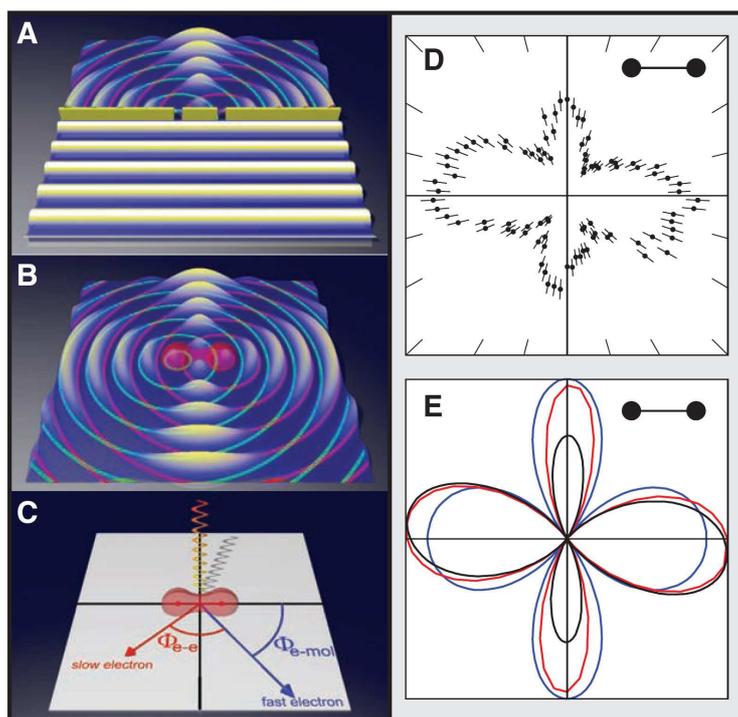


Abbildung 2.7: aus [AKJ<sup>+</sup>07]. (A) Schematische Darstellung eines Doppelspaltexperiments. Eine Ebene Welle trifft auf den Spalt und wird daran gebeugt. (B) Photoionisation durch zirkular polarisiertes Licht erzeugt eine kohärente kugelförmige Photoelektronenwelle an jedem Kern. (C) Geometrie des Experiments von D. Akoury et al.: zirkular polarisierte Photonen treffen von oben auf das rote Molekül. Alle dargestellten Winkelverteilungen befinden sich in der weißen Ebene (orthogonal zum Lichtstrahl).  $\Phi_{e-e}$  ist der Winkel zwischen den Elektronentrajektorien,  $\Phi_{e-mol}$  ist der Winkel zwischen dem schnellen Elektron und der Molekülachse. (D) Gemessene Winkelverteilung des austretenden schnellen Elektrons der Photodoppelionisation von  $H_2$  durch zirkular polarisiertes Licht mit einer Energie von 240 eV. Die Molekülachse ist auf  $\pm 10^\circ$  in der Ebene fixiert (schwarze Hantel). Die Energie des schnellen Elektrons beträgt 185-190 eV, die des langsamen 0-5 eV. (E) Winkelwahrscheinlichkeitsverteilungen, berechnet mit verschiedenen theoretischen Modellen, z.B. nach Gleichung 2.11 (blaue Linie).

Alle theoretischen Rechnungen gehen nur von der Aussendung eines Elektrons aus. Es fällt dennoch auf, dass die berechneten Winkelverteilungen recht gut mit den gemessenen übereinstimmen. Man kann also das langsame Elektron vernachlässigen, da es kaum mit dem schnelleren wechselwirkt.

Anders sieht es bei Messungen aus, bei denen das zweite Elektron etwas schneller (5-25 eV) und das erste etwas langsamer (ca. 95 eV) ist (Abb. 2.8B). Man sieht eine isotrope Verteilung und das Interferenzbild verschwindet. Die Elektronen koppeln miteinander, was zu Dekohärenz führt.

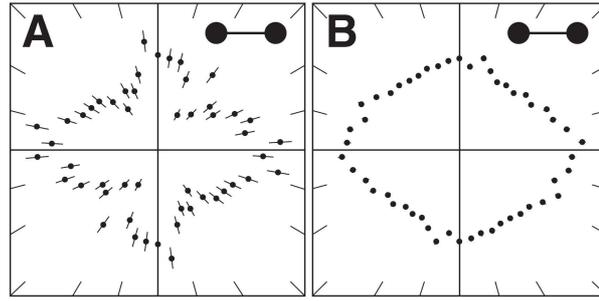


Abbildung 2.8: Elektronenwinkelverteilungen aus [AKJ<sup>+</sup>07] wie in Abb. 2.7D, allerdings bei Photonenenergien von 160eV. (A)  $E_2 < 1\text{eV}$ ,  $E_1 \approx 110\text{eV}$ . (B)  $5\text{eV} < E_2 < 25\text{eV}$ ,  $85\text{eV} < E_1 < 105\text{eV}$

### 2.3.3 Interferenz im Summenimpuls beider Elektronen bei der Photodoppelionisation von $H_2$

Bei der Photodoppelionisation von  $H_2$  haben K. Kreidi et al. doppelspaltartige Interferenzbilder im Summenimpuls beider Elektronen beobachtet, die man im Differenzenimpuls nicht sehen kann [KAJ<sup>+</sup>08]. Anschaulich gesprochen lässt dies darauf schließen, dass beide Elektronen im  $H_2$ -Grundzustand von demselben Atom starten.

Wie bei den vorangegangenen Experimenten wurde ein Überschall- $H_2$ -Gasstrahl mit einem zirkular polarisierten Photonenstrahl der ALS in einer COLTRIMS-Apparatur gekreuzt und die Impulse der Fragmente gemessen. Bei der Auswertung hat man sich nicht nur die Impulse bzw. Wellenzahlen der einzelnen Elektronen ( $k_1, k_2$ ), sondern auch deren Summe  $k^+ = k_1 + k_2$  und halbe Differenz  $k^- = \frac{1}{2}(k_1 - k_2)$  bei Photonenenergien von 130, 160, 200 und 240eV angeschaut.

In Abbildung 2.9 werden die Winkelverteilungen von  $k_1, k^+$  und  $k^-$  in der Polarisationssebene des Lichts dargestellt. Wie in [AKJ<sup>+</sup>07] sieht man bei  $k_1$  Interferenz nur für extrem asymmetrische Energieverteilung zwischen den beiden Elektronen. Die Winkelverteilung des Summenimpulses  $k^+$  zeigt in allen Fällen Interferenz, der Differenzenimpuls  $k^-$  zeigt nie Interferenz. Um diese Beobachtung zu erklären, kann man sich die vier Möglichkeiten des Aufbruchs des Vier-Teilchen-Systems anschauen (Abb. 2.10). Die vier möglichen Wege interferieren miteinander.

Da es sich um ein homonukleares Molekül handelt, sind a und b bzw. c und d in Abbildung 2.10 ununterscheidbar, was das Problem auf zwei mögliche Wege ( $\alpha$  und  $\beta$ ) reduziert. Nimmt man den Ansatz ebener Wellen für die Elektronenwellenfunktionen, so erhält man einfache gemeinsame Produktwellenfunktionen. Für die Intensitätswinkelverteilung des Impulses  $I(\vec{k}_1, \vec{k}_2)$  erhält man nach [KAJ<sup>+</sup>08]:

$$I(\vec{k}_1, \vec{k}_2) = 4\alpha^2 \cos^2 \left( \vec{k}^+ \cdot \frac{\vec{R}}{2} \right) + 4\beta^2 \cos^2 \left( 2\vec{k}^- \cdot \frac{\vec{R}}{2} \right) + 4\alpha\beta \left[ \cos(\vec{k}_1 \cdot \vec{R}) + \cos(\vec{k}_2 \cdot \vec{R}) \right], \quad (2.12)$$

wobei  $\alpha$  und  $\beta$  die Amplituden der Wellenfunktionen der beiden möglichen Wege sind. Die beiden Gleichungen zeigen, dass Weg  $\alpha$  zu Interferenz in  $\vec{k}^+$  und  $\beta$  in  $\vec{k}^-$  führt. Dies zeigt deutlich, dass in den gemessenen Daten Weg  $\alpha$  bei weitem dominiert.

Anschaulich starten bei Photodoppelionisation von  $H_2$  also beide Elektronen an demselben Proton. Man kann von dem Elektronenpaar als ein Quasiteilchen, einem **Dielektron**, sprechen, das nach verlassen des Moleküls in zwei Elektronen zerfällt.

Anders ausgedrückt erkennt man eine Interferenzstruktur im vom Dielektron auf das Molekulation übertragenen Impuls.

Den höchsten Kontrast der Interferenz im Winkelverteilungsbild beobachtet man bei der höchsten Photonenenergie (hier: 240eV).

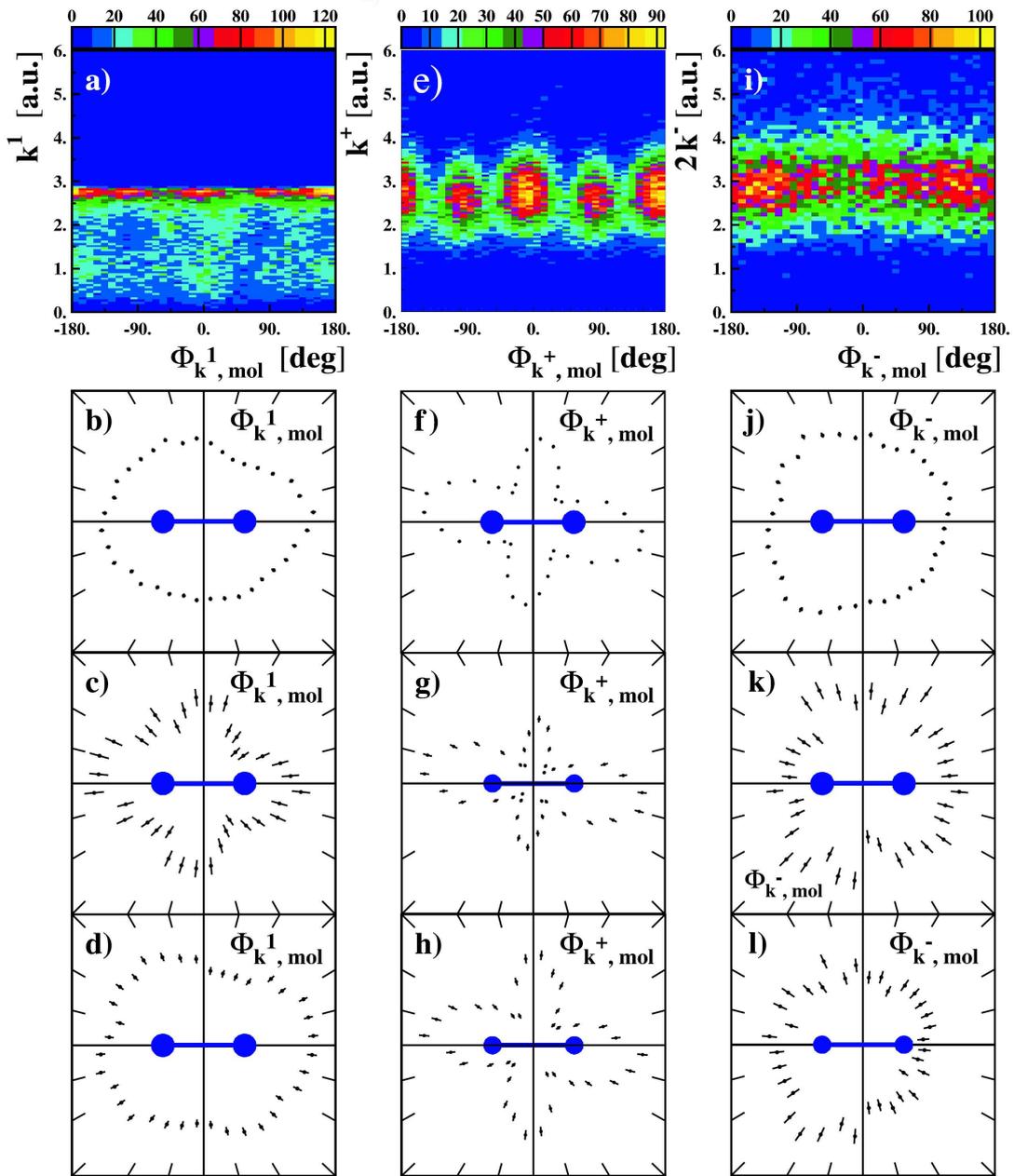


Abbildung 2.9: Photodoppelsonisation von  $H_2$  mit zirkular polarisierten Photonen der Energie 160eV aus [KAJ<sup>+</sup>08]. (a) Horizontale Achse: Winkel zwischen  $k_1$  und der Molekülachse in der Polarisations-ebene auf  $\pm 20^\circ$  genau, vertikale Achse:  $|k_1|$ , ohne Einschränkung auf  $k_2$ . (b) Polardarstellung der Daten von (a), integriert über alle  $|k_1|$ , (c) für  $2.75 \text{ a.u.} < |k_1| < 2.81 \text{ a.u.}$ , (d) für  $2 \text{ a.u.} < |k_1| < 2.7 \text{ a.u.}$ , (e) – (h) gleiche Graphen für  $k^+$  statt  $k_1$ , (g)  $3.1 \text{ a.u.} < |k^+| < 3.9 \text{ a.u.}$ , (h)  $2.3 \text{ a.u.} < |k^+| < 2.6 \text{ a.u.}$ , (i) – (l) gleiche Graphen für  $k^-$ , (k)  $3.5 \text{ a.u.} < |k_1| < 3.8 \text{ a.u.}$ , (l)  $2.2 \text{ a.u.} < |k_1| < 2.5 \text{ a.u.}$

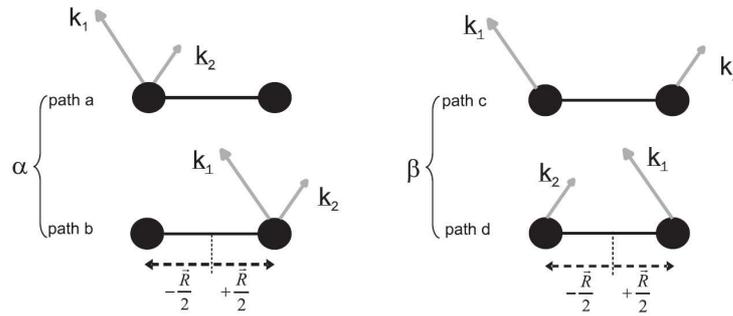


Abbildung 2.10: Vier mögliche interferierende Aufbruchkanäle der Doppelphotoionisation von  $H_2$  aus [KAJ<sup>+</sup>08]. Beide Elektronen können an demselben Atom (a oder b) oder an unterscheidbaren Atomen (c oder d) starten.

### 2.3.4 Abhängigkeit des Interferenzbilds vom internuklearen Abstand bei der Photodoppelionisation von $H_2$

Mit weiteren Messungen haben M. Schöffler et al. 2008 gezeigt, dass die Interferenzen im Winkelverteilungsbild der Photodoppelionisation von  $H_2$  vom Abstand der beiden Protonen im Molekül zum Zeitpunkt der Absorption des Photons abhängt [SKA<sup>+</sup>08]. Wie Kreidi et al. [KAJ<sup>+</sup>08] (siehe Abschnitt 2.3.3) gezeigt haben, kann man statt des Impulses eines Elektrons bei bestimmter Energieverteilung auch das Winkelverteilungsbild des Summenimpulses anschauen und erhält damit wesentlich mehr Statistik, da weniger Ereignisse aussortiert werden müssen. Das Interferenzbild ist dann das Resultat des vom *Dielektron* auf das Molekülion übertragenen Impulses.

Aus Gleichung 2.8 geht sogar offensichtlich hervor, dass eine Kernabstandsabhängigkeit des Interferenzeffekts zu erwarten ist.

Experimentell wurde wie in den vorangegangenen Experimenten ein Gasjet mit einem 160eV-Photonenstrahl der ALS in einer COLTRIMS-Apparatur gekreuzt und der Summenimpuls beider Elektronen gemessen und in der Ebene des Lichtpolarisationsvektors angeschaut. Um Effekte, die nicht von molekularer Natur sind, zu vermeiden, wurde zirkular polarisiertes Licht verwendet. Die Ergebnisse der Messung sind in Abbildung 2.11 dargestellt.

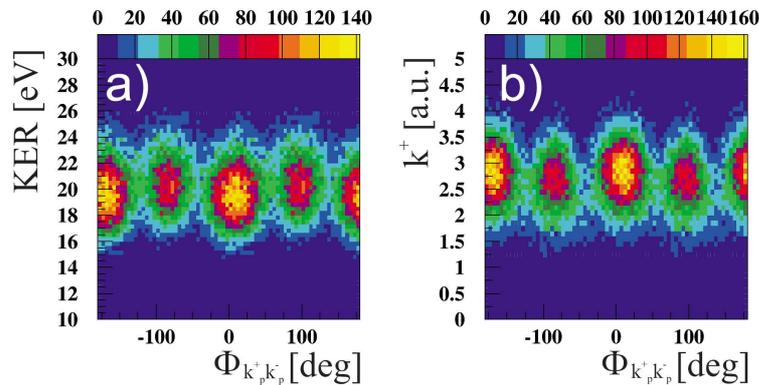


Abbildung 2.11: Photodoppelionisation mit zirkular polarisierten Photonen der Energie 160eV aus [SKA<sup>+</sup>08]. Horizontale Achse: Winkel zwischen Molekülachse und Summenimpuls des Elektronenpaars, beides auf  $\pm 20^\circ$  in der Polarisationsebene festgehalten. Vertikale Achse: (a) kinetische energy release (KER), (b) Summenimpuls der beiden Elektronen.

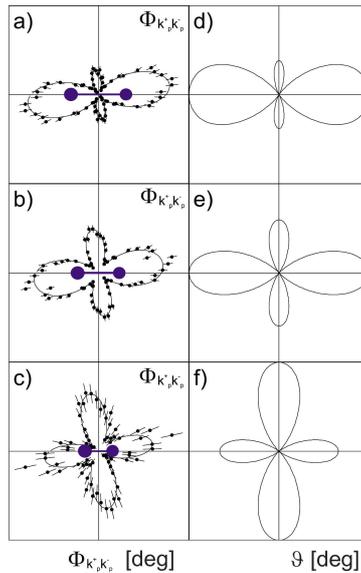


Abbildung 2.12: In (a), (b) und (c) sind Ausschnitte aus Abb. 2.11(a) für unterschiedlichen KER ( $R$ -Abhängigkeit des Interferenzspektrums) gezeigt (mit  $3a.u. < k^+ < 4a.u.$ ). Die gemessenen Impulse sind auf  $\pm 20^\circ$  in der Polarisationssebene des Lichts festgehalten. Die Molekülachse (blaue Hantel) ist bis auf  $\pm 10^\circ$  festgehalten (aus [SKA<sup>+</sup>08]). (a)  $16eV < KER < 18eV$  ( $R \approx 0.85\text{\AA}$ ), (b)  $20eV < KER < 22eV$  ( $R \approx 0.65\text{\AA}$ ), (c)  $24eV < KER < 27eV$  ( $R \approx 0.55\text{\AA}$ ). (d), (e) und (f) zugehörige Doppelspaltformel aus Gleichung 2.10 für  $\beta = 0.6$ .

In beiden Bildern sieht man Interferenzerscheinungen. Das Winkelverteilungsbild der Elektronen hängt also stark vom KER (und damit vom internuklearen Abstand  $R$ ) und von  $k^+$ , dem Summenimpuls der beiden Elektronen, ab. Noch einfacher sieht man diese Abhängigkeit, wenn man sich die Polardarstellung der Winkelverteilung für unterschiedlichen KER anschaut (Abb. 2.12).

Man sieht außerdem, dass das Bild leicht gegen den Uhrzeigersinn gedreht ist, was ein Effekt der zirkularen Polarisation des Lichts ist. (Invertiert man die Polarisation, so ist das Spektrum in die andere Richtung gedreht.)

Beim Doppelspaltexperiment erwartet man, dass die Interferenzmaxima bei Erniedrigung des Spaltabstands (Erhöhung des KERs) näher zusammenrutschen. Die Wellenlängen sind aber so lang, dass man nur das erste Minimum bei etwa  $50^\circ$  relativ zur Molekülachse sieht. Deshalb ist der Haupteffekt die Veränderung der relativen Größe des Nullten im Vergleich zum ersten Maximum.

Abbildung 2.12 bestätigt, dass die gemessenen Veränderungen ((a),(b),(c)) qualitativ mit der Erwartung für einen Doppelspalt ((d),(e),(f)) aus Gleichung 2.10 übereinstimmen. Andererseits wird damit auch bestätigt, dass die Messung des KERs gleichzeitig eine direkte Messung des internuklearen Abstands  $R$  ist.

Analoge Ergebnisse erhält man auch für die Abhängigkeit des Winkelverteilungsspektrums vom Summenimpuls der Elektronen ( $k^+$ ).

## 2.4 Theoretische Vorhersagen

Nach der Photodoppelionisation von molekularem Wasserstoff oder Deuterium reicht es zur Beobachtung des Interferenzschemas aus, sich den Summenimpuls der Elektronen anzuschauen. Man kann die Messungen mit zirkular polarisiertem Licht (wie z.B. Kreidi et al. [KAJ<sup>+</sup>08] und Schöffler et al. [SKA<sup>+</sup>08]) oder mit linearem Licht (wie in dieser Arbeit) durchführen (siehe Abb. 2.13).

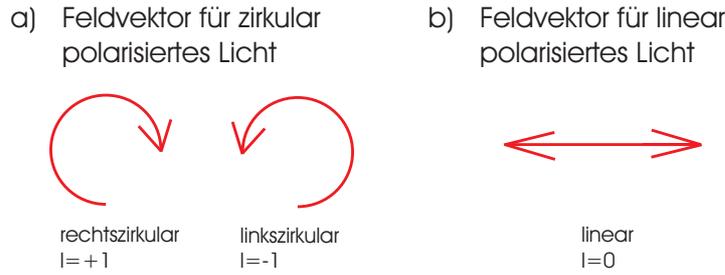


Abbildung 2.13: Elektrischer Feldvektor eines (a) zirkular bzw. (b) linear polarisierten Photons,  $l$  ist hier die Projektion des Drehimpulses auf die  $z$ -Achse.

Möchte man die Winkelverteilung des Summenimpulses der beiden Photoelektronen, also des Impulses des Dielektrons, berechnen, so muss man einige sinnvolle Näherungen vornehmen, z.B. die **Stoßnäherung** (engl. **impulse approximation**) angewendet auf Photoionisation. Die Absorption oder Streuung des Photons am Atom wird dabei als inelastische Streuung des Photons an einem freien Elektron betrachtet, das allerdings das Impulsspektrum eines gebundenen besitzt. Dadurch kann man die auslaufenden Elektronen, wenn sie schnell genug sind, durch Ebene Wellen beschreiben (siehe auch [Spi96, S.36]). Da die Masse des Moleküls -obwohl sie sehr groß im Vergleich zu der der Elektronen ist- nur endlich ist, kann man es nicht als starres System im Ortsraum, sondern muss es mathematisch als dynamisches Gebilde im Impulsraum beschreiben. Die Winkelverteilung des Photodielektrons hängt somit nicht nur vom Summenimpuls  $p_{sum}$  der beiden Ionen (also vom negativen Impuls der Elektronen), sondern auch von deren Relativimpuls  $p_{rel}$  (dem mittleren Impuls pro Ion) ab. (Näheres zu  $p_{sum}$  und  $p_{rel}$  ist nachzulesen in den Abschnitten 4.1.3 und 4.2). Im Falle von zirkular polarisiertem Licht erhält man folgende Winkelverteilung für das Photodielektron [Fea08]:

$$I(\phi) = \left( 1 - \frac{p_{sum}^2}{8p_{rel}^2} + \frac{R \cdot p_{sum}^2 \cdot \cot(R \cdot p_{rel})}{8p_{rel}} - \frac{p_{sum}^2 \cdot \cos(\phi)^2 \cdot (-3 + R^2 \cdot p_{rel}^2 + 3R \cdot p_{rel} \cdot \cot(R \cdot p_{rel}))}{8p_{rel}} \right), \quad (2.13)$$

wobei  $R$  der internukleare Abstand des Moleküls ist.

In abgekürzter aber übersichtlicher Schreibweise wird Gleichung 2.13 zu

$$I(\phi) = (1 + f_1(p_{sum}, p_{rel}) + f_2(p_{sum}, p_{rel}) \cdot \cos^2(\phi)) \quad (2.14)$$

Verwendet man linear polarisierte Photonen, so muss man 2.13 noch mit der durch den Polarisationsvektor vorgegebenen zusätzlichen Winkelverteilung multiplizieren (analog zu Abschnitt 2.2):

$$I(\phi) = \left[ 1 - \frac{p_{sum}^2}{8p_{rel}^2} + \frac{R \cdot p_{sum}^2 \cdot \cot(R \cdot p_{rel})}{8p_{rel}} - \frac{p_{sum}^2 \cdot \cos(\phi)^2 \cdot (-3 + R^2 \cdot p_{rel}^2 + 3R \cdot p_{rel} \cdot \cot(R \cdot p_{rel}))}{8p_{rel}} \right] \cdot \left[ 1 + \beta \left( \frac{3}{2} \cos^2(\theta) - \frac{1}{2} \right) \right] \quad (2.15)$$

oder in Kurzform:

$$I(\phi) = [1 + f_1(p_{sum}, p_{rel}) + f_2(p_{sum}, p_{rel}) \cdot \cos^2(\phi)] \cdot \left[ 1 + \beta \left( \frac{3}{2} \cos^2(\theta) - \frac{1}{2} \right) \right] \quad (2.16)$$

Der bereits von A. Knapp et al. bei der Photodoppelionisation von Helium mit linear polarisiertem Licht gemessene Asymmetrieparameter beträgt  $\beta = 1.8$  [KWW<sup>+</sup>02]. Denselben Wert werden wir deshalb auch hier verwenden. Das Licht erzeugt also eine annähernd ideale Dipolverteilung (Abschnitt 2.2).

Da der Relativimpuls der Ionen massenabhängig ist, folgt aus (2.14) ein unmittelbarer Isotopeneffekt, den man im direkten Vergleich der Winkelverteilungen von Wasserstoff und Deuterium erkennen müsste.



# Kapitel 3

## Experimenteller Aufbau

Atome haben eine Größe von etwa einem Ångström<sup>1</sup>. Deshalb kann man sie und mit ihnen ablaufende Reaktionen unter keinem optischen Mikroskop beobachten. Eine Möglichkeit zur Untersuchung der Dynamik von Stoß- und Ionisationsreaktionen ist die Bestimmung der Eigenschaften der entstandenen Fragmente. Mit einem Reaktionsmikroskop [UMD<sup>+</sup>03], das zur Impulsspektroskopie der Rückstoßionen und Elektronen mit der COLTRIMS-Technik dient, werden die Gesamtenergien und Impulse aller bei der Reaktion entstandenen Produkte in Koinzidenz gemessen.

### 3.1 Die COLTRIMS-Methode

Die in einer Reaktion entstandenen Ionen und Elektronen besitzen Impulse, die in alle möglichen Richtungen im Raum zeigen können. Damit man nicht viele Detektoren in einer Kugel um das Experiment herum aufbauen muss, wurde die COLTRIMS- (**COL**d **T**arget **R**ecoil **I**on **M**omentum **S**pectroscopy) Technik zur Impulsspektroskopie verwendet (Abb. 3.1). Mit Hilfe von elektrischen und magnetischen Feldern wird der komplette  $4\pi$ -Raumwinkel auf zwei orts- und zeitauflösende Detektoren (je einer für Elektronen und Rückstoßionen) abgebildet. Durch die passend eingestellten Felder wird jedes relevante Teilchen auf einen dieser Detektoren gesaugt und aus seinem Auftreffort und seiner Flugzeit der dreidimensionale Anfangsimpuls unmittelbar nach der Reaktion berechnet.

In einem elektrischen Spektrometer, das sich in einer Vakuumkammer befindet, wird ein Überschall-Gasjet mit einem Photonenstrahl gekreuzt. Dabei kommt es zur Photoionisation der Gasteilchen. Durch das elektrische Feld werden die positiv geladenen Reaktionsfragmente auf einen Ionendetektor beschleunigt, der sich in Abb. 3.1 auf der linken Seite befindet. Die wesentlich schnelleren negativ geladenen Elektronen erhalten zwar eine Beschleunigung nach rechts, haben allerdings viel höhere Geschwindigkeiten als die Ionen. Damit sie dennoch auf dem Elektronendetektor landen, kann man ein zusätzliches magnetisches Feld anlegen. Die Elektronen laufen dann auf Spiralbahnen durch das Spektrometer zum Detektor. Da sie nur zum Triggern verwendet werden und für die Berechnungen keine Rolle spielen, kann man auf weitere Überlegungen bezüglich der Elektronenseite verzichten.

Da mehrere Experimente hintereinander mit demselben Spektrometer gemessen wurden, mussten ein paar Kompromisse eingegangen werden. Die Abmessungen des Spektrometers (siehe Abb. 3.2) waren aber für die Messung hinreichend.

---

<sup>1</sup>1Å =  $10^{-10}m$

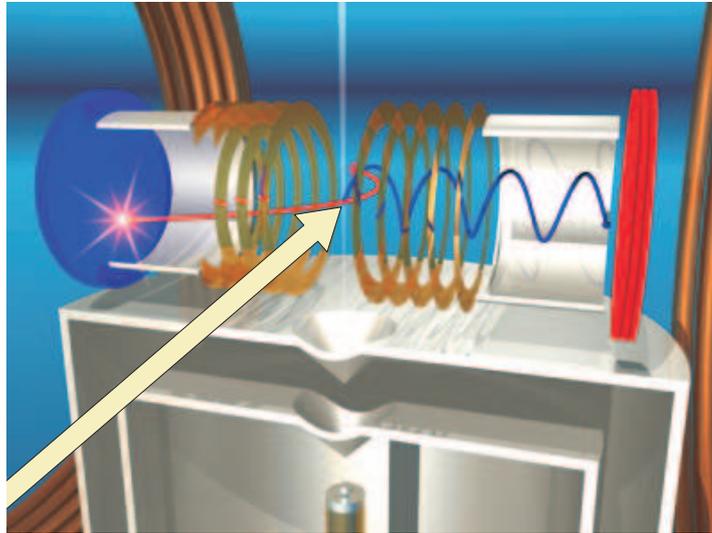


Abbildung 3.1: Der Coltrims-Aufbau (aus [Web03]): Der von unten kommende Überschallgasjet wird mit einem Photonenstrahl (gelber Pfeil) gekreuzt und zur Reaktion gebracht. Die dabei entstehenden Photoelektronen fliegen auf Spiralbahnen auf den rechten, die Rückstoßionen auf den linken orts- und zeitauflösenden Detektor:

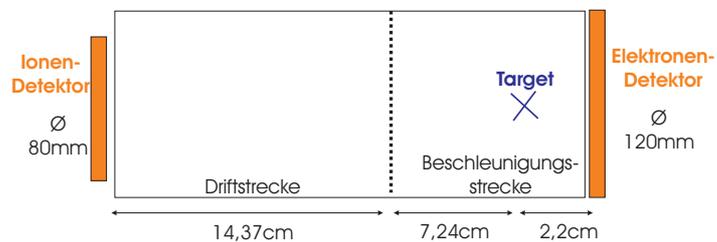
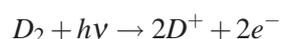
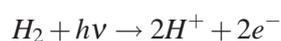


Abbildung 3.2: Die Abmessungen des Spektrometers

### 3.2 Die Reaktion

Die bei diesem Experiment gemessenen Reaktionen sind die Photo-Doppelionisationen von molekularem Wasserstoff und Deuterium. Photonen der Energie  $E = h\nu = 160\text{eV}$  werden mit einem  $\text{H}_2$ - bzw.  $\text{D}_2$ -Gasjet gekreuzt und lösen im Target zwei Photoelektronen aus. Das dadurch zweifach positiv geladene Molekülion fragmentiert in einer Coulombexplosion:



Für die Doppelionisation des Moleküls wird eine Energie von etwa  $31,6\text{eV}$  benötigt und die kinetische Energie der auseinander fliegenden Rückstoßionen nach der Coulombexplosion beträgt etwa  $19,4\text{eV}$ . Damit bleiben noch etwa  $109\text{eV}$  übrig, die unter den beiden Elektronen aufgeteilt werden (siehe Abschnitt 2.1.2).

### 3.3 Die Ausrichtung der Messapparatur und das Koordinatensystem

Für spätere Berechnungen und Erklärungen ist es hilfreich, ein Koordinatensystem entlang des Spektrometers (Abschnitt 3.7) zu definieren. Die  $xy$ -Ebene steht parallel zu den Detektoren, die  $\text{H}_2$ - bzw.  $\text{D}_2$ -Moleküle fliegen entlang der  $y$ - und die Photonen entlang der  $x$ -Achse. Die Ionen werden dann entlang des Spektrometers in  $z$ -Richtung, der sogenannten Flugzeitrichtung, beschleunigt. TOF steht hierbei für **T**ime **O**f **F**light, aus der man den Anfangsimpuls in  $z$ -Richtung berechnen kann.

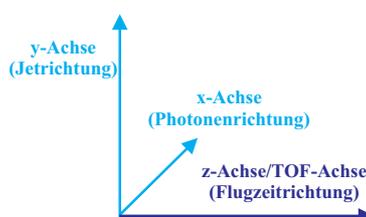


Abbildung 3.3: Das gewählte Koordinatensystem

### 3.4 Die Vakuumapparatur

Damit fast nur Reaktionen mit den oben genannten Molekülen statt finden und die entstandenen Ionen nicht mit anderen Teilchen wechselwirken können, befindet sich die Messapparatur in einer Vakuumkammer, die mit diversen Vor- und Turbopumpen evakuiert wird. Über verschiedene Stufen konnte so der Anfangsdruck von etwa  $10^{-5}\text{Torr}$  in der Jetquelle bis auf um die  $10^{-7}\text{Torr}$  in der Hauptkammer, in der die Reaktion statt findet, reduziert werden. Der genaue Aufbau des Vakuumsystems, sowie die Leistungen aller Pumpen ist beschrieben in [Web03, S.145-151].

Zwei große Helmholtzspulen sorgen für das notwendige Magnetfeld, das die Elektronen auf den Detektor lenkt. Außerdem gibt es zwei weitere Spulenpaare, die das Erdmagnetfeld kompensieren.

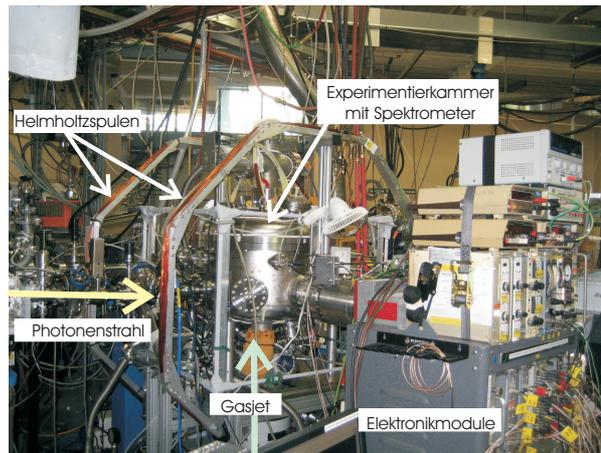


Abbildung 3.4: Der Versuchsaufbau mit der Vakuumkammer in der Mitte.

### 3.5 Der Gasjet

Bei dem Reaktionstarget handelt es sich um einen Wasserstoff- bzw. Deuterium-Jet.  $H_2$  und  $D_2$  sind bei Zimmertemperatur ( $T_0=300\text{K}$ ) gasförmig. Mit einem Überdruck von 55 bar werden sie durch eine feine Düse in die Vorkammer geleitet. Dort geschieht eine Überschallexpansion: In einem kleinen Bereich in der Mitte des Strahls, der Zone of Silence, besitzen die Moleküle Energie fast nur in gerichteter kinetischer Form. Durch einen Skimmer kann man diese Teilchen aus dem umgebenden Strahl in die nächste Vakuumkammer einlassen, noch etwas kollimieren und schließlich mit dem Photonenstrahl kreuzen [Web03, S.138-145].

Um später die Startimpulse der Fragmente der Photodoppelionisation zu berechnen, muss man die Geschwindigkeit des Gasjets kennen. Da er nur kinetische Energie besitzt, die sich aus der vorherigen ungerichteten Bewegung der Gasteilchen ergibt (die  $f=3+2$  Freiheitsgrade für Translation und Rotation haben), bekommt man aus dem Energieerhaltungssatz die Geschwindigkeit der Moleküle  $v_{jet}$  vor der Reaktion <sup>2</sup>:

$$\frac{1}{2}mv_{jet}^2 = \frac{5}{2}k_B T_0 \Leftrightarrow v_{jet} = \sqrt{\frac{5k_B T_0}{m}} \quad (3.1)$$

### 3.6 Der Photonenstrahl

Um die Moleküle zu ionisieren, werden Photonen als Projektile verwendet. Diese wurden am Lawrence Berkeley National Laboratory (Berkeley Lab; Berkeley, Kalifornien) in der Advanced Light Source (ALS) erzeugt. Hierbei handelt es sich um ein Synchrotron mit 196.8 m Umfang, einen Speicherring in dem Elektronen auf Kreisbahnen beschleunigt werden und dabei elektromagnetische Strahlung abgeben.

Neben Beschleuniger- und Ablenkmagneten, die die Elektronen auf ihrer Bahn halten, gibt es in der ALS Wiggler und Undulatoren, die die Intensität der abgegebenen Strahlung erhöhen. Wenn geladene Teilchen beschleunigt werden und ihre vektorielle Geschwindigkeit ändern, strahlen sie Photonen tangential zu ihrer Bewegungsrichtung ab. Diese Beschleunigungs- oder Bremsstrahlung wird durch zusätzliche Ablenkmagnete in geschickter Anordnung verstärkt.

Wiggler bestehen aus mehreren bipolaren entgegengesetzt angeordneten Magneten, die die Elektronen zur Oszillation zwingen. Bei jedem Richtungswechsel, d.h. zwei Mal pro Schwingungsperiode, strahlen sie Photonen ab. Daher ist die Intensität der ausgesendeten elektromagnetischen Strahlung pro Wiggler  $2n$ -Mal (mit  $n$  = Anzahl der Magnete) so groß wie beim normalen Ablenkmagneten.

<sup>2</sup>Die Boltzmann-Konstante ist eine Naturkonstante:  $k_B = 1,3806504 \cdot 10^{-23} \frac{\text{J}}{\text{K}} = 8,617343 \cdot 10^{-5} \frac{\text{eV}}{\text{K}}$

Bei diesem Experiment, das an der Beamline 10.0.1 der ALS gemessen wurde, stand sogar ein *Undulator* zur Verfügung. Diese sind genau so aufgebaut wie Wiggler, haben allerdings ein geringeres Ablenkmagnetfeld. Die Elektronen oszillieren dadurch mit kleinerer Amplitude und es kommt durch kohärente Überlagerung der Photonen zu einer Intensitätsverstärkung proportional zu  $n^2$ .

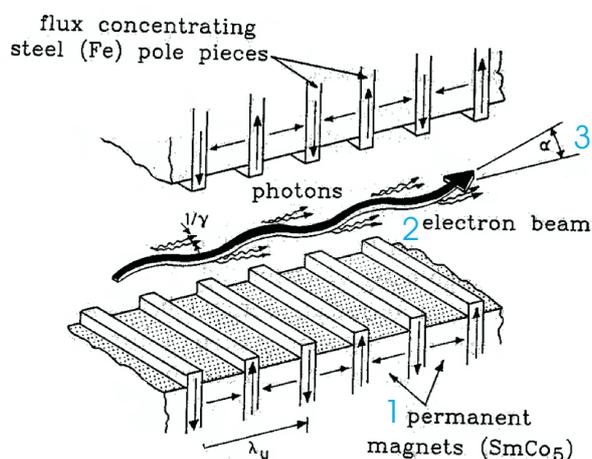


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung eines Undulators aus [Dör08]: 1. Anordnung der Magnete, 2. Elektronenstrahl, 3. Strahlungskeule der ausgesendeten Photonen.

Da es beim Experiment wichtig ist, jedes Ereignis genau einem Lichtblitz zuzuordnen, müssen die Elektronenpakete, die beim Kreisen durch das Synchrotron Photonen aussenden, weit genug voneinander entfernt sein. Um dies sicherzustellen wurde an der ALS im Two-Bunch Mode gemessen. Dabei befinden sich immer zwei Elektronenpakete gleichzeitig im Ring, die einen zeitlichen Abstand von 328ns haben. Relativ zum Bunchmarkersignal (was den Zeitpunkt des Eintreffens der Photonen kurz vor dem Experiment anzeigt) kann man die Flugzeiten der Ionen und Elektronen bis zum Detektor messen.

### 3.7 Das Spektrometer

Das Impulsspektrometer sorgt für die Trennung von Ionen und Elektronen und die Abbildung der beiden dreidimensionalen Impulsräume auf zwei kreisscheibenförmige Detektoren, so dass alle bei der Reaktion entstandenen Teilchen nachgewiesen werden können.

Es besteht aus mehreren Kupferplattenebenen hintereinander, die über Widerstände miteinander verbunden sind. Zwischen den beiden Enden des Spektrometers kann man eine Spannung anlegen, so dass es innerhalb der Reaktionszone ein homogenes elektrisches Absaugfeld gibt. Die Elektronen werden auf einen Elektronendetektor geleitet, die Rückstoßionen (Recoils) werden in die entgegengesetzte Richtung erst beschleunigt und durchlaufen danach eine Driftstrecke (ohne elektrisches Feld) bis zum Recoildetektor.

Damit auch die Ionen der Moleküle, die senkrecht zur Flugzeitrichtung coulombexplodieren, auf dem Detektor auftreffen und man gleichzeitig maximale Auflösung bekommt, d.h. der komplette Detektor genutzt wird, haben wir ein elektrisches Feld von 91.4 V/cm angelegt. Neben den Ionen sollten außerdem die wesentlich leichteren Elektronen auf dem Elektronendetektor nachgewiesen werden. Das dazu angelegte magnetische Feld betrug 11 Gauss.

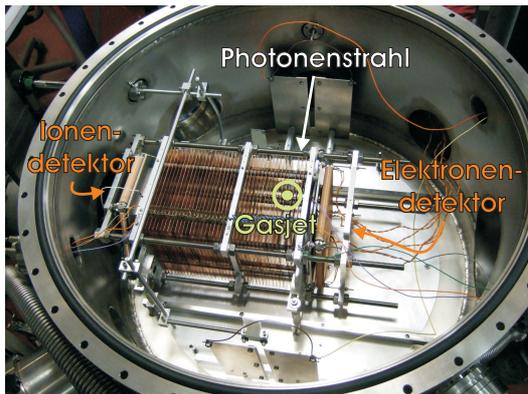


Abbildung 3.6: Blick von oben auf das Spektrometer mit Detektoren in der Experimentierkammer

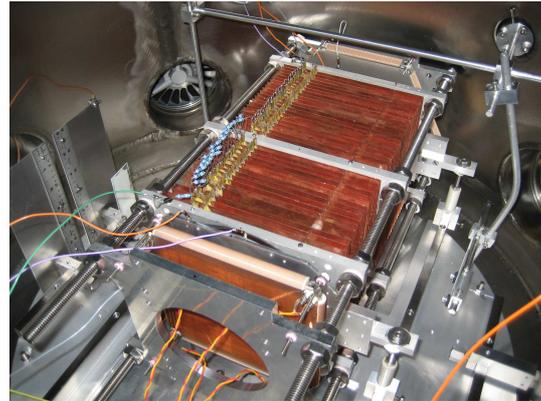


Abbildung 3.7: Das Spektrometer

### 3.7.1 Flugzeitfokussierung

Die Flugzeiten der Rückstoßionen enthalten die komplette Information über deren Startimpuls in  $z$ -Richtung. Sie hängen ab von der Beschleunigungsstrecke  $z_B$ , der Driftstrecke  $z_D$ , dem elektrischen Feld  $\vec{E}$ , der Masse  $m$  und der Ladung  $q$  der Teilchen. Da der Gasjet aber eine endliche Breite hat, kommt es zu Ungenauigkeiten im Startort der Ionen, die man mit einer flugzeitfokussierenden Spektrometergeometrie minimieren kann.

Es wird die Länge der Driftstrecke berechnet, indem man die Flugzeitdifferenz pro Startortdifferenz der Ionen in erster Ordnung minimiert [Ach99, S.65-66]:

$$\frac{\partial(\text{tof})}{\partial(z_D)} \stackrel{!}{=} 0 \quad (3.2)$$

Die Gesamtflugzeit kann man über elementare Gleichungen der Mechanik ([Nol05]) berechnen, wenn man den Startimpuls  $p_0$  kennt [Tit04, S.52-54]:

$$\text{tof} = \frac{-p_0 + \sqrt{p_0^2 + 2 z_B q m |\vec{E}|}}{q |\vec{E}|} + \frac{m z_D}{\sqrt{p_0^2 + 2 q m |\vec{E}| z_B}} \quad (3.3)$$

Aus Gleichungen (3.2) und (3.3) erhält man die Bedingung, dass die Driftstrecke doppelt so groß sein muss wie die Beschleunigungsstrecke:  $z_D = 2 z_B$ . (Das verwendete Spektrometer hatte die Maße  $z_D = 14,37\text{cm}$  und  $z_B = 7,24\text{cm}$ ).

## 3.8 Die Detektoren

Während die Messung der Flugzeit zur Bestimmung des Startimpulses der Ionen in  $z$ -Richtung dient, erhält man durch die Messung des Auftrefforts auf dem Recoil-Detektor (blauer Detektor in Abb. 3.1) die Startimpulse in  $x$ - und  $y$ -Richtung. Der Detektor besteht aus zwei Vielkanalplatten (engl. Multi Channel Plates, *MCP*) und einer direkt dahinter befestigten *Delayline-Anode*, die eine quadratische (Quad-Anode) oder die hier verwendete hexagonale Form (Hexanode) haben kann. 2mm vor dem MCP befindet sich noch ein auf negative Spannung gesetztes Gitter, was die Ionen nachbeschleunigt und das Feld des Spektrometers gegen die hohe an dem MCP anliegenden Spannung abschirmt.

Ein **MCP** ist eine etwa 1mm dicke Glasplatte mit einem Durchmesser von (in diesem Experiment) 80mm, durch die feine Kanäle von 10 Mikrometern Durchmesser laufen, die mit einem Material mit geringer

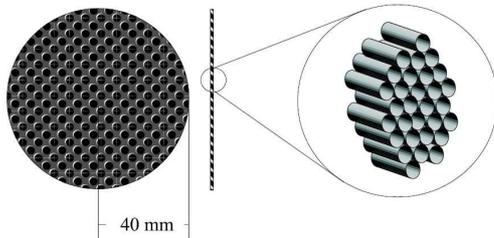


Abbildung 3.8: Skizze eines Multi Channel Plates aus [Web03]



Abbildung 3.9: Die Hexanode (aus [Roe08])

Auslösearbeit für Elektronen beschichtet sind. Zwischen Vorder- und Rückseite der Vielkanalplatten liegt eine hohe Spannungsdifferenz an.

Trifft nun ein Ion auf die Wand eines Kanals, so löst es dort Elektronen aus, die zur Rückseite des MCPs beschleunigt werden und auf ihrem Weg bei jedem Stoß gegen die Wand weitere Elektronen mitreißen. So kommt es dazu, dass eine ganze Lawine von bis etwa  $10^3$  Elektronen pro Platte entsteht, die groß genug ist, um von einer Delayline-Anode (hier Hexanode) registriert werden zu können.

Die **Hexanode** besteht aus sechs Kupferdrähten, die auf einem isolierenden Rahmen zu drei um  $60^\circ$  gegeneinander gedrehten Ebenen aufgewickelt sind (siehe auch [Roe08]). Trifft eine Elektronenlawine auf die Anode, so erzeugt sie einen elektrischen Puls, der sich auf den Drähten ausbreitet. Aus der Laufzeit, die der Puls bis zu den Drahtenden benötigt, kann man auf seinen Startort und damit den Auftreffort des Teilchens auf dem Detektor schließen.

Jede Ebene besteht aus zwei Drähten, die auf einem positiveren Potential als die MCP-Rückseite liegen, damit die Elektronenlawine in Richtung Anode beschleunigt wird. Ein Draht pro Ebene dient zur Weiterleitung des Signals und der andere, auf dem etwas weniger Spannung anliegt, als Referenz. Er ist nützlich zur Reinigung des Signals von Untergrund- und Störsignalen.

Der Elektronendetektor ist ähnlich aufgebaut wie der Ionendetektor, hat allerdings einen Durchmesser von 120mm und eine Quad-Anode, die nur aus zwei Kupferdrahtebenen besteht.

### 3.9 Die Datenaufnahme

Um die gemessenen analogen Signale in aufnehmbare digitale Zeiten umzuwandeln, benötigt man einige Elektronikmodule. Die ankommenden Pulse sind anfangs noch sehr klein und werden deshalb zunächst mit schnellen Vorverstärkern (**Fast Amplifier**) verstärkt. Danach werden sie von einem **Constant Fraction Discriminator** (CFD, Proportionaldiskriminator) in ein logisches Signal nach NIM-Standard umgewandelt und mit einem **Time to Digital Converter** (TDC) in Zeiten umgerechnet. Diese werden dann mit dem Computer aufgenommen ([Hav06, S.20-22]) und als Listmode Files gespeichert. Da nicht nur die Ereignisse, die tatsächlich ausgewertet werden sollen, sondern auch viele Untergrundeffekte von den Detektoren registriert werden, sorgt eine Koinzidenzlogik schon bei der Datenaufnahme dafür, dass nur Ereignisse gespeichert werden, bei denen in einem kleinen Zeitfenster mindestens zwei Ionen und ein Elektron detektiert wurden.



# Kapitel 4

## Datenauswertung

Nachdem man verschiedene Auftreffzeiten und -Orte von Ionen und Elektronen auf dem Detektor gemessen hat, möchte man daraus Impulse und Energien berechnen. Dazu sind einige Eichungen nötig, da es z.B. sein kann, dass der Detektor nicht genau parallel zur z-Achse steht. Ereignisse, die gemessen wurden, aber nicht mit in die Auswertung einfließen sollen -wie z.B. Einfachionisation der Moleküle- müssen aussortiert werden.

Die Messdaten des Elektronendetektors werden nur zur Kalibration und zum Triggern verwendet, die später interessanten Elektronenimpulse werden über den Impulserhaltungssatz aus den Daten der Rückstoßionen berechnet.

Die Auswertung der Messdaten geschieht am Computer mit Hilfe der Programmiersprache C++ und die Grafiken werden mit **ROOT**, einer am CERN entwickelten Software für große Datenmengen [ROO08], erstellt. Außerdem wurde das in der Arbeitsgruppe übliche Programm *LMF2root* mit einigen für die Auswertung von COLTRIMS-Daten geeigneten Routinen [CJF08] verwendet.

### 4.1 Die Kalibration

#### 4.1.1 Der Zeitnullpunkt

Da man wissen möchte, wie lange die Ionen im Spektrometer waren, bevor sie auf dem Detektor aufgetroffen sind, benötigt man den Zeitnullpunkt, also den Zeitpunkt der Ionisation. Leider kennt man alle Zeiten aber nur relativ zum Bunchmarkersignal, das das Eintreffen eines Photonenbündels vor dem Experiment ankündigt. Des Weiteren haben die verwendeten Kabel eine endliche Länge, so dass die Detektorsignale zeitverzögert aufgenommen werden.

Die Eichung kann man mit Hilfe eines „Wiggle-Spektrums“ durchführen, bei dem man sich die Flugzeit der Elektronen in Abhängigkeit von ihrer radialen Auslenkung beim Auftreffen auf dem Detektor anschaut. Sie bewegen sich im Spektrometer auf Spiralbahnen um den magnetischen Feldvektor. Nach jedem ganzzahligen Vielfachen der Gyrationperiode kommen sie wieder an ihrem Startort in der xy-Ebene an und man sieht im Spektrum eine Nullstelle. Kennt man die erste Nullstelle ( $t_1$ ) und die Gyrationperiode  $\Delta t$  (den Abstand zwischen zwei Nullstellen), so kann man den Zeitnullpunkt ( $t_0$ , die nullte Nullstelle) berechnen:

$$t_0 = t_1 - \Delta t \quad (4.1)$$

Bei dieser Messung ist  $t_0 = 32\text{ns} - 138\text{ns} = -106\text{ns}$ . Zieht man von allen zum jeweiligen Buchmarker gemessenen relativen Zeiten  $106\text{ns}$  ab, so bekommt man die absoluten Zeiten, mit denen weitergerechnet wird. (Das magnetische Feld beträgt etwa 11 Gauß, ist aber hier nicht weiter von Bedeutung.)

### 4.1.2 Der Detektor

Da das gemessene Ortsbild gestreckt oder gestaucht sein kann, muss man den x- oder y-Ort eventuell mit einem Korrekturfaktor versehen. Dazu trägt man die x- und y- Auftrefforte gegeneinander auf und modifiziert beide Werte so lange, bis das Bild die Maße des tatsächlichen Detektors zeigt. (Die x- und y-Korrekturstreckfaktoren zu den Daten dieses Experiments sind beide 0,965.)

Auch ist es selten der Fall, dass der Nullpunkt des Detektors genau auf dem Nullpunkt der Physik liegt. Das als Korrektur zu addierende x- bzw. y-Offset erhält man, indem man sich die Summe der Impulse der beiden Ionen anschaut. Der Summenimpuls muss in allen Richtungen symmetrisch um 0 sein. Die Offsets bei den gemessenen Daten sind:  $x_{off}=1,15\text{mm}$  und  $y_{off}=2,75\text{mm}$ .

Oft passiert es, dass der Detektor nicht parallel zur Strahl-Jet-Ebene in der Vakuumkammer ausgerichtet ist, sondern leicht gekippt steht. Dies erkennt man, indem man die Flugzeit der Ionen gegen den Detektorort aufträgt. Brauchen die Teilchen länger bis zur einen Seite der Hexanode als zur anderen, so sieht man im Grafen keine Parallele zur Ortsachse, sondern eine Gerade mit endlicher Steigung. Bei diesem Experiment war keine Korrektur dieser Art nötig, da der Detektor schon nahezu parallel zur genannten Ebene stand.

### 4.1.3 Das elektrische Feld

Obwohl wir die Spannung am Spektrometer mit Multimetern gemessen haben, ergeben sich doch kleine Ungenauigkeiten, die eine weitere Eichung des elektrischen Feldes erfordern. Da Impulserhaltung auch in z-Richtung gelten muss, muss der Summenimpuls  $p_{sum}^{\vec{}}$  der beiden Ionen in Flugzeitrichtung Peaks um Null herum aufweisen, aber nicht immer gleich Null sein (siehe Abb. 4.1).

$$p_{sum}^{\vec{}} = \vec{p}_1 + \vec{p}_2 \quad (4.2)$$

Dies lässt in unserem Fall auf ein elektrisches Feld von  $91.4 \frac{\text{V}}{\text{cm}}$  schließen.

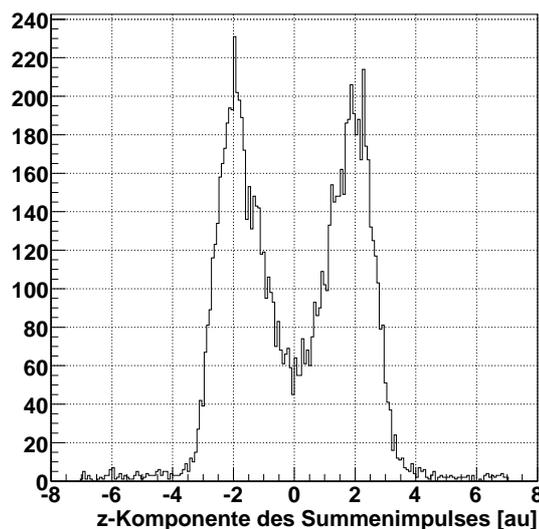


Abbildung 4.1: Die z-Komponente des Summenimpulses der Rückstoßionen bei der Photodoppelionisation von  $\text{H}_2$  muss wegen Impulserhaltung im Mittel 0 ergeben. Man erkennt die dem Molekül durch die lineare Polarisation des Lichts aufgezwungene Dipolverteilung. (Dieses Spektrum hat schon eine Bedingung auf dem KER, siehe Abschnitt 4.3.)

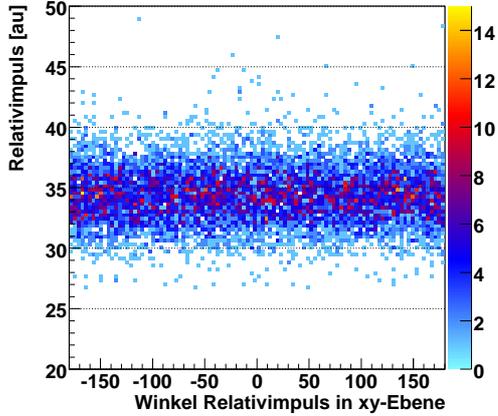


Abbildung 4.2: Der Betrag des Relativimpulses ist unabhängig von seinem Winkel in der Detektorebene. Deshalb erkennt man eine Parallele zur  $xy$ -Achse.

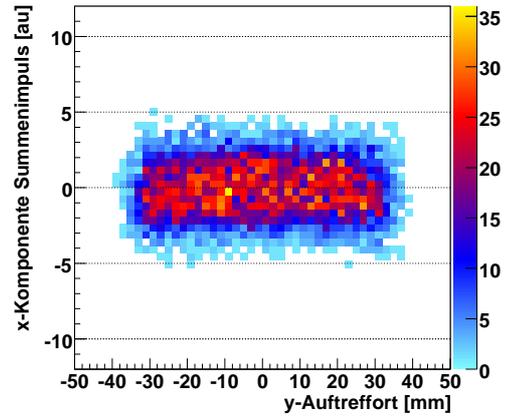


Abbildung 4.3: Auch die  $x$ -Komponente des Summenimpulses muss unabhängig von der  $y$ -Komponente des Auftrefforts des ersten Rückstoßions auf dem Detektor sein.

Um ein letztes Mal zu überprüfen, ob man den Detektor und das elektrische Feld richtig kalibriert hat, kann man sich weitere triviale Spektren anschauen (z.B. Abbildungen 4.2 und 4.3).

Die Photonenenergie von 160eV muss nicht weiter korrigiert werden, da eine Kalibration nach der in [Web03, S.194] beschriebenen Methode an der Beamline 10.0.1 der ALS lediglich einen Energieoffset von 100meV ergab.

## 4.2 Die Berechnung der Impulse und Energien

Zuerst muss man aus den *gemessenen* Flugzeiten die *absoluten* Flugzeiten der Ionen berechnen. Außerdem kann man aus den Laufzeitunterschieden der Elektronenpulse durch die Hexanodenlayer des Ionendetektors den Auftreffort berechnen (siehe dazu auch [Jah05, S.82-85]). Die Startimpulse der Ionen in  $z$ -Richtung kann man mit Hilfe der Bewegungsgleichungen der Mechanik [Nol05] für den freien Fall und der Kenntnis der Spektrometerabmessungen (Abb. 3.2) rekonstruieren. Man erhält folgende Gleichung für die Gesamtflugzeit (wobei  $a = q|\vec{E}|/m$  die Beschleunigung durch das elektrische Feld angibt):

$$tof = -\frac{v_{0z}}{a} + \frac{1}{a} \sqrt{v_{0z}^2 + 2z_B a} + \frac{z_D}{\sqrt{v_{0z}^2 + 2z_B a}}, \quad (4.3)$$

die man numerisch nach  $v_{0z}$  auflösen und dann den Startimpuls der Ionen in  $z$ -Richtung berechnen kann:

$$p_z = m v_{0z}. \quad (4.4)$$

In der  $xy$ -Ebene handelt es sich um eine gleichförmige Bewegung (siehe auch [Jah05, S.87,88]):

$$p_x = m \frac{x}{tof} \quad (4.5)$$

$$p_y = m \frac{y}{tof}, \quad (4.6)$$

wobei  $m$  die Masse und  $x$  bzw.  $y$  die Auftreffkoordinaten der Ionen auf dem Detektor sind.

Da uns neben den Impulsen an sich auch die Impulse der Ionen zueinander interessieren, ist es wichtig, die Relativimpulse -die mittleren Impulse pro Ion- zu kennen:

$$\vec{p}_{rel} = \frac{\vec{p}_1 - \vec{p}_2}{2} \quad (4.7)$$

Im Schwerpunktsystem gilt dann  $\vec{p}_{rel} = \vec{p}_1 = -\vec{p}_2$ .

Da sich die beiden Ionen abstoßen, wird die potentielle Energie der beiden Atomkerne in kinetische Energie, den KER (**K**inetic **E**nergy **R**elease, mittlere kinetische Energie der Ionen im Schwerpunktsystem), umgewandelt:

$$E_{KER} = \frac{|\vec{p}_{rel}|^2}{2\mu} \quad (4.8)$$

mit der reduzierten Masse  $\mu = \frac{m_{Ion1} \cdot m_{Ion2}}{m_{Ion1} + m_{Ion2}}$ . Da dieses Experiment mit homonuklearen Molekülen durchgeführt wurde, sind beide Ionenmassen gleich ( $m_{Ion1} = m_{Ion2} = m$ ) und es ergibt sich

$$E_{KER} = \frac{|\vec{p}_{rel}|^2}{m} \quad (4.9)$$

### 4.3 Das Aussortieren von falschen Koinzidenzen

Bereits bei der Datenaufnahme wurden viele uninteressanten Ereignisse aussortiert, indem nur die Events gespeichert wurden, bei denen in einem passenden Zeitraum mindestens zwei Ionen und ein Elektron gemessen werden konnten. Leider befinden sich in den Rohdaten noch Untergrundereignisse und zufällige Koinzidenzen, die man zusätzlich aussortieren muss. Dazu nutzt man bereits bekannte physikalische Kenntnisse über die Photo-Doppelionisation von Wasserstoff und Deuterium aus. Zunächst schaut man sich das **PhotoIon-PhotoIon-CO**incidence-Spektrum (das sogenannte **PIPICO**-Spektrum) an, in dem die Flugzeiten beider Ionen gegeneinander aufgetragen sind (siehe Abb. 4.4). Die Flugzeit des zweiten Ions ist per Konvention immer größer als die des ersten Ions, da das zuerst detektierte Teilchen die Nummer „Eins“ bekommt. Deshalb befinden sich alle Datenpunkte oberhalb von der ersten Winkelhalbierenden. Kennt man die Abmessungen des Spektrometers, die Ladungen und Massen der Ionen und die Stärke des elektrischen Feldes, so kann man die Flugzeiten durch Kombination von einfachen Gleichungen aus der Mechanik [Nol05] abschätzen. Für  $H_2$  erwartet man Flugzeiten beider Ionen von etwa 800ns, für  $D_2$  von etwa 1100-1200ns (siehe Abb. 4.5).

Außerdem ist nach [Web03, S.225] die Flugzeit des zweiten Ions näherungsweise antiproportional zur Flugzeit des ersten Ions. Man kann die Menge der physikalisch uninteressanten Daten reduzieren, indem man einen Bereich des Spektrums um die Linie, die sich theoretisch ergibt, herum ausschneidet (siehe Abb. 4.6).

Es muss Impulserhaltung in  $x$ -,  $y$ -, und  $z$ -Richtung gelten, was zu einer weiteren Einschränkung der brauchbaren Datenmenge führt (vgl. Abb. 4.8 mit Abb. 4.9). Auch beträgt der Abstand der beiden Atome im Molekül im Mittel etwa  $0,74\text{\AA}$ , was einem KER von  $19,4\text{eV}$  entspricht. Deshalb kann man alle Ereignisse, deren KER  $<10,5\text{eV}$  ist, ebenfalls aussortieren (siehe Abb. 4.7).

Einen weiteren Teil der Untergrundereignisse verwirft man, indem man noch eine Bedingung auf den Summenimpuls der beiden Ionen setzt (Abb. 4.10). Der Summenimpuls der Ionen ist der negative von den Elektronen aufgenommene Impuls.

$$\vec{p}_{sum} = -(\vec{p}_{e1} + \vec{p}_{e2}) \quad (4.10)$$

### Das PIPICO-Spektrum der Photodoppelionisation von $H_2$ :

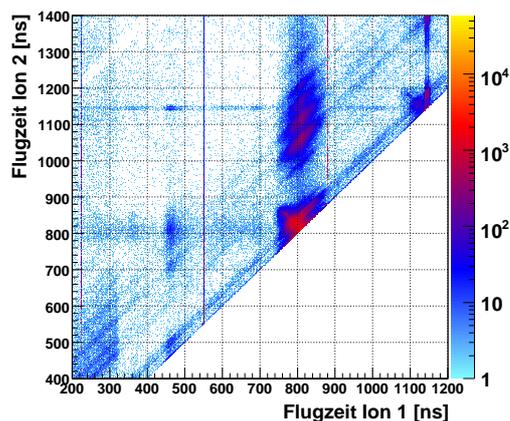


Abbildung 4.4: Die Flugzeiten der beiden Rückstoßionen aller aufgenommenen Ereignisse gegeneinander aufgetragen

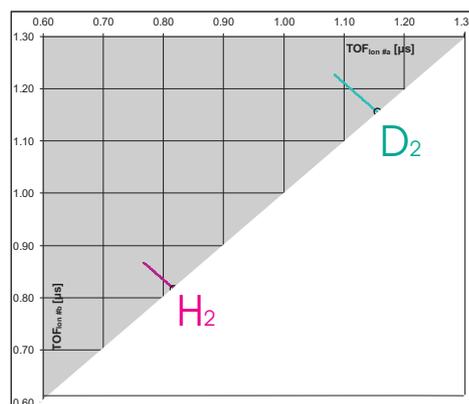


Abbildung 4.5: Theoretisch berechnetes PIPICO-Spektrum [Sch08] mit dem von Markus Schöffler programmierten „Coltrims.xls“

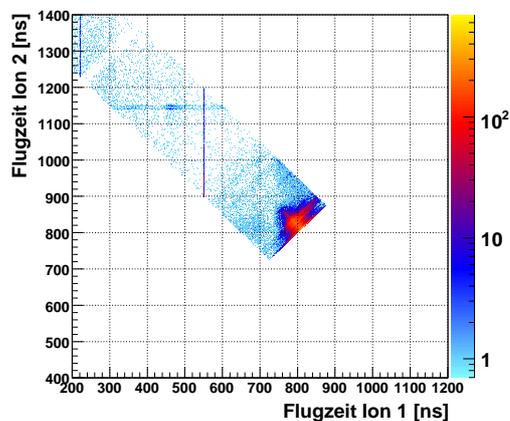


Abbildung 4.6: Der relevante Teil des Spektrums

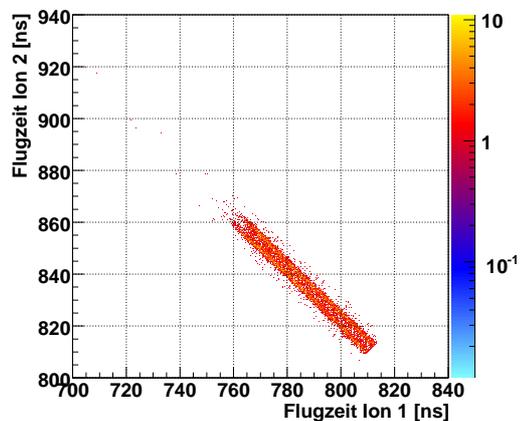


Abbildung 4.7: Die physikalisch wichtigen Ereignisse: Das PIPICO-Spektrum mit einer Bedingung auf dem KER und der Forderung nach Impulserhaltung

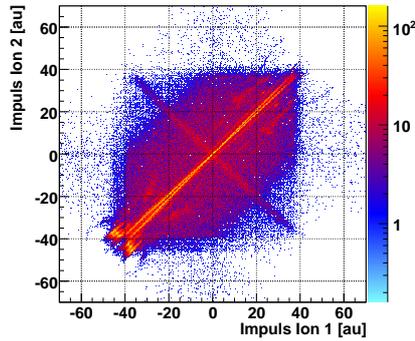


Abbildung 4.8: Die Verteilung der Impulse der Rückstoßionen in  $x$ -Richtung ( $H_2$ )

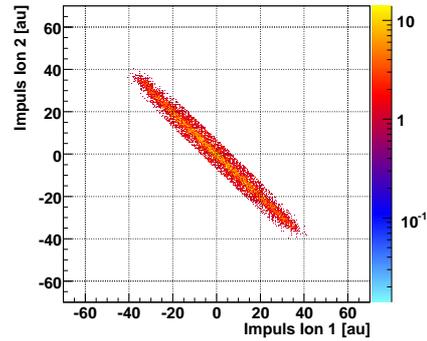


Abbildung 4.9: Impulse der Rückstoßionen in  $x$ -Richtung mit Forderung nach Impulserhaltung

Er ist dann maximal, wenn beide Elektronen den Molekülverband mit gleicher Energie parallel zueinander verlassen.

$$p_{sum,max} = \sqrt{2m \cdot \frac{E_e}{2}} + \sqrt{2m \cdot \frac{E_e}{2}} = 2 \cdot \sqrt{mE_e}, \text{ wobei} \quad (4.11)$$

$$E_{e1,2} = \frac{p_{e1,2}^2}{2m} \Leftrightarrow p_{e1,2} = \sqrt{2mE_{e1,2}}, \quad (4.12)$$

und minimal, nämlich 0, wenn beide Impulse genau antiparallel sind. Im Mittel beträgt er 2,83au (für  $H_2$ ) bzw. 4,00au (für  $D_2$ ).

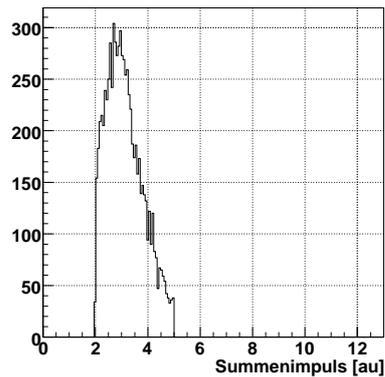


Abbildung 4.10: Summe der Impulse der beiden Rückstoßionen (Photodoppelionisation von  $H_2$ ), wobei nur die Ereignisse ausgewertet sind, bei denen der Summenimpuls zwischen 2 und 5 a.u. liegt.

## Kapitel 5

# Ergebnisse und Vergleich mit der Theorie

Wenn man schließlich den Detektor kalibriert und alle uninteressanten zufälligen Koinzidenzen aussortiert hat, kann man sich die physikalisch interessanten Histogramme anschauen und diese auswerten.

### 5.1 Isotopeneffekt im KER

Der KER -die kinetische Energie der Rückstoßionen im Schwerpunktsystem- lässt sich über Gleichung 4.9 aus den gemessenen Daten berechnen und ist in Abbildung 5.1 grafisch dargestellt.

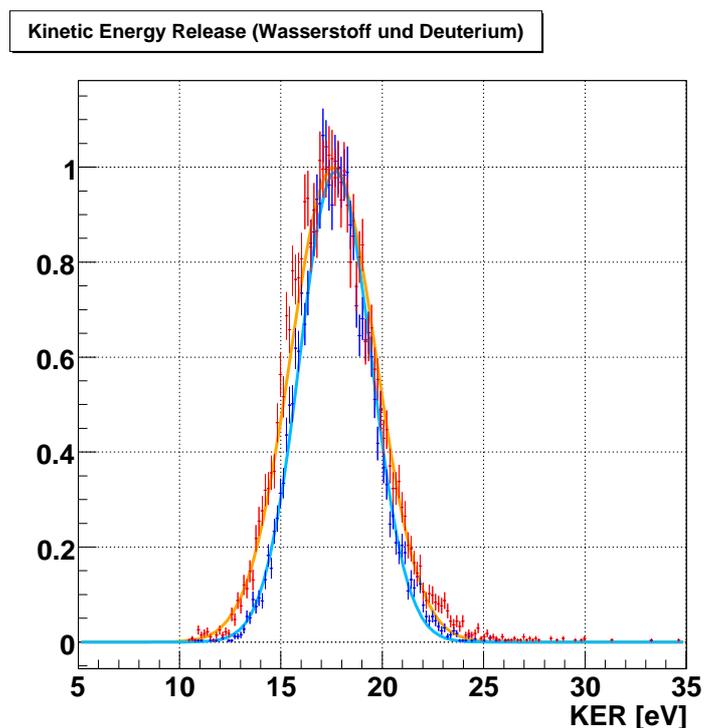


Abbildung 5.1: KER von H<sub>2</sub> (rot) und D<sub>2</sub> (blau): Daten mit Fehlerbalken, angenähert durch Gaußkurven, normiert auf ein Maximum von 1.

Man erkennt die nach Abb. 2.4 zu erwartende gaußförmige Verteilung.

Außerdem sind die beiden Kurven unterschiedlich breit. Die volle Breite auf halber Höhe (fwhm) beträgt

bei  $H_2$  5,02eV, bei  $D_2$  nur 4,14eV. Experimentell erhält man somit etwa

$$fwhm_{[KER,exp]}(H_2) = 1,21 \cdot fwhm_{[KER,exp]}(D_2). \quad (5.1)$$

Vergleicht man mit der in Abschnitt 2.1 eingeführten theoretischen Beschreibung der Verteilung des KERs durch das Potential eines harmonischen Oszillators, so ist die Breite nach Gleichung 2.2 antiproportional zur Wurzel der Masse der Rückstoßionen. Man erwartet daher theoretisch

$$fwhm_{[KER,theo]}(H_2) \approx \sqrt{2} \cdot fwhm_{[KER,theo]}(D_2) \approx 1,41 \cdot fwhm_{[KER,theo]}(D_2). \quad (5.2)$$

Neben der Breite der Verteilungen beschreiben die theoretisch berechneten Maxima des KERs (Abschnitt 2.1.2) von 19,42eV für  $H_2$  und  $D_2$  auch näherungsweise die experimentell bestimmten: 17,44eV bei  $H_2$  und 17,59eV bei  $D_2$ . (Ein kleiner systematischer Fehler ist hier möglich, da mit keiner Referenzmessung verglichen wurde.)

## 5.2 Winkelverteilung der Photoelektronen

Wie in Kapitel 2 beschrieben, ist es zur Untersuchung der Interferenzerscheinungen des ionisierten Systems hinreichend, sich den von beiden Elektronen auf das Molekül übertragenen Impuls anzuschauen. Anschaulich fasst man hierbei beide Elektronen zu *einem* Teilchen, dem sogenannten „Dielektron“, zusammen und schaut sich dessen Winkelverteilung an.

### 5.2.1 Festlegung der Koordinaten

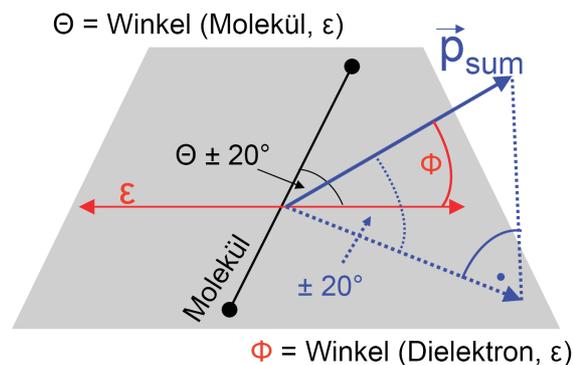


Abbildung 5.2: Definition der Koordinaten des Systems ( $\vec{p}_{sum}$  ist der Impuls des Dielektrons,  $\epsilon$  der Polarisationsvektor des Lichts)

Die Referenzgröße von vielen folgenden Grafen und Bildern ist der Polarisationsvektor des Lichts ( $\epsilon$ ). Er definiert die horizontale Achse der Polardarstellungen. Den Winkel zwischen ihm und der Molekülachse bezeichnen wir mit  $\theta$ , zwischen ihm und dem Impulsvektor des Dielektrons mit  $\phi$ .

Da die Winkelverteilung des Dielektrons in der von Lichtvektor und Molekülachse definierten Ebene am interessantesten ist, schauen wir uns theoretisch auch nur solche Ereignisse an, bei denen dieser Impulsvektor in genannter Ebenen liegt. Experimentell betrachten wir nur alle Ereignisse, bei denen das Dielektron das Molekül in einem Winkel von  $0^\circ \pm 20^\circ$  zur Ebene verlässt.

### 5.2.2 Messung und Theorie

Mit Hilfe der experimentellen Daten soll die in Abschnitt 2.4 beschriebene theoretische Vorhersage überprüft werden. Dazu interessiert uns die von den Winkeln  $\theta$  und  $\phi$  abhängige Intensitätsverteilung der Photoelektronen. In Abb. 5.3 ( $H_2$ ) und 5.4 ( $D_2$ ) sind die experimentell gemessenen und in Abb. 5.5 und 5.6 die theoretisch nach Gleichung 2.15 berechneten Winkelverteilungen grafisch dargestellt. Je mehr Photoelektronen unter den aufgetragenen Winkeln emittiert wurden, desto gelber ist der Farbton im Histogramm.

Wie erwartet erkennt man keine isotropen sondern stark von  $\theta$  (Winkel(Molekülachse - Polarisationsvektor)) und  $\phi$  (Winkel(Elektronenimpuls - Molekül)) abhängigen Verteilungen. (Die geringe Intensität bei  $\theta=0^\circ$  ist die Folge einer dort verschwindenden Jacobideterminante, die man zur Integration benötigt. Trägt man statt dem Winkel selbst seinen Kosinus auf, so verschwindet das künstliche Minimum und man erhält in etwa die gleiche Verteilung wie für  $\theta=90^\circ$ , allerdings um  $\Delta\phi=90^\circ$  verschoben.)

#### Die Winkelverteilung des Dielektrons bei der Photodoppelionisation:

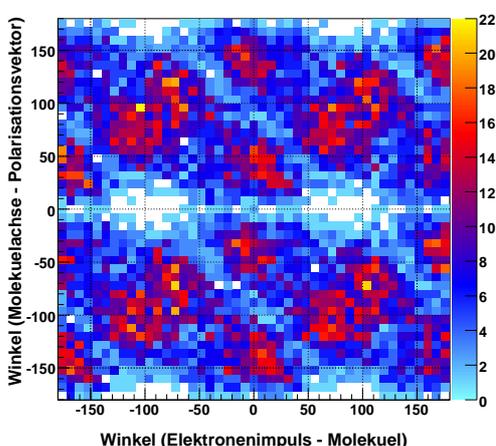


Abbildung 5.3: gemessene Verteilung von  $H_2$

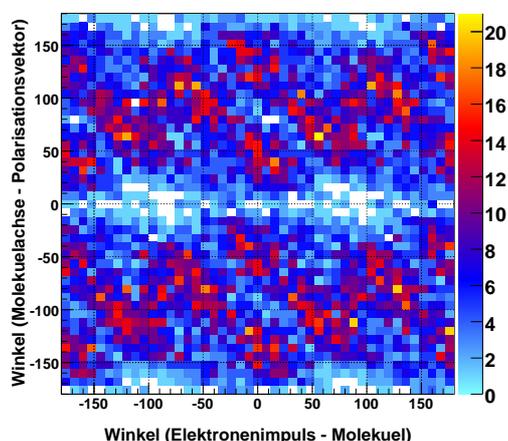


Abbildung 5.4: gemessene Verteilung von  $D_2$

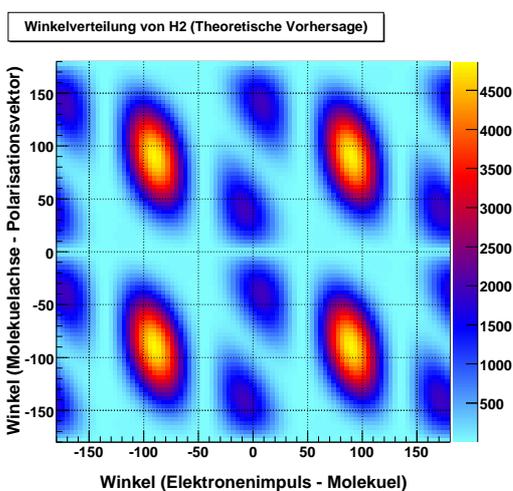


Abbildung 5.5: Nach Gleichung 2.15 berechnete Verteilung für  $H_2$

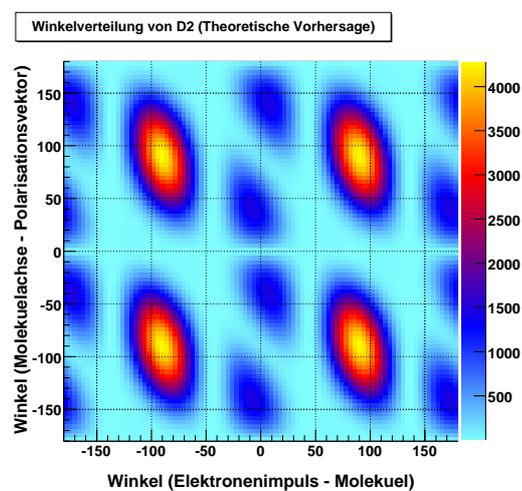


Abbildung 5.6: Nach Gleichung 2.15 berechnete Verteilung für  $D_2$

Man erkennt in den Abbildungen 5.3 - 5.6 bereits Unterschiede zwischen Wasserstoff und Deuterium. Bessere Vergleichsmöglichkeiten erhält man jedoch, wenn man sich Projektionen der Bilder auf die horizontale Achse für verschiedene  $\theta$ -Winkel anschaut. Auch kann man so Theorie und Experiment vergleichen.

Damit man eine bessere Statistik erhält und da Molekül und Polarisationsvektor des Lichts beide punktsymmetrisch sind, sind alle Ereignisse für die Projektionsbilder (Abb. 5.9 - 5.11) zusätzlich am Ursprung gespiegelt.

Die Entstehung dieser Projektionen kann man sich als Überlagerungen der durch das Molekül und den elektrischen Feldvektor der Photonen vorgegebenen Winkelverteilungen vorstellen. Dazu erhält man für das Licht nach Gleichung 2.9 mit  $\beta = 1.8$  nahezu eine Dipolverteilung (Abb. 5.7) und für das Molekül eine nach Gleichung 2.8 zu  $\cos^2(\vec{k}\frac{\vec{R}}{2})$  proportionale Verteilung (Abb. 5.8). In einem einfachen Modell führt die Multiplikation beider Bilder (wobei das Molekülbild jeweils um den Winkel  $\theta$  im Uhrzeigersinn gedreht werden muss) zur Form der Winkelverteilung.

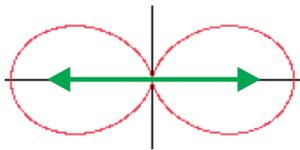


Abbildung 5.7: *theoretische Winkelverteilung, vorgegeben durch den Polarisationsvektor des Lichts (grün).*

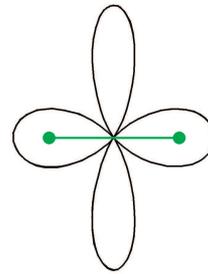


Abbildung 5.8: *theoretische Winkelverteilung, vorgegeben durch ein Molekül (grün).*

### Projektionen für $\theta = 0^\circ$

Wenn die Molekülachse parallel zum Polarisationsvektor des Lichts steht, bekommt man durch Multiplikation der Bilder 5.7 und 5.8 näherungsweise nur die beiden zur Molekülachse parallelen „Öhrchen“ aus Abbildung 5.8.

Die in Abbildung 5.9 gemessenen Verteilungen für Wasserstoff und Deuterium (A und B) sind in etwa die gleichen wie die theoretisch berechneten (C und D). Die kleinen Maxima für  $\phi=90^\circ$  und  $\phi=270^\circ$  kann man in den experimentellen Daten allerdings nicht erkennen. Das kann entweder daran liegen, dass es sie nicht gibt, oder, dass die Auflösung zu schlecht ist. Auch die großen Maxima für  $\phi=0^\circ$  und  $\phi=180^\circ$  und die dazwischen liegenden Minima sind etwas verschwommen, da der Winkel zwischen Molekülachse und Lichtvektor nicht genau  $0^\circ$  beträt, sondern  $\theta = \pm 20^\circ$ .

Für den Winkel  $\theta=0^\circ$  erkennt man weder in der Theorie noch im Experiment einen Isotopenunterschied zwischen Wasserstoff und Deuterium.

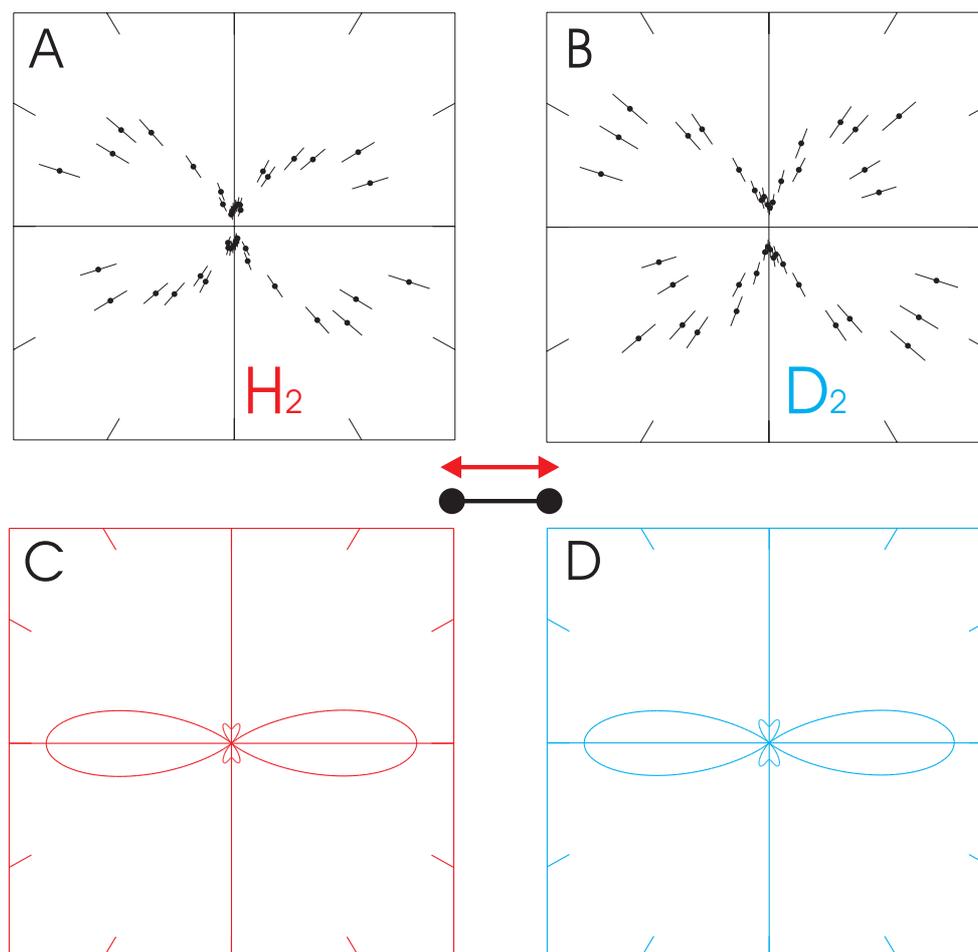


Abbildung 5.9: Winkelverteilungsbild für  $\theta=0^\circ$  in der Polardarstellung. Polarisationsvektor des Lichts und Molekülachse liegen in der Horizontalen, der Winkel  $\phi$  zwischen Molekülachse und Impulsvektor des Photodielektrons kreist um den Ursprung. Gemessene Verteilung mit Fehlerbalken für  $H_2$ (A) und  $D_2$ (B) (Daten sind zusätzlich am Ursprung gespiegelt), sowie nach Gleichung 2.15 berechnete Verteilung für  $H_2$ (C) und  $D_2$ (D).

### Projektionen für $\theta = 90^\circ$

Wenn die Molekülachse orthogonal zum Polarisationsvektor des Lichts steht, bekommt man durch Multiplikation der Bilder 5.7 und 5.8 näherungsweise nur die beiden zur Molekülachse orthogonalen „Öhrchen“ aus Abbildung 5.8, allerdings um  $90^\circ$  gedreht.

In Abbildung 5.10 stimmen Theorie und Experiment unter Beachtung der experimentellen Auflösungen und der Ungenauigkeiten ( $\theta=90^\circ \pm 20^\circ$ ) nahezu überein.

Man erkennt noch keinen signifikanten Isotopeneffekt zwischen  $H_2$  und  $D_2$ .

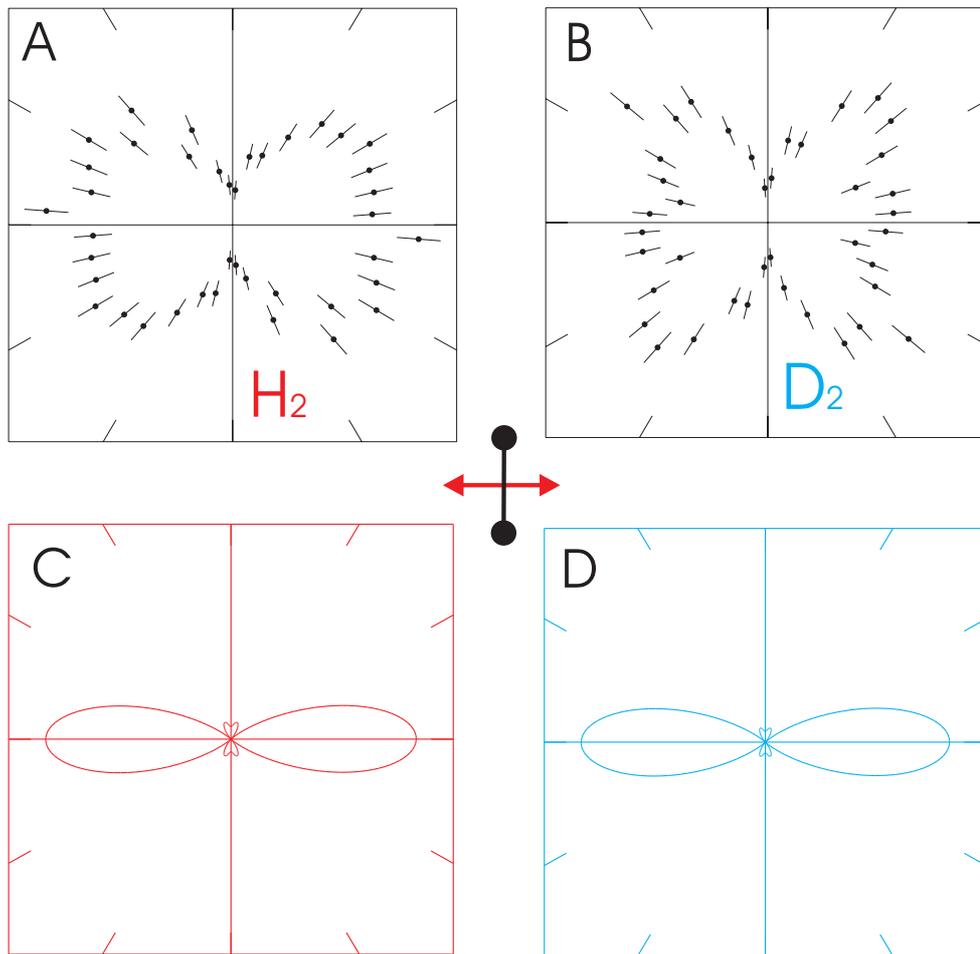


Abbildung 5.10: Winkelverteilungsbild für  $\theta=90^\circ$ : gemessene Verteilungen für  $H_2$ (A) und  $D_2$ (B) (Daten sind zusätzlich am Ursprung gespiegelt), sowie nach Gleichung 2.15 berechnete Verteilungen für  $H_2$ (C) und  $D_2$ (D).

### Projektionen für $\theta = 45^\circ$

Wenn der Winkel zwischen Molekülachse und Photonenpolarisationsvektor  $45^\circ$  beträgt, dann erhält man durch Multiplikation der Abbildungen 5.7 und 5.8 nicht nur zwei, sondern gleiche Anteile aller vier Maxima des durch das Molekül vorgegebenen Winkelverteilungsbilds. Dadurch ist man in der Lage, die Größen der Maxima zueinander zu vergleichen.

In Abb. 5.11C und D sind die theoretischen Winkelverteilungen der Photodielektronen von molekularem Wasserstoff und Deuterium dargestellt. Um die beiden großen Maxima ist ein Kreis gelegt um den Abstand zu den kleinen Maxima besser abschätzen zu können. Bei  $D_2$  sieht man hier eine große Differenz zwischen den Höhen der Maxima, bei  $H_2$  nur eine kleine.

Im Experiment (Abb. 5.11 A und B) kann man keinen signifikanten Maximahöhenunterschied zwischen Wasserstoff und Deuterium erkennen. Es ließe sich erahnen, dass vielleicht sogar eine größere Differenz bei  $H_2$  als bei  $D_2$  besteht, keinesfalls aber umgekehrt.

Die theoretisch (mit dem Modell in Abschnitt 2.4) berechneten ungefähren Formen der Winkelvertei-

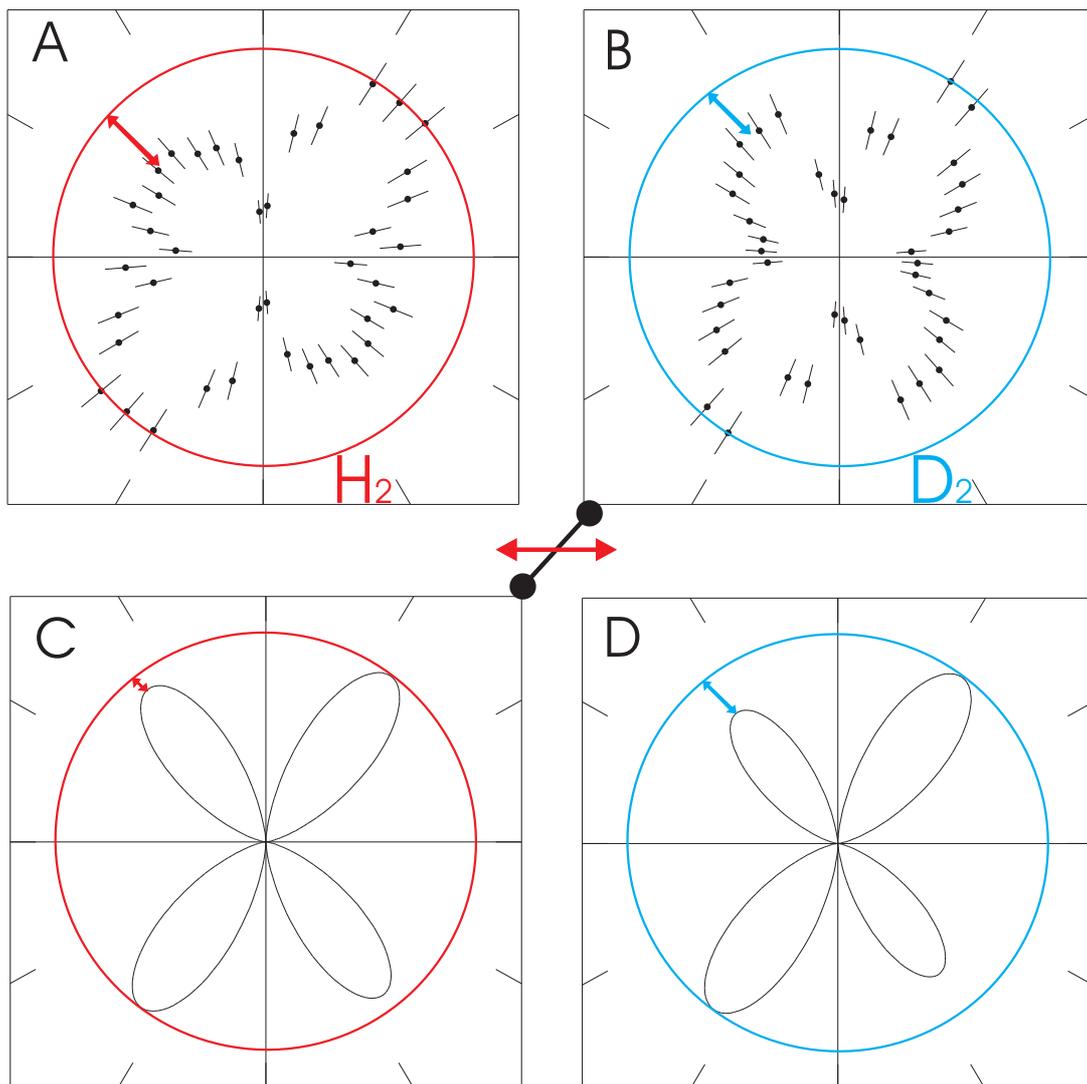


Abbildung 5.11: Winkelverteilungsbild für  $\theta=45^\circ$ : gemessene Verteilungen für  $H_2$ (A) und  $D_2$ (B) (Daten sind zusätzlich am Ursprung gespiegelt), sowie nach Gleichung 2.15 berechnete Verteilungen für  $H_2$ (C) und  $D_2$ (D).

lungen der Photoelektronen werden durch das Experiment klar bestätigt (was man auch schon in Abbildungen 5.3 - 5.6 erkennt). Allerdings kann man die in Gleichung 2.15 beschriebenen Isotopeneffekte in den aufgenommenen Daten nicht genau erkennen. Alles deutet darauf hin, dass es experimentell keinen Isotopeneffekt gibt.

Dies würde zwar die Theorie widerlegen, andererseits aber das in Abschnitt 2.2 beschriebene klassische Doppelspaltbild stärken.

Auch hängt die Winkelverteilung des Photoelektrons klassisch nur von der Elektromagnetischen Wechselwirkung zwischen Molekülion und Elektronen ab, da Photonen nur an elektrische Ladungen koppeln. Wasserstoff- und Deuteriumionen haben nur unterschiedlichen Massen aber dieselbe Ladung.

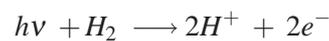
Das Experiment bestätigt somit die Annahme der Massenunabhängigkeit der Elektromagnetischen Wechselwirkung.



## Kapitel 6

# Zusammenfassung und Ausblick

Die in dieser Arbeit untersuchte Reaktion war die Photodoppelionisation von molekularem Wasserstoff und Deuterium mit linear polarisierten Photonen und die Suche nach theoretisch vorhergesagten Isotopeneffekten.



Da die beiden Moleküle unterschiedliche Massen haben, unterscheiden sich die Vibrations-Kernwellenfunktionen stark. Man erwartet bei Wasserstoff eine um den Faktor  $\sqrt{2}$  breitere Verteilung der kinetischen Energie der Fragmente im Schwerpunktsystem (KER) als bei Deuterium. Dies wurde experimentell auch beobachtet.

Die von den Photonen aus dem Molekülverbund gelösten Elektronen besitzen Impulse. Interessant ist hier die Winkelverteilung des Summenimpulses beider Elektronen, in dem man Interferenzerscheinungen analog zu denen, die bei einem klassischen Doppelspalt auftreten, sieht. Betrachtet man das Molekül als dynamisches System im Impulsraum und berechnet damit die Winkelverteilung des sogenannten Photodielektrons [Fea08], so erhält man eine vom Relativimpuls und damit von der Masse der Ionen abhängige Gleichung.

Im Experiment konnte die erwartete allgemeine Form der Winkelverteilung bestätigt werden, allerdings ist kein deutlicher Isotopeneffekt erkennbar. Dies stärkt unser allgemeines klassisches Doppelspaltbild und die Massenunabhängigkeit der elektromagnetischen Wechselwirkung, widerspricht allerdings der Vorhersage einer Rechnung von J. Feagin.

Da die Statistik bei der ausgewerteten Messung nicht sehr gut war, kann man leider noch nicht signifikant behaupten, dass es keinen Isotopeneffekt in der Winkelverteilung des Photodielektrons gibt. Um eindeutigere Aussagen zu erhalten, wird die Photodoppelionisation von Wasserstoff und Deuterium mit besserer Statistik erneut an der ALS in Berkeley gemessen und die Auswertung der Daten mit Spannung erwartet.

Auch wird mit einem Spektrometer mit besserer Auflösung und anderer Größe gemessen, so dass man dann vielleicht sogar eine Abhängigkeit der Winkelverteilung von der kinetischen Energie der Fragmente und damit von internuklearen Abständen beobachten kann.



## Anhang A

# Atomare Einheiten

Wenn man mit Größen auf atomarer Ebene zu tun hat, ist es üblich, nicht mit SI-Einheiten, sondern mit *Atomaren Einheiten* zu rechnen. Alle Größen bekommen dort das dimensionslose Symbol a.u. oder es wird sogar ganz darauf verzichtet. Der Vorteil dieser Einheiten ist, dass man Werte besser mit atomaren Größen wie der Elementarladung und der Elektronenmasse vergleichen kann. Es gelten folgende Definitionen:

Größe	Umrechnung Atomare Einheit in SI-Einheit
Masse	$1 \text{ a.u.} = m_e = 9.1095 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$
Ladung	$1 \text{ a.u.} = e = 1.6022 \cdot 10^{-19} \text{ As}$
Geschwindigkeit	$1 \text{ a.u.} = c\alpha = 2.188 \cdot 10^6 \text{ ms}^{-1}$
Drehimpuls	$1 \text{ a.u.} = \hbar = 1.0546 \cdot 10^{-34} \text{ kgm}^2 \text{ s}^{-1}$

Daraus lassen sich alle anderen Größen, die in der Atomphysik benötigt werden, ableiten. Wichtige Naturkonstanten haben folgende Atomaren Einheiten:

Naturkonstante	Atomare Einheit
Planck-Konstante	$\hbar = 1 \text{ a.u.}$ $h = 2\pi$
Lichtgeschwindigkeit	$c = 137 \text{ a.u.}$
Elementarladung	$e = 1 \text{ a.u.}$
Elektronenmasse	$m_e = 1 \text{ a.u.}$
Protonenmasse	$m_p = 1836 \text{ a.u.}$
Bohrscher Radius	$a_0 = 1 \text{ a.u.} (= 0.529 \text{ \AA})$
Rydberg-Konstante	$R_\lambda = 0.5 \text{ a.u.} (= 13.6 \text{ eV})$
Feinstrukturkonstante	$\alpha = \frac{1}{137}$
Influenzkonstante	$\epsilon_0 = \frac{1}{4\pi}$
Atomare Masseneinheit	$\frac{1}{12} \cdot m(^{12}\text{C}) = 1822 \text{ a.u.}$



# Danksagung

Bei Reinhard Dörner möchte ich mich ganz herzlich für das tolle Thema der Bachelorarbeit, die Aufnahme in die Arbeitsgruppe und die Beantwortung vieler, vieler Fragen bedanken. Auch Horst Schmidt-Böcking hat es geschafft, mich noch mehr für Atomphysik zu begeistern.

Till Jahnke hat sich immer Zeit für meine Probleme und alle Fragen genommen und mir nicht nur bei dieser Arbeit sehr geholfen. Man kann ihn als Pfadfinderhäuptling immer nach dem Weg fragen und sich dann sicher sein: „*Alles wird gut!*“

In Berkeley haben besonders Markus Schöffler und Thorsten Weber dafür gesorgt, dass mein Experiment an der Beamline funktioniert und mir genau erklärt, wie man eine Experimentierkammer aufbaut, an ein Synchrotron anschließt und verkabelt. Vielen Dank auch für die Beantwortung meiner Fragen per Mail!

Sven Schößler, Matthias Kühnel, Tilo Havermeier und Felix Sturm haben nicht nur beim Experiment sehr viel geholfen, sondern auch meinen Aufenthalt in Berkeley zu einem einmaligen Erlebnis gemacht. Danke für die tolle Organisation und die Ausflüge rund um San Francisco!

Für weitere Hilfe während der Strahlzeit in Berkeley bedanke ich mich zusätzlich bei Timur Osipov, Sun Lee, Joshua Williams, Ali Belkacem, Allen Landers und Lew Cocke.

Von Jasmin Titze, Katharina Kreidi und Nadine Neumann bin ich im Mädelszimmer in Frankfurt sofort freundlich aufgenommen worden. Man konnte physikalische und auch andere Themen immer prima diskutieren und ich habe stets lieber in der Uni als zu Hause gearbeitet. Vielen Dank für die Hilfe und die tolle Zimmeratmosphäre!

Hendrik Sann danke ich für eine ausführliche Einführung in das Programmieren mit C++ und das Verwenden von ROOT und Achim Czasch und Klaus Ullmann-Pfeger für die Hilfe bei Software- und Hardwareproblemen.

Die tolle Arbeitsatmosphäre, das gute Klima und die Ausflüge und gemütlichen Abende auch außerhalb der Uni genieße ich sehr. Vielen Dank an die gesamte Arbeitsgruppe und neben den bereits genannten auch besonders an Birte Ulrich, Florian Trinter, Hong-Keun Kim, Jörg Voigtsberger, Lothar Schmidt, Lutz Foucar, Marco Marquard, Markus Waitz, Matthias Odenweller, Moritz Meckel, Nikos Petridis, Robert Wallauer, Rui Costa Fraga, Sophie Kirschner und Stefan Voss.

Ein sehr großer Dank geht auch an meine Familie und meine Freunde, die mich immer unterstützen!

# Literaturverzeichnis

- [Ach99] ACHLER, MATTHIAS: *Untersuchung von Symmetrieeffekten in der Photodoppelionisation von Helium mit zirkular polarisiertem Licht*. Dissertation, Feb 1999.
- [AKJ<sup>+</sup>07] AKOURY, D., KREIDI, K., JAHNKE, T., WEBER, TH., STAUDTE, A., SCHÖFFLER, M., NEUMANN, N., TITZE, J., SCHMIDT, L. PH. H., CZASCH, A., JAGUTZKI, O., COSTA FRAGA, R. A., GRISENTI, R. E., DÍEZ MUIÑO, R., CHEREPKOV, N. A., SEMENOV, S. K., RANITOVIC, P., COCKE, C. L., OSIPOV, T., ADANIYA, H., THOMPSON, J.C., PRIOR, M. H., BELKACEM, A., LANDERS, A. L., SCHMIDT-BÖCKING, H. und DÖRNER, R.: *The Simplest Double Slit: Interference and Entanglement in Double Photoionization of H<sub>2</sub>*. Science, 318:949–952, Nov 2007.
- [Ako08] AKOURY, DOMINIQUE: *Photodoppelionisation von molekularem Wasserstoff bei hohen Photonenenergien*. Diplomarbeit, Jun 2008.
- [CJF08] CZASCH, ACHIM, JAHNKE, TILL und FOUCAR, LUTZ: *Root-Macro zur Auswertung von COLTRIMS-Daten*, 2008.
- [DMJ<sup>+</sup>02] DÖRNER, R., MERGEL, V., JAGUTZKI, O., SPIELBERGER, L., ULLRICH, J., MOSHAMMER, R. und SCHMIDT-BÖCKING, H.: *Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy: a 'momentum microscope' to view atomic collision dynamics*. Physics Reports, 330:95–192, 2002.
- [Dör08] DÖRNER, REINHARD: *Vorlesung Atomphysik I*, Wintersemester 2007/2008.
- [Fea08] FEAGIN, J.: *private communication*, 2008.
- [Hav06] HAVERMEIER, TILO: *Photoionisation und doppelt angeregte Zustände in Wasserstoff- und Deuterium- Molekülen*. Diplomarbeit, Jun 2006.
- [HW96] HAKEN, HERMANN und WOLF, HANS CHRISTOPH: *Atom- und Quantenphysik*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1996.
- [HW03] HAKEN, HERMANN und WOLF, HANS CHRISTOPH: *Molekülphysik und Quantenchemie*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 2003.
- [Jah05] JAHNKE, TILL: *„Interatomic Coulombic Decay“ Experimentelle Untersuchung eines neuartigen, interatomaren Abregungsmechanismus*. Dissertation, May 2005.
- [Jön61] JÖNSSON, CLAU: *Elektroneninterferenzen an mehreren künstlich hergestellten Feinspalten*. Zeitschrift für Physik, 161:454 – 474, 1961. Aus dem Institut für Angewandte Physik der Universität Tübingen.
- [KAJ<sup>+</sup>08] KREIDI, K., AKOURY, D., JAHNKE, T., WEBER, TH., STAUDTE, A., SCHÖFFLER, M., NEUMANN, N., TITZE, J., SCHMIDT, L. PH. H., CZASCH, A., JAGUTZKI, O., COSTA FRAGA, R. A., GRISENTI, R. E., SMOLARSKI, M., RANITOVIC, P., COCKE, C. L.,

- OSIPOV, T., ADANIYA, H., THOMPSON, J. C., PRIOR, M. H., BELKACEM, A., LANDERS, A. L., SCHMIDT-BÖCKING, H. und DÖRNER, R.: *Interference in the Collective Electron Momentum in Double Photoionization of H<sub>2</sub>*. Physical Review Letters, 100:133005, Apr 2008.
- [Kre05] KREIDI, KATHARINA: *Photodoppelionisation von H<sub>2</sub> – eine Analogie zum Doppelspalt*. Diplomarbeit, Feb 2005.
- [KWW<sup>+</sup>02] KNAPP, A., WALTER, M., WEBER, TH., LANDERS, A. L., SCHÖSSLER, S., JAHNKE, T., SCHÖFFLER, M., NICKLES, J, KAMMER, S., JAGUTZKI, O., SCHMIDT, L. PH. H., OSIPOV, T., RÖSCH, J., PRIOR, M. H., SCHMIDT-BÖCKING, H., COCKE, C. L., FEAGIN, J. und DÖRNER, R.: *Energy sharing and asymmetry parameters for photo double ionization of helium 100 eV above threshold in single-particle and Jacobi coordinates*. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 35:L521–L526, Nov 2002.
- [No104] NOLTING, WOLFGANG: *Grundkurs Theoretische Physik 5/1, Quantenmechanik - Grundlagen*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 6 Auflage, 2004.
- [No105] NOLTING, WOLFGANG: *Grundkurs Theoretische Physik 1, Klassische Mechanik*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 7 Auflage, 2005.
- [Roe08] ROENTDEK, HANDELS GMBH: *Homepage*, Okt 2008.
- [ROO08] ROOT: *Homepage*, Okt 2008.
- [Sch08] SCHÖFFLER, MARKUS: *Coltrims3.xls*, 2008.
- [SKA<sup>+</sup>08] SCHÖFFLER, M. S., KREIDI, K., AKOURY, D., JAHNKE, T., STAUDTE, A., NEUMANN, N., TITZE, J., SCHMIDT, L. PH. H., CZASCH, A., JAGUTZKI, O., COSTA FRAGA, R. A., GRISENTI, R. E., SMOLARSKI, M., RANITOVIC, P., COCKE, C. L., OSIPOV, T., ADANIYA, H., LEE, S., THOMPSON, J. C., PRIOR, M.H., BELKACEM, A., WEBER, TH., LANDERS, A., SCHMIDT-BÖCKING, H. und DÖRNER, R.: *Photo-double ionization of H<sub>2</sub>: Two-center interference and its dependence on the internuclear distance*. Physical Review A, 78:013414, Jul 2008.
- [Spi96] SPIELBERGER, LUTZ: *Erforschung von Korrelationseffekten in atomaren Mehrteilchen-Systemen: Doppel- und Einfachionisation von Helium induziert durch hochenergetische Photonen*. Dissertation, 1996.
- [Tit04] TITZE, JASMIN: *Untersuchung des Elektronentransfers in p-D<sub>2</sub>-Stößen - Der Doppelspaltversuch mit einem diatomaren Molekül*. Diplomarbeit, Jun 2004.
- [UMD<sup>+</sup>03] ULLRICH, J., MOSHAMMER, R., DORN, A., DÖRNER, R., SCHMIDT, L. PH D und SCHMIDT-BÖCKING, H.: *Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: reaction-microscopes*. reports on progress in physics, 66:1463–1545, Aug 2003.
- [WCJ<sup>+</sup>04] WEBER, T., CZASCH, A. O., JAGUTZKI, O., MÜLLER, A.K., MERGEL, V., KHEIFETS, A., ROTENBERG, E., MEIGS, G., PRIOR, M. H., DAVEAU, S., LANDERS, A., COCKE, C. L., OSIPOV, T., DIEZ MUINO, R., SCHMIDT-BÖCKING, H. und DÖRNER, R.: *Complete photo-fragmentation of the deuterium molecule*. Nature, 431:437–440, Sep 2004.
- [Web03] WEBER, THORSTEN: *Untersuchung der verschränkten Bewegung freier Elektronenpaare emittiert aus Ein- und Zweizentren Coulomb-Potentialen in Photoabsorptionsprozessen*. Dissertation, Feb 2003.