Bachelorarbeit

# Automatisierte Aufnahme von Materiewellen-Beugungsspektren eines Heliumclusterstrahls

### Eingereicht bei:

Prof. Dr. Reinhard Dörner Institut für Kernphysik Johann Wolfgang Goethe-Universität Max-von-Laue-Straße 1 60438 Frankfurt am Main

#### Betreuer:

Stefan Zeller Institut für Kernphysik Johann Wolfgang Goethe-Universität Max-von-Laue-Straße 1 60438 Frankfurt am Main

#### Eingereicht von:

Jörg Hahnenbruch Rudolf-Selzer-Straße 4g 61267 Neu-Anspach

## Inhaltsverzeichnis

| 1               | Einleitung 3               |  | 3  |
|-----------------|----------------------------|--|----|
| <b>2</b>        | 2 Physikalische Grundlagen |  | 4  |
|                 | 2.1                        | Heliumatom   | 4  |
|                 | 2.2                        | Van-der-Waals Bindung                              | 5  |
|                 | 2.3                        | Helium und seine Cluster                           | 6  |
|                 |                            | 2.3.1 Das Heliumdimer                              | 8  |
|                 |                            | 2.3.2 Das Heliumtrimer                             | 11 |
|                 |                            | 2.3.3 Der Efimovzustand des Heliumtrimeres         | 13 |
|                 | 2.4                        | Materiewellenbeugung                               | 17 |
|                 |                            | 2.4.1 Materiewellen                                | 17 |
|                 |                            | 2.4.2 Beugung elektromagnetischer Wellen am Gitter | 18 |
|                 |                            | 2.4.3 Beugung von Materiewellen am Gitter          | 20 |
| 3 Versuchsaufba |                            | suchsaufbau  | 22 |
|                 | 3.1                        | Kammeraufbau                                       | 22 |
|                 | 3.2                        | Nanogitter und Spalte                              | 25 |
|                 | 3.3                        | Massenspektrometer                                 | 25 |
|                 | 3.4                        | COLTRIMS Detektor und Auswerteelektronik           | 28 |
| 4               | Messungen 3                |  | 32 |
| 5               | Auswertung                 |  | 33 |
|                 | 5.1                        | Flugzeitspektren und Flugzeitkorrelationen         | 34 |
|                 | 5.2                        | Beugungspanorama                                   | 38 |
|                 | 5.3                        | Spalt-Gitter-Kombinationen                         | 39 |
|                 | 5.4                        | Detektionswahrscheinlichkeit                       | 42 |
|                 | 5.5                        | Temperaturserien                                   | 42 |

| Li | Literaturverzeichnis 6 |                                    |    |
|----|------------------------|------------------------------------|----|
| 7  | Dan                    | ksagungen                          | 61 |
| 6  | Zus                    | ammenfassung                       | 59 |
|    |                        | 5.10.3 Fehlerfortpflanzung         | 57 |
|    |                        | 5.10.2 Statistische Fehler         | 56 |
|    |                        | 5.10.1 Systematische Fehler        | 54 |
|    | 5.10                   | Fehlerbetrachtung                  | 54 |
|    | 5.9                    | Quellgröße                         | 52 |
|    | 5.8                    | Jetgeschwindigkeit und Wellenlänge | 48 |
|    | 5.7                    | Abstandsserie Düse-Skimmer         | 48 |
|    | 5.6                    | Druckserie                         | 46 |

### 1 Einleitung

Helium und seine Cluster sind nach wie vor aktuelle Untersuchungsobjekte der Atomphysik. Das Heliumdimer ist ein Quantenobjekt mit einer extremen Bindungslänge, dessen Wellenfunktion sich zum überwiegenden Teil im klassisch verbotenen Bereich befindet. Das Trimer ist der nächste, vielversprechende Kandidat für das Auftreten des bisher nur in kalten Quantengasen nachgewiesenen Efimov-Zustandes [GrSh2011]. Für diese beiden kleinsten Oligomere ist allerdings experimentell kaum mehr als mittlerer Radius und Bindungsenergie bekannt. Weitere, höheratomare Cluster erlauben das Studium des Übergangs von Materie auf atomarer und molekularer Ebene zu makroskopischer Materie [ScTo1994].

Mit dem Ziel, für das Heliumdimer und -trimer Strukturaufklärung zu betreiben, das Ionisationsverhalten zu untersuchen und den Efimovzustand des Trimers nachzuweisen, wurde das Projekt "Struktur und Ionisationsdynamik von Helium Dimeren, Trimeren und die Suche nach dem Efimov Zustand" gestartet. Es ist geplant, die Oligomere alternativ mit Synchrotronstrahlung, starken konventionellen Lasern und freien Elektronenlasern (FEL) mehrfach zu ionisieren, mit dem COLTRIMS Detektor (Details s. u.) alle geladenen Teilchen, die dem Fragmentationsprozeß entspringen, zeitlich und örtlich zu vermessen und daraus die genaue Struktur für jedes einzelne der ionisierten Oligomere abzuleiten.

Um die Daten der Ionisation und Fragmentation eindeutig einer bestimmten Molekülspezies, also Dimer oder Trimer, zuordnen zu können, müssen vor der Ionisation die Heliumcluster voneinander separiert werden. Das wird durch Materiewellenbeugung der Heliumatome und -cluster an einem Nanogitter erreicht. Dieses Verfahren nutzt die unterschiedlichen De-Broglie-Wellenlängen und damit Ablenkwinkel der Nebenmaxima der unterschiedlich schweren Cluster und wurde bereits erfolgreich angewandt [ScTo1994].

Ziel dieser Arbeit ist, die Trennung der Heliumatome, -dimere und -trimere reproduzierbar zu automatisieren. Dazu wird das Nanogitter nicht wie bisher manuell verfahren, sondern mithilfe von Linearmotoren elektronisch angesteuert. Auf diese Weise soll

- ein vollständiges Beugungsspektrum der verschieden schweren Heliumcluster automatisch, d. h. ohne zwischenzeitliche Steuerung von außen, aufgenommen werden können und
- eine bestimmte Heliumclustergröße einfach, schnell und reproduzierbar durch Anwahl einer bestimmten Linearmotorposition selektierbar sein.

Im Verlauf dieser Arbeit werden zunächst die physikalischen Grundlagen erläutert. Es wird beim Heliumatom begonnen, über den Bindungsmechanismus der Van-der-Waals-Bindung zu den verschiedenen Heliumclustern übergeleitet und schließlich ausführlich die Materiewellenbeugung diskutiert.

Anschließend wird der Versuchsaufbau dargelegt. Neben der grundsätzlichen Struktur der Versuchskammer werden die wichtigsten Komponenten derselben besprochen.

Weiterhin werden kurz die verschiedenen, durchgeführten Messungen beschrieben. Es folgen die verschiedenen Schritte der Auswertung, begonnen bei den Spektren zur Auswahl der optimalen Gitter-Spalt-Kombination, über die Untersuchung der Abhängigkeit von Heliumdi- und -trimerkonzentration in Abhängigkeit von Druck, Temperatur und des Abstandes von Heliumquelle zu Skimmer bis hin zu Abschätzungen von Geschwindigkeit der Teilchen im Jet, der Quellgröße und der Detektionswahrscheinlichkeit. Die Auswertung endet mit einer Fehlerbetrachtung, an die sich eine kurze Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse anschließt.

### 2 Physikalische Grundlagen

### 2.1 Heliumatom

Helium ist das leichteste Edelgas und hat die Ordnungzahl zwei. Die beiden Elektronen des Heliums besetzen im Grundzustand das 1s-Orbital. Mit der Elektronenkonfiguration  $1^{1}S_{0}$  hat Helium eine abgeschlossene Hauptschale. Ein weiterer interessanter Zustand ist  $2^{3}S_{1}$ . In diesem Zustand sind die Spins der beiden Elektronen parallel ausgerichtet, d. h. S = 1. Da nun die Spinanteile der Wellenfunktionen symmetrisch unter Teilchenvertauschung sind, müssen im Gegensatz zum Grundzustand die Ortsanteile der Wellenfunktionen antisymmetrisch werden, um dem Pauli-Prinzip zu genügen. Infolgedessen weicht das zweite Elektron in die 2s-Schale aus. Da es sich bei dem Übergang zwischen den beiden genannten Zuständen um einen Verbotenen Übergang handelt, ist der Zustand  $2^{3}S_{1}$  metastabil und eine Art "Grundzustand für parallele Spinausrichtung". Früher hat man ihn für eine eigene Form des Heliums gehalten und zusammen mit den auf ihm basierenden angeregten Zuständen mit S = 1 als Orthohelium bezeichnet. Im Gegensatz dazu nennt man den eigentlichen Grundzustand und die auf ihm basierenden angeregten Zustände mit S = 0 Parahelium [UnSt2013].

Helium bildet unter terrestrischen Bedingnungen weder stabile Ionen- noch Elektronenpaarbindungen aus. Das steht im Gegensatz zu den schwereren Edelgasen, die z. B. Edelgashalogenide bilden können [HoWi1995]. Eine Ausnahme bilden z. B. bestimmte astronomische Bedingungen, so extrem starke Magnetfelder von  $10^5$  T, wie sie auf Weißen Zwergen herrschen, bzw.  $10^{10}$  T, wie sie auf Magnetaren vorkommen. Theoretischen Betrachtungen zufolge können dort z. B. He-He Elektronenpaarbindungen auftreten [LaTe2012].

Bezüglich des Heliumkernes existieren zwei natürliche Isotope, <sup>4</sup>He mit einer natürli-

chen Häufigkeit von 99,99986 % sowie <sup>3</sup>He mit 0,00014 % [HoWi1995]. Bei <sup>4</sup>He besteht der Atomkern aus zwei Protonen und zwei Neutronen. Diese haben im Grundzustand jeweils entgegengesetzen Spin und besetzen jeweils gemeinsam das 1s-Orbital für Protonen bzw. für Neutronen. Damit ist der Gesamtspin S = 0 und der Gesamtbahndrehimpuls L = 0. Der <sup>4</sup>He-Kern ist ein Boson. Im Gegensatz dazu besteht der Kern des <sup>3</sup>He aus zwei Protonen aber nur einem Neutron. Letztes ist ungepaart, bewirkt einen Gesamtspin S = 1/2 und führt dazu, daß der <sup>3</sup>He-Kern ein Fermion ist. Für alle weiteren Betrachtungen in dieser Arbeit wird <sup>3</sup>He vernachlässigt, da es aufgrund seiner geringen natürlichen Häufigkeit beim Versuch nicht in Erscheinung tritt.

Wie oben beschrieben, geht Helium nur unter extremen Bedingungen Elektronenpaarbindungen ein. Eine andere, schwächere Form der Bindung steht den Heliumatomen jedoch offen. Es handelt sich dabei um die auf Dipol-Dipol-Wechselwirkung basierende Van-der-Waals Bindung. Diese soll im folgenden beschrieben werden.

### 2.2 Van-der-Waals Bindung

Die beiden Elektronen des Heliums befinden sich im Grundzustand im 1<br/>s Orbital bzw. bei Orthohelium im 1<br/>s und im 2s Orbital. Damit ist die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der beiden Elektronen im zeitlichen Mittel kugelsymmetrisch um den Atomkern verteilt. Som<br/>it schirmen sich Elektronen und Protonen nach außen ab, und im zeitlichen Mittel tritt außerhalb des Atomes weder eine Nettoladung q noch ein Dipolmoment  $\vec{\mu}$  auf, d. h.

$$\langle \vec{\mu} \rangle = 0. \tag{1}$$

Zu einem bestimmten Zeitpunkt  $t_0$  jedoch muß die Ladungsverteilung nicht kugelsymmetrisch sein, d. h. der Ladungsschwerpunkt der Elektronenwolke fällt nicht mit dem Atomkern zusammen. Auf diese Weise entsteht ein Dipolmoment [BeSc1999]

$$\vec{\mu} = q\vec{d},\tag{2}$$

wobei q der Betrag einer der beiden Teilladungen und  $\vec{d}$  deren Abstandsvektor von der negativen zur positiven Teilladung ist. Dieser Dipol erzeugt am Ort  $\vec{r}$  im Fernfeld das Potential  $\Phi$  mit [Do2012]

$$\Phi = \frac{\vec{\mu}\vec{r}}{4\pi\varepsilon_0 r^3}.$$
(3)

Das Potential fällt hier mit  $r^{-2}$ , im Gegensatz zum Abfall mit  $r^{-1}$  bei dem Potential einer Ladung. Für die Feldstärke des Fernfeldes  $\vec{E}$  eines Dipoles gilt [Ho2008]:

$$\vec{E} = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0 r^3} [3(\vec{\mu} \cdot \vec{r_0})\vec{r_0} - \vec{\mu}],\tag{4}$$

wobei  $\vec{r}_0$  der Einheitsvektor zum Ortsvektor  $\vec{r}$  ist. Hier ist die Abstandsabhängigkeit  $\sim r^{-3}$  wichtig. Dieses primäre Dipolfeld polarisiert andere Heliumatome in der Umgebung. Dabei hängt das in diesen induzierte Dipolmoment  $\vec{\mu}_{ind}$  in erster Näherung linear von der Feldstärke ab [BeSc1999]:

$$\vec{\mu}_{ind} = \alpha \vec{E}.$$
(5)

Hierbei bezeichnet  $\alpha$  die Polarisierbarkeit der Heliumatome. Für die Wechselwirkungsenergie

 $W_{Dipol-Dipol}$  zwischen den beiden Dipolen gilt [Ho2008]:

$$W_{Dipol-Dipol} = -\vec{\mu}_{ind}\vec{E}.$$
(6)

Es handelt sich hierbei, wie durch das negative Vorzeichen ersichtlich, um eine attraktive Wechselwirkung. Einsetzen von (5) in (6) ergibt:

$$W_{Dipol-Dipol} = -\alpha \vec{E}^2 \sim E^2 \sim r^{-6}.$$
(7)

Die Wechselwirkungsenergie fällt demnach mit der sechsten Potenz des Abstandes der beiden wechselwirkenden Dipole ab. Verglichen mit z. B. der Ionenbindung, deren Wechselwirkungsenergie mit  $r^{-1}$  abfällt, ist daher die Reichweite der Dipol-Dipol-Wechselwirkung sehr begrenzt.

Bisher wurde die Van-der-Waals-Wechselwirkung zwischen zwei freien Atomen oder Molekülen betrachtet. Auf ähnliche Weise können Atome und Moleküle mit festen Oberflächen wechselwirken. Grisenti et al. haben sich dies zunutze gemacht, um u. a. die Polarisierbarkeit von Heliumatomen zu bestimmen [GrSc1999]. Während in Kapitel 2.4 tiefergehend auf diese Arbeit Bezug genommen werden wird, sei hier vorab das Ergebnis für die Polarisierbarkeit zitiert: Diese beträgt für Helium  $\alpha/4\pi\epsilon_0 \approx 2 \cdot 10^{-25} cm^3$ .

#### 2.3 Helium und seine Cluster

Die im vorigen Abschnitt beschriebene Van-der-Waals-Wechselwirkung ermöglicht es mehreren Heliumatomen, sich zu Molekülen zu verbinden, Heliumcluster genannt. Einerseits müssen für die Entstehung von Heliumclustern gewisse Mindestdrücke herrschen, um eine hinreichende Kollisionswahrscheinlichkeit der Atome sicherzustellen. Andererseits sind die Cluster wegen der geringen Bindungsenergie wenig stabil und verlangen daher für ihre Bildung nach niedrigen Temperaturen. Bedingungen, die die Bildung von Heliumclustern begünstigen, liegen z. B. bei einer Überschallexpansion von gekühlem Heliumgas durch eine kleine Düse in ein gutes Vakuum vor. Dabei wird vermutet, daß innerhalb der ersten beiden Düsendurchmesser nach Einlaß in das Vakuum für ein bestimmtes Heliumatom mehrere hundert Zweikörperstöße und ungefähr zehn Dreikörperstöße erfolgen; danach soll die Stoßfrequenz stark nachlassen [BrScTo2002]. Im Resultat ergibt sich eine sehr enge Geschwindigkeitsverteilung der Atome im Jet mit typischerweise  $\Delta v/v = 1$  %. Diese Breite der Geschwindigkeitsverteilung,  $\Delta v/v$ , wird durch die "speed ratio" S charakterisiert. Es gilt:

$$S = (2\sqrt{ln2})\frac{v}{\Delta v}.$$
(8)

Die Geschwindigkeit des Jets liegt je nach Temperatur der Düse in der Größenordnung von 300 m/s [KoTo2007].

An die Zone intensiver Kollisionen schließt sich auf der Strahlachse die sogenannte Zone of Silence an, innerhalb der die Atome bzw. Cluster parallel mit homogener Geschwindigkeit, also stoßfrei, propagieren. Umgeben ist diese Zone von den turbulenten Bereichen, in denen die expandierenden Teilchen mit dem Restgas wechselwirken [Sc2006].

Die Bildung der für diese Arbeit interessanten Cluster erfolgt also am Ende des turbulenten Bereiches kurz hinter der Düsenöffnung und kurz bevor für die Atome bzw. Cluster die Zone of Silence erreicht wird. Letztere sorgt dafür, daß die Cluster erhalten werden und nicht von anderen Atomen oder Clustern zerstört werden. Aus dieser Zone schneidet meist ein Skimmer einen Teilstrahl aus und führt diesen den weiteren experimentellen Schritten zu.

Die durch die Relativbewegung der Teilchen im Jet definierte Temperatur  $T_{\infty}$  ist also sehr niedrig gegenüber der Ausgangstemperatur  $T_0$ . Dadurch läßt sich eine gut handhabbare Formel für die Geschwindigkeit der Teilchen in einem Jet als Funktion von  $T_0$ und der Teilchenmasse mermitteln. Dazu wird die Enthalpie pro Atom  $h_o$  im Jet längs einer isentropen Stromlinie betrachtet [BrScTo2002]:

$$h_0 = \frac{1}{2}mv^2 + \frac{1}{2}k_B T\infty.$$
 (9)

Da die inhärente Jettemperatur  $T_{\infty}$  deutlich unter  $T_0$  liegt, kann man den zweiten Summanden vernachlässigen. Setzt man nun für ein ideales Gas für die Enthalpie  $h_0 = \frac{5}{2}k_BT_0$  an, folgt [BrScTo2002]:

$$v = \sqrt{\frac{5k_B T_0}{m}}.$$
(10)

Bei derartigen aus Überschallexpansionen erzeugten Gasjets, von denen mittels eines

Skimmers der mittlere Teil ausgeschnitten und verwendet wird, wurden von Bruch et al. Heliumcluster bis zum Oligomer  $He_{26}$  nachgewiesen [BrScTo2002]. Unter den zahlreichen Clustern verschiedener Größe fanden Kornilov et al., daß einige Oligomere durch ihre besonders große Häufigkeit auffallen [KoTo2007]. Es handelt sich hierbei um die Cluster mit 10, 11, 14, 22, etwa 26 und etwa 44 Heliumatomen.

Die Betrachtungen der Autoren hierzu ergaben, daß die besondere Häufigkeit dieser Cluster durch die Reaktionskonstanten ihrer Bildungsreaktionen zu einem bestimmten Zeitpunkt bedingt wird. Im frühen Verlauf der Expansion fällt die Temperatur schnell und unterschreitet somit bald das Niveau, das zur Aufrechterhaltung des thermodynamischen Gleichgewichtes notwendig ist; die Heliumcluster frieren sozusagen aus. Über die Häufigkeit eines Clusters  $\text{He}_N$ , entstehend durch die Reaktion  $He_{N-1}+He \rightarrow He_N$ , entscheiden daher die Gleichgewichtskonstanten für die Reaktion zum Zeitpunkt des Ausfrierens. Diese Gleichgewichtskonstanten werden durch das Verhältnis der Verteilungsfunktionen Z für die beiden Cluster  $\text{He}_{N-1}$  und  $\text{He}_N$  bestimmt. Wenn ein zusätzliches Heliumatom im Cluster diesem Cluster einen zusätzlichen gebundenen Zustand ermöglicht, steigt die Verteilungsfunktion stark an. Daher wächst auch die Gleichgewichtskonstante der Bildungsreaktion und somit die relative Häufigkeit des Clusters  $\text{He}_N$  gegenüber anderen Clustern.

### 2.3.1 Das Heliumdimer

Der kleinstmögliche Cluster des Heliums ist sein Dimer <sup>4</sup>He<sub>2</sub>. Es wurde aufgrund theoretischer Betrachtungen von Slater im Jahre 1928 vorhergesagt [Sl1928] und schließlich 1993 durch Ionisation mit Elektronen entdeckt [Br2011]. Im Folgejahr 1994 wiesen Schöllkopf und Toennies <sup>4</sup>He<sub>2</sub> mithilfe der Materiewellenbeugung nach [ScTo1994], der Methode, von der in dieser Arbeit Gebrauch gemacht wird.

Während das Dimer <sup>4</sup>He<sup>3</sup>He passend zu theoretischen Vorhersagen bisher nicht nachgewiesen ist [BrZa2000], ist <sup>4</sup>He<sub>2</sub> das größte z. Z. bekannte diatomare Molekül. Bei einer Bindungsenergie von experimentell bestimmt ca. 95 neV weist es eine mittlere Bindungslänge R von  $\langle R \rangle = 52 \pm 4$ Å auf [GrSc2000]. Verschiedene theoretische Arbeiten ermitteln für die Bindungsenergie z. B. ca. 115 neV bei  $\langle R \rangle = 51, 5$ Å [BrScTo2002] oder 140 ± 3 neV bei  $\langle R \rangle = 47, 1 \pm 0, 5$ Å [PrCe2010]. Im Gegensatz zum Heliumtrimer wird für das Heliumdimer nur der hier beschriebene Grundzustand erwartet und keine weiteren vibrations- oder rotationsangeregten Zustände [KoTo2007].

Die geringe Bindungsenergie des Heliumdimers hat im Gasjet den folgenden Effekt. Der Wirkungsquerschnitt für die He-He-Streuung wächst auf geschätzte 250.000 Å<sup>2</sup> für T  $\rightarrow 0$  K. Gegen Ende der Expansionsphase des beginnenden Jets, bei tiefen Temperaturen, werden daher besonders häufig Dimere gebildet. Dadurch, daß so je zwei Heliumatome ihre Relativbewegung stark einschränken, verbessert sich die Kühlung des entstehenden Gasjets. Das Ergebnis sind sehr geringe Halbwertsbreiten für die Geschwindigkeitsverteilung von den in Abschnitt 2.3 genannten  $\Delta v/v = 1\%$  [BrScTo2002].

Die Bestimmung der Größe des Heliumsdimeres macht sich den Effekt zunutze, daß die Heliumdimere bei der Materiewellenbeugung an den Seiten des Schlitzes zerstört werden können. Dadurch wird die effektive Schlitzbreite um den Betrag  $\frac{1}{2}\langle R \rangle$  reduziert. Indem man die aus dem gemessene Beugungsbild ermittelte effektive Schlitzbreite mit der tatsächlichen Schlitzbreite vergleicht, erhält man Aufschluß über die Molekülgröße [KoTo2007].



Abbildung 1: Radiale Wahrscheinlichkeitsverteilung als Funktion des Abstands r für das LM2M2 Potential und für das um die Retardierung korrigierte Potential LM2M2\*. Beide Verteilungen sind auf das gleiche Integral normiert [LuKi1993].

Die Größe des Heliumdimeres hat interessante Effekte zur Folge:

- Das unser Erbgut konstituierende Polymer DNS würde zwischen die beiden Atome eines Helium-Dimeres passen [Do2012].
- Kryptonatome können ein Heliumdimer passieren, ohne die Bindung zu beeinträchtigen [KoTo2007].
- Durch den in atomaren Dimensionen enormen Abstand der in einem Heliumdimer wechselwirkenden Atome muß für quantitative Betrachtungen die endliche Ausbreitungsgeschwindigkeit der Wechselwirkung berücksichtigt werden. Unter dem Einfluß der Retardierung verringert sich in theoretischen Berechnungen die Bindungsenergie um 10 % und erhöht sich die mittlere Bindungslänge um 5 % [LuKi1993].
- Das Dimer hat eine Bindungslänge, die dem 3,5fachen des Abstandes des klassischen Umkehrpunktes entspricht. Somit existiert das Dimer in einer bei klassischer Betrachtungsweise verbotenen Region. Ein solcher Zustand wird in der Kernpyhsik als Halozustand bezeichnet [KoTo2007].

• Demzufolge ist das Heliumdimer nur als rein quantenmechanisches Objekt sinnvoll untersuchbar [Br2011].

Ein Effekt weniger direkt der Größe als vielmehr der Schwäche der Bindung ist, daß der Wirkungsquerschnitt für Ionisation durch Elektronen mit einer Energie von ca. 60 eV für das Heliumdimer dem 2,45fachen desjenigen für das Heliumatomes entspricht. Im Rahmen gewisser Fehler ist das nah an dem Faktor 2, der im Grenzfall einer beliebig schwachen Bindung für ein diatomares Molekül erwartet werden würde [ScTo1994].

Die Beweglichkeit eines ebenso schwach gebundenen wie räumlich weit ausgedehnten Moleküles ist naturgemäß hoch [BrZa2000]. Das dieser Bewegung zugrundeliegende Van-der-Waals-Potential kann analytisch wie folgt beschrieben werden [TaTo1995]. Das Potential wird in einen repulsiven Anteil  $V_{rep}$  und einen dispersiven Anteil  $V_{disp}$  zerlegt:

$$V(R) = V_{rep} + V_{disp}.$$
(11)

Der dispersive Anteil berücksichtigt dabei die Überlappungen der ihn konstituierenden Dämpfungsfunktionen  $f_{2n}(R)$ . Für den repulsiven Anteil ergibt sich:

$$V_{rep} = DR^{7/2\beta - 1}e^{-2\beta R},\tag{12}$$

wobei  $\beta = \sqrt{2E_{Ion}}$  von der Ionisierungsenergie  $E_{Ion}$  des Heliumatomes abhängt und in atomaren Einheiten eingeht. D ist wie folgt definiert:

$$D = A^4 \frac{\Gamma(1/2\beta)}{2^{1/\beta+1}\beta^{2+1/2\beta}} \times \int_0^1 e^{(y-1)/\beta} (1-y)^{3/2\beta} (1+y)^{1/2\beta} \, dy, \tag{13}$$

wobei A die Amplitude der Wellenfunktion ist. Für  $V_{disp}$  gilt:

$$V_{disp} = -\sum_{n=3}^{N} f_{2n}(R) C_{2n} R^{-2n},$$
(14)

wobei die  $C_{2n}$  durch folgende Rekursionsrelation bestimmt werden können:

$$C_{2n} = (C_{2n-2}/C_{2n-4})^3 C_{2n-6}, (15)$$

und die Dämpfungsfunktionen  $f_{2n}(R)$  wie folgt:

$$f_{2n}(R) = 1 - e^{-bR} \sum_{k=0}^{2n} \frac{(bR)^k}{k!}.$$
 (16)

Hierbei wird der Abstandsparameter b durch Ableitung bestimmt:

$$b(R) = -\frac{d}{dR} ln(V_{rep}).$$
(17)

Als Gesamtheit betrachtet, beschreiben die Gleichungen (11) bis (17) das Van-der-Waals-Potential des Heliumdimers in Abhängigkeit von Abstand R, Ionisierungsenergie  $E_{Ion}$  und Wellenfunktionsamplitude A.

Im folgenden wird die Wellenfunktion des Heliumdimeres betrachtet. Als eine analytische Form der Wellenfunktion schlägt Bressanini vor, die von Rick, Lynch und Doll gefundene Wellenfunktion um einen exponentiellen Term im Exponenten zu erweitern. Dieser Term minimiert die lokale Varianz als entscheidendes Qualitätsmerkmal für eine Wellenfunktion, die nahe am Experiment liegende Bindungsenergien liefert. Im Falle des Dimeres entspricht die Zweiteilchen-Paarfunktion der gesamten Wellenfunktion des Moleküles. Die Wellenfunktion nach [Br2011] lautet:

$$\Psi(r) = \exp\left(d_0 e^{-d_1 r} + \frac{p_5}{r^5} + \frac{p_2}{r^2} + p_0 ln(r) + p_1 r\right).$$
(18)

Der Term  $exp(d_0e^{-d_1r})$  minimiert die lokalen Varianzen,  $exp(\frac{p_5}{r^5} + \frac{p_2}{r^2})$  beschreibt die kurzreichweitige Abstoßung und  $exp(p_0ln(r) + p_1r)$  das asymptotische Verhalten der Wellenfunktion bei großem Abstand der Atome. Als Parameter wurden angesetzt:

| Parameter      | Wert            |
|----------------|-----------------|
| $p_5$          | $-1485,\!60098$ |
| $\mathbf{p}_2$ | -6,146323       |
| $\mathbf{p}_1$ | -0,005390       |
| $\mathbf{p}_0$ | -1,013632       |
| $d_0$          | -76,371281      |
| $d_1$          | -1,007803       |

Diese Wellenfunktion reproduziert 98 %der in jener Arbeit zum Vergleich genutzten Bindungsenergie von ca. 113 neV.

#### 2.3.2 Das Heliumtrimer

Das Heliumtrimer wurde 1994 von Schöllkopf und Toennies gemeinsam mit dem Heliumdimer gefunden [KoMoSa2011]. Vom Trimer ist experimentell das isotopenreine <sup>4</sup>He<sub>3</sub> bekannt, sowie <sup>4</sup>He<sub>2</sub><sup>3</sup>He [KaKo2005]. Letzteres ist auch theoretisch darstellbar, nicht dagegen <sup>4</sup>He<sup>3</sup>He<sub>2</sub> [BrZa2000].

Das Heliumtrimer ist im Grundzustand deutlich kleiner und stärker gebunden als das

Dimer. Die Vorhersagen nennen für die Bindungsenergie ca. 10,9  $\mu$ eV (entsprechend ca. 126 mK) [KoMoSa2011], [BrScTo2002]. Die He-He-Bindungslänge im Trimer wird für den Grundzustand mit 9,6 Å [BrKa2005] bzw. 11 +4/-5 Å [KoMoSa2011], [KoTo2007] angegeben.

Im Gegensatz zum Heliumdimer wird für das Heliumtrimer ein angeregter Zustand vorhergesagt. Dessen Bindungsenergie wird zu ca. 197 neV (entsprechend 2,28 mK) berechnet [KoMoSa2011], [BrScTo2002]. Die He-He-Bindungslänge wird mit 79,7 Å angegeben [BrKa2005]. Dieser angeregte Zustand ist demnach ähnlich groß und schwach gebunden wie das Heliumdimer. In Abb. 2 sind die Wahrscheinlichkeitsverteilungen für Grund- und angeregten Zustand aufgetragen.



Abbildung 2: Wahrscheinlichkeitsdichte für den Grund- und angeregten Zustand des Heliumtrimeres als Funktion des effektiven Hyperradius' [KoTo2007]. Dabei hängt der Hyperradius R von den Abständen  $\mathbf{r}_{ij}$  von je zwei Kernen i und j ab wie R =  $\sqrt{r_{12}^2 + r_{13}^2 + r_{23}^2}$ .

Der Ionisierungsquerschnitt des Trimeres wurde mit dem 3,2fachen desjenigen des Heliumatoms bestimmt. Für drei freie Atome würde man den Faktor 3 erwarten. Daß der gemessene Faktor nahe an dieser ganzen Zahl liegt, ist ein Zeichen dafür, daß die Bindung auch beim Trimer schwach ausgeprägt ist [ScTo1994].

In Heliumjets findet man für eine bestimmte Temperatur den maximalen Molanteil von Trimeren bei höheren Drücken als das analoge Maximum für das Dimer. Dies liegt in der höheren Stabilität des Trimers und der größeren Anzahl der konstituierenden Atome begründet. Wenn man die Speed Ratio gegen den Druck aufträgt, zeigt sich ein ausgeprägtes Maximum [BrScTo2002], wie in Abb. 3 zu sehen. Bei z. B.  $T_0 = 12$  K liegt das Maximum bei  $p_0 = 1$  bar.

Die Bildung der Heliumtrimere setzt in Richtung steigenden Druckes typischerweise beim Maximum der Speed Ratio ein. Durch die relativ hohe Bindungsenergie des Trimeres werden nämlich die umgebenden Teilchen im Jet aufgeheizt, was die Geschwindigkeitsverteilung wieder breiter werden läßt. Im Gegensatz dazu findet die hauptsäch-



Abbildung 3: Gemessene finale Speed Ratios und finale Jettemperaturen für verschiedene Temperaturen als Funktion des Drucks. Die gestrichelten Linien beinhalten eine Korrektur für die endliche Ausdehnung des Ionisators und die zeitliche Ausdehnung der Chopper Pulse [BrScTo2002].

liche Bildung der Heliumdimere in etwa bei maximaler Speed Ratio statt [BrScTo2002]. In Abb. 4 für  $T_0 = 12$  K ist das für die bei  $p_0 = 1$  bar maximale Speed Ratio gut nachvollziehbar.

Über die räumliche Konfiguration des Heliumtrimeres besteht im Experiment nach wie vor Unklarheit. Denkbar sind alle Übergänge zwischen linearem Aufbau und einer Position der drei Heliumatome an den Ecken eines gleichseitigen Dreieckes. Bezüglich der theoretischen Betrachtungen kommen verschiedene Autoren mit unterschiedlichen Ansätzen zu Ergebnissen, die das ganze Spektrum der Möglichkeiten abdecken [BrMo2011]. Aktuelle Ergebnisse von Bressanini und Morosi gehen dahin, daß das Heliumtrimer sich räumlich sehr flexibel verhält und mit signifikanter Wahrscheinlichkeit sowohl in nahezu linearer Form als auch als gleichseitiges Dreieck vorgefunden werden kann, wobei letztere Konfiguration die etwas häufigere ist [BrMo2011]. In Abb. 5 ist diese breite Wahrscheinlichkeitsverteilung auf der rechten Seite gut sichtbar.

#### 2.3.3 Der Efimovzustand des Heliumtrimeres

1970 veröffentlichte Efimov einen Artikel, in dem er für bestimmte Teilchentripel eine spezielle Form der Bindung beschreibt [Ef1970]. Diese Bindung basiert weder auf der Kombination von Atomkernen und Elektronen zu Atomen noch auf dem Teilen von Elektronen wie bei der Elektronenpaarbindung und stellt daher eine völlig neue Form der Bindung dar [Ma2007].



Abbildung 4: Gemessene Molanteile (schwarze Symbole) bei verschiedenen Temperaturen als Funktion des Druckes. Weiße Symbole zeigen die um die Streuung am Restgas in der Düsenkammer korrigierten Werte [BrScTo2002].



Abbildung 5: Die Form eines dreiatomigen Moleküles wird durch die Winkel zwischen den je zwei Atome verbindenden Radien definiert. Zwei der drei Winkel genügen, um die Form festzulegen. Hier sind die Wahrscheinlichkeiten, ein Molekül in einer bestimmten Form anzutreffen, dargestellt, wobei die jeweilige Form durch die beiden Winkelachsen definiert ist. Für <sup>20</sup>Ne<sub>3</sub> (links) und <sup>4</sup>He<sub>3</sub> (rechts) zeigen sich deutliche Unterschiede. Ersteres liegt meist als gleichseitiges Dreieck vor, letzteres zeigt eine große Formvariabilität von gleichseitigem Dreieck bis zu linearer Anordnung der Atome [BrMo2011].

Für das Heliumtrimer sind bei Verwendung von verschiedenen Potentialen jeweils genau zwei gebundene Zustände vorhergesagt [KoMoSa2011]. Einer von diesen ist der bereits gefundene Grundzustand. Bei dem anderen Zustand vermutet man stark, daß es sich bei ihm - sofern er existiert - um den von Efimov beschriebenen Bindungszustand, einen sogenannten Efimovzustand, handelt [KoMoSa2011].

Efimov beschreibt die Bildung dieses Zustandes wie folgt [Ef1971]: Es werden drei identische Teilchen betrachtet, von denen je zwei einen gebundenen Zustand niedriger Energie aufweisen. Dabei ist der sich ergebende Effekt unabhängig von der konkreten Art der Kräfte; sie müssen nur resonant sein. Es wird für die ausschließlich betrachteten neutralen und spinlosen Teilchen angenommen, daß der Radius der Kräfte  $r_0$  viel kleiner als die Streulänge a sei und weiterhin daß die Stärke der Kräfte mit  $r_0$  wie  $1/r_0^2$  fällt.

Nahe von Resonanzen gilt für den Zusammenhang zwischen Bindungsenergie  $E_b$  und Streulänge a [GrSh2011]:

$$E_b(a) = -\frac{\hbar^2}{ma^2}.$$
(19)

Die von Efimov betrachteten kleinen Bindungsenergien bewirken demnach große Streulängen; z. B. beträgt die Streulänge zweier Heliumatome im Dimer 104 +8/-18 Å [KoMoSa2011]. In [Ef1971] argumentiert Efimov nun weiter, daß die Teilchen höchstens in einem Volumen mit einer Ausdehnung in der Größenordnung von a wechselwirken können. Wenn sich die Stärke der wechselwirkenden Kraft ändert, unterliegt auch a Schwankungen, wobei a gegen unendlich geht sofern sich die Bindungsenergie zweier Teilchen 0 nähert.

Die Zweiteilchenkräfte werden in einen resonanten Anteil mit der charakteristischen Reichweite a und einen nicht-resonanten mit der Reichweite  $r_0$  unterteilt. Wenn man nun den Bereich a  $\gg r_0$  betrachtet, kann man den nicht-resonanten Anteil der Kräfte vernachlässigen. Im nächsten Schritt wird vom verbleibenden Bereich nur der "nähere" Teil betrachtet, so daß man a =  $\infty$  setzen kann. In diesem Abstandsbereich hängt die Wechselwirkung zwischen den drei Teilchen weder von  $r_0$  noch von a ab. Es wird gezeigt, daß die Wechselwirkung im verbleibenden Bereich ~ $1/R^2$  ist, wobei sich R durch die paarweisen Abstände  $r_{ij}$  wie folgt definiert:

$$3R^2/2 = r_{12}^2 + r_{23}^2 + r_{13}^2.$$
<sup>(20)</sup>

Die stärkste Wechselwirkung zwischen den drei Teilchen tritt im symmetrischen Zustand ohne Drehimpuls (L = 0) auf und ist in diesem Fall attraktiv. Bei Zuständen mit anderen Quantenzahlen lassen die Asymmetrien den Efimovzustand nicht auftreten, d. h. die Wechselwirkung ist in diesen Fällen abstoßend oder überhaupt nicht wirksam.

Bei einer quantenmechanischen Wechselwirkung zweier Teilchen in einem Potential ~1/r verdichten sich die Zustände mit zunehmender Energie. Analog verdichten sich die Efimovzustände, wenn a  $\rightarrow \infty$ . Eine Abschätzung für die Anzahl der auftretenden Efimovzustände N<sub>Efi</sub> liefert:

$$N_{Efi} \approx \frac{1}{\pi} ln \frac{|a|}{r_o}.$$
(21)

Für die Energieabstände zweier aufeinanderfolgender Niveaus findet man [Ma2007]:

$$\frac{E_{N+1}}{E_N} = e^{-\frac{2\pi}{s_0}},\tag{22}$$

wobei  $s_0$  einen Wert nahe 1 hat und die Lösung einer transzendenten Gleichung zur Berechnung des Energiespektrums ist.

Man kann den Efimovzustand auch als Spezialfall der Vibrationsbindung (im Englischen "vibrational bonding") betrachten [Ma2007]. Sogar für mehr als drei Teilchen sind Efimovzustände denkbar [KoMoSa2011].

In seinen ursprünglichen Arbeiten vermutet Efimov den nach ihm benannten Zustand bei den Kernen H<sub>3</sub> und <sup>12</sup>C als Verbindung dreier  $\alpha$ -Teilchen [Ef1970]. In realiter gefunden wurde ein Efimovzustand zuerst 2006 bei ultrakalten <sup>133</sup>Cs-Atomen [GrSh2011]. Es folgte 2009 die Entdeckung eines heteronuklearen, dreiatomigen Systems aus <sup>41</sup>K und <sup>87</sup>Rb sowie 2010 die von gasförmigen <sup>6</sup>Li-Atomen, wobei jedes der drei Atome in einem anderen, niederenergetischen Zustand war [KoMoSa2011]. Obwohl oft gesucht,

wurde bisher noch kein Efimovzustand des  ${}^{4}\text{He}_{3}$  experimentell belegt. In [BrKa2005] wurde eine Obergrenze von 6 % für den Anteil des Efimovzustands am Heliumtrimer ermittelt. Dies soll Grund genug sein, weiter nach dem Efimovzustand des Heliumtrimers zu suchen. Dazu müssen die verschiedenen im Gasjet vorkommenden Cluster nach Größe getrennt werden, wozu die Grundlagen im nächsten Kapitel beschrieben werden.

#### 2.4 Materiewellenbeugung

Ziel dieser Arbeit ist es, Heliumatome und -moleküle nach ihren Clustergrößen örtlich zu trennen und dieses Spektrum automatisch aufzunehmen. Um dies zu erreichen, wird das Prinzip der Materiewellenbeugung angewendet. Ein großer Vorteil dieser Methode ist, daß bei den in der Praxis benötigten kleinen Ablenkwinkeln nur kleine Kräfte auf die Cluster wirken. Dadurch bleibt auch das extrem schwach gebundene Heliumdimer intakt und kann so separiert werden [ScTo1994].

#### 2.4.1 Materiewellen

Lange nachdem bekannt war, daß elektromagnetische Strahlung Wellencharakter hat, stellte man fest, daß sie je nach Situation auch Teilchencharakter aufweisen kann. Dieses Phänomen wird durch den Welle-Teilchen-Dualismus beschrieben. Umgekehrt können Phänomene, die man primär im Teilchenbild betrachtet, ebenso Wellencharakter zeigen. Die einem Teilchen zugewiesene Wellenlänge, die De-Broglie-Wellänge  $\lambda_{deBroglie}$ , hängt nur von dessen Impuls p ab, und zwar wie folgt:

$$\lambda_{deBroglie} = \frac{h}{p}.$$
(23)

Setzt man für ein Helium cluster mit N Atomen der Masse m<br/> in einem Gasjet mit der Geschwindigkeit v für den Impuls<br/>  $\mathbf{p}=\mathbf{Nmv}$ an, erhält man [ScTo1994]:

$$\lambda_{deBroglie} = \frac{h}{Nmv}.$$
(24)

Da die Heliumatome im Gasjet eine sehr homogene Geschwindigkeitsverteilung aufweisen, ist die De-Broglie-Wellenlänge der verschieden großen Cluster gerade umgekehrt proportional zur Zahl der im Cluster enthaltenen Atome. Somit erfahren die verschiedenen Clusterfraktionen bei den im folgenden beschriebenen Beugungserscheinungen unterschiedliche Ablenkwinkel und können so separiert werden.

#### 2.4.2 Beugung elektromagnetischer Wellen am Gitter

Es sei zunächst die Beugung elektromagnetischer Wellen an einem Gitter der Gitterkonstante d mit N Spalten, dessen Spaltbreiten vernächlässigt werden können, betrachtet. Der Abstand der Beobachtungsebene sei groß gegen die Gesamtbreite des Gitters Nd. Die Intensitätsmaxima n-ter Ordnung finden sich bei Ablenkwinkeln  $\theta_n$ , die gerade so groß sind, daß die Gangunterschiede zwischen benachbarten Spalten ein Vielfaches der Wellenlänge  $\lambda$  sind [GrHe2000]:

$$\sin\theta_n = \frac{n\lambda}{d}.\tag{25}$$

Kombiniert man Gleichung (24) mit Gleichung (25) [ScTo1994] und berücksichtigt man, daß für kleine Ablenkwinkel  $\theta$  die Näherung sin $\theta \approx \theta$  gilt, so ergibt sich:

$$\theta_n = \frac{nh}{dNmv}.$$
(26)

Die vollständige Winkelabhängigkeit der Intensitätsverteilung läßt sich z. B. wie folgt finden [GeKnVo1992]: Jeder Gitterspalt wird als eine von N kohärenten Lichtquellen behandelt. Für einen beliebigen Ablenkwinkel  $\theta$  aus der Strahlrichtung ergibt sich für den Gangunterschied zweier benachbarter Spalte d sin $\theta$ . Daraus folgt für die beiden dort entspringenden Wellen die Phasendifferenz  $\delta$ :

$$\delta = \frac{2\pi}{\lambda} \ d \ \sin\theta. \tag{27}$$

Die Amplitude jeder einzelnen von einem Spalt ausgehenden Welle sei A'. Man kann nun die Amplituden in einem Zeigerdiagramm addieren (siehe Abb. 6). N mal die Amplitude A' aneinandergereiht und jedes Mal um die Phasenverschiebung  $\delta$  gedreht ergeben einen Polygonzug. Die resultierende Amplitude A hat die Länge der Sehne des Polygonzuges.

Die Länge von A läßt sich leicht finden, wenn man berücksichtigt, daß der Polygonzug auf einem Kreis liegt. Dessen Radius r ist, wie aus Abb. 6 ersichtlich, wenn man einen schmalen Kreisausschnitt mit halber Phasenverschiebung  $\delta$  betrachtet,

$$r = \frac{A'}{2\,\sin\frac{\delta}{2}}.\tag{28}$$

Der gesamte Polygonzug umfaßt den Winkel N<br/>  $\delta.$  Für die Gesamtamplitude A läßt sich daher aus Abb. 6 ables<br/>en:

$$A = 2r \, \sin\frac{N\delta}{2}.\tag{29}$$



Abbildung 6: Zur Berechnung der Winkelabhängigkeit der Amplitude von an einem Gitter gestreuten Wellen [GeKnVo1992].

Einsetzen von Gleichungen (28) und (27) sowie Quadrieren für den Übergang von Amplitude A zu Intensität I liefern das Ergebnis:

$$I = A^2 = A^{\prime 2} \frac{\sin^2(\frac{N\delta}{2})}{\sin^2(\frac{\delta}{2})} = A^{\prime 2} \frac{\sin^2(\frac{N\pi d \sin\theta}{\lambda})}{\sin^2(\frac{\pi d \sin\theta}{\lambda})}.$$
(30)

Sei nun ein einzelner Spalt der Breite <br/>s betrachtet. Die hier und im folgenden betrachtete Geometrie ist aus Abb. 7<br/> ersichtlich.



Abbildung 7: Abstrahierter Querschnitt durch das im Experiment verwendete Gitter mit graphischer Definition einiger Größen. Verändert nach [GrSc2000].

Man kann einen Einzelspalt als eine Aneinanderreihung von zahlreichen Spalten der Anzahl M und infinitesimaler Breite s' betrachten, mit der Bedingung, daß Ms' = s. Gleichung (30) kann damit analog verwendet werden, wobei noch die folgenden Umschreibungen vorgenommen werden. Da die Gangunterschiede zwischen Wellen von aneinandergrenzenden "Teilspalten" sehr gering sind, kann im Nenner  $sin\frac{\delta}{2}$  durch  $\frac{\delta}{2}$ ersetzt werden. Was in Gleichung (30) die Breite des gesamten Gitter ist, nämlich Nd, ist beim Einzelspalt die Breite eben dieses Ms' = s. Die Amplitude der Einzelwellen A' wird durch A" ersetzt, wobei gerade wieder MA" = A' ist. Damit ergibt sich für die Intensitätsverteilung eines Einzelspaltes:

$$I = (A'')^2 \frac{\sin^2(\frac{M\pi s' \sin\theta}{\lambda})}{(\frac{\pi s' \sin\theta}{\lambda})^2} = (A')^2 \frac{\sin^2(\frac{\pi s \sin\theta}{\lambda})}{(\frac{\pi s \sin\theta}{\lambda})^2}.$$
(31)

Nun werden die Gleichung für die Gitterintensität (30) und diejenige für die Spaltintensität (31) miteinander multipliziert, um die vollständige Intensitätsverteilung  $I(\theta)$ eines Gitters mit ausgedehnten Spalten zu erhalten [BeSc2004]:

$$I(\theta) = (A')^2 \frac{\sin^2(\frac{N\pi d \sin\theta}{\lambda})}{\sin^2(\frac{\pi d \sin\theta}{\lambda})} \cdot (A')^2 \frac{\sin^2(\frac{\pi s \sin\theta}{\lambda})}{(\frac{\pi s \sin\theta}{\lambda})^2}.$$
 (32)

Es ist deutlich ersichtlich, daß dort, wo ein einzelner Spalt ein Intensitätsminimum, Dunkelheit, erzeugt, also der rechte Faktor in Gleichung (32) = 0 ist, ein Gitter aus vielen solcher Spalte nie Helligkeit erzeugen kann. Umgekehrt kann dort, wo ein Einzelspalt eine Intensität generiert, diese durch das Gitter verschwinden. Da die Intensitätsextrema des Gitters viel näher aneinanderliegen als diejenigen des Einzelspaltes, erscheint die Spaltfunktion als Einhüllende der Gitterfunktion.

#### 2.4.3 Beugung von Materiewellen am Gitter

Für Materiewellen gelten im ersten Schritt dieselben Gleichungen wie für Beugungserscheinungen an Gittern und Spalten. Allerdings gibt es im Detail Unterschiede. So ist ein von Teilchen erzeugtes Beugungsbild nicht durch ein Teilchen alleine ersichtlich. Das quantenmechanisch betrachtete Einzelteilchen unterliegt einer statistischen Aufenthaltswahrscheinlichkeit [GrHe2000]. Diese wird durch das Quadrat von den Teilchen zugeordneten Wellenfunktionen beschrieben. Somit folgt die Aufenthalts- bzw. beim Gitter Auftreffwahrscheinlichkeit für ein einzelnes Teilchen den im vorigen Abschnitt entwickelten Gleichungen. Erst durch eine Vielzahl betrachteter Teilchen wird im Histogramm die Intensitätsverteilung in Abhängigkeit vom Ablenkwinkel deutlich.

Weitere Unterschiede bei der Betrachtung von Teilchen gegenüber idealen Wellen ist die räumliche Ausdehnung und innere Struktur der Teilchen. Die Beugung von Teilchen kann letztlich nur korrekt als quantenmechanische Streuung verstanden werden [GrHe2000]. Diese Streuung findet an den einzelnen Spalten statt, so daß man zunächst allgemein schreiben kann (in Anlehnung an [GrSc1999]):

$$I(\theta) = (A')^2 \frac{\sin^2(\frac{N\pi d \sin\theta}{\lambda})}{\sin^2(\frac{\pi d \sin\theta}{\lambda})} \cdot |f_{Spalt}(\theta)|^2.$$
(33)

Um die Spaltfunktion zu ermitteln, startet man bei folgendem, aus Huygens' Prinzip abgeleitetem Zusammenhang [GrSc1999], wobei die Spalte entlang der x-Achse aufgereiht sind und die Strahlrichtung parallel zur z-Achse liegt:

$$f(\theta) = \frac{\cos\theta}{\sqrt{\lambda}} \int_{Spalte} \psi(x, z = 0) e^{-ikx\sin\theta} dx.$$
(34)

Betrachtet man einen Einzelschlitz und geht man von der Variablen x auf die Variable  $\zeta$  mit  $\zeta = \frac{s}{2} - x$  über, die an einer Spaltseite 0 ergibt, erhält man [GrSc1999]:

$$f_{Spalt}(\theta) = \frac{\cos\theta}{\sqrt{\lambda}} \ 2\int_0^{\frac{s}{2}} \tau(\zeta) \ \cos\left[k(\frac{s}{2}-\zeta)\right] d\zeta. \tag{35}$$

Man kann nun einige Umformungen vornehmen, wobei man berücksichtigt, daß die Wellenfunktion im Schlitz an den Wänden verschwindet, also  $\tau$  (0) = 0 ist. Außerdem wird ein Dämpfungsterm  $e^{-k^2\sigma_0^2 \sin^2\theta_n}$  eingeführt, der ein Oberflächenpotential an den Wänden des n-ten Spaltes berücksichtigt.  $\sigma_0^2$  bezeichnet hierbei die Varianz der geometrischen Spaltbreite und k die Wellenzahl der Materiewelle. Schließlich gelangt man zu einer Gleichung für das Verhältnis der Intensität des n-ten Maximums zum Maximum nullter Ordnung [GrSc1999]:

$$\frac{I_n}{I_0} = e^{-\left(\frac{2\pi n\sigma}{d}\right)^2} \left[ \frac{\sin^2\left(\frac{\pi ns_{eff}}{d}\right) + \sinh^2\left(\frac{\pi n\delta}{d}\right)}{\left(\frac{\pi ns_{eff}}{d}\right)^2 + \left(\frac{\pi n\delta}{d}\right)^2} \right].$$
(36)

Dabei beizeichnet  $\sigma^2$  die um eine additive Konstante veränderte Varianz der Spaltbreiten, s<sub>eff</sub> < s die effektive Spaltbreite und  $\delta$  eine Größe, die die Kontrastminderung des Beugungsbildes durch Wechselwirkung der Teilchen mit dem Gitter, die Ausdehnung der Teilchen und deren endliche Geschwindigkeitsverteilung berücksichtigt [GrHe2000].

Zum Abschluß dieses Kapitels sei darauf eingegangen, wie man gerade die Abweichungen der Beugung von idealen und Materiewellen nutzen kann, um hochinteressante Ergebnisse zu erhalten. Gleichung (36) kann genutzt werden, um die gemessenen Positionen von Intensitätsmaxima durch Variation von  $s_{eff}$  zu fitten. Für die mittlere räumliche Ausdehnung  $\langle r \rangle$  z. B. des Heliumdimers läßt sich einfach ableiten [GrHe2000]:

$$\frac{\langle r \rangle}{2} = s_{eff}^{He}(v) - s_{eff}^{^{4}He_{2}}(v).$$
(37)

Grisenti et al. haben in [GrSc2000] diesen Fit für mehrere Geschwindigkeiten durchgeführt und schließlich mit einer etwas komplexeren Theorie analog zu Gleichung (37) die bereits zuvor zitierte mittlere Größe des Heliumdimeres zu  $\langle r \rangle = 52 \pm 4$  Å bestimmt.

### 3 Versuchsaufbau

Auftrennung und Nachweis des Heliums und seiner Oligomere erfolgen in einer evakuierten, mehrstufigen Kammer. Das Vakuum in der Kammer wird durch mehrere kontinuierlich arbeitende Turbopumpen, unterstützt durch je eine temporär arbeitende Getter- und eine Titansublimationspumpe, erreicht und liegt bei einem Restgasdruck von 2,3  $\cdot 10^{-11}$  mbar.

Das gasförmige Helium wird aus einer handelsüblichen Gasflasche über ein regelbares Ventil und einen Kryostaten in die Kammer geleitet. Dabei wurden Druck und Temperatur im Bereich von 0,9 bis 3,3 bar bzw. von 8 bis 16 K eingestellt. Die Austrittsdüse des Heliums ist in allen drei Raumrichtungen verstellbar gelagert, um sicherzustellen, daß bei unterschiedlichen Temperaturen und somit Längenkontraktionen der mitgekühlten Gaszuführung der Skimmer jederzeit optimal getroffen werden kann.

### 3.1 Kammeraufbau

Die Kammer besteht aus sechs Stufen mit den im folgenden beschriebenen Komponenten und Übergängen:

- Die Expansionskammer, in der der Heliumjet eingelassen wird, bildet die erste Stufe.
- Es folgt in 10-20 mm Abstand ein Skimmer, ein dem Heliumjet entgegengerichteter Trichter mit einem Öffnungsdurchmesser von 300  $\mu$ m, der den mittleren Teil des Heliumjets möglichst wirbelfrei ausschneidet.
- Die nächste Kammer mit einer Länge von 176 mm, die zweite Stufe, dient dem differentiellen Pumpen.
- Ein kleines Rohr von 60 mm Länge und 8 mm Durchmesser, angebracht auf der Strahlachse, bildet den Eingang zur Gitterkammer und begrenzt die Rückdiffusion zur Unterstützung des differentiellen Pumpens.
- In der Gitterkammer, der dritten Stufe, sind die Nanogitter (Details werden im folgenden Abschnitt beschrieben) an rechnerbasiert ansteuerbaren Manipulatoren verfahrbar angebracht. Vor dem Nanogitter befinden sich drei auf gleiche Weise verfahr- und damit austauschbare Schlitzblenden, die den Heliumjet begrenzen und auf nur eines der Nanogitter treffen lassen.

- Den Übergang zur darauffolgenden Kammer bildet wiederum ein Rohr von 60 mm Länge und 8 mm Durchmesser.
- In der vierten Kammer sind zwei Paare von verstellbaren Kollimatoren senkrecht zur Strahlachse und jeweils senkrecht zueinander installiert. Diese Kammer wird daher im folgenden Kollimationskammer genannt.
- Eine Lochblende von 2 mm Durchmesser begrenzt den Übergang zur nächsten Kammer.
- Es folgt die Reaktionskammer. In dieser ist der COLTRIMS-Detektor aufgehängt, mit dessen Hilfe die Strukturen der Heliumoligomere vermessen werden können.
- Die letzte Kammer ist durch eine Lochblende mit 10 mm Durchmesser mit der Reaktionskammer verbunden.
- In der letzten Kammer, dem sogenannten "Dump", ist das Massenspektrometer installiert, mit dem die durch das Nanogitter selektierten Atome bzw. Moleküle zusätzlich nachgewiesen werden können.

Die wichtigsten Elemente des Aufbaues werden in Abb. 8 skizziert. Abb. 9 veranschaulicht mithilfe eines computergenerierten Querschnittes durch die Kammer die maßstäblichen Proportionen der Komponenten. Auf Abb. 10 schließlich ist der tatsächliche Versuchsaufbau gezeigt.



Abbildung 8: Skizze des Versuchsaufbaues. Dabei sind alle wichtigen Komponenten gezeigt sowie die wichtigsten Abmessungen.

Becht hat bereits ein ähnliches Experiment durchgeführt und beschrieben [Be2012]. Daher seien hier explizit die Unterschiede zum dort genutzten Versuchsaufbau aufgeführt:

• Durch Ventile abtrennbare und herausnehmbare Gitterkammer. Dadurch ist es möglich, Manipulationen an der geöffneten Gitterkammer vorzunehmen, während die beiden übrigen, großvolumigen Kammerteile evakuiert bleiben. So entfällt ein großer Teil des Zeitaufwandes für das anschließende, erneute Abpumpen.



Abbildung 9: Computergenerierter Schnitt durch die Gitterkammer mit Bezeichnung der wichtigsten Komponenten. Man beachte, daß der Gasjet hier - im Gegensatz zu Abb. 8 - von rechts nach links strömt.



Abbildung 10: Photographische Ansicht des Versuchsaufbaus. Auch hier strömt der Gasjet von rechts nach links.

- Getrenntes Vorvakuumsystem von Expansions- bis Gitterkammer auf der einen Seite und Kollimationskammer bis Dump auf der anderen Seite. Dadurch kann einer der beiden genannten Bereiche belüftet werden, während der andere evakuiert bleibt.
- Automatisierung der Verschiebung von Gitter und Spalt durch Linearmotoren. Hierbei handelt es sich um den Kern dieser Bachelorarbeit. Die Gitterund Spaltpositionen können rechnergestützt festgelegt werden. Weiterhin kann eine Routine abgerufen werden, die Gitter und Spalt automatisch durch einen vordefinierten, jeweils interessanten Bereich verfährt. Die Gitter- und Spaltpositionen werden den übrigen gemessenen Daten mitgegeben, so daß in der Ausgabe ein automatisch erzeugtes Spektrum vorliegt.

### 3.2 Nanogitter und Spalte

Die drei in dieser Arbeit verwendeten Nanogitter stammen von der Arbeitsgruppe um Schöllkopf und Toennies aus Göttingen. Die Gitter sind auf einem gemeinsamen Träger fixiert. Der Gitterträger ist durch einen Linearmotor verfahrbar angebracht, so daß je ein Gitter ausgewählt werden kann, um vom Heliumjet bestrahlt zu werden. Die Linearmotorsteuerung erfolgt über die Software CoboldPC. Die Verfahrgenauigkeit liegt bei 100 nm ohne Positionskontrolle bzw. bei 1,56  $\mu$ m bei Positionskontrolle mithilfe eines Encoders. Die drei im Experiment genutzten Spalte sind analog zu den Gittern auf einem gemeinsamen Träger angebracht und unabhängig von den Gittern verfahrbar. Die Spalte weisen Breiten von 25  $\mu$ m, 50  $\mu$ m und 100  $\mu$ m auf. Die Anordnung der Spalte und Gitter nebst Trägern ist in Abb. (11) ersichtlich.

Die Abmessungen der drei Gitter sind identisch: Bei einer Gitterkonstanten von 100 nm weisen sie Stegbreiten von 50 nm auf. Zusätzlich stabilisiert alle 5  $\mu$ m ein Querbalken das Gitter. Herstellungsbedingt ist die eine Seite der Gitterstäbe schmaler als die nominelle Stegbreite. Die Gitter wurden so angebracht, daß die schmälere Seite der Spalte in Strahlrichtung zeigt.

Gitter dieser Art werden seit 1995 hergestellt, zuerst durch Tim Savas aus der Arbeitsgruppe Prof. Hank Smith des MIT [KoTo2007]. Dabei wird das Verfahren der Laserinterferometrie genutzt [GrHe2000], um aus dem keramischen Werkstoff Siliziumnitrid (SiN<sub>X</sub>) [Be2012] extrem feine Gitterstäbe herauszuarbeiten. Auf Abb. 12 ist ein solches Gitter mit den gleichen Abmessungen wie die hier verwendeten dargestellt.

### 3.3 Massenspektrometer

Das verwendete Massenspektrometer ist eines der Bauart Quadrupolmassenspektrometer. Der kleinste meßbare Partialdruck beträgt bei dem verwendeten Massenspektrometer  $1 \cdot 10^{-14}$  mbar. Die nachzuweisenden Atome werden dazu durch Elektonenstöße ionisiert. Den Kern des Gerätes bilden vier sich an den Ionisationsbereich anschließende, parallel angeordnete, im Querschnitt ein Quadrat formende Metallstäbe hyperbolischen



Abbildung 11: Computergenerierter Schnitt durch die Gitterkammer mit Bezeichnung der wichtigsten Komponenten.



Abbildung 12: Elektronenmikroskopische Aufnahme eines Nanogitters. Links sind die stützenden Querbalken deutlich sichtbar, rechts der trapezförmige Querschnitt der einzelnen Gitterstege [KoTo2007].

Querschnittes, die von den Ionen in y-Richtung durchflogen werden. Die jeweils diagonal gegenüberliegenden Stäbe liegen auf gleichem Potential. An den Quadrupol schließt sich ein Ionendetektor an. Die wichtigsten Komponenten des Massenspektrometers sind in Abb. 13 gezeigt.



Abbildung 13: Prinzip eines Quadrupolmassenspektrometers [Pf2013].

In dem von den Metallstäben umschlossenen Raum stellt sich ein Potential  $\phi$  ein mit (die weitere Darstellung dieses Kapitels folgt [De]):

$$\phi(x,y) = \frac{\phi_0}{2r_0^2}(x^2 - z^2), \tag{38}$$

wobei die x-Richtung durch die Verbindungslinie der positiven Elektroden gegeben ist, die z-Richtung durch diejenige der negativen Elektroden. Das elektrische Feld hat damit die beiden Komponenten:

$$E_x = -\frac{\phi_0}{r_0^2} x \quad und \quad E_z = \frac{\phi_0}{r_0^2} z.$$
(39)

Die elektrostatische Kraft in x-Richtung wirkt also einer etwaigen Auslenkung von der Achse des Quadrupols entgegen und stabilisiert so die Ionen mit einer harmonischen Schwingung in der x-y-Ebene. Umgekehrt werden die Ionen in z-Richtung von der Quadrupolachse weggetrieben. Bei statischem Feld wirkt der Quadrupol also in einer Ebene stabilisierend und orthogonal dazu destabilisierend.

Addiert man nun zur statischen Spannung U eine hochfrequente Wechselspannung mit der Amplitude V, weist das das Potential eine Zeitabhängigkeit auf:

$$\phi_0 = U + V\cos(\omega t). \tag{40}$$

Nun wirkt der Quadrupol im zeitlichen Ablauf für eine Richtung abwechselnd stabilisierend und destabilisierend. Welcher der beiden Effekte überwiegt, kann man wie folgt ermitteln. Die Bewegungsgleichungen senkrecht zur Quadrupolachse lauten:

$$\ddot{x} + \frac{q}{mr_0^2}(U + V\cos\omega t)x = 0 \quad und \quad \ddot{z} - \frac{q}{mr_0^2}(U + V\cos\omega t)z = 0.$$
(41)

Durch Einführen der dimensionslosen Parameter:

$$a = \frac{4qU}{mr_0^2\omega^2} \quad , \quad b = \frac{2qV}{mr_0^2\omega^2} \quad und \quad \tau = \frac{1}{2}\omega t \tag{42}$$

kann man die Bewegungsgleichungen in Mathieusche Differentialgleichungen überleiten:

$$\frac{d^2x}{d\tau^2} + (a + 2b\cos 2\tau)x = 0 \quad und \quad \frac{d^2z}{d\tau^2} - (a + 2b\cos 2\tau)z = 0 \quad .$$
(43)

Abhängig von a und b haben diese Gleichungen entweder stabile Lösungen, d. h., die Ionen werden in x- und in z- Richtung stabilisiert, oder instabile Lösungen, d. h., die Ionen werden in mindestens einer der beiden Richtungen destabilisiert. Dabei hängt die Stabilität oder Instabilität einer Lösung nicht von den Anfangsbedingungen ab. Der stabile Bereich hat im a-b-Diagramm eine oben spitz zulaufende Form, wie in Abb. 14 veranschaulicht. Durch die Wahl der Parameter a und b, deren Quotient nicht von m abhängt, kann man die Arbeitsgerade so durch die Spitze des stabilen Bereiches legen, daß nur Ionen einer bestimmten Masse das Ende des Quadrupols erreichen und dort detektiert werden.

### 3.4 COLTRIMS Detektor und Auswerteelektronik

COLTRIMS steht für **Co**ld Target Recoil Ion Momentum Spectroskopy. Das Funktionsprinzip besteht darin, daß im Inneren des zylinderförmigen COLTRIMS-Detektors aus ungeladenen Teilchen geladene Fragmente erzeugt, mit elektrischen und magnetischen Feldern zu den Stirnseiten des Zylinders geführt und dort zeit- und ortsaufgelöst detektiert werden.

Im Detail können die geladenen Teilchen auf verschiedene Weise erzeugt werden. Z. B. kann eine Atom- oder Molekülspezies im Gasjet mit einem anderen Teilchenstrahl gekreuzt werden, um die Stoßprozesse zu untersuchen. In diesem Experiment wird der Heliumjet mit einem Laser gekreuzt, der über einen Hohlspiegel im Gasjet fokussiert wird. Die resultierende Leistungsdichte wurde auf 6  $\cdot 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> geschätzt. Eine Leistungsdichte dieser Größenordnung bietet hinreichend viele Photonen pro Zeiteinheit,



Abbildung 14: Ausschnitt aus den Stabilitätsbereichen eines Quadrupolmassenspektormeters im a-b-Diagramm. Durch die Wahl der Spannungen U und V werden die Parameter a und b festgelegt. Unterschiedlich schwere Ionen können nun im stabilen Bereich liegen, durchlaufen den Quadrupol und werden so nachgewiesen, wie hier die Ionen der Massen  $m_1$  und  $m_2$ . Ionen der Masse  $m_3$  werden ausgefiltert und nicht nachgewiesen [De].

um die Heliumatome mit Mulitphotonenionisation zu ionisieren. Mit einem parallel zur Zylinderachse liegenden statischen elektrischen Feld werden die Ionen, "Recoils" genannt, zur einen Stirnseite, die Elektronen zur anderen Stirnseite geführt. Die Feldstärke muß dabei so bemessen sein, daß auch nach den Stoßprozessen transversal zur Zylinderachse auftretende Impulse so überlagert werden, daß die Teilchen die Detektoren erreichen. Für die sich schneller als die Ionen bewegenden Elektronen wird dies durch ein durch zwei Helmholtzspulen generiertes, ebenfalls parallel zur Zylinderachse liegendes magnetisches Feld erreicht, das die Elektronen auf Spiralbahnen innerhalb des Zylinders zwingt. Das Aufbauprinzip des COLTRIMS-Detektors ist aus Abb. 15 ersichtlich.

In diesem Experiment wurden die Elektronen nicht betrachtet, da keine Strukturanalyse des Heliums und seiner Cluster erfolgen sollte. Für den Nachweis und die Ermittlung von Molanteilen von Heliumatomen, -dimeren und -trimeren genügt es, die Heliumionen zu analysieren. Demzufolge blieben die am Experiment vorhandenen Helmholtzspulen ungenutzt. Zudem wurde die sonst für die Elektronen bestimmte, kürzere Seite des COLTRIMS-Detektors für den Nachweis der Ionen verwendet.

Die Spannung der Spektrometerseiten werden so gewählt, daß die aus Wasserstoffaufbrüchen stammenden Protonen mit einem kinetic energy release (KER) von etwa 10 eV außerhalb der MCPs auftreffen. Durch diese Einstellung von etwa 110 V auf die Spektrometerlänge von 26,6 cm, entsprechend 4,1 V/cm, wird ein guter Teil des Untergrundes unterdrückt.



Abbildung 15: Aufbauprinzip eines COLTRIMS-Detektors [UlMo2003], ursprünglich nach Moshammer et al. (2003).

Die Detektorseiten bestehen aus je einer Multi-Channel-Plate (MCP) mit darauf nach außen anschließender Delayline-Anode. Die MCPs sind aus Bleiglas mit zahlreichen feinen Kapillaren, die nahezu in Achsenrichtung des Zylinders zeigen, gefertigt. Auftreffende Ionen oder Elektronen mit hinreichender Energie lösen von der Kapillarwand ein Sekundärelektron aus. Um diesen Stoßprozeß zu unterstützen, werden die Kapillaren leicht aus der Zylinderachse herausgedreht. Das Sekundärelektron trifft nun erneut auf die Kapillarwand und löst weitere Elektronen aus, bis schließlich eine Elektronenlawine erzeugt wird, die aus der Kapillare austritt. Durch die entweichenden Elektronen erfährt das MCP eine Potentialdifferenz, die aus einer Spannungsquelle wieder auf das ursprüngliche Niveau nachgeregelt wird. Dieser Prozeß ist als kurzer Stromfluß detektierbar, der ausgewertet wird und den Zeitpunkt des Auftreffens des Primärteilchens auf das MCP festlegt [VoCz].

Aus der MCP-Kapillare ausgetreten, trifft die Elektronenlawine auf die Delayline-Anode. Diese besteht aus drei Schichten aus dicht nebeneinanderliegenden, parallelen Drähten, die im 60°-Winkel gegeneinander gedreht sind. Es wird zunächst eine der Schichten betrachtet. Die auf einen Draht auftreffende Elektronenwolke induziert in diesem einen sich in beide Richtungen ausbreitenden Stromstoß. Durch Vergleich der Ankunftszeitpunkte der Stromstöße an den beiden Enden des Drahtes läßt sich die Ortskoordinate des Auftreffpunktes auf dem Draht rekonstruieren. Durch die Auswertung einer zweiten, gekreuzten Drahtschicht erhält man beide Ortskoordinaten in der Anodenebene. Die dritte Schicht dient zum Abgleich und für eine höhere Genauigkeit. Aus den beiden Ortskoordinaten und dem Zeitpunkt des Auftreffens auf dem MCP läßt sich nun der Anfangsimpuls des Iones rekonstruieren.

Die Elektronik zur Auswertung besteht aus zwei hintereinandergeschalteten Verstärkern, einem Constant Fraction Discriminator (CFD), der die verstärkten Signale in besser verarbeitbare Rechteckspannungspulse umwandelt und schließlich einem Time Digital Converter (TDC), der die Zeiten der jeweiligen Signale mißt und an den Auswertungsrechner übergibt.

Da die Betrachtung der Flugzeiten der Heliumionen bei den Auswertungen eine große Rolle spielt, sei hier auf die wichtigsten Zusammenhänge eingegangen. Die die Ionen beschleunigende Feldstärke liegt parallel zur Spektrometerachse an. Anfangsgeschwindigkeiten der Ionen senkrecht zu dieser Achse haben also keinen Einfluß auf die Flugzeit. Im folgenden werden daher nur die skalaren Komponenten der verschiedenen Vektoren in Richtung der Spektrometerachse betrachtet. Zunächst gilt für die Beschleunigung, die ein Ion im elektrischen Feld erfährt [Sc2006]:

$$a = \frac{qE}{m},\tag{44}$$

wobei q die Ladung des Ions und E die elektrische Feldstärke ist. Für den Zusammenhang zwischen Beschleunigungsstrecke  $x_a$  und Beschleunigungszeit  $t_a$  gilt damit [Sc2006]:

$$x_a = \frac{1}{2}at_a^2 + v_i t_a, (45)$$

wobei  $v_i$  die Anfangsgeschwindigkeit in Feldrichtung ist. Setzt man Gleichung (44) in Gleichung (45) ein, drückt die Geschwindigkeit  $v_i$  durch den Anfangsimpuls in Feldrichtung  $p_i$  aus und löst nach  $t_a$  auf, erhält man [Ti2004]:

$$t_a = \frac{-p_i + \sqrt{p_i^2 + 2x_a q m E}}{q E}.$$
(46)

Die Heliumionen nehmen auf der Beschleunigungsstrecke von rund 4 cm bei E  $\approx 4$  V/cm ca. 16 eV Energie auf. Demgegenüber stammen die variablen Anfangsimpulse aus der Coulombexplosion nach der Ionisation. Für kleine Anfangsimpulse kann man in Gleichung (46) das Quadrat des Anfangsimpulses vernachlässigen, für größere nicht unbedingt. Damit ist die Abhängigkeit der Flugzeit vom Anfangsimpuls in Feldrichtung für  $p_i^2 \ll 2x_a$ qmE linear, ansonsten nicht. Die weitere Betrachtung bezieht sich auf den häufigen Fall linearer Abhängigkeit von Flugzeit und Anfangsimpuls. Für ein coulombexplodierendes Zweiteilchensystem heißt das, daß die Summe der Flugzeiten t<sub>1</sub> und t<sub>2</sub> wegen der Impulserhaltung bei der Explosion eine Konstante C ist. Entsprechend gilt die Abhängigkeit [Be2012]:

$$t_2(t_1) = C - t_1. (47)$$

Analoges gilt für die Summe der Flugzeiten von drei aus dem gleichen Heliumtrimer stammenden Heliumatomen, nur daß hierbei für drei anstelle für zwei Teilchen die Komponenten der Anfangsimpulse in Feldrichtung betrachtet werden müssen. Dann ist leicht ersichtlich, daß  $t_1 + t_2 + t_3 = C'$  und somit [Be2012]:

$$t_3(t_1, t_2) = C' - t_1 - t_2.$$
(48)

### 4 Messungen

Mit der im vorigen Kapitel beschriebenen Versuchsanordnung wurden die hier beschriebenen Messungen durchgeführt. Bei laufendem Gasjet wurden Düse, Laser und Massenspektrometer so ausgerichtet, daß der Laserfokus im Gasjet lag und der verbleibende Gasjet im Massenspektrometer registriert wurde. Nun wurde der Träger mit den drei Spalten mit dem zuständigen Linearmotor verfahren und dabei über Beobachtung des Heliumpartialdruckes festgestellt, an welchen Positionen die Spalte liegen. Darauf wurde der Spaltträger aus dem Gasjet entfernt und der Gitterträger verfahren, um auch hier die Positionen der Gitter zu bestimmen. Der Partialdruck des Heliums ist um etwa eine Größenordnung abgefallen, wenn entweder ein Spalt oder ein Gitter im Strahlengang waren. Bei Anwesenheit beider betrug der Abfall etwa zwei Größenordnungen und lag im Bereich von 1 -  $2 \cdot 10^{-12}$  mbar.

Von nun an wurde immer eines der Gitter mit einem der Spalte kombiniert und parallel verfahren. Die Schrittmotoren wurden über CoboldPC so angesteuert, daß sie eine bestimmte Zeitspanne an einer festen Position blieben, um Meßdaten zu erfassen. Diese Verweilzeiten lagen zwischen 2 und 20 s. Nach dieser Zeit wurden die Linearmotoren eine gewisse Zahl von Encoderschritten weiterbewegt, und zwar entweder um 5 oder um 10, entsprechend 7,8 bzw. 15,6  $\mu$ m.

Der abgerasterte Bereich wurde mit einer Ausnahme so gewählt, daß er vom Beugungsmaximum nullter Ordnung bis zum Beugungsmaximum erster Ordnung der Heliumatome, genannt "Monomere" reichte. Nun wurden die folgenden Meßserien durchgeführt, wobei die Ergebnisse jeweils in einer LMF-Datei festgehalten und anschließend mit CoboldPC analysiert wurden:

- Als Ausnahme von dem zuvor Geschilderten wurde ein symmetrisches Beugungsbild erfaßt, das den gesamten von der Geometrie des Aufbaues ermöglichten Ablenkwinkel umfaßt. Hierzu wurde Gitter 3 mit Spalt 50  $\mu$ m genutzt, eine Verweilddauer von 3 s und eine Auflösung von 15,6  $\mu$ m in der Gitterebene genutzt.
- Jedes Gitter wurde mit jedem Spalt kombiniert. Diese neun Vergleichsmessungen dienten dazu, die optimale Spalt-Gitter-Kombination für die folgenden Meßreihen auszuwählen. Die Verweilzeiten betrugen 2 oder 4 s und in einer Ausnahme 20 s bei einer Auflösung von jeweils 7,8  $\mu$ m.

- Für die jeweils konstanten Drücke von 1,3, 1,8 und 2,4 bar wurde in 1 K-Schritten die Temperatur von 8 bzw. 10 K bis 16 K variiert und jeweils ein Spektrum aufgenommen. Die Verweilzeit betrug 5 s und die Auflösung 7,8  $\mu$ m.
- Für die konstante Temperatur von 12 K wurde unter Einbeziehung von Meßpunkten aus den vorigen drei Meßreihen - in etwa 0,4 bar-Schritten für Drücke zwischen 0,9 und 3,3 bar jeweils ein Spektrum aufgenommen. Die Verweilzeit betrug analog zu den vorigen Serien 5 s und die Auflösung 7,8  $\mu$ m.
- Bei 12 K und 1,4 bar wurde der Abstand von der Heliumdüse zum Skimmer in 2 mm-Schritten zwischen 3 und 9 mm variiert und jeweils ein Spektrum aufgenommen. Auch hier betrug die Verweilzeit 5 s und die Auflösung 7,8 μm.

### 5 Auswertung

Die Auswertung gliedert sich in verschiedene, z. T. unabhängige Unterkapitel. Zu Beginn der Auswertung seien daher zwei Sachverhalte dargestellt, die mehrere der Unterkapitel betreffen.

Einerseits waren die für einen Teil der Messungen eingestellten Temperaturen in 1 K-Schritten variiert worden. Dafür wurde ein Sensor am Hauptmeßpunkt in rund 200 mm Abstand von der Düsenöffnung genutzt. Allerdings entspricht die Temperatur an diesem Meßpunkt nicht exakt derjenigen des Heliumjets vor dem Verlassen der Düse. Bei einer Meßreihe für eingestellte Temperaturen von 8 sowie 10 bis 16 K wurde eine zweite Temperatur zusätzlich aufgenommen. Diese wurde von einem Sensor ermittelt, der sich deutlich näher an der Düse befand, nämlich in 30 mm Abstand. Mit der nun bekannten Überleitung zwischen den Temperaturen wurden anschließend für die temperaturbasierten Auswertungen die eingestellten Temperaturen auf die realistischeren Temperaturen kurz vor der Düse umgerechnet. Für T = 9 K, wofür eine Messung an der Düse fehlt, wurde die Differenz der Temperaturen näherungsweise interpoliert.

Andererseits wurden bei der Auswertung der Beugungsspektren meist Bedingungen angewendet. Diese filtern aus der Vielzahl der registrierten Ereignisse die für die jeweilige Auswertung relevanten heraus. Die verwendeten Bedingungen sind die folgenden:

- Time of flight wide (TOFwide): Es werden nur die Ereignisse ausgewertet, bei denen die Flugzeit 2800 +50/-450 ns beträgt (siehe auch entsprechende Markierung in Abb. 16). Damit wird die Auswertung auf Ereignisse beschränkt, die gerade eine Flugzeit aufweisen, die - einfache Ionisation vorausgesetzt - sie als Helium identifiziert. Enthalten sind hierin sowohl Heliummonomere als auch Heliumdiund -trimere, die beim Aufbruch parallel zur Anode ausgerichtet waren, so daß die erzeugten Ionen aus der Coulombexplosion nur Impulse transversal zum elektrischen Feld erhalten.
- Time of flight narrow (TOFnarrow): Es werden nur die Ereignisse ausgewertet, bei denen die Flugzeit  $2800 \pm 30$  ns beträgt (siehe auch entsprechende

Markierung in Abb. 16). Damit wird das bei der vorigen Bedingung geschilderte Prinzip noch konsquenter angewendet.

- **Dimer:** Es werden nur die Ereignisse ausgewertet, bei denen innerhalb einer Spannweite von  $\pm$  40 ns die Flugzeit des zweiten Iones genau den Betrag aufweist, den sie haben sollte, wenn das Ion gemeinsam mit dem ersten Ion ein Dimer gebildet hatte, also Gleichung (47) erfüllt ist. Diese Bedingung erhält noch zahlreiche zufällige Koinzidenzen, bei denen innerhalb eines Laserpulses zwei Monomere ionisiert wurden.
- Dimer40cut: Es werden nur die Ereignisse ausgewertet, bei denen innerhalb einer Spannweite von ± 40 ns - die Flugzeit des zweiten Iones genau den Betrag aufweist, den sie haben sollte, wenn das Ion gemeinsam mit dem ersten Ion ein Dimer gebildet hatte. Zusätzlich muß die Flugzeitdifferenz zwischen 50 und 2000 ns liegen. Die in der vorigen Bedingung noch enthalten Koinzidenzen werden so ausgefiltert, denn bei ihnen geht die Flugzeitdifferenz gegen 0. Durch die Obergrenze wird der ab diesem Bereich dominierende Untergrund unterdrückt.
- Trimer100300cut: Es werden nur die Ereignisse ausgewertet, bei denen innerhalb einer Spannweite von -300/+100 ns - die Flugzeit des dritten Iones genau den Betrag aufweist, den sie haben sollte, wenn das Ion gemeinsam mit den ersten beiden Ionen ein Trimer gebildet hatte, also Gleichung (48) erfüllt ist. Zusätzlich werden alle Ereignisse ausgeschlossen, bei denen die Flugzeit des dritten Ions über 4500 ns beträgt, um den Untergrund zu unterdrücken.

Welche Bedingungen in einer bestimmten Auswertung zur Anwendung kamen, ist im jeweiligen Unterkapitel beschrieben.

### 5.1 Flugzeitspektren und Flugzeitkorrelationen

Als Grundlage für die weiterführenden Auswertungsschritte werden an dieser Stelle Flugzeitspektren und die Abhängigkeiten der Flugzeiten von Ionen aus demselben Aufbruchereignis dargestellt. Trägt man die Häufigkeit der von den Detektoren registrierten Ereignisse über der Flugzeit auf, ergibt sich ein eindimensionales Flugzeitspektrum wie in Abb. 16 wiedergegeben. Bei - wie hier - hinreichend großer Beschleunigungsenergie kann man den Anfangsimpuls in Gleichung (46) vernachlässigen und über den Zusammenhang

$$m = \frac{qEt^2}{2x} \tag{49}$$

die Masse der jeweils registrierten Teilchen ermitteln. Diese lassen sich anhand der Zusammensetzung des Restgases in der Apparatur leicht bestimmten Ionen zuordnen. Die Peaks in Abb. 16 sind entsprechend beschriftet.

Wenn ein Mehrteilchensystem durch die Laserionisation aufbricht, sind die Flugzeiten korreliert. Die Gleichungen (47) und (48) beschreiben diesen Zusammenhang. Entspre-



Abbildung 16: Häufigkeit der innerhalb von 20 s Meßzeit aufgetretenen Flugzeiten. Die Peaks können über Gleichung (49) bestimmten Massen und Ionen zugeordnet werden. Letztere sind in der Abbildung vermerkt. In roter Farbe sind die Flugzeitintervalle von zwei der zur Selektion des Heliums genutzten Bedingungen angedeutet.

chend kann man Ereignisse selektieren, bei denen zwei Teilchen auf den Detektor treffen und die Häufigkeit der Ereignisse in Abhängigkeit von der Flugzeit des ersten und derjenigen des zweiten Teilchens auftragen. Das ist in Abb. 17 geschehen.

Besonders häufige Kombinationen zeigen sich in der Darstellung in einem Hervortreten bestimmter Flugzeitkombinationen. Zunächst fällt die bei Flugzeit 1 = Flugzeit 2  $\approx$ 1400 ns beginnende Diagonale auf. Vom Flugzeitspektrum ist bekannt, daß Protonen rund 1400 ns für den Weg zum Detektor benötigen. Es handelt sich bei der Diagonalen also um Aufbrüche des H<sub>2</sub>-Moleküles, bei dem die Flugzeiten der beiden Protonen, wie in Gleichung (47) beschrieben, korreliert sind. Analog besteht die bei Flugzeit 1 = Flugzeit 2  $\approx$  2800 ns beginnende Diagonale aus Aufbrüchen des Heliumdimeres zu zwei Heliumionen. Deutlich ersichtlich ist, daß die Korrelationskurven für ähnliche Flugzeiten der Konstituenten - also im unteren Bereich der Kurve - annähernd eine Gerade beschreiben. Das ist der Fall, wenn die Moleküle beim Aufbruch ungefähr parallel zum Detektor ausgerichtet sind. Im anderen Fall differieren die Flugzeiten stärker, die zuvor gemachte Näherung ist nicht mehr gültig und der Zusammenhang wird nicht-linear.

Weiterhin fallen die achsenparallelen Geraden konstanter Flugzeit 1  $\approx$  2800 ns bzw. Flugzeit 2  $\approx$  2800 ns ins Gesicht. Diese enthalten Ereignisse, bei denen jeweils ein Heliumatom ionisiert wurde und im gleichen Laserpuls ein anderes Atom bzw. Molekül. Es handelt sich hierbei also um zufällige Koinzidenzen.



Abbildung 17: Histogramm des Auftretens von Flugzeit-Flugzeit-Kombinationen. Die Beschriftungen der Pfeile stellen jeweils dar, welches Teilchen nach der auf der x-Achse aufgetragenen Flugzeit und welches nach der auf der y-Achse aufgetragenen Flugzeit am Detektor eingetroffen ist. Die beiden Diagonalen resultieren aus Aufbrüchen diatomarer Moleküle, deren Flugzeiten nach Gleichung (47) korreliert sind. Die beiden achsenparallelen Geraden beschreiben zufällige Koinzidenzen einer Heliumatomionisation und der eines anderen Atomes bzw. Moleküles.

Analog zur Flugzeitabhängigkeit zweier Teilchen kann man bei der Flugzeitabhängigkeit dreier Teilchen vorgehen. In Abb. 18 ist die Häufigkeit des Auftretens von Dreiteilchenereignissen gegenüber der Summe der Flugzeiten der ersten beiden Teilchen auf der x-Achse und der Flugzeit des dritten Teilchens auf der y-Achse aufgetragen. Wie von Gleichung (48) beschrieben, ergibt sich für Aufbrüche von Teilchen aus drei Konstituenten eine Korrelation, die sich wie in der vorigen Abbildung in einer je nach Achsenskalierung mehr oder weniger schrägen Gerade widerspiegelt.

Auch hier kann es zu zufälligen Koinzidenzen kommen, wenn in einem Laserpuls mehrere Moleküle bzw. Atome ionisiert werden. Die bei Flugzeit 3  $\approx$  2800 ns zur x-Achse parallele Gerade besteht nun aus einem Heliumion als dritten Teilchen und nicht wie zuvor einem, sondern nun zwei beliebigen anderen Ionen auf der x-Achse. Eine zur y-Achse parallele gerade Gerade durch den Startpunkt der Diagonalen der Heliumtrimere ist nicht ersichtlich. Diese würde einem aufgebrochenen Heliumdimer bzw. zwei koinzidenten Ionisationen von Heliumatomen auf der x-Achse und einem beliebigen anderen Ion auf der y-Achse entsprechen. Allerdings sind dazu - wie später gezeigt wird - die



Abbildung 18: Histogramm des Auftretens von Kombinationen dreier Flugzeiten. Die Beschriftungen der Pfeile stellen jeweils dar, welche Teilchen in die Flugzeiten auf der xund welches in die auf der y-Achse eingegangen sind. Der für das Experiment wichtigste Bereich ist die schräge Gerade im oberen Bereich. Sie besteht aus Aufbrüchen des Heliumtrimeres. Die Flugzeiten der drei resultierenden Heliumionen sind nach Gleichung (48) korreliert. Die beiden achsenparallelen Geraden und der kreisförmige untere Bereich beschreiben Koinzidenzen mit zumindest einer Zufallskomponente. Ausführliche Erläuterungen hierzu finden sich im Text.

Häufigkeiten der Heliumdimere zu niedrig bzw. die Wahrscheinlichkeiten für mehrere Heliumionisationen im gleichen Laserpuls zu gering.

Gegenüber der Flugzeitkorrelation zweier Teilchen gibt es nun zwei neue Bereiche im Histogramm. Das ist einerseits eine Gerade parallel zur y-Achse bei einer Flugzeitsumme von Teilchen eins und zwei von rund 2800 ns. Aus dem Flugzeitspektrum ist ersichtlich, daß diese Flugzeitsumme nur von zwei Protonen erreicht werden kann. Die Gerade beschreibt also den Aufbruch eines H<sub>2</sub>-Moleküles, zu dem zufällig ein anderes Ion als drittes Teilchen den Detektor erreicht. Der andere neue Bereich ist kreisförmig und bei 2800 ns auf der x-Achse sowie etwa 1500 ns auf der y-Achse zu finden. Er besteht vermutlich aus drei Protonen aus zwei Aufbrüchen von H<sub>2</sub>-Molekülen, wobei ein Proton nicht detektiert wurde. Dadurch sind nur noch zwei der drei detektierten Teilchen korreliert, da das vierte Proton einen unbekannten Impuls mit sich trägt. Demzufolge ist der Impuls dessen ehemaligen Bindungspartners mit den beiden übrigen Protonen unkorreliert. Zudem kann das unkorrelierte Proton als erstes, zweites oder drittes Teilchen auftreffen. Dieser Effekt erklärt den relativ großen Durchmesser des kreisförmigen Bereiches sowohl in x- als auch in y-Richtung.

Nachdem in diesem Abschnitt die Grundlagen zu Flugzeitspektren und -korrelationen erläutert wurden, leitet der folgende Abschnitt zur Untersuchung der Beugungsphänomene über.

### 5.2 Beugungspanorama

Die Aufnahme des "Panoramas" wurde so eingestellt, daß die gesamte Öffnung der Apparatur bis zu den maximalen, nur durch die Blenden begrenzten Beugungswinkeln abrastert wurde. Als Bedingung zur Anzeige wurde TOFwide verwendet.



Abbildung 19: Maximal sichtbares Beugungsbild bei T = 11,5 K und p = 1,5 bar, aufgenommen mit Verweilzeit 3 s, Auflösung 7,8  $\mu$ m in Gitterebene, ausgewertet mit der Bedingung TOFwide.

Deutlich sind in Abb. 19 die Maxima der Monomere bis zur zweiten Ordnung erkennbar. Diejenigen dritter Ordnung sind bei knapp unter 1200 Encoderschritten ebenfalls wahrnehmbar. Die Maxima nicht-nullter Ordnung auf der rechten Seite sind durchweg stärker ausgeprägt als auf der linken. Die Ursache hierfür könnte in einer inhomogenen Verteilung der Flußdichte des auf das Gitter treffenden Heliumjets liegen. Da das Gitter senkrecht zum Heliumjet verfahren wird, um verschiedene Bereiche des Beugungsbildes zu messen, können so - je nach betrachtetem Teil des Beugungsbildes - unterschiedliche Jetintensitäten zum Tragen kommen.

Weiterhin ist feststellbar, daß die Maxima 2. Ordnung durchaus gut wahrnehmbar sind. Bei einem idealen Beugungsbild eines Gitters mit einer Spaltbreite s =  $\frac{1}{2}$ d, wie bei den in dieser Arbeit verwendeten Gittern der Fall, sollte dieses Maximum nach Gleichung (32) vollständig unterdrückt sein. Hier wird deutlich, wie stark das tatsächliche Beugungsbild von Materiewellen, beschrieben durch Gleichung (36), vom idealen Beugungsbild abweichen kann.

### 5.3 Spalt-Gitter-Kombinationen

Als nächstes wurden die neun möglichen Kombinationen der drei Gitter mit den drei Spalten verglichen. Dazu wurde jeweils der identische Teil des Beugungsspektrums vom Maximum nullter Ordnung bis zum Maximum erster Ordnung der Monomere betrachtet. Der Vergleich erfolgte mit den Bedingungen TOFwide und Dimer. Letztere Bedingung arbeitet das Maximum erster Ordnung der Heliumdimere sowie durch zufällige Koinzidenzen das Maxima der Monomere und die erste und zweite Ordnung der Heliumtrimere heraus. In Abb. 21 ist das Beugungsbild der ausgewählten Kombination von Gitter 3 und 25  $\mu$ m Spalt mit Bezeichnung der sichtbaren Maxima dargestellt. Diese Kombination wurde für die nachfolgenden Meßreihen ausgewählt.

Nun seien die Betrachtungen dargelegt, die zu dieser Auswahl führten. Sie erfolgte im wesentlichen anhand der in Abb. 20 gezeigten Spektren. Die angewendeten Kriterien waren, wobei die quantitativen lediglich grob abgeschätzt wurden:

• In bezug auf die verschieden breiten Spalte:

Auflösungsvermögen

Erzielbare Zählrate

• In bezug auf die von der Herstellung her identischen Gitter: Mögliche Gitterfehler

Beim Vergleich der drei Spalte offenbarte sich, daß das Verhältnis aus Ereignissen/ Zeiteinheit im Maximum eines Peaks und Ereignissen/Zeiteinheit integriert über die Breite eines Peaks für den 100  $\mu$ m Spalt kleiner ist als für den 50  $\mu$ m Spalt. Kurz gesagt, der breitere Spalt erlaubt zwar bei sonst gleichen Bedingungen eine höhere Zählrate, verringert dafür aber die Auflösung. In der Praxis zeigte sich z. B., daß der 100  $\mu$ m Spalt das Maximum zweiter Ordnung der Heliumtrimere kaum herausarbeitet, während dieses bei den schmäleren Spalten deutlich sichtbar ist. Daher schied der 100  $\mu$ m breite Spalt aus.



Abbildung 20: Beugungsbilder der drei Gitter in Kombination mit den drei Spalten, aufgenommen bei T = 9,2 K und p = 1,7 - 1,8 bar, Verweilzeiten zwischen 2 und 20 s, Auflösung 7,8  $\mu$ m in Gitterebene, angezeigt mit der Bedingung Dimer. Während die x-Achse für alle Teilgraphiken die gleiche Skalierung aufweist, ist die y-Achse unterschiedlich gestreckt bzw. gestaucht, um die Spalt-Gitter-Kombination besser optisch vergleichen zu können. Die für die nachfolgenden Meßreihen ausgewählte Gitter-Spalt-Kombination ist rot umrandet und wird in Abb. 21 vergrößert dargestellt.

Der 50  $\mu$ m Spalt liefert mit manchen Gittern bereits deutlichere Maxima für die zweite Ordnung der Trimere. Er wäre möglicherweise der ideale Kompromiß zwischen guter Auflösung und erzielbarer Zählrate. Allerdings zeigt er in Verbindung mit Gitter 2 kaum das zweite Maximum der Heliumtrimere. Bei einem potentiell erzwungenen Gittertausch könnte so schnell Auflösung verloren gehen. Daher schied auch dieser Spalt aus.

Interessant ist die Feststellung, daß, wenn man die Gitter vergleicht, Gitter 2 in Kombination mit sowohl dem 50  $\mu$ m als auch mit dem 100  $\mu$ m Spalt kaum das zweite Maximum der Dimere zeigt. Es wäre denkbar, daß hier ein Gitterfehler vorliegt, z. B. in Form einer Verunreinigung.

Im Gegenzug ist der 25  $\mu$ m Spalt der einzige, der in Verbindung mit allen Gittern neben dem zweiten Maximum der Trimere auch teilweise das schwache Maximum erster

Ordnung der Dimere herausarbeitet. Er erzeugt zudem die schärfsten Maxima. Daher fiel die Wahl auf diesen Spalt.

Bezüglich der beiden verbleibenden Gitter 1 und 3 ist beim Vergleich zu berücksichtigen, daß die Verweilzeit bei Gitter 1 mit 25  $\mu$ m Spalt 4 s betrug, bei Gitter 3 mit 25  $\mu$ m Spalt allerdings 20 s. Diese Ausnahme bei der Verweildauer ergab sich durch eine parallel zur Messung anstehende Aktivität, die keine Programmierung der Aufnahme von weiteren Spektren erlaubte. Diese Zeit wurde daher zur Verlängerung der Verweildauer genutzt.

Konsequenterweise präsentiert sich das Spektrum des 25  $\mu$ m Spaltes mit Gitter 3 viel glatter als mit Gitter 1. Das heißt im Umkehrschluß, daß potentielle Gitterstörungen viel eher bei Gitter 3 als bei Gitter 1 sichtbar sein sollten. Da das Spektrum von Gitter 3 keine Unregelmäßigkeiten zeigt, ist Gitter 3 mit höherer Wahrscheinlichkeit als Gitter 1 frei von Gitterfehlern. Daher fiel die Wahl schlußendlich auf Gitter 3; Gitter 1 dient als Reserve, falls Gitter 3 einen Defekt erleiden sollte. Das Spektrum der gewählten Spalt-Gitter-Kombination ist in Abb. 21 gezeigt.



Abbildung 21: Beugungsbild von Gitter 3 in Kombination mit dem 25  $\mu$ m Spalt bei T = 9,2 K und p = 1,7 bar, aufgenommen mit Verweilzeit 20 s, Auflösung 7,8  $\mu$ m in Gitterebene, angezeigt mit der Bedingung Dimer.

#### 5.4 Detektionswahrscheinlichkeit

In diesem Kapitel wird die Detektionswahrscheinlichkeit abgeschätzt. Becht z. B. hatte als solche 60 % angenommen [Be2012].

Zur Abschätzung der Detektionswahrscheinlichkeit geht man davon aus, daß alle Heliumatome eines Trimeres ionisiert wurden. Wenn alle drei Heliumionen auf die Anode treffen, wird das Ereignis auch als Trimer registriert. Die Summe der Flugzeiten der drei Ionen ist konstant, wie mit Gleichung (48) beschrieben. Wenn von den drei Ionen allerdings nur zwei die Anode treffen, also eines nicht detektiert wird, ist die Gesamtflugzeitsumme nicht mehr konstant, da das verlorene Teilchen einen unbekannten Impuls mit sich führt. Da die Anode zwei Teilchen registriert, wird das Ereignis außderdem nicht als Trimer, sondern als Dimer gewertet. Da die Flugzeitsumme jedoch nicht bzw. nur zufällig mit derjenigen der echten Dimere übereinstimmt, werden diese "versteckten" Trimere im Flugzeit-Flugzeit-Histogramm im Regelfall nicht auf der Diagonalen der echten Dimere liegen. Sie liegen statt dessen neben diesen verstreut, bilden also einen Halo um die echten Dimere. Dieser Bereich ist in Abb. 22 veranschaulicht.

Die Detektionswahrscheinlichkeit p findet man daraus auf folgendem Weg. Von N tatsächlich vorhandenen und annahmegemäß vollständig ionisierten Trimeren finden sich  $N_{gef} = p^3$  N Trimere tatsächlich als solche im Spektrum. Für die "versteckten" Trimere betrachtet man einen Entscheidungsbaum, in dem für jedes der drei ununterscheidbaren Heliumionen zwei Möglichkeiten bestehen: Mit der Wahrscheinlichkeit p die der Detektion, mit der Wahrscheinlichkeit 1-p die der Nicht-Detektion. Von N Trimeren werden also 3 p(1-p) N = N<sub>verst</sub> als Halo um die Dimere erscheinen. Durch Division der beiden Gleichungen ergibt sich:

$$p = \frac{3N_{gef}}{3N_{gef} + N_{verst}}.$$
(50)

Mit verschiedenen Bedingungen wurde der Halo im Auswertungsprogramm CoboldPC isoliert und für das Spektrum mit der längsten Aufnahmedauer - 20 s - über die Anzahl der Ereignisse integriert. Daraus ergab sich die Anzahl von  $N_{verst} = 16.283$ . Im gleichen Spektrum wurde  $N_{gef} = 3.232$  ermittelt. Einsetzen in Gleichung (50) ergibt p = 37,3 %. Mit diesem Wert wird im weiteren gerechnet.

#### 5.5 Temperaturserien

Das Ziel der drei Meßreihen bei den Drücken 1,3, 1,8 und 2,4 bar ist, einen Verlauf der Molanteile des Heliumdimers und -trimers in Abhängigkeit von der Temperatur zu ermitteln. Dazu wurde für jeden Meßpunkt, also jede Druck-Temperatur-Kombination, ein Spektrum aufgenommen. Um die Molanteile zu bestimmen, wurden die Ereignisse in den einzelnen Maxima der verschiedenen Cluster ausgezählt und anschließend unter Berücksichtigung der Detektionswahrscheinlichkeit ins Verhältnis zur Summe aller



Abbildung 22: Modifiziertes Flugzeit-Flugzeit-Histogramm mit Darstellung des Halos der "versteckten" Trimere. Gegenüber Abb. 17 wurden mit einer Kombination verschiedener Bedingungen die Bereiche der "echten Dimere" und die achsenparellelen Geraden mit zufälligen Koinzidenzen entfernt. Die verbleibenden Ereignisse sind Zweiteilchenereignisse, bei denen die einzelnen Flugzeiten im für He<sup>+</sup>-Ionen erwarteten Bereich liegen. Allerdings sind diese nicht korreliert - sonst lägen sie auf der ausgeschnittenen Diagonalen - sondern unkorreliert, was sie als Trimere, bei denen ein He<sup>+</sup>-Ion nicht detektiert wurde, "enttarnt". Im gekennzeichneten Halo wurden im Verlauf von 20 s etwa 16.300 Ereignisse registriert.

Clusterfraktionen gesetzt. Im einzelnen wurde dabei wie folgt vorgegangen:

- Für den Anteil der Dimere wurde mit der Bedingung Dimer40cut über das erste Maximum der Dimere integriert.
- Für den Anteil der Trimere wurde jeweils über die Ereignisse des ersten Maximums der Trimere mit der Bedinung Trimer100300cut integriert.
- Für die Summe der Clusterfraktionen wurde mit der Bedingung TOFnarrow über das erste Maximum der Monomere integriert.

Dabei und bei der anschließenden Berechnung der Molanteile wurden die folgenden Annahmen gemacht:

- Der Untergrund ist durch das Setzen einer adäquaten Bedingung vollständig unterdrückt.
- Die Mengen der Ereignisse in den jeweils ersten Maxima der Clusterfraktionen spiegeln die molare Zusammensetzung des Heliumjets wider. Es wird also u. a. unterstellt, daß die Zerstörungsrate von Nicht-Monomeren an den Gitterwänden vernachlässigbar ist. Für die kleinen Ablenkwinkel des jeweils ersten Maximums dürfte das in guter Näherung der Fall sein.
- Das Maximum erster Ordnung der Monomere fällt unter anderem mit dem Maximum dritter Ordnung der Trimere und dem Maximum zweiter Ordnung der Dimere zusammen. Hier wird angenommen, daß die Anteile der Nicht-Monomere gegenüber den Monomeren so gering sind, daß sie den für die Berechnung der molaren Anteile verwendeten Quotienten kaum beeinflussen. Bei regelmäßig über 50.000 Monomerereignissen und höchstens ca. 500 Clusterereignissen ist diese Annahme sicherlich gerechtfertigt.
- Das zweite Maximum der Heliumhexamere genau genommen das jeweils nte Maximum von Helium<sub>3n</sub> - fällt mit der ersten Ordnung der Heliumtrimere zusammen. Es wird angenommen, daß der Anteil der Hexamere und höherer Cluster vernachlässigt werden kann. Dies wird gestützt durch die Beobachtung, daß das erste Maximum der Hexamere nicht in Erscheinung tritt, obwohl es größer als das zweite Maximum der Hexamere sein sollte.
- Analog wird angenommen, daß die Anzahl der Tetramere in deren Maximum zweiter Ordnung gegenüber der Anzahl der Dimere in deren Maximum erster Ordnung vernachlässigbar ist. Von den Tetrameren ist ebenfalls kein Maximum ersichtlich. Immerhin bringt eine Bedingung, die 4-Teilchen-Ereignisse passender Flugzeiten selektiert, einige Ereignisse zum Vorschein. Deren Anzahl ist jedoch in der Tat gegenüber derjenigen sowohl der Dimere als auch der Trimere vernachlässigbar.

Zur Berechnung der molaren Anteile von  $He_n$  wurde zunächst unter Annahme einer Detektionswahrscheinlichkeit p für ein einzelnes Heliumatom die tatsächlich vorhandene Anzahl des jeweiligen Clusters bzw. des Monomeres rückgerechnet. Anschließend wurde der Quotient aus der Anzahl der tatsächlichen Ereignisse des Clusters und der Anzahl der Ereignisse des Monomeres gebildet. Mit N(He<sub>n</sub>) für die gemessene Anzahl der jeweiligen Ereignisse ergibt sich somit für den molaren Anteil r(He<sub>n</sub>):

$$r(He_n) = \frac{N(He_n)/p^n}{N(He)/p}.$$
(51)

In den Abb. 23 und 24 sind die errechneten Anteile dargestellt. Beim Heliumdimer haben sich Ausbeuten zwischen 0 und 0,45 % ergeben. Über einen großen Teil des verwendeten Temperaturbereiches zeigt sich, daß ein niedriger Druck das Auftreten des Heliumdimers begünstigt. Das ist stimmig mit seiner geringen Bindungsenergie und großen Abmessungen, denn bei größerer freier Weglänge werden weniger Dimere durch Kollisionen zerstört.



Abbildung 23: Molanteile des Heliumdimeres als Funktion der Temperatur bei verschiedenen Drücken.

Betrachtet man den Molanteil für einen festen Druck bei verschiedenen Temperaturen, erkennt man eine Tendenz, bei Temperaturen zwischen 13 und 15 K ein Maximum zu bilden. Von höheren Temperaturen kommend, sollte sich der Anteil des Dimers tatsächlich erhöhen, denn wegen der schwachen Bindungsenergie steigt der Wirkungsquerschnitt für die Dimerbildung mit fallender Temperatur. Für den Abfall von einem Maximum bei weiterem Sinken der Temperatur könnte verantwortlich sein, daß - obwohl existierende Dimere seltener zerstört werden - die Bildungsrate wegen nachlassender Kollisionswahrscheinlichkeit sinkt.

Die Ausbeuten beim Heliumtrimer bewegten sich zwischen 0 und 4,3 % und lagen damit im betrachteten Druck- und Temperaturbereich um bis zu eine Größenordnung über den Dimerausbeuten. Einerseits ist die Bildung des Trimeres dadurch erschwert, daß drei Teilchen zusammentreffen müssen, oder ein wenig stabiles Heliumdimer ein Heliumatom aufnehmen muß, ohne zerstört zu werden. Nach der Bildung allerdings ist das Trimer buchstäblich um Größenordnungen stabiler als das Dimer. Darauf sind wahrscheinlich die oftmals höheren Molanteile zurückzuführen.

In bezug auf den Druck findet sich beim Trimer das gegenüber dem Dimer umgekehrte Verhalten: Bei nachlassendem Druck sinkt der molare Anteil. Das erklärt sich zwanglos durch die Notwendigkeit des Zusammenstoßes dreier Teilchen, um ein Trimer zu bilden,



Abbildung 24: Molanteile des Heliumtrimeres als Funktion der Temperatur bei verschiedenen Drücken.

und die stärkere Stabilität der Trimerbindung.

Bei konstantem Druck steigen die Molanteile mit fallender Temperatur stark an; beim höchsten Druck von 2,4 bar wurde auch ein Abfall des Molanteils bei weiter fallender Temperatur festgestellt. Wahrscheinlich würde sich dies bei noch tieferen Temperaturen auch bei den anderen Drücken zeigen.

### 5.6 Druckserie

Mit den gleichen Bedingungen und Annahmen wie in Kapitel 5.5 wurde eine Meßreihe bei Drücken von 0,9 bis 3,3 bar aufgenommen. Die Ergebnisse sind in Abb. 25 dargestellt.

Ein Effekt, der in Kapitel 5.5 noch auf zwei verschiedene Abbildungen verteilt war, wird hier in einer Abbildung deutlich: Das antagonistische Verhalten des Heliumdiund -trimeres. Bei fallendem Druck wird das Auftreten des Dimeres begünstigt, das Trimer wird seltener. Auch die große Differenz der maximal erreichten Molanteile wird schön illustriert.



Abbildung 25: Molanteile des Helium<br/>di- und -trimeres als Funktion des Drucks bei T $=11,5~{\rm K}.$ 

Bruch et al. haben ebenfalls Molanteile von Heliumdi- und -trimeren in einem Heliumjet gemessen, indem die Intensitäten der jeweiligen Maxima erster Ordnung verglichen wurden. Die Messungen wurden von dieser Arbeitsgruppe bei 6, 12 und 30 K vorgenommen. Bei 12 K betrug die maximale Ausbeute für das Heliumdimer 3,5 % bei einem Druck von 1,75 bar, wobei sie bis hinab zu 1,0 bar auf einem plateauartig hohen Niveau verharrte. Das Heliumtrimer trat mit maximal 6,5 % Häufigkeit bei 3,5 bar auf [BrScTo2002].

Qualitativ lassen sich diese Ergebnisse mit dieser Arbeit gut vereinbaren. Auch hier erreicht der Molanteil des Dimeres zwischen 0,9 und 1,6 bar ein Maximum. Allerdings liegt - im Gegensatz zu [BrScTo2002] - das Maximum am Ende des Intervalles mit niedrigerem Druck. Das Trimer erreicht in dieser Arbeit bei 3,3 bar sein Maximum innerhalb der betrachteten Drücke. Die Abflachung des Anstiegs zum Maximum deutet darauf hin, daß die abfallende, rechte Seite des Maximums bei größeren als den gemessenen Drücken tatsächlich auftreten würde.

Quantitativ betrachtet liegen die Anteile des Heliumtrimeres in beiden Arbeiten in der gleichen Größenordnung, die Anteile des Dimeres weichen in dieser Arbeit um eine Größenordnung nach unten ab. Allerdings lassen sich die Ergebnisse von Bruch et al. [BrScTo2002] nicht direkt mit der vorliegenden Arbeit vergleichen. Die beiden folgenden Ursachen können leicht zu völlig verschiedenen Molanteilen bei den beiden Experimenten führen.

- So können Düse und Skimmer eine jeweils voneinander abweichende Geometrie aufweisen. Je nach Abstand und Durchmesser werden möglicherweise verschiedene Anteile der Bildungszone der Cluster ausgeschnitten.
- Weiterhin haben Bruch, Schöllkopf und Toennies die Heliumcluster durch ein Massenspektrometer nachgewiesen, während in dieser Arbeit ein Laser einen Teil der Cluster zerstörte und die Ionenfragmente nachgewiesen wurden. Daher können z. B. von eins verschiedene und möglicherweise von der Atom- bzw. Molekülspezies abhängende Ionisations- und Detektionswahrscheinlichkeiten die Ergebnisse voneinander abweichen lassen.

### 5.7 Abstandsserie Düse-Skimmer

In diesem Abschnitt sollen die Auswirkungen des am Ende des Abschnittes 5.6 geschilderten Sachverhaltes untersucht werden. Der Skimmer schneidet in bzw. kurz nach der Bildungszone der Heliumdi- und trimere den Teil des Gasjets aus, der für das Experiment verwendet wird. Der Abstand von Düse und Skimmer sollte sich daher empfindlich auf die Bildungsraten von Heliumclustern auswirken. Wenn der Skimmer zu nah an der Düse ist, schneidet er einen Bereich aus, der im Skimmer weiter turbulent expandiert. Wenn der Skimmer zu weit von der Düse entfernt ist, kommt der Gasjet bereits wieder in Kontakt mit dem Restgas mit nachfolgender intensiver Wechselwirkung, ehe er ausgeschnitten wird [UnRo2004].

Es wurde daher in dieser Arbeit eine Serie von Spektren bei Abständen zwischen Düse und Skimmer zwischen 3 und 9 mm aufgenommen, wobei T = 11,5 K und p = 1,4 bar konstant waren. Die Ergebnisse sind in Abb. 26 dargestellt.

Zwar schwankt der Molanteil des Heliumtrimeres zwischen 0,55 und 0,80 %, doch liegen die Meßfehler, beschrieben in Kapitel 5.10, in ähnlicher Größenordnung. Weiterhin gibt es keine hinreichende physikalische Begründung für die fast schon sägezahnartige Abstandsabhängigkeit der Trimerkonzentration.

Daher ist zusammenfassend festzustellen, daß mit den beschriebenen Einstellungen und im Meßintervall zwischen 3 und 9 mm Abstand zwischen Düse und Skimmer keine signifikante Abstandsabhängigkeit nachweisbar ist.

### 5.8 Jetgeschwindigkeit und Wellenlänge

Bei der Aufnahme der Spektren wurde die Position verschiedener Beugungsmaxima gemessen. Über den Abstand S eines Maximums von der Symmetrieachse des Beugungsbildes und der Ordnung des Maximums läßt sich mit Gleichung (25) die De-Broglie-Wellenlänge der Atome und Cluster bestimmen. Aus dieser und der Masse kann mit



Abbildung 26: Molanteile des Heliumdi- und -trimeres als Funktion des Abstandes von Düse und Skimmer bei T = 11,5 K und p = 1,4 bar.

Gleichung (24) auf die Geschwindigkeiten  $\mathbf{v}(\mathbf{S})$  der Teilchen im Heliumjet geschlossen werden.

Auf der anderen Seite gibt Gleichung (10) einen Zusammenhang zwischen der gemessenen Temperatur und der Geschwindigkeit v(T) der Teilchen im Jet. Somit ist die Jetgeschwindigkeit auf zwei verschiedene Weisen bestimmbar. Die Ergebnisse dieser alternativen Methoden sollen hier verglichen werden.

In Abb. 27 sind die aus der Position errechnete Jetgeschwindigkeit v(S) und die aus der Temperatur ermittelte Jetgeschwindigkeit v(T) aufgetragen. Es wird deutlich, daß die von der Temperatur T abgeleitete Geschwindigkeit mit sinkender Temperatur zunehmend von der aus der Position S abgeleiteten Temperatur nach oben abweicht.

In Abb. 28 werden auf analoge Weise die aus der Position bestimmte Wellenlänge  $\lambda(S)$  und diejenige von der Temperatur abgeleitete  $\lambda(T)$  verglichen. Im Prinzip entspricht dies wegen Gleichung (24) einer Kehrwertbildung. Auch bei der Wellenlänge ist deutlich nachvollziehbar, wie sich die beiden Ergebnisse mit fallender Temperatur voneinander entfernen.

Ein Erklärungsansatz für die mit fallenden Temperaturen wachsenden Differenzen von Jetgeschwindigkeiten und Wellenlängen ist, daß Gleichung (10) auf dem Verhalten eines idealen Gases basiert. Bei z. B. Zimmertemperatur ist diese Annahme für viele Gase



Abbildung 27: Vergleich der Jetgeschwindigkeiten. v(S) ist über die De-Broglie-Wellenlänge aus der Position S berechnet, v(T) über die Enthalpieerhaltung aus der Temperatur T.



Abbildung 28: Vergleich der De-Broglie-Wellenlängen der Monomere.  $\lambda(S)$  ist über die De-Broglie-Wellenlänge aus der Position S berechnet,  $\lambda(T)$  über die Enthalpieerhaltung aus der Temperatur T.

sehr gut erfüllt. Allerdings findet dieses Experiment in einem völlig anderen Temperaturbereich statt, der diese Annahme nicht mehr unbedingt rechtfertigt. Ob jedoch gerade dies die genau im betrachteten Temperaturintervall von nahe 0 auf rund 20 % wachsende Differenz erklärt, bleibt fraglich.

Ein anderer Erklärungsansatz ist folgender: Die Berechnung der Geschwindigkeit aus der Position unterliegt keiner Annahme wie des Verhaltens des Heliums als ideales Gas. Daher wird vermutlich v(S) die tatsächliche Geschwindigkeit besser widerspiegeln als v(T). Im Umkehrschluß könnte ein systematischer Fehler in der Temperaturmessung bewirken, daß die tatsächliche Temperatur des Jets niedriger als die gemessene ist.

Die Temperatur wurde über die beiden Temperatursensoren eines Temperaturcontrollers ermittelt. Wie zu Beginn der Auswertung geschildert, wurde dabei die Temperatur über denjenigen Sensor geregelt, der sich in größerer Entfernung, nämlich 200 mm, von der Düse befand. Der zweite, mit 30 mm Abstand deutlich näher an der Düse liegende Temperatursensor zeigte eine nach unten abweichende Temperatur. Diese Temperaturdifferenz wurde über eine Meßreihe beobachtet und vergrößerte sich von  $\Delta T = 0.3$  K bei 16 K auf  $\Delta T = 1.3$  K bei 8 K. In Abb. 29 ist diese Entwicklung graphisch dargestellt.



Abbildung 29: Relative Differenz der Meßwerte aus beiden Temperatursensoren in Abhängigkeit von der Temperatur. Dabei lag die Temperatur des düsennäheren Sensors unter der Temperatur des düsenferneren.

Da sich selbst der näher an der Düse befindliche Temperatursensor ein Stück von der Düse entfernt befindet, liegt die Folgerung nahe, daß die tatsächliche Temperatur des Heliums systematisch noch weiter unter der gemessenen Temperatur liegt. Über die Temperaturleitfähigkeit des Haltesystems zwischen Düse und näherem Temperatursensor und insbesondere der Kontaktstelle zum Sensor selbst sind keine Werte bekannt. Weiterhin unterliegen beide Temperatursensoren im hier genutzten, unkalibrierten Zustand einem Temperaturfehler von  $\pm 0.5$  K. Unterstellt man für die Abweichung durch nicht-ideale Leitfähigkeit zwischen Temperatursensor und Zielort der Messung weitere 1,0 K Abweichung, ergibt sich für die Jetgeschwindigkeit v(T = 6,7 K) = (264  $\pm$  20) m/s. Den in Kapitel 5.10.3 ermittelten Fehler von gut 5 % für v(S) vorwegnehmend, berechnet sich v(S) bei 6,7 K zu (225  $\pm$  11) K. Damit könnten v(T) und v(S) im Rahmen der Meßfehler nahe beieinander zu liegen kommen.

### 5.9 Quellgröße

In der Meßebene stellt man eine bestimmte Breite der Maxima fest, manifestiert in der Halbwertsbreite (Full Width at Half Maximum FWHM). Bedingt durch die Heisenbergsche Unschärferelation muß diese immer von null verschieden sein. Allerdings gibt es weitere Effekte, die die Halbwertsbreite über das Mindestmaß hinaus vergrößern. Das sind z. B. die Schlitzbreite, die Ausdehnung des Laserfokus und nicht zuletzt die Quellgröße.

Während die Schlitzbreite wohlbekannt ist, herrscht über die Größe der eigentlichen Quelle des Heliumjets Unklarheit. Zwar ist der Durchmesser der Düse und des Skimmers bekannt, aber de facto entspringen alle Heliumatome und -cluster des Jets einer Quellregion unbekannten Ausmaßes irgendwo auf der Jetachse kurz hinter der Düse. In diesem Abschnitt soll untersucht werden, inwiefern Aussagen über die Ausdehnung der Quellregion senkrecht zur Jetachse gemacht werden können.

Dazu wird für diese Untersuchung angenommen, daß die Halbwertsbreite überwiegend durch die Spaltbreite und die Quellbreite bedingt ist. Die Spaltbreiten sind bekannt, und die Halbwertsbreiten können aus den Meßdaten abgelesen werden. Dadurch kann die Quellbreite berechnet werden. Zunächst wird durch die Ausdehnung von Quelle und Spalt die geometrische Breite der Maxima vorgegeben (siehe Abb. 30). Es gilt:

$$\frac{B_Q}{A} = \frac{B_S}{C} = \frac{B_{Max}}{C + D_{S-M}}.$$
(52)

Unter Verwendung von A + C =  $D_{Q-S}$  und nach einigen Umformungen ergibt sich für die Breite der Quelle  $B_Q$ :

$$B_Q = \frac{D_{Q-S}}{D_{S-M}} \cdot (B_{Max} - B_S) - B_S.$$
 (53)

Wenn nun die Breite der Quelle als unbekannt vorausgesetzt wird und die übrigen Größen eingesetzt werden, kann man für die verschiedenen Spaltbreiten  $B_S$  die dazugehörigen Quellbreiten  $B_Q$  errechnen. In der folgenden Tabelle sind für die drei Spalte zunächst die geometrischen Maximumsbreiten für einen voll ausgenutzten Skimmer als



Abbildung 30: Skizze zur Definition der Größen, die bei der Berechnung der geometrischen Maximumsbreite verwendet wurden.

Quelle, dann die Maximumsbreiten für eine ideale, punktförmige Quelle, schließlich die verdoppelten gemessenen Halbwertsbreiten FWHM und endlich die aus der FWHM errechneten Quellgrößen zusammengestellt. Um die FWHM, die nur einen Teil der gesamten Maximumsbreite aufüllt, besser mit der gemetrischen Breite vergleichen zu können, wird sie in hier ausreichender Näherung verdoppelt. Alle Werte verstehen sich in  $\mu$ m:

| $B_S$ | $\mathbf{B}_{Max}((\mathbf{B}_Q)=300\mu\mathrm{m})$ | $B_{Max}((B_Q)=0\mu m)$ | 2 FWHM    | $B_Q$ |
|-------|---|-------------------------|-----------|-------|
| 25    | 535,0   | 64,2                    | 199,0     | 85,9  |
| 50    | 599,2   | 128,5                   | 226,5     | 62,5  |
| 100   | 727,7   | 256,9                   | $257,\!3$ | 0,2   |

Die zweite und die dritte Spalte sollten den Rahmen für die möglichen Ausprägungen der Maximumsbreiten geben. Es fällt jedoch auf, daß für den 100  $\mu$ m Spalt die tatsächliche Maximumsbreite auf eine nahezu punktförmige Quelle zurückzugehen scheint. Das ist ein deutlicher Hinweis darauf, daß die geometrische Betrachtung zu kurz greift; schließlich wird ein quantenmechanisches Beugungsproblem betrachtet. Außerdem könnten die kleinen berechneten Quellbreiten ein Hinweis darauf sein, daß die Heliumatome und -cluster sich von den verschiedenen Bereichen der Quelle nicht isotrop fortbewegen, sondern daß eine Vorzugsrichtung herrscht.

Betrachtet man die berechnete Quellbreite in der letzten Spalte, fällt sofort die beim 100  $\mu$ m Spalt gegen null gehende Ausdehnung auf. Geometrisch entspricht dies der Tatsache, daß ein vom oberen Ende der Quelle startendes Heliumatom oder -molekül eben nicht den Spalt am unteren Ende erreichen kann. Statt dessen würde die Bahn eines oben startenden Teilchens am oberen Ende des Spaltes vorbeiführen und dort den Jet begrenzen.

Eine weitere Betrachtung ist möglich: Wenn man mit den drei Spaltbreiten und den tatsächlich gemessenen Halbwertsbreiten eine lineare Regression durchführt (siehe Abb. 31), erhält man für eine Spaltbreite von 0 eine Halbwertsbreite von 91,8  $\mu$ m und damit aufgrund der Strahlengeometrie eine Quellbreite von 58,5  $\mu$ m. Dieser Wert liegt im erwarteten Intervall von 0 bis 300  $\mu$ m und darf somit als plausible Abschätzung der Quellbreite gelten.



Abbildung 31: Die mittlere Maximumsbreite  $\langle FWHM \rangle$  ergibt sich aus je drei Messungen pro verwendetem Spalt, nämlich eine mit jedem verfügbaren Gitter. Aufgetragen über den Spaltbreiten B<sub>S</sub> sollten diese auf einer Geraden liegen. Das ist hier nicht ganz der Fall. Die eingezeichnete Gerade ist die Regressionsgerade. Deren y-Achsenabschnitt von 91,8 µm läßt sich geometrisch in eine Quellbreite von 58,5 µm umrechnen.

Ob diese Betrachtungsweise zum zweifelsfrei richtigen Ergebnis führt, ist mangels Vergleichsmöglichkeiten mit den hier gegebenen Mitteln jedoch nicht feststellbar. Zur vollständigen Aufklärung wären weitere Studien notwendig.

### 5.10 Fehlerbetrachtung

#### 5.10.1 Systematische Fehler

Ein illustratives Beispiel für vorliegende systematische Fehler ist die Erstellung der Druckserie. Die Serie besteht aus zwei Teilen: Erstens aus den bereits bei den Temperaturserien aufgenommenen Spektren, die bei T = 12 K und p = 1,4,1,8 und 2,4 bar aufgenommen wurden und zweitens aus den ein bis zwei Tage später aufgenommenen Spektren, die die anderen Drücke betrachten. Bei der Auswertung ist auffällig, daß gerade die drei zuvor aufgenommenen Meßpunkte nach oben aus der Meßreihe abweichen, und zwar sowohl für das Heliumdimer als auch für das -trimer.

Eine mögliche Erklärung wäre, daß die Temperatur bei den Messungen eine längere Zeit, als die Anzeige suggeriert, zur Einstellung benötigt. Dann könnte es sein, daß bei den drei früheren Messungen die jeweiligen vorherigen Messungen bei höheren, bei den späteren Messungen jedoch bei tieferen Temperaturen stattgefunden haben. Das würde erklären, daß bei den drei älteren Messungen die tatsächliche Temperatur höher, bei den späteren Messungen niedriger war. Leider berücksichtigt diese Erklärung nicht, daß sich Di- und Trimeranteile in bezug auf die betrachtete Tempeaturabhängigkeit gegenläufig verhalten. Einer der Anteile müßte also systematisch zu niedrig, der andere systematisch zu hoch sein. Außerdem zeigt ein Blick ins elektronische Laborbuch, daß die jeweils vorher erfolgten Messungen teils bei niedrigerer, teils bei höhrerer Temperatur stattfanden. Diese Erklärung ist daher ausgeschlossen.

Ein anderer Erklärungsansatz könnte eine an verschiedenen Tagen unterschiedliche Laserleistung sein. Der Laser wurde über Nacht abgeschaltet und am folgenden Morgen wieder in Betrieb genommen. Bei höherer Leistung sind sowohl bei Dimeren als auch bei Trimeren höhere Ionisationsraten zu erwarten. Genau das findet man bei den früheren Messungen. Insofern ist dieser Erklärungsansatz plausibel.

Insgesamt sind mindestens die folgenden systematischen Fehler denkbar, wobei die Reihenfolge der Darstellung dem Weg des Gasjets und anschließend der Auswertung folgt:

 Bei der Geometrie des Aufbaus gibt es zahlreiche Quellen für Ungenauigkeiten, die einen systematischen Fehler bei der Auswertung nach sich ziehen können. Für die Längenabmessungen der Kammer wird hier ein Fehler von ± 2 mm angenommen. Einige besonders interessante Effekte sind im folgenden aufgeführt.

Die Düse mit ihrem Halter kontrahiert sich bei Temperaturerniedrigung entspechend ihrem Ausdehnungskoeffizienten. Das führt zu einem temperaturabhängigen lateralen Versatz von Düse und Skimmer. Es wäre also grundsätzlich denkbar, daß in dieser Arbeit nicht die Temperaturabhängigkeit der Molanteile der Heliumcluster gemessen wurde, sondern eher die Molanteile in verschiedenen Bereichen der Quellregion, je nachdem welchen Bereich der Skimmer aus dem entstehenden Jet ausgeschnitten hat. Bei der Versuchsdurchführung hat sich die Nachregelung der Düsenposition für eine optimale Heliumausbeute jedoch als schwierig herausgestellt. Das dazu im Dump angeschlossene Massenspektrometer zeigte statistische Konzentrationsschwankungen, die die Veränderung durch die Nachregelung deutlich überstiegen. Daher wurde bei den für die Auswertung verwendeten Meßreihen (mit der Ausnahme des Abstandes Düse-Skimmer) die Düsenposition konstant gelassen. Ein entscheidender Punkt spricht dafür, daß nicht - oder jedenfalls nicht ausschließlich - verschiedene Bereiche der Quellregion gemessen wurden. Wenn das der Fall wäre, müßten wegen der Rotationssymmetrie des Versuchsaufbaus die maximalen Molanteile für verschiedene Drücke bei der gleichen Temperatur liegen, nämlich der, bei der Skimmer und Düse exakt zentriert sind. Das ist jedoch nicht so; im Gegenteil, es ist eine deutliche Abhängigkeit der Temperaturen mit jeweils optimaler Ausbeute vom Druck feststellbar. Weiterhin zeigt sich, daß für T = const und damit definitiv fixierter Düse die Clusterhäufigkeiten vom Druck abhängen. Daß diese vom Druck, aber nicht von der Temperatur abhängen, ist extrem unwahrscheinlich. Nichtsdestotrotz bleibt unklar, inwiefern eine Düsenkontraktion die Ergebnisse systematisch beeinflußt.

Die Ausrichtung der Spalte und der Beugungsgitter ist möglicherweise nicht exakt orthogonal zum Jet und parallel zueinander. Bei Verdrehen um eine schlitzparallele Achse verringert sich die effektive Schlitz- bzw. Spaltbreite. Bei Verdrehen von Spalt und Gitter gegenläufig um die Strahlachse verbreitern sich die Beugungsmaxima, da man sie sich nun aus mehreren, versetzten Beugungsbildern entstanden denken kann. Somit sinkt die Auflösung, und der Fehler, z. B. bei der Berechnung der Jetgeschwindigkeit, wird größer.

- Wie in Abschnitt 5.8 dargestellt, liegt die tatsächliche Temperatur des Jets mit fallender Temperatur zunehmend unter der gemessenen Temperatur.
- Durch unterschiedliche Ionisationswahrscheinlichkeiten in Abhängigkeit von der ionisierten Atom- bzw. Molekülspezies werden die einzelnen Fraktionen systematisch häufiger oder seltener, als ihrer tatsächlichen Prävalenz entspricht, erzeugt. Wegen der schwachen Bindung der Heliumcluster und der hohen Laserintensität dürfte dieser Fehler sehr gering sein.
- Die Detektionswahrscheinlichkeit p für ein Heliumion ist eine große Unbekannte. Die Molanteile wurden mit einer abgeschätzten Detektionswahrscheinlichkeit von  $\approx 37$  % berechnet. Bei der Berechnung gibt es systematische Fehler, so z. B., daß unter den gefundenen, "echten" Trimeren koinzidente Ereignisse aus einem Monomer und einem Dimer vorhanden sind.
- Die bei der Auswertung verwendeten Bedingungen sind subjektiv so optimiert, daß sie laut den graphischen Darstellungen in CoboldPC die gesuchten Ereignisse bestmöglich vom Untergrund isolieren. Diese inhärente Subjektivität stellt einen systematischen Fehler dar.
- Die für die Auszählung der Dimer- bzw. Trimerereignisse verwendete Integration in CoboldPC hängt von der Lage der Integralgrenzen ab. Diese wurden vom Systemnutzer, also dem Autor dieser Arbeit, gesetzt und unterliegen u. a. einer systematischen Abweichung.

#### 5.10.2 Statistische Fehler

Die folgenden statistischen Fehler sind beim Experiment möglich. Auch ihre Darstellung richtet sich nach dem Weg des Gasjets und der Auswertung. Zusätzlich wird für die meisten Fehler eine Quantifizierung vorgenommen.

• Der Druck in der Heliumzufuhr zur Expansionsdüse wurde zunächst mittels eines Druckminderers gemessen. Dieser erlaubt eine Ablesegenauigkeit von 0,1 bar. Später wurde ein elektronisches Barometer verwendet. Dieses weist im verwendeten Meßbereich eine Genauigkeit von 0,06 bar auf. Zusätzlich schwankte der angezeigte Druck nicht kontrollierbar in einem Bereich von weiteren 0,06 bar. Das ergibt zusammen eine Genauigkeit des eingestellten Drucks von  $\pm$  0,12 bar. Zwar geht der Druck in keine der verwendeten Gleichungen ein, doch ist er bedeutsam dafür, für welchen Druck eine bestimmte, berechnete Konzentration gelten soll.

- Die Temperatur kann im Rahmen der Genauigkeit der Regelelektronik schwanken.
- Die Encoderpositionen wurden über die gesamten Meßreihen einerseits an die Schrittmotoren gesendet, andererseits von den Schrittmotoren ausgelesen. Die Differenzen zwischen Soll- und Istposition betrugen bis zu  $\pm$  3 Encoderschritte, ensprechend 4,68  $\mu$ m.
- Das Gitter soll eine Periode von d = 100 nm haben. Diese kann fertigungsbedingt leicht schwanken. Es wird angenommen, daß die Genauigkeit der Gitterperiode 5 % beträgt.
- Von Zeit zu Zeit wurde es notwendig, den Laser zu justieren. Das zeigt, daß dessen Position ein gewisses Spiel hat, was dem Experiment einen statistischen Fehler aufprägt. Leider ist dieser Effekt ohne weitere Untersuchungen nicht quantifizierbar.
- Wie am Beginn des Kapitels 5.10.1 beschrieben, war die Laserleistung nicht über die ganze Meßzeit konstant. Einerseits kann sie einen systematischen Einfluß gehabt haben, andererseits kann sie zwischenzeitlich dem Autor unbekannte Schwankungen gezeigt haben. Auch dieser Efffekt ist nicht ohne weiteres zu quantifizieren.
- Die Halbwertsbreiten einer gefitteten Gaußkurve weichen um bis zu 5 % voneinander ab, je nachdem, an welcher Stelle die Grenzen für den Fit angesetzt werden.
- Das Setzen der Integralgrenzen durch den Autor hat teils eine oben bereits genannte systematische Komponente, teils eine hier relevante statistische. Es wird angenommen, daß dieser Fehler etwa 5 % beträgt.

### 5.10.3 Fehlerfortpflanzung

Der Fehler bei der Detektionswahrscheinlichkeit  $p = p(N_{gef}, N_{verst})$  ist:

$$\frac{\Delta p}{p} = \sqrt{\left(\frac{\partial p}{\partial N_{gef}}\Delta N_{gef}\right)^2 + \left(\frac{\partial p}{\partial N_{verst}}\Delta N_{verst}\right)^2} , \qquad (54)$$

wobei die Fehler bei  $N_{gef}$  und  $N_{verst}$  wegen der Ermittlung mit verschiedenen Bedingungen aus unterschiedlichen Darstellungen in CoboldPC als unabhängig voneinander gelten können. Ausführen der partiellen Ableitungen von Gleichung (50) und Einsetzen ergibt:

$$\frac{\Delta p}{p} \approx 1,65 \ \% \ . \tag{55}$$

Der Fehler der über die Enthalpie<br/>erhaltung errechneten Jetgeschwindigkeit nach Gleichung (10) ist:

$$\frac{\Delta v}{v} = \sqrt{\left(\frac{1}{2}\frac{\Delta k_B}{k_B}\right)^2 + \left(\frac{1}{2}\frac{\Delta T}{T}\right)^2 + \left(\frac{1}{2}\frac{\Delta m}{m}\right)^2}.$$
(56)

Die Naturkonstante  $k_B$  und die Heliummasse sind so genau bekannt, daß der Gesamtfehler sicher durch den Temperaturfehler dominiert wird. Damit ist:

$$\frac{\Delta v}{v} \approx \sqrt{\left(\frac{1}{2}\frac{\Delta T}{T}\right)^2} = \frac{1}{2}\frac{\Delta T}{T}.$$
(57)

Der Fehler in der Geschwindigkeit liegt demnach mit  $\Delta T=1,5$  K für 15,7 K bei 4,8 %, für 6,7 K bei 11,2 %.

Für die Berechnung der Jetgeschwindigkeit aus der Position der Beugungsmaxima wurden Gleichungen (24) und (25) kombiniert sowie für den Ablenkwinkel  $\theta$  der Quotient aus Position des Maximums S und dem Abstand von Gitter zu Meßebene D<sub>Git-Mess</sub> verwendet:

$$v = \frac{hD_{Git-Mess}}{NmdS}.$$
(58)

Daraus folgt für den Fehler von v<br/> unter der Berücksichtigung, daß  ${\rm N}=4$  bekannt und f<br/>est ist:

$$\frac{\Delta v}{v} = \sqrt{\left(\frac{\Delta h}{h}\right)^2 + \left(\frac{\Delta D_{Git-Mess}}{D_{Git-Mess}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta m}{m}\right)^2 + \left(\frac{\Delta d}{d}\right)^2 + \left(\frac{\Delta S}{S}\right)^2}.$$
 (59)

Die Fehler von h und m können gegenüber den übrigen wieder vernachlässigt werden. Mit

$$\frac{\Delta D_{Git-Mess}}{D_{Git-Mess}} = \frac{2mm}{491mm} \approx 0,41 \ \%,\tag{60}$$

$$\frac{\Delta d}{d} \approx 5 \% \ und \tag{61}$$

$$\frac{\Delta S}{S} = \frac{3 \ Encoderschritte}{340 \ Encoderschritte} \approx 0,88 \ \%, \tag{62}$$

wobei für die Anzahl der Encoderschritte das Minimum von ca. 340 Schritten angenommen wurde, ergibt sich schließlich:

$$\frac{\Delta v}{v} \approx 5,1 \%. \tag{63}$$

Da diese Berechnung nicht auf der idealen Gasgleichung beruht und keine weiteren Annahmen unterstellt sind, gilt dieser Fehler tatsächlich für die errechnete Jetgeschwindigkeit.

Für den Fehler der Ermittlung der molaren Anteile  $r(He_n)$  nach Gleichung (51) gilt:

$$\frac{\Delta r(He_n)}{r(He_n)} = \sqrt{\left(\frac{\Delta N(He_n)}{N(He_n)}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N(He)}{N(He)}\right)^2 + (n-1)\left(\frac{\Delta p}{p}\right)^2}.$$
 (64)

Mit

$$\frac{\Delta N(He_n)}{N(He_n)} = \frac{\Delta N(He)}{N(He)} \approx 3 \% \quad und$$
(65)

$$\frac{\Delta p}{p} \approx 1,65 \% \tag{66}$$

ergibt sich für die Dimere:

$$\frac{\Delta r(He_2)}{r(He_2)} \approx 4.6 \% \tag{67}$$

sowie für die Trimere:

$$\frac{\Delta r(He_3)}{r(He_3)} \approx 4.8 \%.$$
(68)

Die Betrachtungen zur Quellgröße unterliegen solch großen Unsicherheiten, daß eine klassische Betrachtung der Fehlerfortpflanzung wenig Sinn ergibt und hier unterlassen wird. Damit ist die Auswertung abgeschlossen, und es ist an der Zeit, auf das Erarbeitete zurückzublicken.

### 6 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde die automatisierte Separation von Heliummono-, -di- und trimeren beschrieben. Unter Nutzung ihrer unterschiedlichen De-Broglie-Wellenlängen wurden die verschiedenen Fraktionen mit einem Nanogitter getrennt. Zunächst wurden einige physikalische Grundlagen zu den genannten Atom- bzw. Molekülspezies, der hier auftretenden Bindungsform der Van-der-Waals-Bindung und insbesondere zur Materiewellenbeugung gelegt. Anschließend wurde der Versuchsaufbau dargestellt. Bei der Durchführung wurden zunächst die drei jeweils vorhandenen Gitter und Spalte zu je einer Messung kombiniert und die beste Kombination für die weiteren Messungen ausgewählt. Das Experiment wurde weitergeführt, indem für verschiedene Temperaturen und Quelldrücke jeweils ein Beugungsspektrum von der für alle Heliumteilchen identischen nullten Ordnung bis zur ersten Ordnung der Heliummonomere aufgenommen wurde.

In der Auswertung wurde die Detektionswahrscheinlichkeit auf rund 37 % abgeschätzt. Weiterhin wurden die Ereignisse in den ersten Maxima der einzelnen Heliumfraktionen gezählt und so unter Verwendung der Detektionswahrscheinlichkeit molare Konzentrationen für das Heliumdi- und -trimer berechnet. Dabei wurden Anteile von bis zu 0,45 % für das Heliumdimer und 4,2 % für das Heliumtrimer erreicht. Diese Molanteile und ihre Abhängigkeit von Druck und Temperatur stimmen qualitativ gut mit der Literatur überein, quantitativ lassen sie sich u. a. wegen abweichender Nachweismethoden kaum vergleichen.

Anschließend wurde der Abstand von Düse und Skimmer variiert mit dem Ergebnis, daß eine Veränderung im betrachteten Bereich keinen nennenswerten Einfluß auf die Bildungsraten von Di- und Trimeren hat. Weiterhin wurde die auf zweierlei Weise bstimmbare Geschwindigkeit der Heliumteilchen im Gasjet ermittelt und verglichen. Die beiden Geschwindigkeiten weichen lediglich im unteren Temperaturbereich signifikant voneinander ab, wofür plausible Erklärungsansätze dargelegt wurden.

Die Größe der Quellregion der betrachteten Helium<br/>cluster wurde unter geometrischen Gesichtspunkten und unter Extrapolation der für verschiedene Spaltbreiten gemessenen Maximum<br/>sbreiten untersucht. Im Ergebnis wird die Quellbreite zu 58,5 <br/>  $\mu m$  abgeschätzt.

Die Automatisierung des Aufbaus erlaubte eine Vielzahl von systematischen Messungen, die ohne diese Automatisierung sehr zeitaufwendig gewesen wären. Insbesondere wurden in kurzer Zeit - wie zuvor geschildert - die Beugungsmuster von drei Gittern in Kombination mit je drei verschiedenen Kollimationspalten sowie die Abhängigkeit der Heliumdimer- und -trimerbildung von Temperatur, Druck und Abstand von Düse und Skimmer untersucht. Die Automatisierung erlaubt für zukünftige Messungen, z. B. in Strahlzeiten am Freien Elektronenlaser FLASH, jeweils in situ die Clusterbildung zu untersuchen. Möge das beschriebene Experiment nicht nur diese, sondern auch viele weitere Messungen beschleunigen helfen und so zum gesellschaftlichen Erkenntnisgewinn beitragen!

### 7 Danksagungen

Ich danke Prof. Dr. Reinhard Dörner für die großartige Unterstützung und außerordentliche Flexibilität bei der Zeiteinteilung dieser Arbeit. Dies hat es mir überhaupt erst ermöglicht, die Erstellung dieser Bachelorarbeit mit meiner Berufstätigkeit zu vereinbaren. Weiterhin fand ich bei ihm ausführliche Antworten auf jedwede meiner Fragen, viele praxisgerechte Tips und nicht zuletzt einen allzeit motivierenden Gesprächspartner.

Meinem Betreuer Stefan Zeller danke ich für die Unterstützung bei den täglich aufkommenden Fragen des Daseins als Bachelorkandidat, sei es, wo man etwas findet, sei es, wie man etwas macht, sei es, wer in der Arbeitsgruppe am besten weiterhelfen kann. Mit großer Geduld hat er mir alle inhaltlichen Fragen erklärt und mich nicht nur gefördert, sondern auch gefordert.

Jörg Voigtsberger danke ich für spontane und hilfsbereite Unterstützung bei verschiedensten Fragen die Versuchskammer betreffend bis hin zu tatkräftiger Unterstützung bei der Umgestaltung des Experimentes.

Ich danke Dr. Maxsim Kunitski für die Einrichtung des Lasers und großzügige Unterstützung bei der Entwicklung der Verfahrroutinen für die beiden Linearmotoren.

Dr. Lothar Schmidt verdanke ich viele Tips für die Arbeitspraxis, Hilfe bei der häufigen Suche nach z. B. einem bestimmten Flansch und nicht zuletzt viele Anregungen zur Lecksuche.

Der gesamten Arbeitsgruppe Atomphysik in Frankfurt am Main danke ich für die großartige Zeit, die ich als Teil von ihr verbringen durfte. Die gegenseitige Unterstützung und das positive Miteinander sowohl in bezug auf die Forschung als auch in bezug auf das Privatleben waren überwältigend.

Ganz besonders danke ich meiner Familie für das Verständnis, daß ich, obwohl berufstätiger Vater, noch einen Beitrag zur naturwissenschaftlichen Forschung leisten möchte. Ohne die Zeiten, die meine Frau Michaela und mein Sohn Georg für mich freigeschaufelt haben, wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen.

## Literaturverzeichnis

| [Be2012]     | J. Becht<br>Massenselektion von Heliumclustern durch Materiewellen-<br>beugung am Nanogitter<br>Bachelorarbeit, Frankfurt am Main (2012)  |
|--------------|---|
| [BeSc1999]   | W. Raith<br>Lehrbuch der Experimentalphysik, Bd. 2 Elektromagnetis-<br>mus, begr. von L. Bergmann und C. Schaefer<br>8. Auflage, de Gruyter, Berlin (1999)  |
| [BeSc2004]   | Hrsg. H. Niedrig<br>Lehrbuch der Experimentalphysik, Bd. 3 Optik, begr. von L.<br>Bergmann und C. Schaefer<br>10. Auflage, de Gruyter, Berlin (2004)  |
| [Br2011]     | D. Bressanini<br>An accurate and compact wave function for the <sup>4</sup> He dimer<br>Europhysics Letters 96, 23001 (2011)  |
| [BrKa2005]   | R. Brühl, A. Kalinin, O. Kornilov, J. P. Toennies, G. C. Hegerfeldt,<br>M. Stoll<br>Matter Wave Diffraction from an Inclined Transmission<br>Grating: Searching for the Elusive <sup>4</sup> He Trimer Efimov State<br>Phys. Rev. Lett. 95, 063002 (2005) |
| [BrMo2011]   | D. Bressanini, G. Morosi<br>What Is the Shape of the Helium Trimer? A Comparison<br>with the Neon and Argon Trimers<br>J. Phys. Chem. A, 115 (2011)   |
| [BrScTo2002] | L. W. Bruch, W. Schöllkopf, J. P. Toennies<br><b>The formation of dimers and trimers in free jet</b> <sup>4</sup> <b>He cryoge-</b><br><b>nic expansions</b><br>J. Chem. Phys. 117, 4, S. 1544 ff. (2002)   |
| [BrZa2000]   | D. Bressanini, M. Zavaglia, M. Mella, G. Morosi<br>Quantum Monte Carlo investigation of small <sup>4</sup> He clusters<br>with a <sup>3</sup> He impurity<br>J. Chem. Phys. 112, 2 (2000)   |

| [De]         | W. Demtröder   |
|--------------|--|
|              | Quadrupol-Massenspektrometer<br>https://elearning.physik.uni-frankfurt.de/data/FB13-                               |
|              | PhysikOnline/lm_data/lm_797/res/files/file_5144/Massenspektro  |
|              | Abgerufen am 24.05.2014  |
|              | Abgeruich am 24.00.2014  |
| [Do2012]     | R. Dörner  |
|              | Atomphysik 1   |
|              | Skript zur Vorlesung, Frankfurt am Main (2012)   |
| [Ef1970]     | V N Efimov   |
|              | Energy Levels Arising from Resonant Two-Body Forces in a   |
|              | Three-Body System  |
|              | Phys. Lett. 33B, 8 (1970)  |
| [Ef1971]     | V N Efimov   |
|              | Weakly-bound States of Three Resonantly-interacting Par-   |
|              | ticles   |
|              | Sov. J. of Nucl. Phys. 12, 5 (1971)  |
| [GeKnVo1992] | C. Gerthsen, H. O. Kneser, H. Vogel  |
|              | Physik   |
|              | 16. Auflage, Springer, Berlin (1992)   |
| [GrHe2000]   | B. F. Grisenti, G. C. Hegerfeldt, T. Köhler, J. P. Toennies  |
| [0.00000]    | Quantentheorie der Materiewellenbeugung  |
|              | Phys. Blätter 56, 11 (2000)  |
| [GrSc1999]   | R E Grisenti W Schöllkonf J P Toennies G C Hegerfeldt T  |
|              | Köhler   |
|              | Determination of Atom-Surface von der Waals Potentials   |
|              | from Transmission-Grating Diffraction Intensities  |
|              | Phys. Rev. Lett. 83, S. 1755-1759 (1999)   |
| [GrSc2000]   | R. E. Grisenti, W. Schöllkopf, J. P. Toennies, G. C. Hegerfeldt, T.  |
|              | Köhler, M Stoll  |
|              | Determination of Bond Length and Binding Energie of the<br>Holium Dimon by Diffugation from a Transmission Crating |
|              | Phys. Rev. Lett. 85, S. 2284-2287 (2000)   |
|              | (2000)   |
| [GrSh2011]   | N. Gross, Z. Shotan, O. Machtey, S. Kokkelmans, L. Khaykovich  |
|              | Study of Efimov physics in two nuclear-spin sublevels of <sup>7</sup> Li   |
|              | C. R. Physique 12, S. 4-12 (2011)  |

| [HoWi1995]   | F. Hollemann, N. Wiberg<br>Lehrbuch der Anorganischen Chemie<br>101. Auflage, de Gruyter, Berlin (1995)  |
|--------------|--|
| [Ho2008]     | W. Hofstetter<br><b>Theoretische Physik III: Elektrodynamik</b><br>Skript zur Vorlesung, Frankfurt am Main (2008)  |
| [KaKo2005]   | A. Kalinin, O. Kornilov, W. Schöllkopf, J. P. Toennies<br>Observation of Mixed Fermionic-Bosonic Helium Clusters<br>by Transmission Grating Diffraction<br>Phys. Rev. Lett. 95, 113402 (2005)  |
| [KoMoSa2011] | E. A. Kolganova, A. K. Motovilov, W. Sandhas<br><b>The</b> <sup>4</sup> <b>He trimer as an Efimov system</b><br>Few-Body Systems 51 (2011)   |
| [KoTo2007]   | O. Kornilov, J. P. Toennies<br>Matter-wave diffraction of quantum magical helium clusters<br>Europhys. 38, 1 (2007)  |
| [LaTe2012]   | Kai K. Lange, E. I. Tellgren, M. R. Hoffmann, T. Helgaker<br>A Paramagnetic Bonding Mechanism for Diatomics in<br>Strong Magnetic Fields<br>Science Vol. 337, S. 327-331 (2012)                |
| [LuKi1993]   | F. Luo, G. Kim, G. C. McBane, C. F. Giese, W. R. Gentry<br>Influence of retardation on the vibrational wave function<br>and binding energy of the helium dimer<br>J. Chem. Phys. 98, 12 (1993) |
| [Ma2007]     | J. H. Macek<br>Efimov states: what are they and why are they important?<br>Phys. Scr. 76 (2007)  |
| [MaSt2003]   | M. Masali, A. F. Starace<br>Static and dynamic dipole polarizability of the helium atom<br>using wave functions involving logarithmic terms<br>Phys. Rev. A 68, 012508 (2003)                  |

| [Pf2013]   | Quadrupolmassenfilter<br>http://www.pfeiffer-vacuum.de/know-how/massenspektrometer-<br>und-restgasanalyse/einleitung-funktionsprinzip/quadrupolmassen<br>spektrometer-qms/technology.action?chapter=tec4.1.2<br>Abgerufen am 18.11.2013 |
|------------|---|
| [PrCe2010] | M. Przybytek, W. Cencek, J. Komasa, G. Lach, B. Jeziorski, K. Szalewicz<br>Relativistic and Quantum Electrodynamic Effects in the<br>Helium Pair Potential<br>Phys. Rev. Lett. 104, 183003 (2010)                                       |
| [Sc2006]   | M. S. Schöffler<br>Grundzustandskorrelationen und dynamische Prozesse<br>untersucht in Ion-Helium-Stößen<br>Dissertation, Frankfurt am Main (2006)  |
| [ScTo1994] | W. Schöllkopf, J. P. Toennies<br>Nondestructive Mass Selection of Small von der Waals<br>Clusters<br>Science Vol. 266, S. 1345-1348 (1994)  |
| [Sl1928]   | J. C. Slater<br><b>The Normal State of Helium</b><br>Physical Review 32, S. 349–360 (1928)  |
| [TaTo1995] | K. T. Tang, J. P. Toennies, C. L. Yiu<br>Accurate Analytical He-He van der Waals Potential Based<br>on Perturbation Theory<br>Phys. Rev. Lett. 74, 9 (1995)   |
| [Ti2004]   | J. Titze<br>Untersuchung des Elektronentransfers in p-D2-Stößen - Der<br>Doppelspaltversuch mit einem diatomaren Molekül<br>Diplomarbeit, Frankfurt am Main (2004)  |
| [U1Mo2003] | J. Ullrich, R. Moshammer, A. Dorn, R. Dörner, L. Ph. H. Schmidt,<br>H. Schmidt-Böcking<br><b>Recoil-ion and electron momentum spectroskopy: reaction-</b><br><b>microscopes</b><br>Rep. Prog. Phys. 66 S. 1463-1545 (2003)              |
| [UnRo2004] | Cluster in Helium-Tropfen<br>http://web.physik.uni-rostock.de/cluster/students/fp3/ HNT_3.pdf<br>Abgerufen am 13.03.2004  |

| [UnSt2013] | <b>Ortho- und Parahelium</b><br>http://www.ipf.uni-stuttgart.de/lehre/online-skript/f40_03.html<br>Abgerufen am 24.12.2013  |
|------------|---|
| [VoCz]     | J. Voigtsberger, A. Czasch, O. Jagutzki, L. Schmidt, T. Jahnke, A. Malakzadeh, R. Dörner, H. Schmidt-Böcking<br>Bestimmung und Optimierung der Zeitauflösung von MCP-<br>Detektoren<br>www.mpipks-dresden.mpg.de/~eas/beitraege30/voigtsberger.pdf<br>Abgerufen am 18.11.2013 |
| [ZuPa1964] | J. T. Zung, R. G. Parr<br>Approximate Hartree-Fock Wavefunction for the Helium-<br>Atom<br>The Journal of Chemical Physics 41, S. 2888-2892 (1964)  |

### Erklärung nach §30 (11) der Ordnung für den Bachelor- und den Masterstudiengang Physik der Johann Wolfgang Goethe-Universität vom 26.02.2008

Hiermit erkläre ich, daß diese Arbeit von mir selbstständig und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Quellen und Hilfsmittel verfasst wurde. Alle Stellen der Arbeit, die wörtlich oder sinngemäß aus Veröffentlichungen oder aus anderen fremden Texten entnommen wurden, habe ich als solche kenntlich gemacht. Ferner erkläre ich, daß ich die Arbeit nicht - auch nicht auszugsweise - für eine andere Prüfung verwendet habe.

Neu-Anspach, den 20. Juni 2014

Jörg Hahnenbruch