
Experimentelle Untersuchung von kleinen Heliumclustern mit Hilfe eines Diffraktionsgitters

Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften

vorgelegt beim Fachbereich Physik
der Johann Wolfgang Goethe-Universität
in Frankfurt am Main

von
Jörg Voigtsberger
aus Frankfurt am Main

Frankfurt 2014
D30

vom Fachbereich Physik der

Johann Wolfgang Goethe - Universität als Dissertation angenommen.

Dekan: Prof. Dr. R. Reifarth

1. Gutachter : Prof. Dr. R. Dörner
2. Gutachter : P.D. Dr. T. Jahnke

Datum der Disputation :

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Motivation	1
2	Theorie und physikalische Grundlagen	7
2.1	Atomare Bindungen	7
2.1.1	Ionische Bindungen	8
2.1.2	Metallische Bindungen	8
2.1.3	Kovalente Bindungen	8
2.1.4	Van-der-Waals-Bindungen	11
2.2	Das Heliumdimer	13
2.3	Das Heliumtrimer	19
2.4	Wechselwirkung mit starken Laserfeldern	28
2.4.1	Multiphoton-Ionisation	29
2.4.2	Tunnelionisation	31
2.4.3	Doppelionisation	34
2.4.4	Doppelionisation von Molekülen	36
2.5	Materiewellenbeugung	37
2.5.1	Wellencharakter von Materie	37
2.5.2	Beugung von Atomen und Molekülen	39
2.6	Coulomb Explosion Imaging	45
2.6.1	Reflection Approximation	47
3	Experimenteller Aufbau	51
3.1	Laser	51
3.1.1	Erzeugung kurzer Pulse	52
3.1.2	Lasersystem	56
3.1.3	Laserfokus und -intensität	59

3.2	ColTRIMS-Kammer und Elektronik	61
3.2.1	ColTRIMS	61
3.2.1.1	Vakuumkammer	62
3.2.1.2	Überschallgasjet	67
3.2.1.3	Spektrometer	72
3.2.1.4	Detektoren	75
3.2.1.5	Elektronik und Datenaufnahme	78
3.2.2	Beugungsgitter	79
4	Datenanalyse und Kalibration	83
4.1	Datenanalyse	83
4.1.1	Flugzeiten und Orte	83
4.1.2	Impulse	85
4.1.3	Histogramme	87
4.2	Kalibration der Messungen	93
4.2.1	Detektorkalibration und Vorsortierung	94
4.2.2	Ungeeignete Kalibrationssysteme	97
4.2.3	Geeignete Kalibrationssysteme	102
4.3	Betrachtung des experimentellen Fehlers	107
5	Ergebnisse und Interpretation	111
5.1	Beugungsbilder	112
5.2	Messungen am Dimer	116
5.3	Messungen am Trimer	134
5.3.1	Das isotopenreine $^4\text{He}_3$	134
5.3.2	Das gemischt isotopische $^3\text{He}^4\text{He}_2$	153
6	Zusammenfassung und Ausblick	165
6.1	Zusammenfassung	165
6.2	Ausblick	168
A	Anhang	171
A.1	Durchgeführte Messungen	171
A.2	Look-Up Table	178
B	Danksagung	199

1. Einleitung und Motivation

Betrachtet man das Universum, so stellt Helium, nach Wasserstoff, das zweithäufigste Element dar. Daher ist es auch nicht verwunderlich, dass es als erstes im Weltall beobachtet wurde. In den während einer Finsternis untersuchten Spektrallinien der Sonnenatmosphäre wurde von Jules Janssen Licht bei einer Wellenlänge von 587,49 nm beobachtet. Aufgrund dieser Beobachtung wurde auf ein neues Element geschlossen, welches fortan den Namen Helium trägt (nach altgriechisch „Hélios“, Sonne).

Dieses Element kommt auch auf der Erde vor. Während es zu Zeiten des ersten Weltkrieges besonders im militärischen Bereich zum Einsatz kam (man füllte Sperrballone und Luftschiffe damit), ist es heute aufgrund seiner außergewöhnlichen Eigenschaften besonders in der Tieftemperaturtechnik gefragt.

Ein Grund hierfür ist, dass Helium bis zu sehr niedrigen Temperaturen (4,15 K) gasförmig bleibt und auch bei 0 K unter Normaldruck noch flüssig ist. Erst ab einem Druck von etwa 25 bar ist es möglich die feste Phase des Heliums zu erzeugen. In seiner flüssigen Phase besitzt Helium zwei verschiedene Zustände, Helium-I und Helium-II. Während Helium-I bei 1 bar zwischen 2,18 und 4,15 K eine normale, farblose Flüssigkeit ist, sind die Eigenschaften von Helium-II viel außergewöhnlicher. Es ist eine superfluide Flüssigkeit. Dies bedeutet, dass es keinerlei messbare Viskosität besitzt und sich daher sowohl durch kleinste Öffnungen, als auch in dünnen Schichten an Wänden entlang, gegen die Schwerkraft bewegt (Rollin-Film). Diese fehlende Viskosität in der Flüssigkeit sorgt dafür, dass Helium-II ein nahezu perfekter Wärmeleiter ist.

Aufgrund seiner niedrigen Temperatur und der guten Wärmeleitfähigkeit kommt flüssiges Helium sehr häufig bei der Kühlung von technischen Apparaturen zum Einsatz. So werden z.B. Supraleiter und damit auch supralei-

tende Magnete mit flüssigem Helium gekühlt, wodurch es auch in medizinischen Geräten wie Kernspintomographen und Magnetresonanztomographen zum Einsatz kommt.

Zusätzlich zu dieser besonderen Eigenschaft ist Helium auch das Element mit dem kleinsten Atomdurchmesser. Während Wasserstoff einen Atomradius von 32 pm besitzt, hat Helium trotz seiner drei- bis vierfachen Anzahl an Nukleonen und seiner doppelten Anzahl an Elektronen nur einen Radius von 28 pm. Durch diese Nähe zum Atomkern sind die Elektronen besonders stark gebunden. Alle anderen Elemente im Grundzustand besitzen Elektronen die leichter zu ionisieren sind als die des Heliums. Ein zusätzlicher Effekt hiervon ist, dass kein anderes Element sich so schwer polarisieren lässt wie Helium.

Diese besonderen Eigenschaften der atomaren Form des leichtesten Edelgases zeigen den sehr speziellen Charakter dieses Elements. Unter extremen Bedingungen ist es jedoch möglich einen molekularen Bund zwischen Heliumatomen zu erzeugen. Diese kleinsten Verbunde von Heliumatomen sind das Thema dieser Dissertation.

Durch seine abgeschlossene 1s Elektronenschale ist es für Helium nicht möglich eine kovalente Bindung einzugehen. Der einzige mögliche Verbund besteht in einer Van-der-Waals-Bindung. Diese beruht jedoch auf der Polarisierbarkeit der Atome. Da diese beim Helium sehr niedrig ist, ist auch die Van-der-Waals-Bindung sehr schwach (näheres zur Van-der-Waals-Bindung siehe Kapitel 2.1.4).

Dies führt für den Verbund zweier Heliumatome, dem Dimer, zu einer Potentialmulde von nur ca. 1 meV Tiefe. In einer klassischen Betrachtung wäre sofort offensichtlich, dass dieses System gebunden sein muss. Beim Dimer ist diese klassische Ansicht jedoch nicht mehr angebracht, es muss quantenmechanisch betrachtet werden. In der Quantenmechanik besitzt jedes Atom und Molekül eine Nullpunktschwingung, es darf aufgrund der Heisenberg'schen Unschärferelation nicht komplett ruhen. Diese Nullpunktschwingung beträgt im Heliumdimer ebenfalls etwa 1 meV und ist damit nahezu so hoch wie die Potentialmulde tief ist. Daher war es, nach der Postulierung seiner Existenz im Jahre 1928 durch Slater [Sla28], für mehr als sechzig Jahre nicht sicher, ob die Differenz zwischen Potentialtiefe und Nullpunktschwingung zu einer attraktiven oder repulsiven Kraft zwischen den zwei Heliumatomen führt.

Erst in den 90er Jahren gab es erste experimentelle Veröffentlichungen mit einem Beweis für die Existenz des Dimers [Luo93a]. Mit dem Aufbau, den Schöllkopf für den unwiderlegbaren Beweis für die Existenz des Dimers nutzte [Sch94], waren Grisenti et al. [Gri00] auch in der Lage die mittlere Bin-

lungslänge auf $52 \pm 4 \text{ \AA}$ zu bestimmen. Dies zeigt, dass ein außergewöhnliches System aus zwei Heliumatomen gebildet wird. Nach neusten theoretischen Berechnungen [Prz10] hat das Dimer eine Bindungsenergie von nur 139,6 neV. Betrachtet man das Potential bei diesem Wert, sieht man, dass der klassisch erlaubte Bereich bereits bei etwa $13 \text{ \AA}$ endet. Da der Mittelwert der Abstandsverteilung bei $52 \text{ \AA}$ liegt, ist es eindeutig, dass eine klassische Beschreibung des Systems nicht sinnvoll sein kann. Das Heliumdimer hat den größten Teil seiner Aufenthaltswahrscheinlichkeit dort, wo es rein klassisch gar nicht existieren dürfte. Nur durch den quantenmechanischen Tunneleffekt sind internukleare Abstände außerhalb der Potentialmulde möglich. Da die Tunnelwahrscheinlichkeit exponentiell abfallend ist, kann man aus einem Mittelwert von $52 \text{ \AA}$ bereits erkennen, dass es sich um eine sehr breite Abstandsverteilung handeln muss.

Obwohl es in seiner Erforschung ein sehr kompliziertes Objekt darstellt, handelt es sich beim Heliumdimer auch um eines der einfachsten Modellsysteme. Es besteht lediglich aus vier Protonen, vier Neutronen und vier Elektronen. Trotz dieses simplen Aufbaus ist die Untersuchung des Heliumdimers bis heute eine große Herausforderung sowohl für Theoretiker, als auch Experimentalisten. Während bei der Berechnung der Eigenschaften des Systems schon kleinste Näherungen den Unterschied zwischen gebunden und ungebunden ausmachen, ist das Dimer im Experiment sehr schwer herzustellen und genauso schwer zu untersuchen.

Dies ändert sich auch nicht, wenn man ein weiteres Heliumatom hinzufügt. Das so erzeugte Heliumtrimer ergibt sich aus den gleichen Zweikörperkräften wie das Dimer. Durch die Anwesenheit eines dritten Teilchens wird dessen Bindungsenergie jedoch um einen Faktor 100 größer als die des Dimers. Trotz dieser vergleichsweise größeren Bindungsenergie von etwa $11 \text{ \mu eV}$ wurde in einem ähnlichen Experiment wie beim Dimer bislang nur die mittlere Größe des Systems auf $11^{+4}_{-5} \text{ \AA}$ bestimmt [Brü05]. Damit sind auch beim Trimer die Atome zu einem großen Teil im klassisch verbotenen Bereich des Potentials und das System muss quantenmechanisch beschrieben werden. Viel interessanter ist jedoch, dass es bislang keinerlei experimentelle Untersuchungen zur Struktur des Trimers gibt. Auch von theoretischer Seite gibt es bislang keinen Konsens bezüglich des geometrischen Aufbaus des Systems.

Hinzu kommt, dass, anders als beim Dimer, das Trimer auch in einem angeregten Zustand noch gebunden sein könnte. Die Bindung dieses ersten angeregten Trimer Zustandes war lange Zeit, genau wie beim Dimer, ein Streitpunkt. Nach neusten Erkenntnissen [Hiy12] soll er ähnlich schwach wie das

Dimer gebunden sein. Das Besondere an diesem Zustand ist, dass er als sogenannter „Efimov-Zustand“ vorausgesagt wurde. Dies bedeutet, dass er nur aufgrund einer Resonanz in der Zweikörperwechselwirkung gebunden ist. Wäre die Bindung des Zweikörpersystems stärker oder schwächer, würde das Dreikörpersystem nicht mehr gebunden sein. Dieser Zustand ist im Helium bislang jedoch nur theoretisch vorausgesagt, es gibt noch keinen experimentellen Beweis für seine Existenz.

Anders sieht es für eine andere Variante des Heliumtrimers aus. Im Gegensatz zu dem bislang besprochenen Helium, dem ^4He , existiert zu 0,00014 % auch ein Isotop, das ^3He . Dies hat aufgrund seiner geringeren Masse ein noch ungünstigeres Bindungsverhalten. Da seine Nullpunktschwingung größer ist, ist es mit ihm weder möglich ein stabiles Dimer, noch ein pures Trimer zu bilden. Erst die Mischung aus zwei ^4He und einem ^3He ergibt das kleinste stabile System mit diesem Isotop. Dies wurde experimentell mit der gleichen Apparatur wie das Dimer [Sch94] zum ersten mal von Kalinin et al. beobachtet [Kal05]. Abgesehen von seiner Existenz gibt es über dieses Isotopentramer jedoch keinerlei experimentelle Informationen. Dies liegt zum einem am sehr komplizierten Bindungsverhalten des fermionischen Isotops, zum anderen an seinem extrem hohen Preis. Steht es überhaupt zum Kauf, liegt der Preis für einen Liter ^3He Gas bei Normalbedingungen bei etwa 5000 Euro.

Daher ist es nicht verwunderlich, dass alle vorhandenen Informationen zu diesem System aus theoretischen Berechnungen stammen. Der Isotopentramer soll einen sogenannten „Tango-State“ bilden. Mit diesem Namen werden dreiatomige Systeme bezeichnet bei denen nur eines der drei Pärchen eine attraktive Zweikörperkraft besitzt und die anderen zwei repulsiv sind. Geometrisch soll es eine bevorzugte Struktur besitzen, eine T-Form. Bei dieser sollen die zwei ^4He näher beieinander sein und vom ^3He in einem größeren Radius umkreist werden.

Da all diese Systeme außergewöhnliche Eigenschaften besitzen, jedoch bislang im Detail experimentell kaum erforscht sind, bilden das Dimer und die Trimere die Objekte dieser Arbeit. Um die Untersuchungen zu realisieren wurden verschiedene aktuelle experimentelle Techniken in einer Apparatur kombiniert. Die grundlegende Idee ist hierbei ein „Coulomb-Explosion Imaging“ (siehe Kapitel 2.6). Bei dieser Abbildungsform wird das Untersuchungsobjekt mehrfach ionisiert, so dass die einzelnen Teilchen sich durch die gleichen Ladungen in einer „Coulomb-Explosion“ voneinander entfernen. Misst man nun die einzelnen Fragmente, können Rückschlüsse auf den Ursprungszustand gezogen werden. In dieser Arbeit wird dieses Verfahren durch ei-

ne ColTRIMS-Apparatur („Cold Target Recoil Ion Momentum Spectoscopy“) realisiert (siehe Kapitel 3.2.1). Die Ionisation des Moleküls wird durch einen fokussierten Femtosekunden-Laser (siehe Kapitel 3.1.2) ausgelöst, der eine sehr hohe Intensität im Fokus besitzt. Diese hohe Leistungsdichte setzt voraus, dass sehr wenig Fremdteilchen nahe des Reaktionsvolumens sind um den Untergrund zu minimieren, ein extrem niedriger Enddruck in der Apparatur muss herrschen. Die Untersuchungsobjekte werden durch eine Überschallgasexpansion erzeugt. Hierbei wird Helium durch eine etwa auf 10 K Temperatur gekühlte, 5 μm große Düse ins Vakuum expandiert. Der so erzeugte Gasstrahl besteht zum Großteil aus einzelnen Heliumatomen, nur wenige Prozent sind Dimere, Trimere oder größere Cluster. Um diese von den Monomeren zu trennen wird ein Transmissionsbeugungsgitter verwendet, welches die Moleküle nach ihrer Masse aufspaltet (siehe Kapitel 3.2.2). Dank dieser räumlichen Trennung ist es möglich gezielt nur Dimer oder nur Trimere zu untersuchen.

Ziel dieser Arbeit ist es zum einen eine Abstandsverteilung der Atome des Heliumdimers zu gewinnen und damit die Bindungsenergie des zweiatomigen Moleküls zu bestimmen, zum anderen sollen Größe und geometrische Struktur der zwei Trimervarianten gemessen werden.

Hierfür wird im folgenden Kapitel ein Gerüst aus Grundlagen und theoretischen Berechnungen erstellt, bevor in Kapitel 3 der experimentelle Aufbau näher erläutert wird. Im vierten Kapitel wird das Prinzip der Datenanalyse und der Kalibration erklärt, bevor in Kapitel 5 die eigentlichen Ergebnisse und deren Interpretation diskutiert werden. Abgeschlossen wird diese Arbeit in Kapitel 6 von einer Zusammenfassung der Forschungsergebnisse und einem Ausblick auf weitere geplante Aktivitäten der Arbeitsgruppe in diesem Gebiet.

2. Theorie und physikalische Grundlagen

In diesem Kapitel werden die dieser Arbeit zu Grunde liegenden physikalischen Hintergründe erklärt. Hierzu zählen sowohl ein Grundwissen der theoretischen Arbeiten des Gebietes als auch physikalische Grundkenntnisse der verwendeten Technik nötig.

2.1 Atomare Bindungen

Um die uns umgebende Welt besser zu verstehen ist es unumgänglich das Grundprinzip der atomaren Bindung zu betrachten. In der Natur sind, abgesehen von den Edelgasen, alle Stoffe zu Molekülen oder Festkörpern verbunden. Durch den Zusammenschluss zu einem Molekül minimieren Atome ihre potentielle Energie. Hierfür muss zwischen den Teilchen ein attraktives Potential entstehen, welches die Atome zusammenhält. Dieses Potential ist abhängig vom Abstand der Atome und kann z.B. für die Bindung zweier Atome in einem einfachen „Korrelationsdiagramm“ dargestellt werden (siehe z.B. Bild 2.2). Je nach Wechselwirkung wird zwischen verschiedenen Arten der atomaren Bindung unterschieden. Obwohl diese Bindungen oft gleichzeitig auftreten, sollen sie nun getrennt voneinander betrachtet werden. Dies ist insofern zu rechtfertigen, da meist eine Bindungsart die anderen dominiert.

2.1.1 Ionische Bindungen

Die am einfachsten zu erklärende Art einer Bindung stellt die ionische (oder ionogene) Bindung dar. Sie beruht auf elektrostatischen Kräften und ist daher in guter Näherung klassisch zu beschreiben. Hierfür muss man nur den Begriff der Elektronenaffinität eines Atoms einführen. Dieser Begriff beschreibt die frei werdende Energie beim hinzufügen eines Elektrons zum Atom. Diese ist besonders für die siebte Hauptgruppe des Periodensystems, die Halogene, sehr groß, da sie genau ein Elektron benötigen um eine Edelgaskonfiguration der äußeren Elektronenschale zu erlangen. Die Gruppe der Alkalimetalle hingegen muss ein Elektron verlieren um diesen energetisch bevorzugten Zustand zu erlangen. Ist nun die Ionisationsenergie des Alkalimetalls kleiner als die Elektronenaffinität des Halogens, so ist es energetisch für die Atome zu bevorzugen ein Elektron abzugeben bzw. aufzunehmen. Die nun geladenen Ionen werden über die Coulomb-Anziehung zusammen gehalten [Ger23]. Es handelt sich um eine heteropolare Bindung, die auf einer nicht gerichteten Anziehungskraft beruht. Daher verfügen auf diese Weise gebundene Moleküle oft über eine hohe räumliche Dichte. Da es in diesem Verband keine freien Elektronen gibt, ist ein solcher Festkörper schlecht strom- und wärmeleitend. Die Bindungsenergie des Moleküls beträgt mehrere eV pro Atom [MaKu]. Das wohl bekannteste Beispiel einer ionischen Bindung ist der Verbund von Natrium und Chlor zu Kochsalz (Na^+Cl^-).

2.1.2 Metallische Bindungen

Die metallische Bindung ist nur im Festkörper möglich und daher für diese Arbeit von untergeordnetem Interesse. Sie zeichnet sich dadurch aus, dass die im metallischen Festkörper sitzenden Atome keine kovalente Bindung ausbilden können. Stattdessen lösen sie auf Kosten der Bindungsenergie einzelne Valenzelektronen aus, welche sich als freies Elektronengas im Festkörper bewegen können. Auf diese Weise bildet sich eine Gitterstruktur aus positiven Ionen, die durch die quasi freien Elektronen zusammengehalten werden. Ein so gebildeter Körper ist sowohl ein guter Strom- als auch Wärmeleiter. Die Bindungsenergie eines solchen Systems liegt etwa bei 1 eV pro Atom [MaKu].

2.1.3 Kovalente Bindungen

Die kovalente Bindung stellt in der Natur eine sehr wichtige Bindungsform dar, da sie eine große Rolle in der organischen Chemie spielt. Im Vergleich

zur ionischen Bindung findet hier keine Abgabe und Aufnahme von Elektronen statt, die Bindungspartner teilen sich stattdessen einen Teil ihrer Valenzelektronen. Da zu ihrer Beschreibung die Bewegung der Elektronen eine essenzielle Rolle spielt, kann sie nur quantenmechanisch erklärt werden.

Für eine exakte Lösung müsste die Schrödingergleichung des gesamten Systems gelöst werden. Da dies analytisch selbst für das einfachste Molekölion, das H_2^+ , nicht mehr möglich ist, müssen gewisse Näherungen getätigt werden.

Aufgrund der stark unterschiedlichen Massen von Elektronen und Kernen (im Fall des H_2^+ eines Protons) kann man einfach erkennen, dass die Geschwindigkeit des Kerns im Vergleich zu der des Elektrons sehr gering ist. Aufgrund dieser Tatsache kann man davon ausgehen, dass die Kerne im Vergleich zur schnellen Bewegung der Elektronen als ruhend angesehen werden können. Daher kann man die Bewegung der Kerne und die der Elektronen als entkoppelt ansehen. Diese Entkopplung ist unter dem Namen Born-Oppenheimer-Näherung bekannt und erlaubt den Kernabstand beim Lösen der elektronischen Schrödingergleichung als Konstante zu betrachten. Hierdurch lässt sich das H_2^+ -Molekül wieder analytisch lösen. Man kann nun zu jedem Kernabstand die Energie des Systems berechnen und auf diese Weise eine Potentialkurve erzeugen. Diese wird in einem Korrelationsdiagramm wie in Bild 2.2 dargestellt.

Jedoch ist durch Hinzufügen eines weiteren Elektrons diese Vereinfachung nicht mehr ausreichend um die Schrödingergleichung zu lösen. Da nun zusätzlich die Wechselwirkung der beiden Elektronen untereinander berücksichtigt werden muss, sind weitere Näherungen nötig.

Eine einfache, aber weit verbreitete Näherung ist die Linearkombination atomarer Orbitale (linear combination of atomic orbitals, LCAO). Wie der Name bereits nahelegt, versucht man hier durch eine Linearkombination der atomaren Wellenfunktionen eine adäquate Beschreibung des Moleküls zu finden. Dieses Verfahren beschreibt im ersten Schritt jedoch auch nur die Elektronenwellenfunktion eines einzelnen Elektrons (demnach z.B. das H_2^+ Molekölion). Um die beste Beschreibung zu erreichen müssen die Koeffizienten der Linearkombination so gewählt werden, dass die Energie des Systems minimal wird. Diese Näherung soll hier jedoch nur kurz umrissen werden.

Man startet bei diesem Verfahren mit einer Kombination aus der Wellenfunktion von Atom A (ϕ_A) und Atom B (ϕ_B):

$$\psi(r, R) = c_1\phi_A(r_A) + c_2\phi_B(r_B) \quad (2.1)$$

Da die neue Gesamtwellenfunktion normiert sein und einen symmetrischen oder antisymmetrischen Charakter beim Vertauschen der Atomorbitale haben muss, ergeben sich folgende zwei Lösungen der Gleichung:

$$\psi_s = \frac{1}{\sqrt{2 + 2S_{AB}}}(\phi_A + \phi_B), \quad (2.2)$$

$$\psi_a = \frac{1}{\sqrt{2 - 2S_{AB}}}(\phi_A - \phi_B) \quad (2.3)$$

S_{AB} ist hierbei das sogenannte Überlappintegral, welches den Überlapp der atomaren Wellenfunktionen und die dadurch entstehenden Interaktionen beschreibt.

Berechnet man nun mit Hilfe dieser Wellenfunktionen die Potentialkurven des Moleküls, so sieht man, dass aus den ursprünglich energetisch entarteten atomaren Zuständen nun zwei nicht mehr entartete molekulare Zustände wurden. Deren symmetrische Lösung ist bindend; die antisymmetrische nicht bindend. Verstehen kann man dies durch die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen. Wie in Abbildung 2.1 zu erkennen ist, wird bei einer symmetrischen Überlagerung der atomaren Wellenfunktionen die Aufenthaltswahrscheinlichkeit zwischen den Kernen erhöht, was die Abstoßung der positiven Atomkerne abschirmt. Im antisymmetrischen Fall ist mit genau umgekehrten Konsequenzen die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektrons zwischen den Kernen verringert [Dem3].

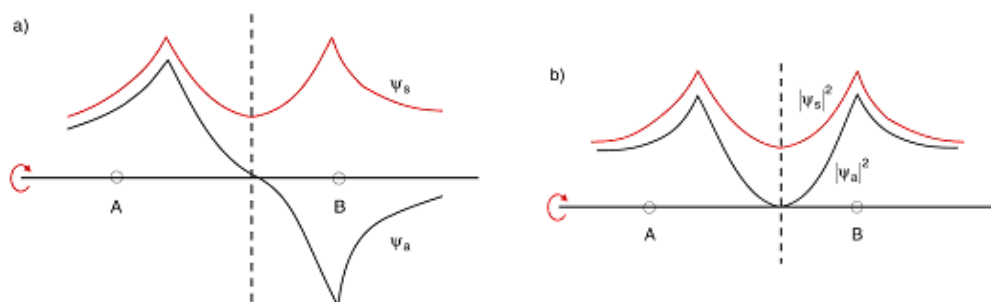


Abbildung 2.1: Antisymmetrische (schwarz) und symmetrische (rot) Elektronen-Wellenfunktion (a) von Wasserstoffion und deren Quadrat (b), die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen [Dem3].

Durch eine weitere Linearkombination der durch das LCAO-Verfahren erhaltenen Orbitale für ein Elektron, lassen sich auch Orbitale für Mehrelektronensysteme gewinnen.

Wird nun, wie hier im Falle von Wasserstoff, nur das symmetrische Molekülorbital mit zwei Elektronen (eins mit Spin up, eins mit Spin down) be-

setzt, so kommt es zu einem gebundenen Molekül, dessen Bindungsenergie in einem vergleichbaren Bereich liegt wie die der ionischen Bindung.

Im Falle von Helium müssten die vier Elektronen jedoch beide Orbitale besetzen. Da hierbei das Potential des antisymmetrischen Zustandes überwiegt kommt es zu keiner kovalenten Bindung von zwei Heliumatomen. Dieses Argument gilt äquivalent für alle Edelgase.

2.1.4 Van-der-Waals-Bindungen

Atome und Moleküle mit einer bereits abgeschlossenen Valenzschale können keine der erwähnten Bindungen eingehen. Sie können jedoch in gebundenem Zustand vorkommen. Grund hierfür ist eine Anziehung über Dipolkräfte. Das bekanntestes Beispiel für ein solches System ist sicherlich die Wasserstoffbrückenbindung zwischen H_2O Molekülen. Das Wassermolekül hat ein permanentes Dipolmoment, welches auf sein Nachbarmolekül eine anziehende Kraft ausübt.

Hat ein Atom oder Molekül kein permanentes Dipolmoment ist die Anziehungskraft zunächst nicht so intuitiv zu verstehen. Für eine anschauliche Erklärung darf man die Ladungsverteilung um den Atomkern nicht im zeitlichen Mittel betrachten, was zu einem homogenen, kugelförmigen Orbital führen würde, sondern man muss die momentane Ladungsverteilung anschauen. Während sich die Elektronen um den positiven Kern bewegen hat das Atom zu jeder Zeit ein gewisses temporäres Dipolmoment, welches jedoch im zeitlichen Mittel null ist.

Befindet sich nun ein weiteres Atom in der Nähe des ersten, so induziert das temporäre Dipolmoment von Atom A auch in Atom B ein Dipolmoment. Diese Dipole üben ein attraktives Potential aufeinander aus, was zu einer Bindung der Atome führen kann. Man spricht von einer Van-der-Waals-Bindung.

Will man dieses Potential theoretisch beschreiben, so ist eine quantenmechanische Störungsrechnung nötig. Um ein physikalisches Verständnis für diesen Prozess zu gewinnen, reicht jedoch bereits eine klassische Multipolentwicklung des elektrischen Potentials der Ladungsverteilung aus. Für ein ungeladenes Atom ohne permanentes Dipolmoment sind die ersten zwei Terme dieser Entwicklung null, da sie das ionische Potential und das eines elektrischen permanenten Dipols beschreiben. Der dritte Term beschreibt das Quadrupolmoment und damit das Potential eines momentanen Dipols.

Das Dipolmoment ($\vec{p}$) eines Atoms ist proportional zu seiner Polarisierbarkeit (α) und dem äußeren elektrischen Feld ($\vec{E}$), welches durch das momentane Dipolmoment des Nachbaratoms erzeugt wurde:

$$\vec{p} = \alpha \vec{E}. \quad (2.4)$$

Durch dieses Dipolmoment wird ein Potential (ϕ) erzeugt

$$\phi = \frac{\vec{p} \cdot \vec{r}_0}{4\pi\epsilon_0 r^2}, \quad (2.5)$$

dessen Ableitung uns ein elektrisches Feld ergibt

$$\vec{E} = -\vec{\nabla}\phi = \frac{3(\vec{p} \cdot \vec{r}_0)\vec{r}_0 - \vec{p}}{4\pi\epsilon_0 r^3}, \quad (2.6)$$

wobei in beiden Fällen $\vec{r}_0$ der Einheitsvektor in Richtung der Verbindungsachse der Atome ist und r der internukleare Abstand. Für das durch die induzierten Dipole erzeugte Potential ergibt sich daher folgende Abhängigkeit:

$$V(R) = -\frac{C}{R^6}. \quad (2.7)$$

Hierbei ist C eine Konstante die sich aus der Polarisierbarkeit der beiden Atome ergibt und R deren Abstand zueinander.

Dieses Potential fällt bei kleinen internuklearen Abständen sehr steil ab, ist jedoch aufgrund seiner $1/R^6$ Abhängigkeit sehr langreichweitig. Es berücksichtigt jedoch nur den Teil der Interaktion, welcher ohne Überlapp der atomaren Orbitale entsteht. Kommen sich die Kerne zu nahe, so dominiert die Interaktion der abgeschlossenen Elektronenhüllen und der positiv geladenen Kerne. Will man diese Effekte berücksichtigen, so hat sich ein Lennard-Jones Potential als gute Beschreibung erwiesen. Dieses enthält weitere Terme der Multipolentwicklung und hat folgende Form:

$$V(R) = 4\epsilon\left[\left(\frac{\sigma_1}{R}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma_2}{R}\right)^6\right]. \quad (2.8)$$

Hierbei sind ϵ und σ_i von den jeweiligen Atomen der Bindung abhängig. Beide Werte können quantenmechanisch berechnet oder der Literatur entnommen werden [Bie01]. Mit ihrer Hilfe lassen sich die in Abbildung 2.2 gezeigten Potentialkurven berechnen.

Nahezu in jedem Molekül ist auch ein Van-der-Waals-Potential enthalten. Da diese Bindung jedoch etwa um einen Faktor 1000 schwächer ist als z.B. eine kovalente Bindung, kann dieser Anteil in der Regel vernachlässigt wer-

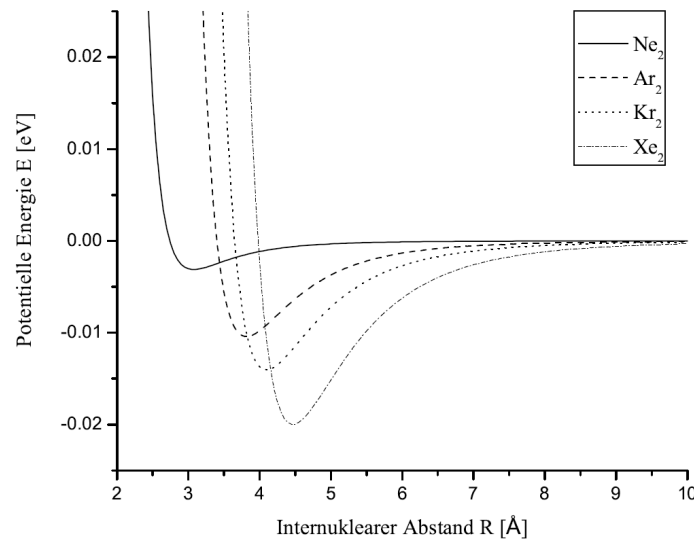


Abbildung 2.2: Abbildungen der Lennard-Jones Potentiale für verschiedene Edelgasdimere [Kre09]

den. Die rein durch ein Van-der-Waals-Potential gebundenen Moleküle sind dagegen aufgrund des schnellen Abfalls der Anziehungskraft bei kleinen internuklearen Abständen oft nur so schwach gebunden, dass sie nur gekühlt existieren können. Die Bindungsenergien von wenigen meV sind kleiner als die thermische Energie bei Raumtemperatur (ca. 40 meV). Aufgrund dieser schwachen Bindung sind diese Systeme jedoch deutlich größer als kovalente oder ionische Moleküle. Der mittlere Bindungsabstand eines Neondimers (Ne_2) beträgt z.B. ca. 3.1 Ångström [Jah05].

2.2 Das Heliumdimer

Das vom Aufbau her wohl einfachste Van-der-Waals gebundene System ist das Heliumdimer. Es besteht nur aus zwei Kernen mit je zwei Protonen und Neutronen und insgesamt vier Elektronen. Dass dieses System jedoch nur im Aufbau simpel erscheint, kann bereits aus der Historie seiner Berechnung und Vermessung erkannt werden.

Die erste theoretische Vorhersage eines gebundenen He_2 Dimers wurde im Jahr 1928 von Slater veröffentlicht [Sla28]. Ähnlich wie bei der oben beschriebenen LCAO Methode berechnete er die abstoßende Kraft zwischen den Kernen und der geschlossenen Elektronenhülle. Die anziehende Van-der-Waals-Kraft beschrieb er auch schon durch eine $1/R^6$ Beziehung. Jedoch war es damals noch nicht möglich die genauen Parameter dieser Kraft zu

bestimmen und daher nutzte Slater nur eine Abschätzung, für welche er eine Berechnung am Wasserstoffatom als Grundlage nahm. Unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Größe und der Polarisierbarkeit von Helium, welche aus Experimenten bekannt war, erhielt Slater ein attraktives Potential. In der Summe der beiden Kräfte erhielt er einen gebundenen Zustand mit $E_{\text{Bind}} = -1,21 \cdot 10^{-15}$ ergs (755,22 μeV) und einem Gleichgewichtsabstand von $R = 3,0$ Å. Trotz des rein geschätzten attraktiven Potentials zog er den Schluss, dass seine Ergebnisse richtig seien, da sie dem bereits bekannten flüssigen Helium nahe waren.

In den nächsten Jahrzehnten erschienen eine große Anzahl von theoretischen Veröffentlichungen, in denen neue Potentiale berechnet und immer wieder widersprüchliche Ergebnisse erzielt wurden. Eine Liste von über 50 verschiedenen Potentialen kann in [And93] gefunden werden.

Warum die Berechnung der Bindungsenergie des Heliumdimers so kompliziert ist kann man schon durch eine einfache Abschätzung mit Hilfe der Heisenberg'schen Unschärferelation sehen. Betrachtet man die Potentialmulde des Dimers (siehe Abbildung 2.3) so sieht man, dass sie nur etwa 1 meV tief ist und eine Breite von etwa 2 a.u. hat. Berechnet man nun die Impulsunschärfe so ergibt sich folgendes:

$$dp \geq \frac{\hbar}{dx} = 0,5 \text{ a.u.} \quad (2.9)$$

Aus diesem Impuls lässt sich einfach die Energie der Nullpunktschwingung errechnen:

$$\frac{dp^2}{2\mu} \geq 1 \text{ meV.} \quad (2.10)$$

Bereits bei dieser groben Abschätzung ist zu erahnen in welchem Maß sich Potentialtiefe und Nullpunktschwingung gleichen und wie klein damit deren Differenz, die Bindungsenergie, ist. Daher ist es nicht verwunderlich, dass gerade in den Anfängen der quantenmechanischen Rechnungen noch zu ungenaue Näherungen verwendet wurden, welche über bindend und antibindend entschieden haben.

Erst mit weit voran geschrittenen Rechentechniken und Näherungsverfahren, etwa zu Anfang der 80er Jahre, begann eine allgemeine Übereinstimmung, dass genau ein gebundener Zustand für He_2 existiert. Jede Rotations- oder Vibrationsanregung würde bereits zur Dissoziation des Moleküls führen. Trotzdem kamen auch in den nächsten Dekaden verschiedene Theorien

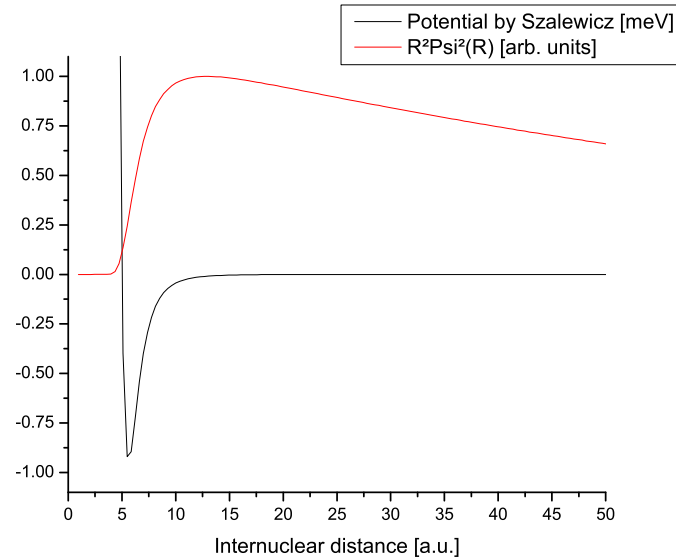


Abbildung 2.3: Korrelationsdiagramm und Quadrat der Wellenfunktion nach Theorie von Szalewicz [Prz10]. Auch weit außerhalb der Potentialmulde besteht noch eine hohe Aufenthaltswahrscheinlichkeit für das Dimer.

nicht auf konvergierende Ergebnisse für die Bindungsenergie (siehe Abbildung 2.4).

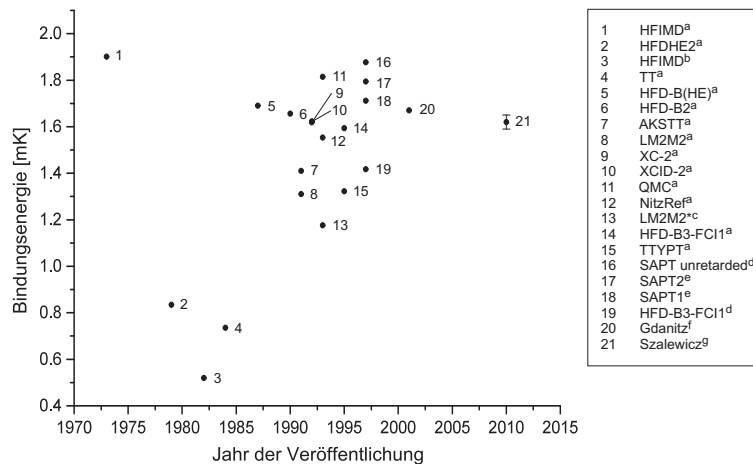


Abbildung 2.4: Entwicklung der berechneten Bindungsenergien des Heliumdimers (Werte entnommen aus ^a [Jan95], ^b [Fel82], ^c [Luo93], ^d [Jan97], ^e [Kor97], ^f [Gda01], ^g [Prz10])

Exemplarisch soll nun auf drei der geläufigsten Potentiale eingegangen werden um die starken Abweichungen aktueller Theorien deutlich zu machen.

Zuerst wird hier die Rechnungen von Aziz und Slaman [Azi91] betrachtet, denen es gelang ein analytisches ab initio Potential zu finden. Dieses basiert auf den numerischen Lösungen von Liu und McLean [Liu89] und von van Duijneveldt et al. [Vos90]. Mit ihrem frei von experimentellen Parametern be-

rechneten LM2M2 (Liu-McLean-2-mimic-2) Potential konnten sie sowohl die experimentell gemessene Viskosität, als auch die Virial-Koeffizienten, welche die Wechselwirkung der Atome in einem realen Gas beschreiben, bestätigen. Hiermit bestand innerhalb der Fehler Übereinstimmung von Experiment und Theorie: Sowohl für Tiefe und Fläche der Potentialmulde, als auch in der Position der repulsiven inneren Flanke des Potentials. Das LM2M2 Potential hat sein Minimum bei einem internuklearen Abstand von $\langle r \rangle = 2,9702 \text{ \AA}$ und einer Tiefe von $V_{min} = 10,92 \text{ K}$ ($0,941 \text{ meV}$).

In einer späteren Veröffentlichung von Luo et al. [Luo93] wurde dieses Potential noch um Retardierungseffekte korrigiert. Diese entstehen durch die endliche Ausbreitungsgeschwindigkeit des elektrischen Feldes. Da das Heliumdimer enorm groß ist führt es im Bereich großer internuklearer Abstände zu Abschwächung der Van-der-Waals-Kraft. Da sich das elektrische Feld, welches durch das momentane Dipolmoment von Atom A erzeugt wird, nur mit Lichtgeschwindigkeit ausbreitet, entsteht ein minimaler Zeitversatz bis Atom B dieses Feld spürt und sein Dipolmoment darauf einstellen kann. Durch diesen Effekt wird das Van-der-Waals-Potential für große Abstände von einer $1/R^6$ Abhängigkeit auf eine $1/R^7$ Relation reduziert. Obwohl dies nahezu keinen Effekt auf den inneren Bereich und das Minimum der Potentialmulde hat, ändert sich die Bindungsenergie des Systems von $E_{Bind}(\text{LM2M2}) = 1,310 \text{ mK}$ auf $E_{Bind}(\text{LM2M2}_{ret}) = 1,176 \text{ mK}$.

Das zweite weit verbreitete Potential wurde 1995, nach den ersten experimentellen Nachweisen des Heliumdimers, von Tang, Toennies und Yiu [Tan95] berechnet. Genau wie das LM2M2 Potential besitzt es auch eine komplett analytische Form. Der Unterschied besteht darin, dass es als Grundlage nur atomare Eigenschaften des Heliums nutzt und keine freien Anpassungsparameter besitzt. Trotz diesem starren Gerüsts gibt es mit vergleichsweise geringem Rechenaufwand einen Potentialverlauf, der auch mit komplizierteren Rechnungen übereinstimmt.

Dieses Potential nutzte Lewerenz [Lew97] um durch Diffusions Monte Carlo (DMC) Rechnungen die Strukturen und Bindungsenergien kleiner ^4He Cluster zu berechnen. Für das Heliumdimer erhielt er eine Bindungsenergie von $E_{Bind} = 1,2374 \text{ mK}$.

Die dritte Theorie, welche hier kurz erwähnt werden soll, ist die von Przybytek et al. [Prz10] veröffentlichte Rechnung. Nach aktuellem Stand stellt sie die genaueste Berechnung der Interaktion zweier Heliumatome und dem daraus resultierenden Potential dar. Sie berücksichtigt neben der Born-Oppenheimer-Näherung auch adiabatische Korrekturen, relativistische Ef-

Effekte, quantenelektrodynamische Effekte und den bereits erwähnten Retardierungseffekt. Laut der Autoren ist dies die erste Veröffentlichung, die diese Effekte in ausreichender Genauigkeit und für mehr als einen Abstand des Potentials berücksichtigt. In ihrem Potential wurden diese Beiträge an 17 verschiedenen Stellen zwischen 1 und 12 a.u. berechnet. An diese Punkte wurde dann eine analytisch lösbare Formel angepasst um den kompletten Verlauf des Korrelationsdiagramms zu erzeugen. Unter Berücksichtigung aller Effekte erhielt Przybytek et al. eine Bindungsenergie von $1,62 \pm 0,03$ mK. Die einzelnen Beiträge sind in Tabelle 2.1 dargestellt.

Potential	E_{Bind} [mK]	$\langle r \rangle$ [Å]
V_{BO}	1,718	45,77
$V_{BO} + r.c.$	1,555	47,92
$V_{BO} + V_{ad}$	1,816	44,62
$V_{BO} + V_{ad} + r.c.$	1,648	46,65
$V_{BO} + V_{ad} + V_{rel}$	1,590	47,43
$V_{BO} + V_{ad} + V_{rel} + r.c.$	1,610	47,15
$V_{BO} + V_{ad} + V_{rel} + V_{QED}$	1,620	47,02
$V_{BO} + V_{ad} + V_{rel} + V_{QED} + r.c.$	1,615	47,09

Tabelle 2.1: Bindungsenergie E_{Bind} [mK] und mittlerer Abstand $\langle r \rangle$ [Å] für verschiedene Schritte der Theorie von [Prz10]. Hierbei steht *BO* für die Born-Oppenheimer-Näherung, *ad* für adiabatische Korrekturen, *rel* für relativistische Effekte, *QED* für quantenelektrodynamische Effekte und *r.c.* für den Retardierungseffekt.

Der erste, jedoch noch unumstrittene experimentelle Beweis für die Existenz eines Heliumdimers, wurde 1993 von Luo et al. [Luo93a] veröffentlicht. Hierfür nutzten sie eine gepulste Überschallgasexpansion durch eine 0,15 mm große Düse und eine rotierende Schlitzscheibe um die Geschwindigkeit des Gasstrahls (auch „Jet“) und die Geschwindigkeitsverteilung innerhalb des Jets (das „Speedratio“) zu bestimmen. Hiermit konnten sie zeigen, dass der Jet eine interne Temperatur im Bereich der prognostizierten Bindungsenergie von 1 mK besitzt. Mit Hilfe zweier Massenspektrometer in unterschiedlichen Abständen hinter der Schlitzscheibe gelang es ihnen ein Signal zu detektieren, dass dem Masse-zu-Ladung-Verhältnis von einem einfach geladenen Heliumdimer entspricht. Aufgrund der Abhängigkeit dieses Signals vom Vordruck wies Luo es der einfachen Ionisation von Heliumdimeren zu.

Diese Schlussfolgerung wurde von Meyer et al. [Mey94] jedoch in einem Kommentar zur Veröffentlichung Luos angezweifelt. Mit Verweis auf ähnliche Messungen behauptete Meyer, dass das Signal bei $M/q = 8$ viel wahrscheinlicher durch die Ionisierung eines Trimers in ein He_2^+ und ein He entstehen würde. In einer Antwort Luos auf den Kommentar [Luo94] betonte er jedoch

die Unterschiede zu den Vergleichsmessungen und blieb bei seiner Schlussfolgerung.

In einem späteren Experiment [Luo95] wurde die Schlitzscheibe durch drei verschiedene Siebe ersetzt. Diese hatten Löcher von 98, 207 und 410 nm Größe. Nun betrachteten Luo et al. die Signalrate im Massenspektrometer hinter dem Sieb bei $M/q = 4$ und 8 in Abhängigkeit von der Lochgröße des Siebes. Über das Verhältnis der beiden Raten konnten die Autoren einen Rückschluss auf die Größe des Dimers ziehen. Mit Hilfe dieser Technik erhielten sie den ersten experimentellen Wert $\langle r \rangle = 62 \pm 10 \text{ \AA}$.

Der unanfechtbare Beweis für die Existenz des Dimers wurde 1994 von Schöllkopf und Toennies [Sch94] erbracht. Ähnlich wie Luo et al. produzierten sie kleine Heliumcluster durch eine Überschallgasexpansion, durch eine kryogenisch gekühlte $5 \mu\text{m}$ Düse. Diesen Jet schossen sie auf ein Transmissionsbeugungsgitter mit 200 nm Gitterperiode. Da die im Gasstrahl enthaltenen Cluster alle mit nahezu der gleichen Geschwindigkeit propagieren haben sie proportional zu ihrer Masse eine unterschiedliche deBroglie Wellenlänge. Hinter dem Gitter entsteht ein Beugungsbild in dem das erste Maximum des Dimers nur halb so weit abgelenkt ist, wie das der Monomere (näheres im Kapitel 2.5). Mit einem Massenspektrometer konnten Toennies und Schöllkopf das Beugungsbild aufnehmen und auf diese Weise das Dimer nachweisen. In einer späteren Messreihe mit dem gleichen Aufbau versuchten Schöllkopf und Toennies die Ergebnisse von Luo et al. zu reproduzieren und kamen auf eine Übereinstimmung innerhalb 30%, wodurch sie die Annahmen Luos bestätigt sahen [Sch96].

Im Jahr 2000 gelang es Grisenti et al. [Gri00] mit einem 100 nm Gitter die Auflösung soweit zu verbessern, dass das Dimer bis zum siebten Beugungsmaximum nachgewiesen werden konnte. In dieser Messung konnte eine effektive Schlitzbreite des Gitters berechnet werden, welche die Verkleinerung des Schlitzes durch das Oberflächenpotential zwischen Helium und Gitter und durch die Dimergröße berücksichtigte. Mit diesem Ansatz konnte Grisenti die Größe des Dimers auf $\langle r \rangle = 52 \pm 4 \text{ \AA}$ und die Bindungsenergie auf $1,1^{+0,3}_{-0,2} \text{ mK}$ bestimmen. Dieser Weg stellt jedoch eine sehr indirekte Messung des mittleren Bindungsabstandes dar. Es ist ein komplexes theoretisches Modell der Materiewellenbeugung nötig. Dies macht besonders die Abschätzung des experimentellen Fehlers sehr kompliziert. Für diese wurde ein theoretisches Potential des Dimers genutzt. Hierüber hinaus ist der Wert der Bindungsenergie einzig aus dem mittleren Abstand berechnet und nicht direkt aus der

Messung extrahiert. Eine Diskussion der Fehlerabschätzung Grisentis ist in [Spi13] zu finden.

Zuletzt wird nun kurz auf die vorangegangenen Messungen aus Frankfurt eingegangen. In diesen wurden die kleinen Heliumcluster ebenfalls in einer Überschallgasexpansion erzeugt. Der Nachweis der Dimere geschah mit Hilfe der ColTRIMS-Technik, welche im Kapitel 3.2.1 näher beschrieben wird. Havermeier et al. ionisierte die Heliumdimere mit Synchrotronstrahlung und beobachtete so verschiedene Prozesse bei denen die zwei Atome des Dimers mit nur einem Photon je einfach ionisiert werden [Hav10][Hav10a][Hav10b][Hav10c]. Diese Untersuchungen wurden von Tinter et al. fortgeführt, der mit Hilfe des Heliumdimers den von Cederbaum et al. [Ced97] vorhergesagten Ionisationsmechanismus des „Interatomic Coulombic Decay“ (ICD) näher untersuchte [Tri13].

Einen anderen Weg der Ionisation wählten Titze et al. [Tit11][Tit11a] und Kim et al. [Kim14], die das Dimer mit Hilfe von Ionenstrahlen ionisierten und mit einer ColTRIMS-Apparatur nachwiesen. Auch hier wurden verschiedene Ionisationsmechanismen nachgewiesen und das Dimer über seine Interaktion mit ionisierender Strahlung näher charakterisiert.

In diesen auf der ColTRIMS-Technik basierenden Experimenten wurde jedoch weder ein reiner Dimerjet hergestellt, noch die komplette Abstandsverteilung der Dimere und dessen Bindungsenergie gemessen. Dies wäre jedoch von großem Interesse um einen weiteren und genaueren experimentellen Wert zu haben an dem sich die Theorie messen kann.

2.3 Das Heliumtrimer

Durch Hinzufügen eines weiteren Heliumatoms erhält man das Heliumtrimer, welches trotz seines ebenso simplen Aufbaus ebenfalls interessante Eigenschaften besitzt und große Aufmerksamkeit von Theoretikern und Experimentatoren erhielt. Obwohl als Grundlage für dessen Berechnungen immer die gleichen Zweikörperkräfte wie beim Dimer dienten, war eine Existenz des Trimers aufgrund seiner höheren Bindungsenergie sehr schnell unumstritten.

Genau wie das Dimer bildet auch das Trimer wegen der geringen Van-der-Waals-Kraft ein weit ausgedehntes System. Da sich die Wellenfunktion bis

weit in den klassisch verbotenen Bereich des Potentials erstreckt, spricht man beim Trimer genau wie beim Dimer auch von „quantum halos“ [Jen04].

Anders als beim Dimer ist die Bindungsenergie des Trimers bei weitem nicht so umstritten. Während beim Dimer zwischen dem recht alten HFDHE2 und dem aktuelleren TTY Potential noch ein Unterschied von 102,5 % in der Bindungsenergie herrscht, beträgt dieser beim Trimer nur 13,5 %. Eine Auflistung der Bindungsenergien des Trimers für vier verschiedene Potentiale ist in Tabelle 2.2 zu sehen [Mot01].

Potential	$E_{\text{Bind}} \text{ He}_3$ [Mot01]	$E_{\text{Bind}} \text{ He}_2$ [Abb.2.4]
HFDHE2	116,7 [mK]	0,835 [mK]
HFD-B	132,5 [mK]	1,691 [mK]
LM2M2	125,9 [mK]	1,310 [mK]
TTY	125,8 [mK]	1,323 [mK]

Tabelle 2.2: Vergleich der Bindungsenergien von Trimer und Dimer für verschiedene Potentiale.

Die erhöhte Bindungsenergie des Trimers entsteht jedoch nicht durch Dreikörperwechselwirkungen, sondern allein durch die Summe der Zweikörperwechselwirkungen [Esry96]. Das Verständnis dieser Interaktion von drei Teilchen stellt den ersten wichtigen Schritt für kompliziertere Phänomene wie das Verhalten von Heliumgas bei niedrigen Temperaturen [Gon99] oder sogar Bose-Einstein Kondensation und Superfluidität [Mot01] dar.

Die bisher aktuellste Rechnung zu den Bindungseigenschaften des Heliumtrimers wurde von Hiyama und Kamimura veröffentlicht [Hiy12]. Sie verwendeten als Grundlage das aktuellste und genaueste Helium Paarpotential von Przybytek et al. [Prz10] und errechneten damit eine Bindungsenergie von $E_{\text{Bind}} = 131,84 \text{ mK}$ für den Grundzustand des Trimers. Die einzelnen Beiträge der verschiedenen Näherungen sind Tabelle 2.3 zu entnehmen.

Neben dem Grundzustand (in der Tabelle als $E_{\text{Bind}}^{(0)}$ bezeichnet) soll nach neusten Erkenntnisstand auch ein energetisch angeregter Zustand im Heliumtrimer existieren. Dieser soll mit 2,77 mK ähnlich schwach gebunden sein wie das Dimer und stellt daher bis heute eine große Herausforderung für theoretische Berechnungen dar. Bereits kleinste Abweichungen des Zweikörperpotentials entscheiden ob dieser Zustand gebunden oder ungebunden ist.

Zusätzlich zu dieser schwachen Bindung genießt der vibrationsangeregte Zustand noch erhöhtes Interesse, da er eine Realisierung des 1970 von V. Efimov vorhergesagten Effektes sein könnte [Efi70] (ab hier Efimov-Effekt). Efimov entdeckte, dass im Dreikörpersystem neue Bindungszustände entstehen,

Potential	Dimer		Trimer	
	E_{Bind}	$\langle r \rangle$	$E_{Bind}^{(0)}$	$E_{Bind}^{(1)}$
V_{BO}	1,7181	45,77	133,43	2,7724
$V_{BO} + \text{r.c.}$	1,5549	47,92	130,85	2,5776
$V_{BO} + V_{ad}$	1,8160	44,62	134,96	2,8881
$V_{BO} + V_{ad} + \text{r.c.}$	1,6482	46,65	132,37	1,6894
$V_{BO} + V_{ad} + V_{rel}$	1,5896	47,43	131,44	2,6194
$V_{BO} + V_{ad} + V_{rel} + \text{r.c.}$	1,6105	47,15	131,76	2,6444
$V_{BO} + V_{ad} + V_{rel} + V_{QED}$	1,6200	47,02	131,90	2,6559
$V_{BO} + V_{ad} + V_{rel} + V_{QED} + \text{r.c.}$	1,6154	47,09	131,84	2,6502

Tabelle 2.3: Vergleich der Bindungsenergie E_{Bind} [mK] und mittlerer Abstand $\langle r \rangle$ [Å] für das Dimer, Grundzustand ($E_{Bind}^{(0)}$) und angeregter Zustand ($E_{Bind}^{(1)}$) des Trimers [mK] für verschiedene Fortschritte des Potentials von [Prz10] (Werte entnommen aus [Hiy12]). Hierbei steht BO für die Born-Oppenheimer-Näherung, ad für adiabatische Korrekturen, rel für relativistische Effekte, QED für quantenelektrodynamische Effekte und $r.c.$ für den Retardierungseffekt.

wenn es in diesem System einen Zweikörperzustand gibt der mit (nahezu) 0 Bindungsenergie gebunden ist. Diese Zustände haben die Eigenschaft, dass sie sowohl bei einem schwächeren, als auch bei einem stärkeren Zweikörperpotential verschwinden. Die Anzahl der Efimov-Zustände lässt sich über die Streulänge (a) und die Reichweite des Wechsekwirkungspotentials (r_0) berechnen:

$$N \approx \frac{1}{\pi} \ln(|a|/r_0) \quad (2.11)$$

Für den Fall, dass es eine Zweikörperresonanz bei einer Bindungsenergie von exakt 0 gibt, würden durch diesen Effekt unendlich viele gebundene Dreikörperzustände entstehen. Diese Zustände besäßen zudem noch ein universelles Verhalten. Unabhängig vom System in dem sie beobachtet werden, treten sie immer bei bestimmten Werten der Streulänge auf. Ist a_0 die Streulänge, bei der der erste Efimov-Zustand beobachtet wurde, so tritt der zweite bei $22,7 \cdot a_0$ auf.

Visualisieren kann man einen Efimov-Zustand über borromäische Ringe. Es handelt sich hierbei um drei Ringe, welche ein gebundenes System ergeben. Entfernt man jedoch einen der drei Ringe, so sind auch die anderen zwei ungebunden. Äquivalent hierzu ist der Efimov-Zustand nur aufgrund von Dreikörperkräften gebunden. Sind die Untersysteme nicht mit einer Resonanz bei 0 mK versehen, sondern komplett ungebunden, so spricht man auch von einem Halo-Zustand, einem Spezialfall des Efimov-Zustandes. Eine Visualisie-

rung der borromäischen Ringe im Alltag kann z.B. der Werbung entnommen werden (Abb. 2.5).



Abbildung 2.5: Borromäischer Ringe im Alltag (Bild aus [Loh07])

Obwohl V. Efimov diesen Effekt ursprünglich auf Kernzustände bezogen hat, könnte das Heliumtrimer aufgrund der schwachen Bindung des Dimers ideal sein, um diesen Effekt in einer natürlichen Umgebung zu beobachten.

Erstmals hatten Lim und Kollegen 1977 [Lim77] diese Idee. Sie nahmen ein inzwischen stark veraltetes MDD-2-Potential als Zweikörperpotential und berechneten damit die Anzahl der Efimov-Zustände zu $N = 1,01$. Dies sahen sie als Beweis eines angeregten Efimov-Zustandes im Heliumtrimer, da er wieder verschwand, nachdem sie das Wechselwirkungspotential mit einem Faktor von 1,01 multiplizierten.

Eine ähnliche Vorgehensweise findet man in den nächsten Jahrzehnten in vielen Veröffentlichungen. Als Grundlage dienten verschiedene Dimerpotentiale, mit denen durch unterschiedliche Rechenmethoden die Dreikörperzustände berechnet wurden. Danach wurde die Wechselwirkung künstlich über einen Parameter (λ) verändert und das Verhalten der Bindungszustände beobachtet. Verschwindet ein Bindungszustand sowohl oberhalb als auch unterhalb des physikalischen Wertes $\lambda = 1$ so ist es ein Efimov-Zustand.

Anfänglich war die Existenz und auch die Anzahl der angeregten Efimov-Zustände im Heliumtrimer noch stark umstritten ([Cor86, Lim77, Nak83, Esry96, Gon99, Nie98]). Mit fortgeschrittenen Rechentechniken und besseren Dimerpotentialen scheint sich eine Tendenz der Theorie zur Existenz genau eines Efimov-Zustandes abzuzeichnen [Loh07].

Experimentell wurden Efimov-Zustände erstmals 2006 von Kraemer et al. [Kra06] nachgewiesen. Hierfür kühlten sie Caesium in einer magneto-

optischen Falle auf eine Temperatur von 110 bis 250 nK. Über ein externes magnetisches Feld nutzten sie Feshbach-Resonanzen [Fes58] um das Zweikörperpotential kontinuierlich zu verändern. Durch die Anzahl der Atome in der Falle berechneten sie Verlustraten und konnten auf diese Weise einen Dreikörperzustand, nahe der theoretisch vorhergesagten Efimov-Energie, nachweisen. Nach einem äquivalenten Verfahren konnten Pollack et al. 2009 [Pol09] auch einen Efimov-Zustand in Lithium nachweisen.

In einem ähnlichen Experiment gelang es Huang et al. [Hua14] kürzlich den ersten angeregten Efimov-Zustand im Caesium zu beobachten. Hierzu kühlten sie die Cs-Atome in einer verbesserten Falle bis auf 7,7 bzw. 9,6 nK. Über Feshbach-Resonanzen gelang es ihnen nahe der vermuteten Resonanz eine erhöhte Dreiteilchenverlustrate zu messen. Das universelle Skalierungsverhalten, das von Efimov mit einem Faktor von 22,7 vorausgesagt wurde, sahen sie mit ihrem gemessenen Wert von $21,0 \pm 1,3$ bestätigt. Die leichte Abweichung schrieben die Autoren Effekten zu, die durch die endliche Temperatur des Gases entstehen.

Da diese Efimov-Zustände auf der Anpassung der Zweikörperinteraktion durch ein starkes magnetisches Feld beruhen, bleibt das Heliumtrimer der beste Kandidat diesen universellen Dreikörperzustand in einer natürlichen Umgebung zu beobachten.

Das Heliumtrimer wurde im selben Experiment wie das Dimer [Sch94] nachgewiesen. In einer Überschallgasexpansion wurden kleine Heliumcluster erzeugt und an einem Transmissionsgitter gebeugt. Durch die räumliche Trennung der Cluster konnte mit Hilfe eines Massenspektrometers der unwiderlegbare Beweis für die Existenz des Trimers erbracht werden.

Ähnlich wie beim Dimer gelang es den Experimentatoren auch hier die mittlere Größe des Systems zu bestimmen. Dafür verbesserten sie die Auflösung des experimentellen Aufbaus indem sie ein Gitter mit 100 nm Gitterperiode um einen Winkel von 21° neigten. Durch die in der Projektion kleineren Schlitzbreite von nur 27 nm war die Auflösung des Aufbaus ausreichend, um auch für das Trimer eine effektive Schlitzbreite, unter Berücksichtigung des Oberflächenpotentials und der Teilchenausdehnung, zu bestimmen (eine genauere Erklärung des theoretischen Gerüsts ist in Kapitel 2.5.2 zu finden). Mit diesem Ansatz waren Brühl et al. [Brü05] in der Lage die durchschnittliche Größe des Trimers auf $1,1^{+0,4}_{-0,5}$ nm zu vermessen. Da dieser Wert sehr gut zum theoretisch errechneten Wert des He_3 Grundzustandes von $\langle r \rangle = 0,96$ nm passt und weit weg vom Wert des angeregten Zustandes $\langle r \rangle = 7,97$ nm liegt, kamen die Experimentatoren zum Schluss, dass der angeregte Zustand zu weniger

als 6% vorliegen kann. Da dies unter dem zu erwartenden Wert von 10% liegt, zweifelten Brühl et al. die Existenz eines angeregten Efimov-Zustandes in ihren Daten an.

Ein eindeutiger Beweis für die Existenz des angeregten Trimerzustandes wurde erst während der Abgabe dieser Arbeit mittels der hier aufgebauten Apparatur erbracht [Kun14a].

Eine weitere Möglichkeit einen Efimov-Zustand zu identifizieren stellt der Hyperradius dar. Dies ist eine Darstellungsform der Gesamtgröße eines Dreiteilchensystems.

$$R_{hyp} = \sqrt{R_{12}^2 + R_{13}^2 + R_{23}^2}, \quad (2.12)$$

wobei R_{ij} der Abstand zwischen Teilchen i und j ist.

Während die Abstandsverteilung des Hyperradius für den Grundzustand des Trimers keine Knoten besitzt, soll für den angeregten Zustand ein Knoten existieren.

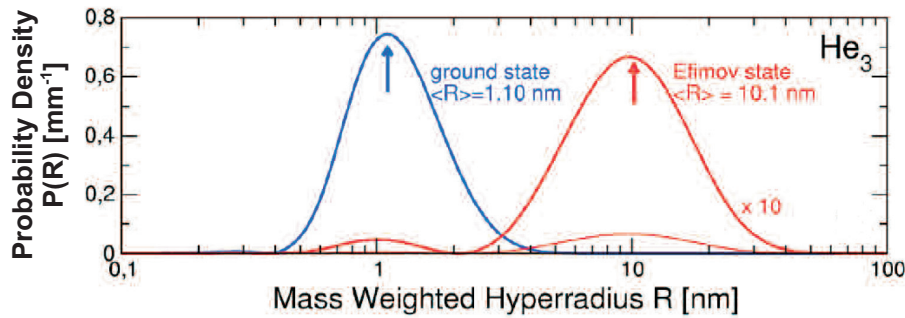


Abbildung 2.6: Berechnete Verteilung des effektiven Hyperradius ($\langle R \rangle = 1 / (2\sqrt{2\mu E_{bind}}/\hbar)$), mit der reduzierten Masse μ) von ${}^4\text{He}_3$ für den angeregten und den Grundzustand (aus [Kor07]). Während der Grundzustand seinen Mittelwert bei 1,1 nm hat und nur aus einem breiten Maximum besteht, ist der angeregte Zustand aus einem kleinen Maximum nahe des Grundzustandes und einem größeren Maximum bei etwa 10 nm aufgebaut. Sein Mittelwert beträgt 10,1 nm, es besitzt jedoch weniger als 10 % der Höhe des Grundzustandes

Auch unabhängig von dem Knoten in der Verteilung des angeregten Zustandes lassen sich die Zustände durch die Größe des Wertebereiches klar voneinander trennen. Während der Grundzustand eine mittlere Größe von 1,1 nm besitzt, hat der angeregte Efimov-Zustand in etwa die zehnfache Größe.

Eine weitere Frage, die für den Grundzustand des Heliumtrimers bisher nicht eindeutig beantwortet wurde, ist die seiner Form. Intuitiv könnte man bei drei identischen Teilchen von einem gleichseitigen Dreieck ausgehen; jedoch haben verschiedene Berechnungen auch Indizien dafür gefunden, dass eine quasilineare Konfiguration vorhanden ist.

Dass verschiedene Veröffentlichungen bisher keine konvergierenden Ergebnisse lieferten, ist verwunderlich wenn man berücksichtigt, dass die Struktur eines dreiatomigen Moleküls im Allgemeinen nicht so stark vom Zweikörperpotential abhängt, wie dessen Bindungsenergie. Beim Heliumtrimer hingegen ergaben verschiedene Berechnungen gleiche Bindungsenergien, jedoch verschiedene Formen.

In einer Veröffentlichung aus dem Jahr 2011 führten Bressanini und Morosi [Bre11] dies auf die falsche Betrachtungsweise des Problems zurück. In einer Auflistung bereits veröffentlichter Arbeiten zur Struktur des Heliumtrimers stellten sie fest, dass ein Rückschluss alleine aus dem Mittelwert einer Messgröße oft zu falschen Aussagen über die Struktur führen kann. Gerade bei sehr ausgewaschenen Zuständen, wie dem Heliumtrimer, hat der Mittelwert eine sehr geringe Aussagekraft. Eine Auflistung von Arbeiten die sich mit der Struktur des ${}^4\text{He}_3$ beschäftigten ist Tabelle 2.4 zu entnehmen.

E_{Bind} [mK]	2B-Potential	dominate Struktur	Referenz
125,462	TTY	fast lineare Anteile	[Lew97]
125,174	LM2M2	gleichseitiges Dreieck	[Nie98]
215,82	KM2M2	quasi-linear	[Gon99]
219,127	LM2M2	ungleichschenkliges Dreieck + quasi-linear	[Gon99a]
126,383	TTY	fast lineare Anteile	[Bre00]
126,397	TTY	nicht linear	[Rou00]
126,354	LM2M2	gleichseitiges Dreieck	[Bar01]
126,369	TTY	alle Konfigurationen	[Bre11]

Tabelle 2.4: Theoretische Berechnungen der Bindungsenergie des ${}^4\text{He}_3$ unter Berücksichtigung des Zweikörperpotentials (2B-Potential) und Betrachtung der dominanten Struktur (aus [Bre11]).

Um eine bessere Betrachtung der Struktur zu erlangen, errechneten Bressanini und Morosi mit Hilfe einer Quantum-Monte-Carlo-Simulation gleichzeitig zwei Winkel des Trimers. Durch diese ist nun eine eindeutige Aussage über die Struktur, jedoch nicht über die Größe des Systems möglich. Sie stellten fest, dass weder eine lineare, noch eine gleichseitige Konfiguration überwiegt. Sowohl diese extremen Formen, als auch alle dazwischen, kommen mit nahezu gleicher Wahrscheinlichkeit vor (siehe Abb. 2.7). Daher kamen die Autoren zum Schluss, dass es falsch sei von einer Struktur zu sprechen, da dies beim Leser den Eindruck einer Gleichgewichtskonfiguration erwecke. In diesem extrem schwach gebundenen System, welches keine feste Struktur hat, sei diese jedoch nicht vorhanden.

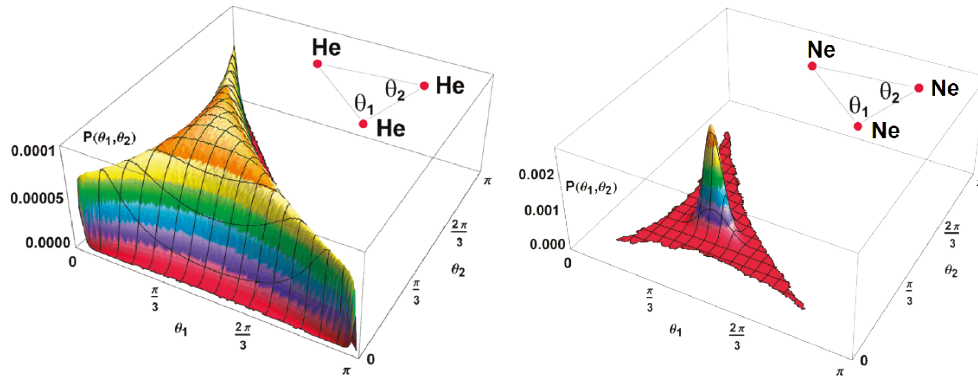


Abbildung 2.7: Vergleich der Innenwinkel des Helium- und des Neontrimers [Bre11]. Während im Falle des Neons ein klares Maximum bei einer gleichseitigen Konfiguration vorliegt, das zu ungleichseitigen Konfigurationen sehr schnell abfällt, ist für das Heliumtrimer kein Maximum in der Verteilung zu erkennen. Es ist nur ein minimaler Abfall der Verteilung von einer gleichseitigen hin zu einer linearen Konfiguration zu erkennen.

Neben dem zu mehr als 99,99 % vorkommenden ^4He besitzt Helium noch ein weiteres stabiles Isotop. Dieses hat eine um 25% reduzierte Masse (^3He), jedoch dieselbe Elektronenkonfiguration und wechselwirkt damit durch nahezu das gleiche Potential. Will man nun ein Dimer, Trimer oder größeren Cluster aus dem Isotop aufbauen, so muss man die aufgrund der leichteren Masse erhöhte Nullpunktenergie und die andere Besetzungsstatistik der Fermionen berücksichtigen. Allein dieser kleine Unterschied bewirkt, dass sowohl das reine Dimer ($^3\text{He}_2$), das gemischte Dimer ($^3\text{He}^4\text{He}$), das reine Trimer ($^3\text{He}_3$) als auch das gemischte Trimer ($^3\text{He}_2^4\text{He}$) nicht gebunden sind.

Der kleinste stabile Cluster ist das gemischte Trimer $^3\text{He}^4\text{He}_2$. Dieses wurde erstmals 1979 von Nakaichi et al. [Nak79] vorausgesagt, wobei die Autoren nur einen gebundenen Zustand bei vier von fünf getesteten Zweikörperpotentialen fanden. Zu einem ähnlichen Schluss kamen im selben Jahr auch Duffy und Lim [Duf79]. Sie berechneten die Bindungsenergie des isotopen Trimers zu $E_{\text{Bind}} = 0,002 - 0,8 \text{ mK}$. Die Vermutung in diesen frühen Veröffentlichungen, dass dieser Zustand gebunden ist, wurde mit genaueren Potentialen und fortgeschrittenen Rechenmethoden bestätigt [Bre00][Gua02][Bre04]. Mit einem aktuelleren Zweikörperpotential (TTY) errechneten Guardiola et al. eine Bindungsenergie von 11,3 mK [Gua03] und Bressanini und Morosi eine von $E_{\text{Bind}} = 14,16 \text{ mK}$. Damit ist allein durch einen Isotopeneffekt und der damit einhergehenden leichteren Masse von 11 u anstelle von 12 u die Bindungsenergie des Systems eine Größenordnung kleiner als die des reinen Trimers ($^4\text{He}_3$).

Das Besondere an diesem schwach gebundenen Isotopentramer ist es, dass nur eines der drei zweiatomigen Untersysteme gebunden ist: es bildet einen Tango-Zustand [Rob99]. Dieser ist so schwach gebunden, dass ein Großteil der Wellenfunktion im klassisch verbotenen Tunnelbereich liegt, was ihn auch zu einem „quantum halo“ Zustand macht [Jen04].

Die Struktur dieses Zustandes ist ähnlich wie beim reinen Trimer noch umstritten. Nielsen et al. berechneten ein ungleichseitiges Dreieck, dessen Seiten sich etwa um einen Faktor 2-3 unterscheiden (siehe Abbildung 2.8).

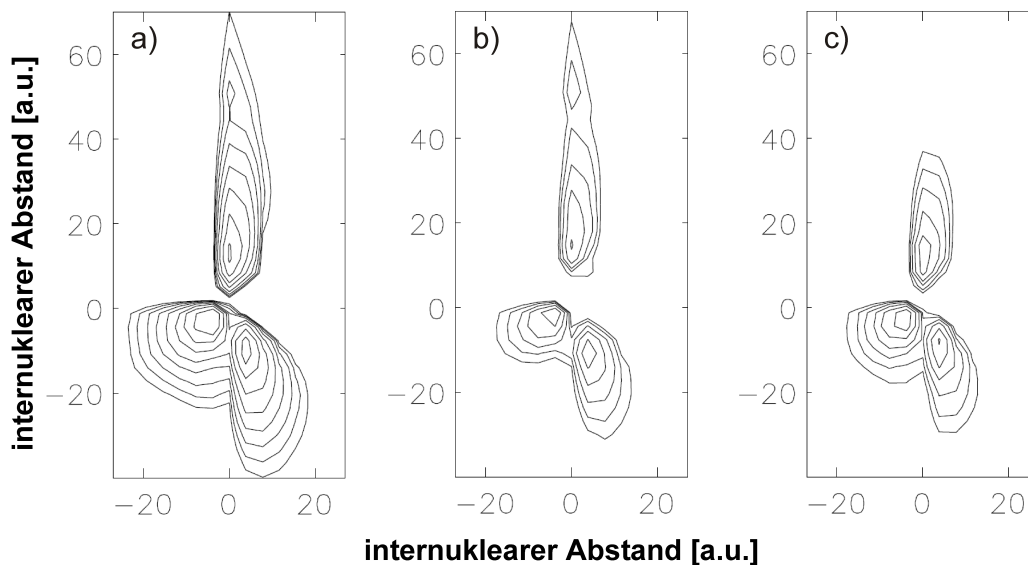


Abbildung 2.8: Konturdiagramm vom a) Aufbau des isotopischen Heliumtrimers b) der ^3He -Dichte und c) der halbierten ^4He -Dichte [Nie98]

Bressanini kam zum Schluss, dass genau wie beim reinen Trimer die Struktur sehr verwaschen sei und sowohl Dreiecks- als auch lineare Konfigurationen eine Rolle spielen [Bre00]. In [Bre14] bestimmte er, genau wie für das reine Trimer auch, die Struktur, indem er zwei der drei Innenwinkel berechnete. Zudem erstellte er auch eindimensionale Abstands- und Winkelverteilungen in Relation zum leichteren ^3He (siehe Abbildung 2.9).

Experimentell gibt es bislang nur einen Nachweis für die Existenz des Isotopentrimers. Der Grund hierfür liegt in der komplizierten Produktion der gemischten Cluster. Expandiert man eine Mischung aus ^4He und ^3He in einer Überschallgasexpansion, so ist die Clusterwahrscheinlichkeit für das bosonische Helium deutlich größer als für das fermionische. Daher benutzten Kalinin et al. [Kal05] in ihrem Experiment eine Gasmischung die nur 9-10% bzw.

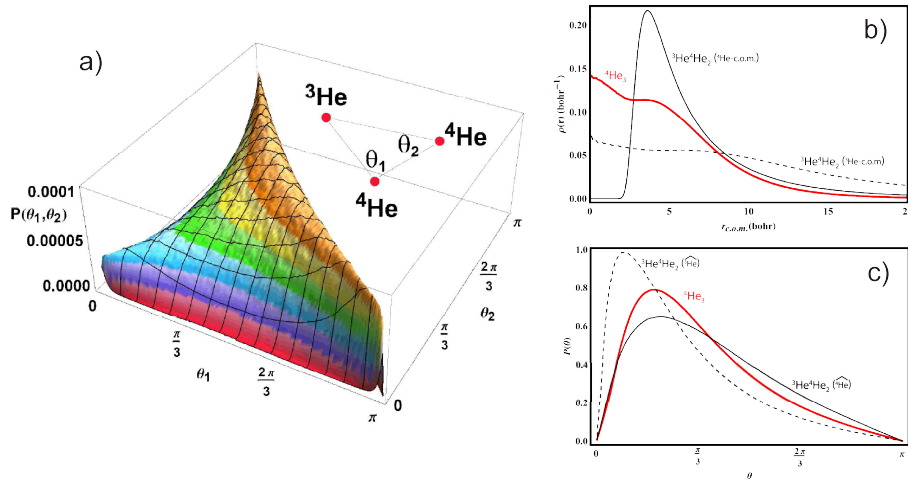


Abbildung 2.9: a) Dreidimensionale Darstellung der Innenwinkel des gemischten Heliumtrimers, b) Abstandsverteilung der Atome von Massenschwerpunkt (c.o.m.) und c) Innenwinkel im eindimensionalen Diagramm (aus [Bre14])

nur 1% ^4He beinhaltete. Den aus dieser Gasmischung erzeugten Jet schossen sie auf ein Transmissionbeugungsgitter und wiesen die Cluster mit einem Massenspektrometer nach, genau wie dies bereits Schöllkopf [Sch94] für das Dimer und das pure Trimer taten. Durch die extreme Gasmischung erhielten sie jedoch ein bis zwei Größenordnungen weniger Signale von Clustern als in Messungen mit reinem ^4He .

Mit einem Modell, welches das Ausfrieren der Atome im Bereich direkt hinter der Düse beschreibt („Sudden Freeze Growth Model“) gelang es den Autoren auch noch über die relativen Mol-Anteile der Cluster im Jet die theoretisch vorhergesagten Bindungsenergien zu bestätigen. In diesem Modell wird davon ausgegangen, dass bereits in den frühen Phasen der Expansion die Clusteranteile des Gasstrahls im Gleichgewicht mit der lokalen Temperatur sind. Misst man nun die Anteile der einzelnen Cluster im Jet, kann über dieses Modell ein Rückschluss auf die Stabilität der Cluster und deren Bindungsenergie gezogen werden.

2.4 Wechselwirkung mit starken Laserfeldern

Da Licht sowohl Teilchen- als auch Wellencharakter besitzt ist es nicht verwunderlich, dass es auch verschiedene Möglichkeiten gibt die Interaktion von Licht mit Atomen zu beschreiben. Beim Laser hängt die Wahl der geschickteren Beschreibung von der Intensität und der Frequenz des Laserlichtes ab. Im Bereich geringer Intensitäten (etwa $< 10^{13} \text{ W/cm}^2$) ist es besser die Inter-

aktion mit Atomen über das Photonenbild zu erklären. Bei höheren Intensitäten ist die klassische Ansicht einer elektromagnetischen Welle die geeignete Wahl.

Unabhängig von dieser Beschreibung gelang es Keldysh 1965 [Kel65] eine Theorie aufzustellen, die bewies, dass es sich in beiden Bildern um den selben Mechanismus handelt der ein Teilchen ionisiert, den Prozess der nichtlinearen Ionisation. Um zu unterscheiden ob eine klassische Ansicht im Wellenbild oder eine im Teilchenbild adäquater ist, definierte er einen Parameter (heute Keldysh-Parameter):

$$\gamma = \frac{\omega}{\omega_t}, \quad (2.13)$$

hierbei ist ω die Frequenz des Laserfeldes und ω_t die Tunnelfrequenz:

$$\omega_t = \frac{eE}{\sqrt{2m_e I_p}}, \quad (2.14)$$

mit dem elektrischen Feld E , der Elektronenmasse m_e und der Ionisationspotential I_p .

Ist $\gamma \ll 1$ beschreibt das Wellenbild die Ionisation von Atomen besser, ist $\gamma \gg 1$ spricht man von der Multiphoton-Ionisation (MPI).

2.4.1 Multiphoton-Ionisation

Wie der Name Multiphoton-Ionisation bereits verrät, handelt es sich um einen Prozess bei dem die Energie eines Photons nicht ausreicht um das Atom zu ionisieren. Soll dies geschehen, muss es daher zur Absorption mehrerer Photonen kommen. Dies ist jedoch nur auf zwei verschiedene Arten möglich. Hat das Atom mehrere Energieniveaus, so kann ein Photon ein Elektron vom Grundzustand in einen angeregten heben, wo es verweilt, bis es das nächste Photon absorbiert. Da hierfür die Photonenergie sehr genau zu den Anregungszuständen des Atoms passen muss, ist dieser Prozess in dieser Arbeit nicht relevant. Von größerem Interesse ist die Ionisation, bei der das Elektron mehrere Photonen gleichzeitig absorbiert. Das dies geschieht ist nicht verwunderlich wenn man die Anzahl der Photonen in einem Laserpuls berechnet. In einem Laser mit $\lambda = 800 \text{ nm}$ und einer Intensität von $I = 1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ lässt sich die Anzahl der Photonen pro Volumen $V = \lambda^3$ mit folgender Formel [Ulr11] berechnen:

$$N = \frac{IV}{h\nu c} \simeq 7 \cdot 10^9. \quad (2.15)$$

Aufgrund dieser enormen Anzahl an Lichtquanten ist es nicht überraschend, dass ein Elektron durch gleichzeitige Absorption mehrerer Photonen ionisiert werden kann. Ist die Intensität des Lasers $< 10^{13} \text{ W/cm}^2$, so kann man die Ionisationsrate der MPI über Störungstheorie niedrigster Ordnung berechnen:

$$\Gamma_n = \sigma_n \cdot I^n, \quad (2.16)$$

mit n der Anzahl zur Ionisation benötigten Photonen, I der Intensität und σ dem generalisierten Wirkungsquerschnitt.

Diese theoretisch berechneten Raten sind jedoch nur schwer mit den experimentellen zu vergleichen, da im Laserfokus immer eine breite Verteilung an Intensitäten vorherrscht. Für eine qualitative Aussage ist dieser Ansatz per Störungsrechnung jedoch ausreichend.

Für höhere Intensitäten wird diese Formel aufgrund zweier Effekte zunehmend ungenauer. Zum einen ist ab einem gewissen Zeitpunkt die Anzahl der bereits einfach ionisierten Atome im Laserfokus nicht mehr zu vernachlässigen. Dies geht bei steigender Laserleistung bis hin zur Sättigungsintensität, bei der alle im Laserfokus befindlichen Atome einfach ionisiert sind. Der zweite Effekt, welcher eine Anpassung der Formel nötig macht, ist der Einfluss des Laserfeldes auf das atomare Potential. Dieser sorgt dafür, dass insbesondere die äußeren Energielevel des Atoms eine AC-Stark-Verschiebung erfahren [Lam76].

Ein Spezialfall der MPI ist die „Above Threshold Ionisation“ (ATI). Hierbei absorbiert das Atom nicht die minimal nötige Anzahl an Photonen, sondern eine höhere. Die auf diese Weise ins Kontinuum gehobenen Elektronen haben diskrete Energiewerte im Abstand von der Photonenenergie, die sogenannten „ATI-Peaks“. Diese wurden erstmals von Agostini et al. [Ago79] beobachtet. Ihre Existenz ist intuitiv schwer zu verstehen, da das sich bereits im Kontinuum befindliche Elektron noch weitere Photonen aufnehmen muss. Dies ist jedoch nicht erlaubt, da hierbei der Drehimpuls nicht erhalten wäre und eine Paritätsverletzung vorliegen würde. Erklärt werden kann dieser Effekt daher nur wenn das Elektron noch über die Coulomb-Wechselwirkung mit dem Mutterion in Verbindung steht.

Wird die Laserintensität weiter erhöht, so ist zu beobachten, dass die untersten ATI-Peaks verschwinden [Han00]. Der Grund hierfür ist das bereits erwähnte Koppeln des elektrischen Feld des Lasers an das Coulomb-Feld des Atoms. Hierdurch werden nun die äußeren Rydbergzustände des Atoms so weit verschoben, dass die Anzahl an minimal nötigen Photonen zur Ionisa-

tion erhöht wird. Daher verschwinden bei höheren Feldern zunehmend die niedrigsten ATI-Peaks („channel closing“).

Die auf diese Weise entstandene Erhöhung der Ionisationsenergie kann durch die ponderomotive Energie erklärt werden. Diese beschreibt die Zitterbewegung eines freien Elektrons in einem oszillierenden elektrischen Feld. Sie berechnet sich nach Formel 2.17:

$$U_p = \frac{e^2 E^2}{4m_e \omega^2} = \frac{I e^2}{2\epsilon_0 c m_e \omega^2}, \quad (2.17)$$

mit $I = 1/2 c \epsilon_0 E^2$.

Durch Konversion in für den Experimentator leicht zu verwendende Einheiten ergibt sich folgender einfacher Zusammenhang:

$$U_p[\text{eV}] = 9,33 \cdot I[10^{14} \text{W/cm}^2] \cdot \lambda[\mu\text{m}] \quad (2.18)$$

Da diese Energie jedoch freie Elektronen beschreibt, ist sie nur für die Kontinuumszustände exakt, in guter Näherung jedoch auch für die äußersten Rydbergzustände. Auf die stark gebundenen inneren Zustände des Atoms hat sie nahezu keine Wirkung.

Die zu erwartenden diskreten Energiewerte der freien Elektronen berechnen sich hiernach durch die simple Formel 2.19:

$$E = (n + s)\hbar\omega - (I_p + U_p), \quad (2.19)$$

mit n der minimalen Anzahl zur Ionisation benötigter Photonen und s der hierüber hinaus absorbierten Anzahl.

Besonders effektiv ist die MPI und die ATI, wenn atomare Zustände resonant auf vielfache der Photonenenergie fallen. Dies kann durch die eben beschriebene Verschiebung durch die ponderomotive Energie zu einer erhöhten Ionisationswahrscheinlichkeit bei bestimmten Laserintensitäten führen.

Eine weitere Erhöhung der Laserintensität führt zum endgültigen Versagen der Störungstheorie. Nun ist eine Beschreibung im klassischen Wellenbild nötig, die Tunnelionisation (TI) ist das adäquate Bild.

2.4.2 Tunnelionisation

Anschaulich ist das Versagen der störungstheoretischen Betrachtungsweise damit zu erklären, dass das elektrische Feld des Lasers nicht weiter als kleine

Störung des Coulomb-Potentials betrachtet werden kann, sondern etwa in der gleichen Größenordnung liegt. Da die Wellenlänge des Laserlichts jedoch um einiges größer ist als das Atom selbst, kann das elektrische Feld des Lasers für den Tunnelprozess als quasi-stationär angesehen werden. Eine Überlagerung der beiden Felder bewirkt nun, dass eine Seite des atomaren Potentials angehoben, die andere abgesenkt wird. Auf der abgesenkten Seite entsteht hierdurch eine Potentialbarriere (siehe Bild 2.10)

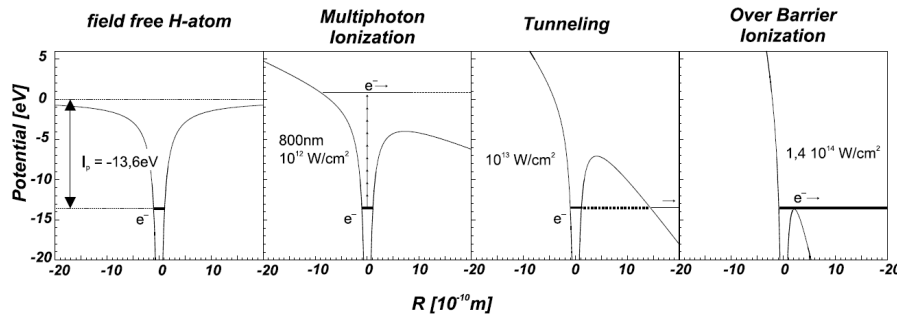


Abbildung 2.10: Darstellung der verschiedenen Ionisationsmechanismen anhand von Wasserstoff [Sta05]. Mit zunehmender Laserintensität ist eine deutliche Verformung des Atompotentials zu beobachten, die es dem Elektron ermöglicht aus dem Potential heraus zu tunneln.

Die Wellenfunktion eines gebundenen Zustandes hat quantenmechanisch eine gewisse Eindringtiefe in den klassisch verbotenen Teil eines Potentials. Ist die durch das Laserfeld entstandene Potentialbarriere nun schmal genug, so besteht die Chance, dass ein Elektron durch sie durchtunneln kann. Die Wahrscheinlichkeit hierfür, die Ionisationsrate, kann gut durch eine Theorie von Ammosov, Delone und Krainov (ADK-Theorie) beschrieben werden [Amm86] und gehorcht einem exponentiellen Abfall:

$$\Gamma = \sqrt{\frac{3n^*E}{\pi Z^3}} \frac{ED^2}{8\pi Z} \exp\left(-\frac{2Z^3}{3n^{*3}E}\right) \quad (2.20)$$

$$\text{mit } n^* = \frac{Z}{\sqrt{2I_p}} \quad \text{und} \quad D = \left(\frac{4q_e Z^3}{En^{*4}}\right)^{n^*},$$

hierbei ist Z die Ladung des verbleibenden Ions.

Da die Potentialbarriere zum Zeitpunkt höchster Intensitäten und damit auch höchster Feldstärken am schmalsten ist, hat hier auch die Tunnelwahrscheinlichkeit ihr Maximum.

Anders als bei der MPI haben die Elektronen, die durch Tunnelionisation (TI) entstehen, ein kontinuierliches Energiespektrum. Dieses ist wieder durch die ponderomotive Energie zu erklären. Da es sich nach dem Vorgang des Tunnelns um ein freies Elektron handelt, wird es durch das zeitlich oszillierende

elektrische Feld des Lasers beschleunigt. Je nach Zeitpunkt des Tunnelns im Bezug auf das elektrische Feld fällt diese Beschleunigung verschieden aus. Dies führt im Fall von linear polarisiertem Laserlicht zu einer Energieverteilung der Elektronen, die bis etwa $2 U_p$ eine hohe Rate aufweist, bis $4 U_p$ um etwa zwei Größenordnungen abfällt und danach bis etwa $10 U_p$ ein Plateau besitzt (siehe Abb. 2.11).

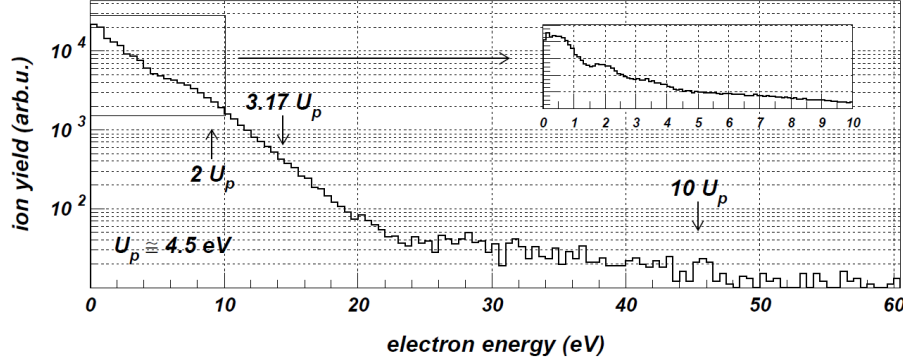


Abbildung 2.11: Energieverteilung des Photoelektrons bei der einfachen Ionisation von D_2 [Sta05]

Bei zirkular polarisiertem Licht ergibt sich eine breite Verteilung um U_p , welches jedoch für zirkulares Licht bei gleicher Intensität doppelt so hoch ist wie für lineares.

An ihre Grenzen stößt Formel 2.21 für Intensitäten bei denen die Potentialbarriere unter die Bindungsenergie der äußeren Elektronen abgesenkt wird. Hierbei spricht man von „Over Barrier Ionization“ (OBI) auf die gleich eingegangen werden soll. Auch für Doppelionisation von Atomen liefert die ADK-Theorie keine adäquate Beschreibung.

Will man wissen ab welcher Energie OBI möglich ist, so muss man einfach die Superposition aus Coulomb-Potential und Laserpotential

$$V(r) = -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 r} - eEr, \quad (2.21)$$

mit der Bindungsenergie, bzw dem Ionisationspotential I_p gleichsetzen:

$$I_{OBI}[W/cm^2] = \frac{c\pi^2\epsilon_0^3 I_p^4}{2Z^2 E^6} = 4 \cdot 10^9 \frac{(I_p[eV])^4}{Z^2}. \quad (2.22)$$

Jedoch sind bei dieser simplen Annahme noch verschiedene Aspekte zu berücksichtigen, die einen Unterschied zwischen diesem Ansatz und dem Experiment erklären. Zum einen muss berücksichtigt werden, dass bei den für OBI nötigen Intensitäten auch schon an der ansteigenden Pulsflanke die bereits

beschriebenen Ionisationsmechanismen stattfinden können und man daher kein neutrales Atom zum Zeitpunkt des Feldmaximums mehr hat. Zudem besteht quantenmechanisch auch die Möglichkeit einer Reflektion der Wellenfunktion an einer Potentialbarriere die kleiner ist als die Energie des Elektrons. Als dritter und letzter Punkt muss genau wie bei ATI auch hier die durchs Laserfeld induzierte AC-Stark-Verschiebung berücksichtigt werden.

Eine weitere Möglichkeit, die bisher noch gar nicht berücksichtigt wurde ist die, dass das durch TI oder sogar OBI erzeugte freie Elektron nicht genügend Energie vom Laserfeld erhält um das Atom endgültig zu verlassen. In linear polarisiertem Licht erfährt das Elektron zuerst eine Beschleunigung weg vom Ion, im nächsten Halbzyklus des Laserfelds aber auch wieder eine Beschleunigung zum Ion hin. Hier kann es mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit auch wieder mit dem Ion interagieren und sogar eingefangen werden.

2.4.3 Doppelionisation

Anders als durch die Theorie der Tunnelionisation zu erwarten war, entdeckte man bei der Untersuchung der Doppelionisation in Abhängigkeit von der Laserintensität schon bei niedrigen Intensitäten erhöhte Zählraten. Diese steigen bei mittleren Intensitäten nur noch langsamer an, bevor sie bei hohen Intensitäten wieder schlagartig an Rate zunehmen. Dieser abrupte Übergang, als „Knie-Struktur“ benannt, deutete auf verschiedene Mechanismen für die Doppelionisation hin.

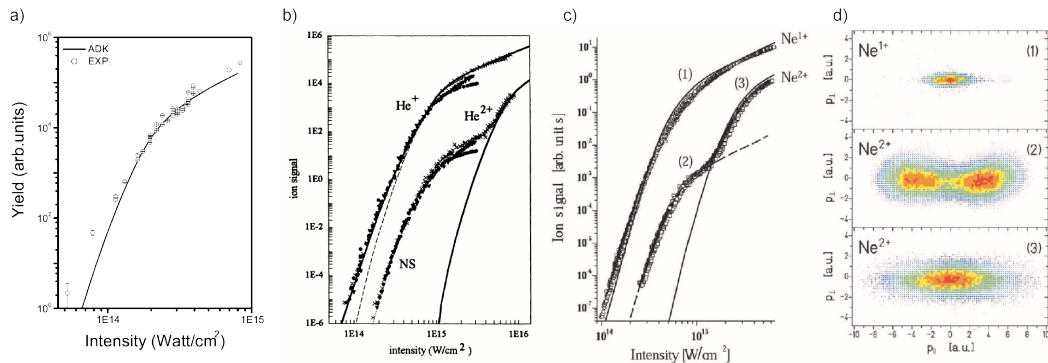


Abbildung 2.12: a): Gemessene Einfachionisationsrate in Abhängigkeit der Laserintensität für H₂⁺ [Vos04]. b): Gemessene Einfach- und Doppelionisationsrate in Abhängigkeit der Laserintensität für Helium [Wal94] c): Rate der Einfach- bzw. Doppelionisation in Abhängigkeit der Laserintensität eines Ti:Sa-Lasers mit überlagerter Theorie (Linien) für Neon [Sta05]. d): Impulsverteilungen der Neonionen für die verschiedenen Bereiche (Laserfeld liegt in x-Richtung) [Sta05]

Für diese erhöhte Doppelionisationsrate bei niedrigen Intensitäten gab es ursprünglich vier Erklärungsansätze, die alle auf der Korrelation der Elektronen beruhen und nun kurz erläutert werden sollen:

1. Ein erster Erklärungsversuch wurde „Shake-Off“ genannt [Pat03]. Dieses Modell beschreibt, wie bei einem sehr schnellen Entfernen eines Elektrons aus einem System die verbleibenden Elektronen sich nicht schnell genug an die neue Konfiguration des Systems anpassen können. Im Rahmen der „sudden approximation“ besteht in dieser Situation ein Überlapp zwischen der alten Wellenfunktion des Elektrons und einem Kontinuumszustand der neuen Konfiguration. Hierdurch entsteht eine Übergangswahrscheinlichkeit des ehemals gebundenen Elektrons ins Kontinuum. Da bei einer TI die freien Elektronen mit einer sehr geringen Energie entstehen, ist die Annahme einer schnellen Änderung des Zustandes nicht gut erfüllt. Daher ist die Wahrscheinlichkeit einer Doppelionisation durch diesen Prozess im Laserfeld sehr gering und kann die erhöhte Zählrate bei niedrigen Intensitäten nicht erklären. Shake-Off wurde inzwischen zwar auch in der Laserphysik nachgewiesen [Lit05], ist jedoch nur bei hochenergetischen Photonen (z.B. am Synchrotron) der dominante Prozess.
2. Ein weiterer Vorschlag der die Knie-Struktur erklären sollte, war der ebenfalls bereits aus der Ein-Photonen-Physik bekannte „Two-Step-One“ (TS1) Prozess. Hierbei wird ein Elektron aus dem System ionisiert und trifft beim Verlassen noch ein weiteres Elektron. Dieses wird dann über einen inelastischen Stoß ebenfalls ins Kontinuum gehoben. Sehr Effektiv ist dieser Prozess in der Ein-Photonen-Physik wenn die Photonenenergie knapp über der Doppelionisationsschwelle liegt.
3. Ein dritter Prozess wurde von Eichmann et al. im Jahre 2000 [Eic00] vorgeschlagen. Der mit „Collective Tunnel Ionization“ (CTI) benannte Prozess bedeutet, dass zwei oder mehrere Elektronen gleichzeitig das Atom verlassen. In späteren Rechnungen stellte sich jedoch heraus, dass dieser Ionisationsmechanismus die erhöhte Rate nicht erklären kann. CTI gilt daher nur noch im Bereich ultrakurzer Pulse als relevanter Prozess.
4. Der letzte Prozess, welcher sich als dominant erwies, heißt „Recollision“. Dieses von Corkum [Cor93], Kullander und Schäfer [Sch93] vorgeschlagene Modell beschreibt eine einfache Ionisation durch linear polarisiertes Licht, bei der das ionisierte Elektron zuerst vom Atom weggetrieben

wird. Im nächsten Halbzyklus des Laserfeldes kehrt es zum Mutterion zurück und kann dabei ein zweites Elektron auslösen. Der Beweis für dieses Modell wurde im Verschwinden der Knie-Struktur bei elliptisch und zirkular polarisiertem Licht gesehen [Fit94].

Eine theoretische Beschreibung für den Recollision-Prozess lieferte das semi-klassische „Simple Man’s Model“ [Kuc87], welches ausreicht um viele experimentelle Daten zu beschreiben [Ulr11]. Auf eine ausführliche Beschreibung dieses und anderer Modelle soll an dieser Stelle verzichtet werden, da sie zum Verständnis dieser Arbeit nicht relevant sind. Für den interessierten Leser wird z.B. auf [Sta05] verwiesen.

2.4.4 Doppelionisation von Molekülen

Die zuvor beschriebenen Prozesse der Doppelionisation waren alle auf einzelne Atome bezogen. In einem molekularen System können diese, jedoch auch zusätzliche Prozesse zu einer zweifachen Ionisation führen. In diesem Abschnitt werden diese kurz erläutert und es wird geklärt, ob sie bezogen auf das Heliumdimer eine relevante Auswirkung haben.

Der eben beschriebene Effekt des „Recollision“ kann auch in Molekülen auftreten. Das zuerst freigesetzte Elektron muss im Laserfeld dabei genug Energie aufnehmen um eine weitere Ionisation zu initiieren. Da das Ionisationspotential von Helium jedoch mit knapp 25 eV sehr hoch ist, ist dieser nicht-sequentielle Prozess im Dimer nicht dominant.

Ein weiterer Prozess, den es nur bei Molekülen gibt, ist eine Form der sequentiellen Doppelionisation. Dieser unter dem Namen „Charge Resonance Enhanced Ionisation“ (CREI) bekannte Mechanismus beschreibt eine erhöhte Ionisationsrate des neutralen Atoms in einem Molekül aufgrund seines bereits ionisierten Nachbarn. Genau wie bei der Tunnelionisation in einem Atom wird hierbei die Überlagerung des, in diesem Fall molekularen Potentials mit dem Laserpotential betrachtet.

Wie in Abbildung 2.13 am Beispiel vom Wasserstoffion gezeigten Potential ist es bei geringen internuklearen Abständen für das Elektron möglich sich an beiden Kernen des Moleküls aufzuhalten. Bei größeren Entfernungen der Kerne entsteht eine Potentialbarriere, die dafür sorgt, dass das Elektron entweder an einem oder am anderen Kern lokalisiert ist. Bei bestimmten Abständen kann es nun dazu kommen, dass elektronische Zustände auf gleicher

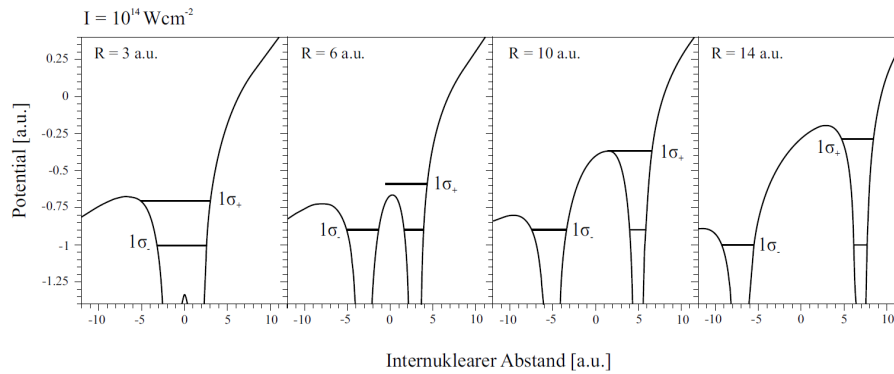


Abbildung 2.13: Überlagerung des H_2^+ Potentials mit einem linearen Laserfeld der Maximalintensität $1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Je nach internuklearem Abstand der zwei Kerne ist das Ionisationspotential für die zweite Ionisation entlang der Polarisationsachse verschieden hoch (entnommen aus [Ulr11]).

Höhe bzw. knapp unter dieser Potentialbarriere liegen. In diesen Fällen entsteht aufgrund der Überlagerung des ionischen Potentials des Moleküls und des Laserpotential eine erhöhte Ionisationswahrscheinlichkeit. Dieser Effekt tritt jedoch nur auf, wenn die Molekülachse mit der Laserpolarisation übereinstimmt.

Wie am Beispiel des Wasserstoffs zu sehen ist, ist dieser Prozess etwa bei einer Bindungslänge von 10 a.u. dominant. Das Heliumdimer hat jedoch einen mittleren internuklearen Abstand der ca. eine Größenordnung größer ist. Daher sollte dieser Effekt bei der Doppelionisation des Dimers keine Rolle spielen. Dies ist in den Daten auch daran zu erkennen, dass keine Abhängigkeit der Ionisationsrate von der Laserpolarisation festzustellen war.

Das Heliumdimer kann aufgrund seiner enormen internuklearen Abstände daher für die Ionisation in guter Näherung durch zwei unabhängige Heliumatome beschrieben werden.

2.5 Materiewellenbeugung

2.5.1 Wellencharakter von Materie

1924 stellte Louis de Broglie die Theorie auf, dass genau wie Licht auch massebehaftete Materie sowohl Teilchen als auch Wellencharakter besitzt [Bro24]. Analog zum Photon kann auch bei Elektronen, Neutronen, Protonen

und ganzen Atomen und Molekülen ein Zusammenhang zwischen Impuls und Wellenlänge aufgestellt werden:

$$p = \frac{h}{\lambda} = \hbar \cdot k \quad \text{bzw.} \quad E = h \cdot \theta = \hbar \cdot \omega, \quad (2.23)$$

mit dem Impuls p , dem Planck'schen Wirkungsquantum h , der Wellenlänge λ , dem Wellenvektor k , der Energie E , der Frequenz θ und der Kreisfrequenz ω .

Demnach besitzt jedes Teilchen eine von seiner Masse und Geschwindigkeit abhängige Wellenlänge:

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{m \cdot v} = \frac{h}{\sqrt{2mE_{kin}}} \quad (2.24)$$

Diese bereits 1926 von Clinton Joseph Davisson (1881-1958) (Nobelpreis 1937) und Lester Halbert Germer (1896-1971) für Elektronen nachgewiesene These erbrachte de Broglie bereits im Jahr 1929 den Nobelpreis ein.

Die Beschreibung eines Teilchens im Wellenbild gehört inzwischen zum Lehrbuchwissen und kann der Standardliteratur entnommen werden. Sie soll hier nur kurz angeschnitten werden (analog zu [Dem3]).

Um ein Teilchen der Masse (m) und Geschwindigkeit (v) zu beschreiben, wird analog zur Lichtwelle nun der Ansatz einer Materiewelle gebildet, die sich in diesem Fall in x-Richtung ausbreitet:

$$\Psi(x, t) = C \cdot e^{i(\omega t - kx)} = C \cdot e^{i/\hbar \cdot (Et - px)} \quad (2.25)$$

Im Gegensatz zum Licht würde eine Materiewelle sich im Vakuum jedoch nicht mit einer von der Frequenz unabhängigen Geschwindigkeit bewegen. Aus der kinetischen Energie der Teilchen $E_{kin} = p^2/2m$ folgt über Gleichung 2.23:

$$\omega = \frac{\hbar}{2m} \cdot k^2 \Rightarrow v_{Ph} = \frac{\omega}{k} = \frac{\hbar}{2m} \cdot k \quad (2.26)$$

$$\Rightarrow \frac{dv_{Ph}}{d\omega} = \frac{1}{k} \neq 0. \quad (2.27)$$

Demnach würde eine Materiewelle auch im Vakuum eine Dispersion erfahren.

Außerdem ist die ebene Welle keine geeignete Beschreibung eines Teilchens im Wellenbild, da sie sich über den ganzen Raum ausbreitet. Ein Teilchen müsste jedoch zumindest grob lokalisiert sein. Man benötigt daher eine Wellenfunktion mit einer ortsabhängigen Amplitude, das Wellenpaket.

Dieses wird durch eine Überlagerung von vielen monochromatischen Wellen mit den Amplituden C_j , parallelen Wellenvektoren in x-Richtung k_j , nahe benachbarten Frequenzen ω_j beschrieben. Geht man von diesem Ansatz zu unendlich vielen Wellen, so wird aus der Summe über die verschiedenen Wellen ein Integral, welches sich lösen lässt und eine Wellenfunktion für das Wellenpaket ergibt:

$$\Psi(x, t) = A(x, t)e^{i(\omega_0 t - k_0 x)} \quad (2.28)$$

mit

$$A(x, t) = 2C(k_0) \frac{\sin(u\Delta k/2)}{u}. \quad (2.29)$$

Das Maximum dieses Wellenpaketes bewegt sich mit der Gruppengeschwindigkeit (v_g), welche sich mit Hilfe von Gleichung 2.23 einfach in die klassische Teilchengeschwindigkeit umformen lässt:

$$v_g = \frac{d\omega}{dk} = \frac{\hbar k}{m} = \frac{p}{m} = v_r \quad (2.30)$$

Ein ähnlich einfacher Zusammenhang gilt auch zwischen Wellenvektor und klassischem Teilchenimpuls.

Da aber auch das Wellenpaket noch Unterschiede zu einem klassischen Teilchen wie Dispersion und komplexe und negative Werte besitzt, braucht man die richtige Interpretation um aus dessen Wellenfunktion Informationen zu erlangen. Diese wurde 1927 von Max Born über die statistische Deutung der Materiewelle vorgeschlagen.

Born schlug vor das Quadrat der Wellenfunktion, die Wahrscheinlichkeitsdichte, zu bilden und hierüber die Wahrscheinlichkeit zu definieren ein Teilchen an einer gewissen Position bzw. in einem Positionsintervall zu finden. Da das Teilchen an irgendeinem Punkt im Raum sein muss, ist das Integral über die Wahrscheinlichkeitsdichte auf eins normiert.

2.5.2 Beugung von Atomen und Molekülen

Welche Rolle die Beugung von Atomen und Molekülen besitzt, zeigt das exemplarisch gewählte Beispiel des Experimentalphysikbuchs Haken Wolf. Direkt hinter der Titelseite illustriert es die Beugung von metastabilen Heliumatomen an einem Doppelspalt als: „Ein grundlegendes Experiment zur Quantenphysik“ [HaWo8].

Da sich auf den ersten Blick, abgesehen von den unterschiedlichen Wellenlängen, die Beugung von Licht und die von Atomen kaum unterscheidet, soll erst allgemein auf die Beugung von Wellen und erst später auf die Besonderheiten bei der Beugung von Atomen und Molekülen eingegangen werden.

Bei der Beugung am Young'schen Doppelspalt entsteht konstruktive Interferenz genau dann, wenn der Gangunterschied der Welle beim durchlaufen der verschiedenen Spalten genau ein Vielfaches der Wellenlänge (λ) des einfallenden Strahles ist. Dies lässt sich auch über einen Winkel ausdrücken, wenn der Abstand der Spalten (d) deutlich kleiner ist, als der Abstand zwischen dem Doppelspalt und der Leinwand auf der das Interferenzmuster beobachtet wird:

$$\sin(\Theta) = \frac{n \cdot \lambda}{d} \quad (2.31)$$

Für kleine Winkel lässt sich die Formel weiter vereinfachen indem man $\sin(\Theta)$ mit Θ nähert.

Hat man nun nicht nur einen Doppelspalt, sondern ein ganzes Gitter äquidistanter Schlitze, so kann jeder von diesen, genau wie beim Doppelspalt, als Ausgangspunkt einer Kugelwelle gesehen werden. Analog zum Doppelspalt entstehen hierbei die Hauptmaxima unter den gleichen Winkeln, es muss nur der Abstand der Spalte durch die Gitterkonstante (g) ersetzt werden.

$$\sin(\Theta) = \frac{n \cdot \lambda}{g} \quad (2.32)$$

Neben diesen Hauptmaxima entstehen jedoch auch Nebenmaxima. Bei N beleuchteten Spalten ergeben sich $N-1$ destruktive Interferenzen und $N-2$ Nebenmaxima. Für große N hat dies zur Folge, dass zwar viele, jedoch sehr kleine Nebenmaxima entstehen, welche im Grenzwert nicht mehr nachweisbar sind. Für die Hauptmaxima bedeutet dies, dass sie immer besser voneinander separiert sind; die Auflösung des Interferenzmusters steigt (siehe Abb. 2.14).

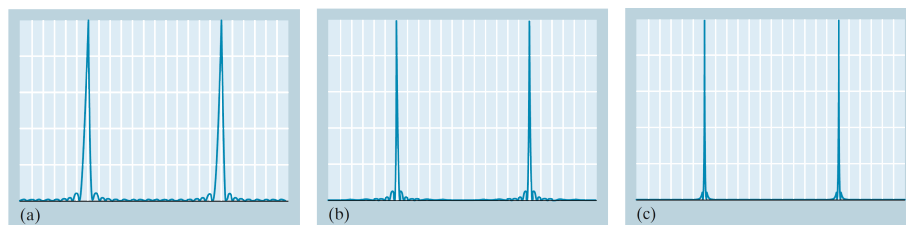


Abbildung 2.14: Beugungsintensitäten hinter einem Gitter mit a) 20, b) 50 und c) 100 Spalten [Ger23]

Will man die genaue Intensität an einem Punkt x auf dem Schirm errechnen, so tut man dies am besten in der Fraunhofer Näherung. Diese ist gültig, wenn der Abstand (D) zwischen Beugungsmuster und Gitter sehr groß gegenüber der Ausdehnung des Gitters (x') ist.

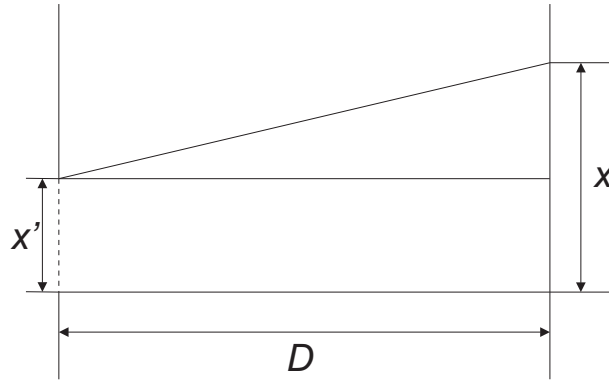


Abbildung 2.15: Schematische Darstellung der relevanten Größen eines Beugungsexperiments. Hierbei ist x' die Ausdehnung des Gitters, D der Abstand zum Schirm und x der betrachtete Punkt auf dem Schirm.

Die Amplitude an einem beliebigen Punkt hinter dem Gitter kann durch eine Überlagerung von Kugelwellen (e^{-ikr}) berechnet werden. Das Gitter kann hierbei durch eine Summe von Heaviside-Funktionen beschrieben werden, was folgende Formel ergibt:

$$A(x, y, z) \propto \int_0 \sum_{n=1}^N \Theta_n \left(-\frac{a}{2}; \frac{a}{2} \right) e^{-ikr} dx', \quad (2.33)$$

mit der Spaltbreite a .

Misst man die Amplitude in weiter Entfernung zum Gitter so ist der Winkel von allen Spalten nahezu identisch, man kann von $\Theta_n = \Theta$ ausgehen. Hieraus ergibt sich 2.33 zu:

$$A(\Theta) \propto \sum_{n=1}^N e^{-ik \cdot (nd \cdot \sin \Theta)} \int_{-\frac{a}{2}}^{\frac{a}{2}} e^{-ik \cdot \sin \Theta \cdot x'} dx'. \quad (2.34)$$

Durch Integration und Berechnung der Summe als geometrische Reihe ergibt sich:

$$A(\Theta) \propto \frac{e^{-ikNd \cdot \sin \Theta} - 1}{e^{-ikd \cdot \sin \Theta} - 1} \left[\frac{2}{ak \cdot \sin \Theta} \cdot \sin \left(\frac{ak}{2} \cdot \sin \Theta \right) \right]. \quad (2.35)$$

Die Intensitätsverteilung erhält man durch das Betragsquadrat der Amplitude und durch Normierung:

$$I(\Theta) = \left| \frac{1}{N} U(\Theta) \right|^2 = \left[\frac{1}{N} \cdot \frac{\sin(\frac{kd}{2} \cdot N \cdot \sin\Theta)}{\sin(\frac{kd}{2} \cdot \sin\Theta)} \right]^2 \cdot \left[\frac{\sin(\frac{ak}{2} \cdot \sin\Theta)}{\frac{ak}{2} \cdot \sin\Theta} \right]^2. \quad (2.36)$$

Gitterfunktion *Spaltfunktion*

Sie setzt sich zusammen aus einer Gitterfunktion und einer Spaltfunktion, auf welche später zurückgekommen werden soll, um die Unterschiede zwischen der Beugung von Licht- und Materiewellen zu verdeutlichen.

Diese analog zu [Bec12] geführte Herleitung der Beugungsintensitäten ist für den interessierten Leser in der Literatur (z.B. [BoWo6] [Gri00a] [Ada94]) ausführlicher nachzulesen.

Da es in dieser Arbeit jedoch nicht um die Beugung von monochromatischem Licht, sondern um die von Materie geht, müssen Dinge berücksichtigt werden, die über die eben beschriebene Kirchhoff'sche Theorie zur optischen Beugung hinausgehen.

Der erste offensichtliche Unterschied ist in Gleichung 2.24 zu erkennen. Diese zeigt, dass bei Materiewellen die Wellenlänge von der Geschwindigkeit der Teilchen abhängt. Obwohl in einer Überschallgasexpansion sehr geringe Geschwindigkeitsverteilungen erlangt werden können (für einen Jet aus Helium liegt $\Delta v/v$ bei nur etwa 1-2 %), ist dieser Effekt nicht zu vernachlässigen. Er bewirkt eine Verschlechterung der Auflösung in Form einer Verbreiterung der Beugungsmaxima.

Zusätzlich besteht der im Experiment erzeugte Jet aus einer Mischung von Heliumatomen und -clustern. Diese Teilchen besitzen im Gasstrahl alle nahezu dieselbe Geschwindigkeit, haben jedoch unterschiedliche Massen. Daher besitzt das Dimer die halbe, das Trimer nur ein Drittel der Wellenlänge der Atome. Durch eine leichte Modifikation von Formel 2.32 erkennt man sofort, dass dies auch zu Beugungsmaxima bei halber bzw. ein Drittel der Auslenkung der Monomere führt.

$$\Theta \approx \sin \Theta = \frac{n \cdot h}{N_C \cdot m_{Atom} \cdot v \cdot g}, \quad (2.37)$$

mit der Clustergröße N_C .

Diesen Effekt nutzten Schöllkopf et al. [Sch94] aus um einen unbestreitbaren Beweis für die Existenz des Dimers zu erbringen. In dieser Arbeit wird

ebenfalls nur diese Aufspaltung der Hauptmaxima der verschiedenen Cluster genutzt.

Der Gruppe um J. P. Toennies gelang es jedoch weitere kleine Unterschiede zur Kirchhoff'schen Beugung festzustellen und hieraus Rückschlüsse auf Interaktionen und das zu beugende Objekt zu ziehen. Für die Beugung von schwach gebundenen, großen Molekülen (insbesondere für He_2) stellten Hegerfeldt et al. [Heg98] eine erweiterte Theorie der Materiewellenbeugung auf. Diese beinhaltet zwei Effekte, welche bei der Beugung von Licht keinerlei Rolle spielen. Als erstes besteht bei der Beugung eines Moleküls die Möglichkeit, dass der Impulsübertrag vom Gitter auf das Molekül eine Anregung oder sogar einen Aufbruch des Moleküls zur Folge haben kann. Besonders für weite Ablenkungen und damit hohen Impulsübertrag sollte dieser Effekt gut sichtbar sein. Ein zweiter Unterschied sollte erkennbar sein, wenn das zu beugende Objekt eine ähnliche Größe wie der einzelne Spalt hat. In diesem Fall kann nicht mehr von der ursprünglichen Spaltbreite ausgegangen werden, da ein nicht mehr zu vernachlässigender Teil des Spalts durch das gebeugte Molekül verdeckt wird. Eine effektive Spaltbreite ist nötig um die Beugung zu beschreiben.

In seiner Veröffentlichung aus dem Jahr 2000 [Heg00] wendete Hegerfeldt diese Theorie konkret auf das Beispiel des Heliumdimers an. Er beobachtete, dass gerade die Beugungsmaxima höherer Ordnung stark abgeschwächt erscheinen. Der Grund hierfür ist im Aufbruch dieses schwach gebundenen Zustandes zu sehen. Dieser sei gerade bei hohem Impulsübertrag, und damit weiter Ablenkung, wahrscheinlicher. Zudem stellte Hegerfeldt fest, dass die Ablenkung und damit der Impulsübertrag mit der Größe des gebeugten Systems ansteigt. Dies bedeutet, dass das größere Dimer einen leicht höheren Impulsübertrag gegenüber dem Trimer erhält. Da die Bindungsenergie des Dimers zusätzlich geringer ist als die des Trimers, sollten im Zweiteilchensystem auch mehr Aufbrüche geschehen, was die Detektionsrate der Dimere, verglichen zu der der Trimere, reduziert.

Um abschätzen zu können welchen Effekt die endliche Größe des Dimers auf das Beugungsbild hat, nutzte Hegerfeldt das Babinet'sche Prinzip. Dieses besagt, dass abgesehen von der direkten Abbildung (0. Ordnung) das Beugungsbild zweier zueinander komplementärer Objekte (z.B. Spalt und Steg gleicher Dicke) identisch ist. In einer Berechnung des Beugungsbildes vom Heliumdimer für Spalt und Steg stellte er jedoch fest, dass die Beugungsmaxima für den Spalt weiter ausgelenkt sind als die des Steges. Geht man jedoch nicht von einem Heliumdimer, sondern einem Atom mit Masse 8 u aus, so liegen

die Beugungsmaxima bei gleicher Ordnung, genau in der Mitte zwischen denen des Dimers bei Spalt und Steg. Hegerfeldt schloss daraus, dass es sich um einen Effekt aufgrund der Größe des Dimers handelt. Im Falle des Spaltes sorgt das Dimer aufgrund seiner Größe für eine Reduktion der effektiven Spaltbreite, im Falle des Stegs sieht der Dimer „mehr“ Steg. Für die Beugung an einem Gitter hat dies einen Unterschied zur Beugung von Licht zur Folge. Im Falle eines Gitters, bei dem die Gitterperiode genau das Zweifache der Spaltbreite beträgt, fallen die geraden Beugungsmaxima genau auf Positionen an denen die Spaltfunktion ein Minimum besitzt. Dies führt im Falle eines perfekten Gitters zur kompletten Unterdrückung dieser Maxima. Durch die reduzierte effektive Spaltbreite und der daraus resultierenden Verschiebung der Maxima ist diese Unterdrückung für das Dimer nicht vollständig.

Diese nicht vollständige Unterdrückung der geraden Beugungsmaxima stellen Grisenti et al. [Gri99] jedoch auch für Atome fest. Um dies zu erklären integrierte er in die Beugungstheorie auch ein attraktives, langreichweitiges Van-der-Waals-Potential (vdW-Potential) zwischen Spaltwand und Atom.

$$V = -\frac{C_3}{l^3}. \quad (2.38)$$

Das Potential fällt, anders als das vdW-Potential zwischen zwei Atomen ($1/R^6$) mit der dritten Potenz des Abstandes. Dies liegt an der Interaktion des Atoms/Moleküls mit dem Festkörper. Hierbei muss man die Wechselwirkung mit der kompletten Oberfläche berücksichtigen. Dieses Potential sorgt genau wie die Größe eines Moleküls für einen Effekt, der durch eine reduzierte effektive Spaltbreite beschrieben werden kann. Diese wird dann in die Spaltfunktion (siehe Gleichung 2.37) integriert. Das ein solches vdW-Potential zwischen einer Oberfläche und einem Atom herrscht ist schon lange bekannt [Len32], jedoch gibt es nur wenige experimentelle Bestimmungen dieses Potentials.

Um einen Wert für C_3 zu ermitteln maßen Grisenti et al. zuerst die Transmission eines Gasstrahls durch das Gitter um dessen genaue Form zu bestimmen. Unter Kenntnis der Geometrie des Gitters war es ihnen möglich über die Vermessung der Beugungsbilder von rein atomaren Strahlen von Edelgasen C_3 zu bestimmen. Hierzu nahmen sie die vermessene Geometrie in ihren theoretischen Ansatz und näherten ihn an die Beugungsbilder an. Der einzige freie Parameter war hierbei C_3 . Sie stellten eine, von der Theorie erwartete, Abhängigkeit von C_3 zur Polarisierbarkeit des Atoms fest.

In einem weiteren Experiment [Gri00a] kippten Grisenti und Co-Autoren das Gitter. Auf diese Weise ist die Projektion der Spaltöffnung in Richtung des Gasstrahles verkleinert. Durch den Gewinn an Auflösung gelang es das Gitter

noch besser zu charakterisieren. Man sah in den Beugungsbildern ein aus der Optik bekanntes Phänomen, welches durch periodische Verschiebungen in der Gitterstruktur zu erklären ist, die „Lyman Ghosts“ [Lym01].

Unter Kenntnis der genauen Geometrie, des attraktiven vdW-Potentials für Helium und der verbesserten experimentellen Auflösung durch Kippung des Gitters gelang es Grisenti et al. [Gri00] [Gri00b] letztendlich auch die Größe des Heliumdimers über ihr theoretisches Modell zu bestimmen. Der ermittelte Wert von $52 \pm 4 \text{ \AA}$ ist die bislang genaueste Vermessung dieses extremen Systems.

2.6 Coulomb Explosion Imaging

Zuletzt wird in diesem Kapitel noch die grundlegende Methode vorgestellt, mit Hilfe derer die Dimere und Trimere nachgewiesen wurden.

Hierbei handelt es sich um das Verfahren des „Coulomb Explosion Imaging“ (CEI). Dies ist eine experimentelle Technik die Struktur von Molekülen zu bestimmen. Wie der Name bereits sagt, nutzt man die Coulomb-Kraft aus. Diese sorgt dafür, dass sich im Vorzeichen gleiche elektrische Ladungen abstoßen.

$$F = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{q_1 \cdot q_2}{r^2}, \quad (2.39)$$

mit der Permittivität des Vakuums ϵ_0 , den elektrischen Ladungen q_1 und q_2 und deren Abstand r .

Die Coulomb-Kraft sorgt demnach dafür, dass Ionen die sich gegenseitig abstoßen eine Beschleunigung erfahren. Wie Formel 2.39 zu entnehmen ist, hängt diese Kraft und damit auch die Beschleunigung vom Abstand der Teilchen ab. Misst man also die Geschwindigkeiten der einzelnen Fragmente, kann man über die Coulomb-Kraft Rückschlüsse auf deren ursprünglichen Abstand ziehen.

Diese Tatsache nutzten Vager et al. [Vag89] aus, um die Struktur kleiner Moleküle experimentell zu bestimmen. In ihrer Veröffentlichung stellten die Autoren fest, dass das Modell von Bällen und Stegen, welches gerne zur Anschauung von Molekülstrukturen verwendet wird, nicht für jedes Molekül Sinn ergibt. Nur wenn die Nullpunktschwingung eines Moleküls klein gegenüber dem internuklearen Abstand der Atome ist, kann von einer festen Struktur, die sich so beschreiben lässt, ausgegangen werden. In ihrem Experiment gelang es Vager et al. jedoch auch bei Molekülen, für die dies nicht gilt eine Struktur in Form von Wahrscheinlichkeitsdichten zu messen.

Der experimentelle Aufbau hierfür bestand aus einem Beschleuniger, der die zu untersuchenden Ionen auf etwa 2% der Lichtgeschwindigkeit beschleunigte. Die Untersuchungsobjekte, CH_4^+ und NH_4^+ , wurden nun auf eine 30 Å dicke Folie geschossen. Diese sorgte dafür, dass alle Atome des Ions mindestens ein Elektron verloren. Aufgrund der Coulomb-Abstoßung der Teilchen flog das Molekül auseinander (die sogenannte „Coulomb-Explosion“). Über einen Detektor bestimmten die Experimentatoren nun die Auftrefforte und die relativen Flugzeiten der Fragmente und konnten so deren Geschwindigkeitsvektor zum Massenschwerpunkt bestimmen. Diese gaben ihnen Aufschluss über die Geometrie des Moleküls vor der Coulomb-Explosion.

Der Nachteil dieser Realisierung der CEI liegt darin, dass die aus dem Beschleuniger kommenden Teilchen vorerst geladen sein müssen und in einem unbekannten Anregungszustand vorliegen.

Dieses Problem umgangen Stapelfeldt et al. [Sta95] indem sie das Untersuchungsobjekt, ein I_2 Molekül, nicht mit einer Folie, sondern mit einem Femtosekunden-Laser ionisierten. Auch wenn die Ionisationszeit knapp unter 100 fs lag, nicht wie bei Vager et al. etwa 0,1 fs, kann dennoch davon ausgegangen werden, dass die Kerne auch in dieser Zeitspanne noch als ruhend angesehen werden können. Der große Vorteil dieser Variante der CEI ist es, dass auch neutrale Moleküle in einem wohl präparierten Zustand untersucht werden können.

Ein weiterer Vorzug der Ionisation mit einem Laser ist, dass auch dynamische Prozesse beobachtet werden können. Hierbei kann ein schwacher Laserpuls eine Bewegung im Molekül starten, welche ein zweiter, verzögerter und stärkerer Laserpuls durch Ionisation und Coulomb-Explosion testen kann. Durch Variation der Verzögerung des zweiten Pulses kann die komplette Kerndynamik eines Prozesses „gefilmt“ werden. Diese als „Pump-Probe-Experimente“ bekannten Untersuchungen stellen einen wichtigen Zweig der Atom- und Molekülphysik dar.

Eine spezielle Realisierung des CEI kann mit Hilfe einer ColTRIMS-Apparatur (siehe Kapitel 3.2.1) durchgeführt werden. Hierbei können die Untersuchungsobjekte über verschiedene Wege ionisiert werden (z.B. Laser, Synchrotron-Strahlung, Freie-Elektronen-Laser, Ionenstoß). Kommt es nach der Ionisation zu einer Coulomb-Explosion können mit Hilfe dieser Technik alle Fragmente mit einem Raumwinkel von 4π in Koinzidenz nachgewiesen werden. Über die Messung von Flugzeiten und Auftrefforten können nun die dreidimensionalen Impulsvektoren der einzelnen Fragmente bestimmt wer-

den. Hierüber lässt sich der Ausgangszustand des Moleküls vor der Coulomb-Explosion rekonstruieren.

Ein eindrucksvolles Beispiel einer CEI-Messung mit einer ColTRIMS-Apparatur stellt die Veröffentlichung von Pitzer et al. [Pit13] dar. Den Experimentatoren gelang es die Chiralität eines vieratomigen Moleküls zu bestimmen. Diese Information ist wichtig, da sich Stoffe mit der selben Summenformel, jedoch unterschiedlicher Chiralität, oft grundlegend in ihren Eigenschaften unterscheiden.

Der große Vorteil der ColTRIMS-Technik liegt darin, dass sich mit ihr nahezu alle Moleküle, die sich in die Gasphase versetzen lassen, untersuchen lassen. Hierüber hinaus ist es, je nach Ionisationsmechanismus, möglich, unterschiedlichste Fragestellungen zu beantworten, welche weit über die reine Struktur eines Moleküls hinaus gehen können. Zusätzlich zur Information, die aus den ionischen Fragmenten einer Reaktion gewonnen werden, ist es mit einer ColTRIMS-Apparatur auch möglich die zugehörigen Elektronen in Koinzidenz zu messen.

2.6.1 Reflection Approximation

Da es sich bei der ColTRIMS-Technik um eine Impulsspektroskopie handelt, erhält man in den Experimenten keine direkten Informationen über den Ortsraum. Es werden Impulse gemessen, die die Teilchen in der zu untersuchenden Reaktion aufgenommen haben. Führt man ein CEI-Experiment durch, werden die Atome eines Moleküls ionisiert und stoßen sich gegenseitig ab. Diese repulsive Kraft führt zur Coulomb-Explosion, in der die Ionen beschleunigt werden. Im Unendlichen haben die Ionen einen Impuls aufgenommen, der die Messgröße im Experiment ist. Summiert man die Impulse der Teilchen auf, erhält man den „kinetic energy release“ (KER), welcher eine direkte Abhängigkeit von der ursprünglichen Geometrie des Moleküls hat. Starten die Ionen nahe beieinander, erhalten sie einen großen KER. Sind sie zu Beginn der Reaktion weit voneinander entfernt, ist die kinetische Energie, die sie in der Coulomb-Explosion erhalten, klein. Die gemessene kinetische Energie entspricht in klassischer Näherung dem Coulomb-Potential zu Beginn des Aufbruchs.

$$KER = V_{Coulomb} = \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 r} = \frac{1}{r} [a.u.] \quad (2.40)$$

Diese Überlegung, die den einfachen Zusammenhang $KER = 1/r$ (in atomaren Einheiten) ergibt, ist jedoch nur eine klassische Betrachtungsweise. Sie ist als „Reflexion Approximation“ (Reflektionsnäherung) bekannt [Gis73]. Bildlich sagt sie aus, dass der Ausgangszustand auf ein repulsives Potential ($1/r$) gebracht wird. Die Differenz zwischen dem Wert des Potentials an der Stelle des Übergangs und seinem asymptotischen Wert im unendlichen entspricht der kinetischen Energie der Ionen. Die Abstandsverteilung des Ausgangszustandes wird am repulsiven Potential des Endzustandes „gespiegelt“ (siehe Abb. 2.16).

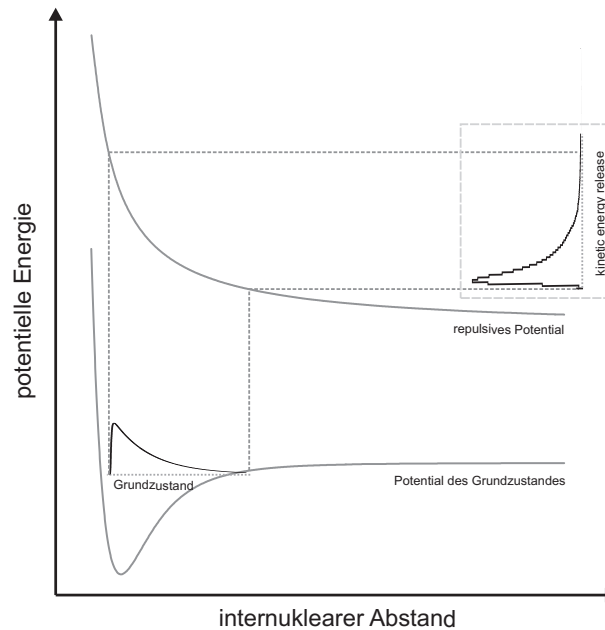


Abbildung 2.16: Schema der „Reflection Approximation“. Der Grundzustand wird auf den repulsiven Endzustand gebracht, von wo die Ionen kinetische Energie aufnehmen, die als KER gemessen wird. Grundzustandspotential, Abstandsverteilung und KER entsprechen den Verteilungen des Heliumdimers, sind jedoch nicht maßstabsgetreu dargestellt.

Diese Beschreibung wird jedoch bei großen Abständen und wenn das repulsive Potential nicht einen $1/r$ Verlauf hat ungenau. Können die Ionen des Endzustandes nicht als Punktladung beschrieben werden, stößt diese Näherung an ihre Grenzen. In vielen Experimenten konnte die Reflection Approximation erfolgreich verwendet werden, um aus gemessenen Energien Teilchenabstände zu berechnen (wie z.B. in [Vag89]).

Für eine korrekte Beschreibung muss der Übergang von Grund- zu Endzustand quantenmechanisch betrachtet werden. Hierbei kann einem Abstand im Grundzustand kein eindeutiger KER zugeordnet werden, da dies die Heisenberg’sche Unschärferelation verletzen würde. Anstelle der Abbildung eines Abstandes auf exakt einen KER muss quantenmechanisch der Überlapp zwischen Grundzustandswellenfunktion und der des Endzustandes berechnet

werden. Will man die Wahrscheinlichkeit für einen KER bei einem Abstand wissen, muss man den Überlapp der Anfangs- (Ψ_i) und Endwellenfunktion ($\Psi_{f_{KER}}$) bestimmen. Diese Endwellenfunktionen sind die Eigenfunktionen des $1/R$ Potentials, die einem festen KER entsprechen.

$$P(KER) = \left| \int \Psi_i(r) \Psi_{f_{KER}}(r) dr \right|^2 \quad (2.41)$$

Beim Lösen des Integrals stellt man fest, dass nun die Ereignisse, die zu einem festen KER führen, nicht auch einen festen Abstandswert haben. Vielmehr tragen viele verschiedene Abstände zu einem KER bei. Der Hauptbeitrag stammt jedoch von dem Wert, der sich aus der klassischen Reflection Approximation ergibt. Diese verschiedenen Beiträge ergeben sich aufgrund der Kontinuumswellenfunktion. Da diese oszilliert, gibt es neben der Übergangswahrscheinlichkeit am klassisch möglichen Punkt auch Beiträge an anderen Punkten (siehe Abb. 2.17 links).

Bevor die Reflection Approximation für das Heliumdimer angewendet werden kann, muss getestet werden, wie groß die Unterschiede zwischen ihr und der quantenmechanischen Rechnung sind.

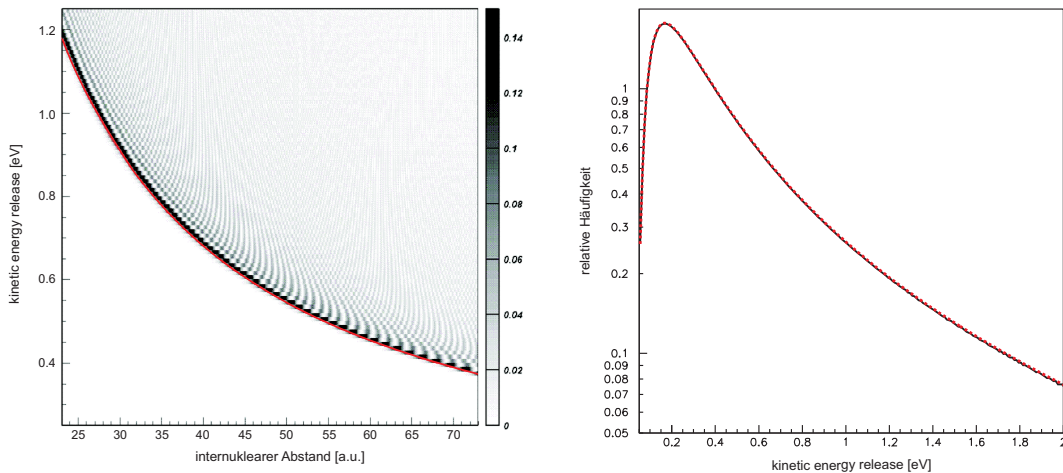


Abbildung 2.17: Links: Darstellung des quadrats Kontinuumswellenfunktion in Abhängigkeit von KER und r . Die Hauptmaxima der Wellenfunktion liegen an Stellen, an denen auch die klassische Position ist (rote Linie). Rechts: Vergleich der KER-Verteilungen nach klassischer (schwarze Linie) und nach quantenmechanischer (rot gestrichelte Linie) Rechnung. Die Ausgangswellenfunktion für die Simulation ([Sch14]) ist die von Przybytek [Prz10] berechnete.

Bereits im linken Teil von Abbildung 2.17 ist zu erkennen, dass der Übergang in die Kontinuumswellenfunktion an der klassisch möglichen Stelle (rote Linie) sehr dominant ist. Der Übergang an einer Stelle, die klassisch nicht möglich ist, ist stark unterdrückt. Welche Auswirkungen dies auf den KER des Heliumdimers hat, ist in Abbildung 2.17 rechts zu erkennen. Hier ist ein

direkter Vergleich der KER-Verteilungen nach einer quantenmechanischen Rechnung und der klassischen Reflection Approximation zu sehen. Der Ausgangspunkt dieser Simulation stellt die Grundzustandswellenfunktion aus [Prz10] dar. Für diese wird einmal der Überlapp mit der Kontinuumswellenfunktion berechnet (rot gestrichelte Linie). Zum anderen wird sie über die Reflection Approximation auf den KER abgebildet (schwarze Linie). Das Ergebnis dieser Simulation ([Sch14]) zeigt nahezu keinen Unterschied zwischen den zwei Rechnungen. Die Reflection Approximation kann demnach auch im Falle von Heliumdimeren eingesetzt werden.

3. Experimenteller Aufbau

In diesem Kapitel wird auf die „praktische“ Seite des Experiments eingegangen. Zum einen betrifft dies den Aufbau des Experiments, zum anderen die Funktionsweise der einzelnen Komponenten. So wird neben der ColTRIMS-Apparatur auch der Laser beschrieben, welcher zur Durchführung des Experiments unumgänglich ist. Die einzelnen Teile der Kammer werden in ihrer Funktion erläutert, wozu auch das erstmals in einer ColTRIMS-Apparatur integrierte Nano-Gitter gehört. Dieses ermöglicht es zum aller ersten Mal einen reinen Gasstrahl aus einer definierten Clustergröße zu erzeugen und diesen in der Reaktionszone der Apparatur zu untersuchen. Diese Methode realisiert die Möglichkeit eine Impulsspektroskopie auch an exotischen, schwer herzustellenden Systemen durchzuführen, da diese vom unerwünschten Untergrund getrennt werden können.

3.1 Laser

Als Laser (Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation) bezeichnet man ein Gerät zur Erzeugung von kohärenter, quasi-monochromatischer und scharf gebündelter Strahlung [Lex3]. Hierbei benötigt man ein laseraktives Medium (z.B. ein Gas, Festkörper oder eine Flüssigkeit), welches ein System mit mehreren Anregungszuständen ist (der im Folgenden betrachtete Titan-Saphir-Laser ist ein vierstufiges System). Wird nun Energie in dieses Medium gepumpt (etwa durch Licht mit kürzerer Wellenlänge als die entstehende Laserstrahlung), so werden die Atome/Moleküle in einen höher angeregten Zustand gehoben. Von diesem können sie sich schnell in einen

mittleren, metastabilen Zustand abregen. Ist dessen Lebensdauer lang genug, so kann es in einem Großteil des kompletten Mediums gleichzeitig zu diesem Anregungszustand kommen, einer Besetzungsinversion. Nun kann ein Photon (entstanden z.B. durch spontane Emission) von einem angeregten Atom/Molekül absorbiert werden und auf diese Weise eine stimulierte Emission starten. Es entstehen hierdurch zwei Photonen mit gleicher Wellenlänge, Phase und Ausbreitungsrichtung. Das ursprünglich angeregte Atom geht über einen Zwischenzustand wieder in den Grundzustand über. Sitzt nun das laseraktive Medium in einer Kavität und wird ausreichend mit neuer Energie versorgt um die Besetzungsinversion aufrecht zu erhalten, kann ein intensiver, quasi-monochromatischer, kohärenter Lichtstrahl erzeugt werden. Für eine genauere Beschreibung der Funktionsweise eines Lasers wird an dieser Stelle auf die Standardliteratur [Dem3] [Ger23] verwiesen.

3.1.1 Erzeugung kurzer Pulse

Um eine höhere Intensität zu erreichen ist es üblich nicht einen kontinuierlichen Laserstrahl („continuous wave“, CW) zu verwenden, sondern einen gepulsten. Auf diese Weise kann der Energiebedarf, welcher zum Pumpen des Systems benötigt wird, auch bei hohen Laserintensitäten noch in einem realisierbaren Rahmen gehalten werden. Um kurze Pulse zu erzeugen gibt es vier gängige Methoden, die im Weiteren kurz erklärt werden.

Gepulster CW-Betrieb

Die einfachste Realisierung eines gepulsten Lasers ist es einen kontinuierlichen Laserstrahl mit einem Modulator (z.B. einem rotierenden Rad mit Schlitz- oder Lochblende) zu pulsen. Hierbei ist die Pulslänge jedoch ausschließlich vom Modulator abhängig und daher verhältnismäßig lang. Ein weiterer Nachteil dieser Variante ist, dass ein Großteil der Laserleistung am Modulator verloren geht. Daher kommt diese Methode heutzutage selten zum Einsatz.

Pulsbetrieb mit Blitzlampenanregung

Eine weitere simple Möglichkeit einen Laser zu pulsen ist den Pumpvorgang an sich zu modulieren. Indem man die Besetzungsinversion durch das Zünden einer Blitzlampe erzeugt, findet auch die stimulierte Emission in einem

vergleichbaren Zeitraum statt (Pulsdauer im Bereich von μs). Erst wenn die Besetzungsinversion abgebaut ist wird das Medium durch die nächste Entladung der Blitzlampe erneut gepumpt. Durch die hohe Leistung der Blitzlampe können in Systemen dieser Bauart höhere Intensitäten als im CW-Betrieb erzeugt werden.

Pulsbetrieb durch Güteschaltung (Q-Switching)

Bei einer Güteschaltung können kürzere und höher energetische Pulse erzeugt werden. Hierbei wird durch einen eingebauten Güteschalter zuerst die Güte des Resonators niedrig gehalten; es geht viel Energie im Resonator verloren, ohne in eine induzierte Emission umgewandelt zu werden. Auf diese Weise kann mehr Energie in das Lasermedium gepumpt werden und ein höherer Grad an Besetzungsinversion erreicht werden, bevor die Laserschwelle überschritten wird. Schaltet man nun die Verluste niedrig, den Resonator auf eine hohe Güte, so wird die Laserschwelle überschritten. Aufgrund des höheren Grades an angeregten Atomen/Molekülen im Lasermedium kann nun die Besetzungsinversion effektiver und damit schneller abgebaut werden.

Als Güteschalter kommt hierbei oft eine Pockels-Zelle zum Einsatz. Diese basiert auf dem Pockels-Effekt und nutzt die Abhängigkeit des Brechungsindex eines Materials vom angelegten elektrischen Feld aus. Diese lineare Korrelation wird dazu genutzt die Phasendifferenz des Lichts zu verändern, wodurch eine Polarisationsdrehung stattfindet. Ist nun noch ein polarisationsselektives Element im Resonator, so kann die Güte schlagartig durch anlegen eines elektrischen Feldes an der Pockels-Zelle gesteigert werden.

Mit einem so konzipierten Laser lassen sich Pulse von wenigen Nanosekunden mit hoher Pulsenergie von etwa 1 J erzeugen [Ger23].

Im verwendeten Lasersystem kam ein solcher Laser zum Einsatz um die Besetzungsinversion im Verstärkernkristall zu erzeugen.

Pulsbetrieb durch Modenkopplung (Mode locking)

Die kürzesten Laserpulse lassen sich durch Modenkopplung erzeugen. Bei dieser Technik muss das Lasermedium nicht nur auf einer Frequenz, sondern einem ganzen Frequenzbereich Licht emittieren. Hierdurch können sich im Resonator eine Vielzahl stehender Wellen (Moden) ausbilden, welche zufällig

zueinander schwingen. Frequenzen die keine Moden bilden werden nicht ausreichend verstärkt. Um nun einen kurzen Puls zu erzeugen müssen sich diese stehenden Wellen kurzzeitig konstruktiv überlagern. Nach Heisenberg'scher Unschärferelation besteht hierbei ein Zusammenhang zwischen Pulsdauer und Anzahl der Frequenzen:

$$\Delta\nu \cdot \Delta\tau \leq K \quad (3.1)$$

mit der spektralen Bandbreite (proportional zur Anzahl der Moden) $\Delta\nu$ und der Pulsbreite $\Delta\tau$. K ist hierbei eine Zahl die von der Pulsform abhängt und für einen gaußförmigen Puls einen Wert von 0,441 hat.

Um diese kurzzeitige Interferenz zu erzeugen kann ein extern gesteuerter Modulator in das System eingebracht werden (active mode locking). Dieser kann entweder die Amplituden oder die Frequenzen der Moden modulieren, damit es zu kurzen Pulsen im Bereich von Picosekunden kommt.

Um noch kürzere Pulse zu erzeugen wird häufig die Technik der passiven Modenkopplung verwendet. Hierfür muss, z.B. durch eine externe Störung, kurzzeitig konstruktive Interferenz für eine große Anzahl von Moden entstehen, wodurch ein erster kurzer Laserpuls entsteht. Dass dieser kurze Laserpuls im Resonator bestehen bleibt, liegt am Kerr-Effekt, welcher für die passive Modenkopplung sorgt. Dieser beschreibt, ähnlich wie der Pockels-Effekt, den von der Stärke eines elektrischen Feldes abhängige Brechungsindex eines Materials:

$$n(\lambda, E) = n_0(\lambda) + S_1(\lambda) \cdot E + S_2(\lambda) \cdot E^2 + \dots \quad (3.2)$$

mit dem Brechungsindex n , der Wellenlänge λ , dem elektrischen Feld E und den materialabhängigen Konstanten S_i .

Ist hier der quadratische Term dominant, so spricht man vom Kerr-Effekt, ist es der lineare, vom Pockels-Effekt. Da das Licht selbst eine elektromagnetische Welle ist, reicht in einem auf passiver Modenkopplung basierenden Lasersystem das elektrische Feld des Pulses aus um die Brechungseigenschaften des Lasermediums selbst so zu verändern, dass es zu einer Selbstfokussierung des Pulses kommt (siehe Abb. 3.1). Aufgrund der abfallenden Intensitätsverteilung zu den Flanken hin, werden diese durch den Kerr-Effekt stärker gebeugt. Damit ist der Puls hinter dem Lasermedium schmaler und besitzt eine höhere Amplitude; er wird im Ort fokussiert.

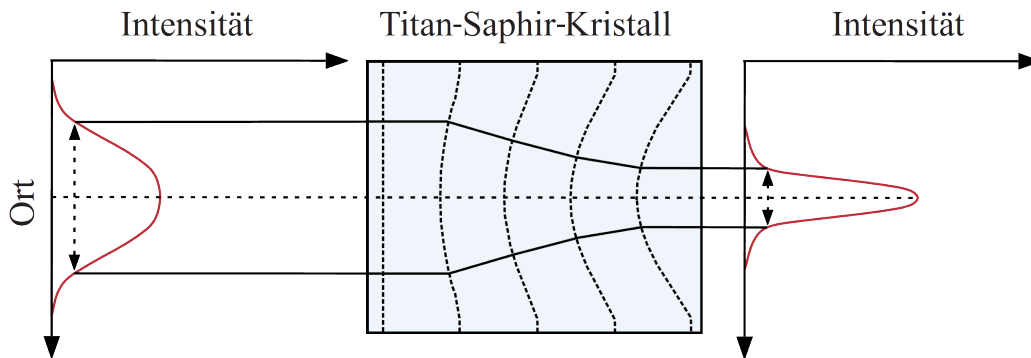


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der Selbstfokussierung durch den Kerr-Effekt eines gaußförmigen Pulses nach [Ulr11]

Diese Selbstfokussierung („self focusing“) sorgt für eine Modulation der Amplituden der im Resonator befindlichen stehenden Wellen. Durch einbringen einer Blende hinter das Lasermedium, oder alternativ einer räumlichen Beschränkung des Bereiches mit Besetzungsinversion, lässt sich so effektiv der CW-Teil des Lasers herausfiltern.

Zusätzlich sorgt der Kerr-Effekt auch für eine zeitliche Veränderung des Pulses. Die Mitte des Pulses, welche eine höhere Intensität besitzt, wird durch den Kerr-Effekt stärker gebrochen und deren Phasengeschwindigkeit stärker verlangsamt im Vergleich zu den Flanken des Pulses. Während die Einhüllende des Pulses unverändert bleibt, verändert sich demnach die Frequenzzusammensetzung in dessen Innerem. Dieser Effekt der Selbstphasenmodulation (self phase modulation, SPM) sorgt für eine Verbreiterung des Frequenzspektrums, was nach Gleichung 3.1 kürzere Pulse möglich macht. Der lineare Teil von Gleichung 3.2 sorgt zusätzlich noch für eine Gruppengeschwindigkeitsdispersion (group velocity dispersion, GVD) welche diesen Effekt noch verstärkt. Sie beruht auf der Abhängigkeit des Brechungsindex von der Wellenlänge.

Sowohl SPM als auch GVD sorgen für eine positive Dispersion (positive chirp) des Pulses und würden ihn demnach zeitlich auseinanderlaufen lassen. Diese Dispersion muss im Resonator kompensiert werden, was oft durch ein Prismenpaar geschieht.

Durch diese passive Modenkopplung lassen sich Pulse im Femtosekundenbereich erzeugen. Deren Intensität ist häufig noch nicht ausreichend, wodurch eine Nachverstärkung nötig ist.

3.1.2 Lasersystem

Der Oszillator

Der verwendete Oszillator wird von einem diodengepumpten CW-Laser (Nd:YVO₄) gepumpt. Dieser hat eine Wellenlänge von 532 nm und eine maximale Leistung von 5 W. Durch eine Linse wird sein Strahl in einen Ti:Sa-Kristall fokussiert und sorgt dort für die nötige Besetzungsinversion. Der mit Titan dotierte Saphir-Kristall hat ein Emissionsspektrum von 670-1070 nm (ν). Hierdurch lassen sich unter Kenntnis der Resonatorlänge (L) mit Hilfe der Lichtgeschwindigkeit (c) die Anzahl der möglichen Moden (N_{mode}) errechnen:

$$\nu = \frac{cN_{mode}}{2L} \quad (3.3)$$

Bei einer Resonatorlänge von etwa 1 m errechnet sich so eine Modenzahl in der Größenordnung 10^6 . Durch passive Modenkopplung entstehen in der Resonator-Kavität Pulse mit einer spektralen Halbwertsbreite von 50-70 nm bei einer mittleren Wellenlänge von 770-800 nm. Sie haben eine Länge von 10-20 fs und eine Pulsenergie von ca. 5 nJ. Die Repititionsrate des Oszillators ist 80 MHz. Eine schematische Darstellung des Systems ist in Abbildung 3.2 zu sehen.

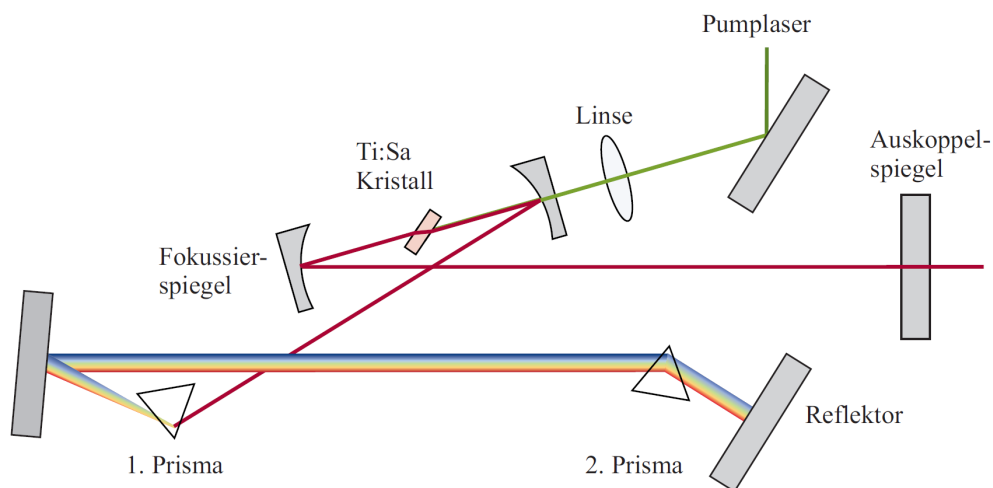


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung des im Lasersystem enthaltenen Oszillators [Ulr11]

Der Verstärker

Der Verstärker basiert ebenfalls auf einem Ti:Sa-Kristall. Gepumpt wird dieser von einem frequenzverdoppelten Nd:YAG-Laser (532 nm Wellenlänge mit

bis zu 100 W Leistung). Da dieser vorgeschaltete Laser auf dem Prinzip der Güteschaltung beruht besitzt er eine deutlich niedrigere Repititionsrate als der Oszillator. Daher müssen die zwei Systeme aufeinander abgeglichen werden, bevor ihre Strahlen in den eigentlichen Verstärker eintreten. Hierzu wird ein „Pulse-Picker“ verwendet, welcher mit einer Pockels-Zelle für ausgewählte Pulse des Oszillators die Polarisation dreht und so über einen Polarisationsfilter das Eintreten in den Verstärker ermöglicht. Das Signal des Pulse-Pickers wird gleichzeitig zur Synchronisation des Pumplasers und des Verstärkerkristalls verwendet.

Bevor dies geschieht müssen die Pulse jedoch erst zeitlich verlängert werden. Dies hat den Sinn die Maximalintensität des Pulses zu verringern bevor dieser in den Verstärkerkristall eintritt. Obwohl Ti:Sa mit einer thermischen Leitfähigkeit von 46 W/cm^2 und einer Energiespeicherdichte von 1 J/cm^2 (ermöglicht bei Kühlung eine extrem hohe Verstärkung pro Durchlauf) sehr positive Eigenschaften für einen Verstärkerkristall besitzt, ist seine relativ hohe Schadensschwelle von $8\text{-}10 \text{ J/cm}^2$ [Bac97] nicht ausreichend für die Verstärkung der unverlängerten Pulse. Durch die aus der Radartechnik kommenden Technik (Chirped Pulse Amplification, CPA) kann die maximale Intensität im Ti:Sa-Kristall um ca. 3 Größenordnungen reduziert werden [Str85]. Realisiert kann diese zeitliche Verlängerung der Pulse durch einen sogenannten „Stretcher“, der aus einem Paar Gitter und fokussierende Linsen und einen Spiegel besteht. Diese sind so angeordnet, dass verschiedene Frequenzen unterschiedlich lange Wegstrecken zurücklegen müssen. Der auf diese Weise eingeführte positive Chirp bewirkt nicht nur einen effektiven Schutz des Kristalls vor Zerstörung, sondern ermöglicht auch eine effektivere Verstärkung des Pulses. Ein zusätzlicher Schutz wird gebildet indem der Kristall im Vakuum positioniert ist und mit einem Heliumkompressor auf eine Temperatur von etwa 41 K gekühlt wird.

Der auf etwa 200 ps verlängerte und nach dem Pulse-Picker auf 8 kHz reduzierte Laser tritt nun in den „Multipass-Verstärker“ ein. Im Gegensatz zu einem regenerativen Verstärker, basiert dieser auf dem mehrfachen Durchlaufen des Verstärkerkristalls ohne hierbei eine Kavität zu nutzen. In dem verwendeten System wird der verlängerte Puls dreizehnmal durch den Ti:Sa-Kristall geschickt um die nötige Verstärkung zu erlangen (etwa 5-6 Größenordnungen [Ulr11]). Hierbei muss jeder neue Umlauf durch einen Bereich des Kristalls gehen, welcher durch den Pumplaser in Besetzungsinversion gebracht wurde. Dieser Aufbau hat im Vergleich zum regenerativen Verstärker den Vorteil, dass trotz größerer Verstärkungsleistung pro Durchlauf verstärkte spontane Emission (Amplified Spontaneous Emission, ASE) besser vermie-

den werden kann. Zudem ist es aufgrund der geringeren Dispersion mit ihm leichter kurze Pulse zu erzeugen als mit einem regenerativen Verstärker. Der Preis hierfür ist jedoch, dass der Durchgang durch den Kristall jeweils an verschiedenen Stellen geschehen muss und daher die Effizienz dieser Bauart im Vergleich zu regenerativen Verstärkern geringer ist [Bac97]. Nach dem letzten Durchlauf durch den Ti:Sa hat man nun Pulse von 200 ps Länge und einer Pulsenergie von 1 mJ.

Da der Ausgangspuls jedoch nur wenige Femtosekunden lang sein soll, muss die durch den Stretcher künstlich herbeigeführte Verlängerung des Pulses wieder rückgängig gemacht werden. Dies geschieht im Kompressor, welcher auf einem ähnlichen Funktionsprinzip wie der Stretcher basiert. Um Schäden an den optischen Elementen des Kompressors zu vermeiden wird der Laserstrahl vorher mit einem Teleskop noch auf den 3-4 fachen Durchmesser vergrößert. Um den Puls zu verkürzen werden zwei optische Gitter parallel angeordnet, welche den Puls in seine Frequenzen zerlegen. Durch eine geschickte Anordnung der restlichen optischen Elemente wird bewirkt, dass die kurzweligen Anteile des Pulses kürzere Strecken laufen müssen, als die langwelligen Anteile (negative Dispersion/Chirp). Durch die richtige Dimensionierung des Kompressors lässt sich so nicht nur die im Stretcher entstandene, sondern auch die durch Kristall, Luft und andere optische Elemente entstandene Dispersion kompensieren. Da das Frequenzspektrum des Pulses im Stretcher leicht verkleinert wurde, lässt sich die Verlängerung des Pulses nicht komplett rückgängig machen, so dass die verkürzten Pulse eine Länge von etwa 30 fs haben (siehe Abb 3.3).

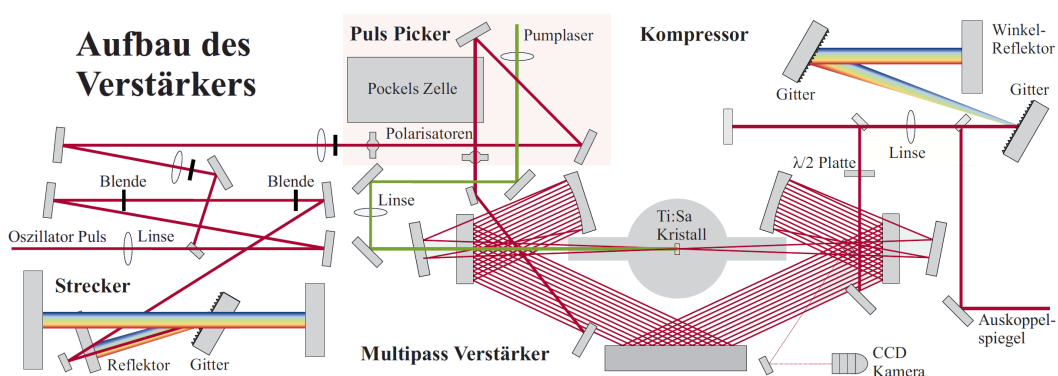


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung des im Lasersystem der Firma KMLabs (KMLabs Dragon) enthaltenen Verstärkers [Ulr11]

3.1.3 Laserfokus und -intensität

Um ausreichend hohe Intensitäten zur Ionisation von Helium zu erreichen, muss der Laser fokussiert werden. Dies geschieht beim verwendeten Aufbau innerhalb der Vakuumkammer mit Hilfe eines sphärisch konkaven Spiegels. Der in die Kammer gestrahlte Laser passiert hierbei die Reaktionszone einmal unfokussiert und trifft erst hinter dem Spektrometer auf den Spiegel mit einer Brennweite von 75 mm. Der Fokuspunkt wird dabei so eingestellt, dass er innerhalb des etwa 750 μm durchmessenden Gasjet liegt.

Der Laserfokus besteht aus Regionen verschiedener Intensität. Um diese genauer zu kennen werden im Folgenden einige Berechnungen getätigt.

Bei einem femtosekunden Laserpuls kann man davon ausgehen, dass dieser größtenteils aus der Grundmode TEM_{00} besteht. Diese besitzt eine gausförmige Intensitätsverteilung:

$$I(r, z) = \frac{2E}{\tau\pi\omega(z)^2} \cdot e^{\frac{-2r^2}{\omega(z)^2}}, \quad (3.4)$$

wobei r der Abstand zur Strahlenachse und z die Entfernung zum Fokus in Strahlrichtung ist. E ist die Pulsenergie, τ die Pulsdauer und $\omega(z)$ die Strahlbreite an der Stelle, an der die Intensität auf den $1/e^2$ -ten Teil abgenommen hat. Diese kann über folgende Formel berechnet werden:

$$\omega(z) = \omega_0 \sqrt{1 + M^4 \left(\frac{Z}{Z_r}\right)^2}. \quad (3.5)$$

Hierbei ist M ein Fitparameter der die Reinheit der TEM_{00} Mode beschreibt (M ist >1 wenn weitere Moden vorhanden sind). Die Größe ω_0 beschreibt den minimalen Strahlradius im Fokus und Z_r ist die Rayleigh-Länge, welche den Abstand zum Fokus entlang der optischen Achse beschreibt in dem sich die Querschnittsfläche des Strahls verdoppelt bzw. die Intensität halbiert hat. Mit Hilfe der Messgrößen Wellenlänge (λ), Fokusslänge des Spiegels (f) und dem Radius des unfokussierten Strahls (ω) lassen sie sich nach folgenden Formeln berechnen:

$$\omega_0 = \frac{\lambda f}{\pi\omega} \text{ und } Z_r = \omega_0^2 \cdot \frac{\pi}{\lambda} \quad (3.6)$$

Mit Hilfe dieser Grundlagen lässt sich die maximale Intensität im Fokus berechnen:

$$I_{\max} = \frac{2\pi E \omega^2}{\tau \lambda^2 f^2} = \frac{2E}{\pi \omega_0^2 \tau}. \quad (3.7)$$

Geht man von einem Strahlradius (ω) von 5 mm, einer Wellenlänge (λ) von 780 nm, einer Pulsenergie (E) von 375 μJ , einer Fokusslänge (f) von 75 mm und einer Pulslänge (τ) von 40 fs aus, kann man die Fokusgröße und die maximale Intensität berechnen. Es ergibt sich ein minimaler Strahlradius von 2,55 μm und eine Rayleigh-Länge von 25,5 μm . Die hiermit berechnete maximale Intensität beträgt $4,3 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$.

Dies entspricht jedoch nur den theoretischen Werten. Sowohl Pulslänge, als auch Strahldurchmesser sind hier abgeschätzte Werte. Hinzu kommt, dass diese Formeln, wie oben bereits erwähnt, nur für einen rein aus der Grundmode bestehenden Strahl gelten, einem gaußförmigen Strahlprofil. Dies stellt im Vergleich zur Realität jedoch eine zu starke Vereinfachung dar, da das Lasersystem laut Spezifikation nur eine Reinheit von $M^2 = 1,3$ hat. Zusätzlich ist zu berücksichtigen, dass der Laserstrahl eine Strecke von etwa 10 m an Luft zurücklegt, dabei von vielen Spiegeln umgelenkt und von einigen Blenden beschnitten wird. Dies sollte die Strahlqualität weiter reduzieren, dass ein Wert von $M^2 = 1,5$ nicht unrealistisch sein sollte.

Diese Strahlqualität geht quadratisch in die Formel des minimalen Strahlradius 3.6 ein. Berücksichtigt man sie, so ergibt sich für ω_0 ein Wert von 8,39 μm und die Rayleigh-Länge ist demnach $Z_r = 283,65 \mu\text{m}$. Dies hat natürlich auch Auswirkungen auf die maximale Intensität, wie in Formel 3.7 rechts zu erkennen ist. Für I_{max} ergibt sich so ein Wert von $8,47 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$.

Dieser berechnete Wert stellt mit Sicherheit eine Obergrenze der maximalen Intensität dar. In den verschiedenen Messungen wurde teils mit deutlich unterschiedlichen Pulsenergien gemessen, wobei der zur Berechnung verwendete Wert von 375 μJ der höchste war. Zusätzlich ist auch davon auszugehen, dass die Pulslänge bei den verschiedenen Messungen nicht immer identisch war. Auch hier ist der Wert von 40 fs eher als Obergrenze zu sehen. Geht man von einer eher pessimistischen Schätzung der Parameter und der verwendeten Laserleistung aus, so ist ein Fokusvolumen von $10 \cdot 10 \cdot 300 \mu\text{m}$ (Abfall auf die 1/e²-te Intensität) und eine maximale Intensität von $2 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ nicht unrealistisch. Diese Werte sollen im weiteren Verlauf der Arbeit verwendet werden.

Um den Laserfokus noch besser zu definieren, wurde unter Verwendung von Formel 3.4 die Fokusintensität für eine Maximalintensität von $2 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ berechnet.

In Abbildung 3.4 ist die Intensitätsverteilung des Laserfokus eingezeichnet. Hierbei ist in gelb eine Intensität von $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ eingezeichnet. Innerhalb dieses Bereiches ist die Ionisation von Wasserstoff gesättigt (Wert entnommen

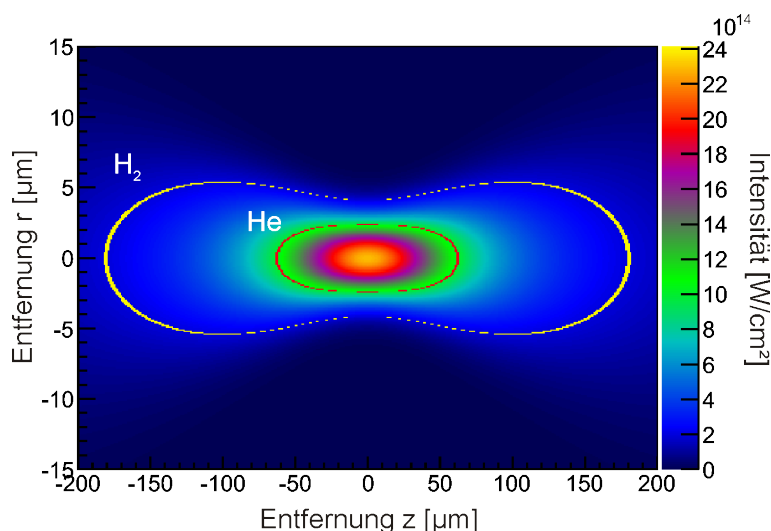


Abbildung 3.4: Berechnete Intensitätsverteilung des Laserfokus bei einer Maximalintensität von $2 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$. In gelb ist die der Fokusbereich eingezeichnet innerhalb dessen die Ionisation H_2^+ gesättigt ist, in rot die des He^+ (entnommen aus [Vos04] und [Wal94]).

aus [Vos04]). In rot ist die Intensität der Sättigung von Helium eingezeichnet ($1 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ entnommen aus [Wal94]).

3.2 ColTRIMS-Kammer und Elektronik

In diesem Kapitel wird auf den eigentlichen experimentellen Aufbau näher eingegangen. Die Grundlage der Messung bildet hierbei der „Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy“ (ab hier ColTRIMS) Aufbau. Dieser besteht aus einer Vakuumkammer in deren Inneren ein Spektrometer installiert ist. In der Mitte des Spektrometers befindet sich die Reaktionszone, in der der Gasstrahl (das „Target“) mit dem Laserstrahl gekreuzt wird. Das Target bildet in dieser Arbeit ein durch eine Überschallgasexpansion entstandener Heliumjet, welcher an einem Transmissionsbeugungsgitter in seine verschiedenen Bestandteile aufgespalten wird. Auf diese Weise lassen sich verschiedene Heliumcluster getrennt und nahezu ohne Untergrund untersuchen.

All diese Bestandteile werden nun im Weiteren einzeln näher beschrieben.

3.2.1 ColTRIMS

Ziel dieser Arbeit ist es, eine direkte Beobachtung der Struktur und Größe von kleinen Heliumclustern zu ermöglichen. Dies soll mit Hilfe einer ColTRIMS-Apparatur geschehen. Wie das Akronym ColTRIMS („Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy“) bereits verrät, handelt es sich um eine Variante

der Impulsspektroskopie, die auf „Coulomb Explosion Imaging“ basiert. Im Inneren des Spektrometers wird durch Überlagerung des Laser- und Gass- trahls eine kleine Reaktionszone gebildet (in etwa $10 \cdot 10 \cdot 300 \mu\text{m}$). Hier werden die zu untersuchenden Moleküle einfachionisiert. Die nun geladenen Ionen werden durch ein elektrisches Feld auf einen Detektor geleitet. Misst man nun die Flugzeit („Time Of Flight“, TOF) und den Auftreffort eines Teil- chens, so lässt sich dessen dreidimensionaler Impulsvektor bestimmen. Führt man diese Messung gleichzeitig für alle Fragmente der Reaktion in Koinzi- denz aus, so lassen sich Rückschlüsse auf den Ausgangszustand des Moleküls ziehen.

Damit dies möglich ist, dürfen sowohl der Gasjet, als auch die geladenen Io- nen nach der Reaktion keine weitere Interaktion mit Restgasteilchen tätigen. Ein weiterer Grund für die Notwendigkeit eines guten Vakuums in der Reak- tionskammer ist die Interaktion des Lasers mit anderen Molekülen, welche zu einem Untergrund an falschen Ereignissen führen würde.

3.2.1.1 Vakuumkammer

Wie bereits erwähnt, ist ein gutes Vakuum unerlässlich für die Durchfüh- rung des Experiments. Neben den Untergrundereignissen und der Interakti- on des Jets bzw. der Reaktionsprodukte mit dem Restgas, ist Vakuum auch ei- ne Grundvoraussetzung für die Erzeugung eines Überschallgasjets. Dies wird im nächsten Kapitel genauer erläutert. Ebenfalls nötig ist das gute Vakuum für den Betrieb der Detektoren.

Da in den verschiedenen Bereichen der Kammer aus unterschiedlichen Grün- den Vakuum benötigt wird, ist es nicht verwunderlich, dass verschiedene Enddrücke nötig sind. Prinzipiell wird hierbei zwischen Grob-, Fein-, Hoch- und Ultrahochvakuum (UHV) unterschieden (siehe Tabelle 3.1).

Bereich	Druck [mbar]	Freie Weglänge [m]	Strömungs- mechanismus
Grobvakuum	1000 - 1	10^{-7} - 10^{-4}	viskos
Feinvakuum (Vorvakuum)	1 - 10^{-3}	10^{-4} - 10^{-1}	Knudsen
Hochvakuum	10^{-3} - 10^{-7}	10^{-1} - 10^3	molekular
Ultrahochvakuum	$<10^{-7}$	$>10^3$	

Tabelle 3.1: Druckbereiche des Vakuums und die dazugehörige freie Weglänge und der vor- liegende Strömungsmechanismus [Ger23].

Bevor jedoch die Erzeugung des Vakuums und die dazu nötigen Pumpen betrachtet werden, wird hier zuerst der Aufbau der Kammer mit seinen verschiedenen Regionen genauer beschrieben.

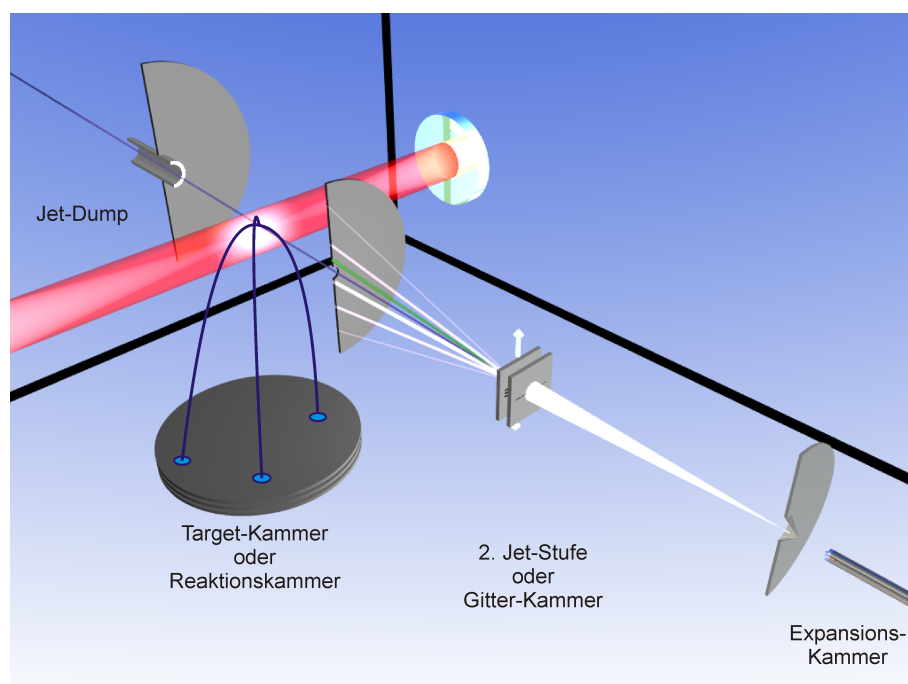


Abbildung 3.5: Schematischer Aufbau der Kammer. In der Expansionsstufe sitzt die gekühlte $5\ \mu\text{m}$ Düse. Hinter dem Skimmer beginnt die 2. Jet-Stufe in der sich Spalt und Gitter befinden. Hinter einer Lochblende beginnt die Target-Kammer (auch Reaktionskammer) in der sich das Spektrometer und die Detektoren befinden und der Jet mit dem Laser gekreuzt wird. Hat der Jet ein Röhrchen durchflogen, wird er letztendlich im „Jet-Dump“ abgepumpt.

Wie in Bild 3.5 zu erkennen ist, besteht der Aufbau aus vier Bereichen. Der von der Reaktionszone aus am weitesten entfernte Teil der Kammer ist die Expansionsstufe (auch Quellkammer, „Expansion Chamber“). Hier befindet sich an einem 3D-Manipulator der Durchflusskryostat an dessen Spitze eine $5\ \mu\text{m}$ Düse befestigt ist. Da in diesem Volumen bei Jetbetrieb große Gasmenngen anfallen, wird er von einer sehr durchsatzstarken Turbomolekularpumpe gepumpt (Pfeiffer TPU 1201, Saugleistung (N_2) 1250 l/s). Diese Pumpe kann jedoch nicht gegen Atmosphäre arbeiten. Daher sorgt eine Reihenschaltung aus Scroll- und Rootspumpe für ein Vorvakuum. Während des Jetbetriebs liegt dieses im Bereich von $1 \cdot 10^{-2}$ mbar, das Hochvakuum in der Kammer, je nach angelegtem Vordruck an der Düse, bei etwa 10^{-5} mbar. Dieses Vakuum ist ausreichend, damit die in der freien Gasexpansion entstehenden Cluster nicht mit dem Restgas interagieren, bevor sie nach knapp 10 mm die Expansionsstufe durch einen trichterförmigen Kegel mit Lochöffnung (den „Skimmer“) verlassen. Genauere Informationen zu Aufbau und Funktionsweise des Jets sind im Kapitel 3.2.1.2 nachzulesen.

Die zweite Jet-Stufe beherbergt das Transmissionsbeugungsgitter und einen davor angebrachten Schlitz. Dieser sorgt dafür, dass nur ein definierter Bereich des Gitters vom Jet getroffen wird (die Gitterhalterung hält drei identische Gitter, von denen nur eins beleuchtet werden soll). Eine weitere Aufgabe der zweiten Jet-Stufe besteht darin das Hochvakuum der Expansionsstufe vom Ultrahochvakuum der Reaktionskammer zu trennen. Hierfür hat die zweite Stufe Länge von etwa 1 m in dem ein Vakuum von etwa $2 \cdot 10^{-9}$ mbar herrscht. Eine direkte Verbindung zur Expansionsstufe besteht nur über den bereits erwähnten Skimmer, welcher eine Runde Öffnung mit 300 μm Durchmesser hat. Zur Targetkammer besteht nur durch eine 500 μm durchmessende Lochblende Verbindung. Gepumpt wird die zweite Jet-Stufe von zwei Turbomolekularpumpen (Pfeiffer TMU 260, Saugleistung (N_2) 210 l/s und Pfeiffer TMU 261, Saugleistung (N_2) 210 l/s), welche als Vorvakuum das Hochvakuum der Expansionsstufe nutzen.

Dem Erreichen des Ultrahochvakuums in der Targetkammer wird im nächsten Unterkapitel besondere Aufmerksamkeit zugewendet.

Als letzter Teil der Apparatur ist noch der Jet-Sumpf (ab hier auch „Jet-Dump“) zu beschreiben. Er hat die Aufgabe den nicht ionisierten Teil des Jets zu sammeln, so dass dieser nicht zurück in die Targetkammer gelangt. Hierzu ist er über ein ca. 10 cm langes und etwa 1 cm durchmessendes Röhrchen vom Rest der Kammer getrennt. Zusätzlich befindet sich noch ein Quadrupol-Massenspektrometer (MKS Microvision Plus) im Dump. Dieses wird dazu genutzt die Düse mit Hilfe ihres Manipulators so zu positionieren, dass sie sich in einer Linie mit Skimmer, Lochblende und dem Verbindungsröhrchen zwischen Targetkammer und Jet-Dump befindet. Auf diese Weise liegt der Jet auf einer definierten Achse, welche zwei Dimensionen der Reaktionszone bereits festlegt. Gepumpt wird der Jet-Dump über eine Turbomolekularpumpe (Pfeiffer TMU 261, Saugleistung (N_2) 210 l/s). Das Vorvakuumssystem ist dasselbe wie das nun beschriebene der Targetkammer.

Erzeugung des UHV der Targetkammer

Die Erzeugung eines extrem guten Ultrahochvakuums ist eine Grundvoraussetzung für die Realisierung des Experiments. Hier wird nun ausführlich beschrieben, welche Pumpen eingesetzt und welche Methoden angewandt wurden, um ein Endvakuum von $1.1 \cdot 10^{-11}$ mbar zu erreichen.

Die Basis des Vakuumsystems der Targetkammer bildet ein HiCube der Firma Pfeiffer (Pfeiffer HiCube Eco 80). Dieser ist eine Kombination aus einer

Membranpumpe (Model MCP 015-2, Endvakuum mit Gasbalast $< 4,5$ mbar) und einer kleinen Turbomolekularpumpe (HiPace80, Endvakuum von $5 \cdot 10^{-10}$ mbar) und erreicht ein Vorvakuum besser $1 \cdot 10^{-4}$ mbar (Ende des Nachweisbereichs der verwendeten Messzelle). Dieses versorgt zwei Turbomolekularpumpen (2 x Pfeiffer TMU 521, Saugleistung (N_2) 520 l/s), welche die Kammer in den Bereich des Ultrahochvakuums bringen (in etwa in den niedrigen 10^{-8} mbar Bereich). In diesem Vakuumbereich besteht der größte Teil des Restgases aus Wasser. Dieses ist besonders schwer zu entfernen, da es lange Verweilzeiten auf der Kammerwand hat. Infolge dessen bleiben die Wassermoleküle lange in der Kammer, bevor sie irgendwann zufällig auf eine der Turbomolekularpumpen fliegen und aus dem Kammervolumen entfernt werden. Um dieses Wasser effektiver abpumpen zu können, wird die komplette Targetkammer auf eine Temperatur von 100-150 °C erwärmt. Dieses Erhitzen der Kammer, das „Ausheizen“, sorgt dafür, dass die Verweilzeiten der Moleküle an der Kammerwand drastisch reduziert werden, wodurch die Wahrscheinlichkeit, dass sie von einer der Turbomolekularpumpen aus dem Volumen entfernt werden, stark steigt. Eine höhere Temperatur würde diesen Effekt zwar noch verstärken, könnte aber zur Zerstörung von Elementen der Apparatur führen (Vakuummesszellen, Detektoren, Durchführungen, etc.).

Um das Vakuum zu messen sind an der Targetkammer neben den Standardmesszellen (Leybold ITR 90, mit einem Messbereich bis $5 \cdot 10^{-10}$ mbar) noch eine Extraktorröhre der Firma Leybold (Ionivac IM 540) angeschlossen. Diese hat einen Messbereich bis zu $1 \cdot 10^{-13}$ mbar. Um die Zusammensetzung des Restvakuums zu erfahren, ist auch hier ein Quadrupol-Massenspektrometer (MKS Microvision Plus) angebracht.

Beobachtet man nun den Prozess des Ausheizens im Massenspektrometer, so sieht man, dass der Anteil an Wasser im Restgas exponentiell sinkt. Gleichzeitig beginnt mit steigender Temperatur der Anteil an Wasserstoff zu steigen. Dies liegt daran, dass der Edelstahl der Vakuumkammer bei hohen Temperaturen verstärkt H_2 ausdampft. Ziel des Ausheizens ist es nun, die Vakuumkammer möglichst gleichmäßig so lange zu erhitzen, bis der Anteil an H_2O im Massenspektrum unter H_2 liegt. Ein weiterer Indikator, dass ausreichend lange geheizt wurde, ist das Einstellen eines Gleichgewichts im Massenspektrum. Ist dieses erreicht, bewirkt auch längeres Ausheizen keine Verbesserung des Vakuums mehr, da sich das Abpumpen der Turbomolekularpumpen und das durch die Pumpen und Dichtungen in die Kammer diffundierende Gas kompensieren.

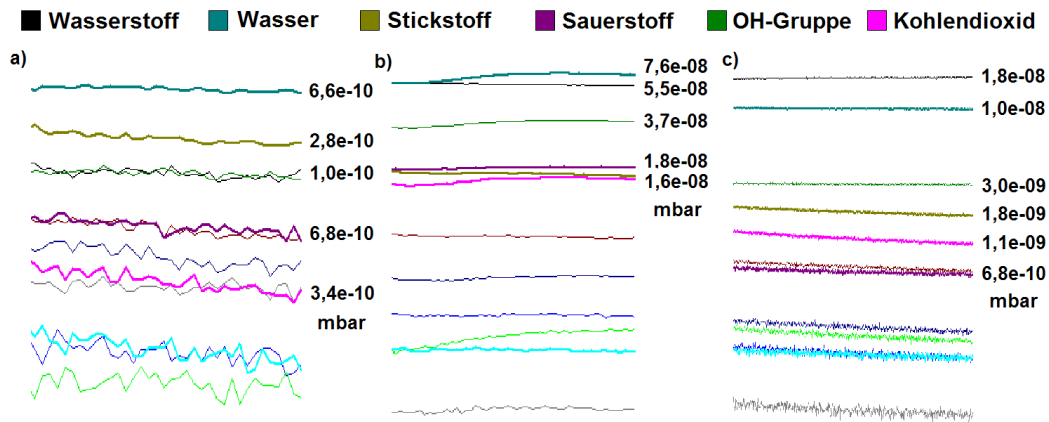


Abbildung 3.6: Massenspektren der Targetkammer a) vor dem Ausheizen (Tag 0) b) beim ersten Erreichen von 150°C (Tag 1-2) und c) kurz vor dem Abstellen der Heizung (ca. Tag 10)

Bevor das Heizen der Kammer jedoch abgestellt wird, müssen noch sämtliche weitere im Vakuum befindlichen Elektroniken „gereinigt“ werden. Bei den Vakuummesszellen geschieht dies über den Vorgang des Entgasens. Hierbei wird der Glühdraht der Messzelle kurzzeitig auf ein, gegenüber der normalen Betriebsspannung, erhöhtes Potential gelegt. Die Zeitdauer hierfür hängt von der Bauart der Messzelle ab. Sinn dieses Entgasens ist es, sämtliche Verschmutzungen von der Oberfläche des Glühdrahtes abzdampfen.

Eine weitere Vakuumpumpe, die während des Ausheizens entgast werden muss, ist die Titan-Sublimationspumpe. Bei ihr ist der Vorgang identisch zu den Messzellen. Durch Anlegen einer Spannung wird die Oberfläche der drei Titan-Filamente von Verunreinigungen gesäubert. Auf die Funktionsweise der Titan-Sublimationspumpe wird später eingegangen.

Zuvor wird hier noch das letzte Element erläutert, welches eine spezielle Behandlung vor dem Abkühlen der Kammer benötigt. Die SAES Getterpumpe ist eine nicht evaporative Getterpumpe. Dies bedeutet, dass für den Pumpvorgang kein Material von der Pumpe abgedampft wird. Sie basiert darauf, dass aktive Gase entweder auf der Oberfläche „festkleben“ oder sogar in das Gettermaterial absorbiert werden. Die Pumpe besteht aus einer Zr-V-Fe-Legierung [SAES], welche um die Pumpleistung zu maximieren, in Form von vielen Lamellen angebracht wurde. Auf diese Weise ist die aktive Oberfläche der Pumpe besonders groß. Um zu funktionieren, muss diese große Oberfläche jedoch erst aktiviert werden. Da es sich um eine Metalllegierung handelt, bildet diese bei Luftkontakt eine Oxidschicht an ihrem Äußeren. Um diese zu entfernen und den Pumpvorgang zu starten, wird die Pumpe über einen

Zeitraum von 45 min auf 450 °C erhitzt. Ist dies geschehen, bindet das Gettermaterial alle aktiven Gase, bis die komplette Oberfläche wieder besetzt und eine Reaktivierung nötig ist. Besonders effektiv ist diese Art Pumpe für das Entfernen von H_2 aus dem Restgas.

Nach dem Abkühlen der Kammer herrscht bereits ein Druck von wenigen 10^{-10} mbar in der Reaktionskammer. Um es noch weiter zu verbessern, befindet sich noch eine Kombination aus zwei weiteren Pumpen an der Targetkammer. Eine davon ist die bereits erwähnte Titan-Sublimationspumpe. Diese ist eine evaporative Getterpumpe. Beim Anlegen einer Spannung wird Titan vom Filament in Richtung Kammerwand abgedampft. Jedes Molekül aus dem Restgas, welches nun mit diesen Titanatomen in Kontakt kommt, wird von diesen langfristig an die Kammerwand gebunden und verschwindet so aus dem Kammervolumen. Umgeben sind die Titan-Filamente von einem Kryo-Schild. Dies ist ein Hohlkörper durch den von außen flüssiger Stickstoff gepumpt wird. Da der metallene Körper nun auf eine Temperatur von etwa 77 K gekühlt wird, frieren nahezu alle Gase bei Kontakt an ihm aus und sind auf diese Weise aus dem Volumen der Kammer entfernt. Besonders effektiv ist diese Variante einer Kühlfalle für das Entfernen von Wasser.

Da sowohl das Kryo-Schild als auch die Titan-Sublimationspumpe nur ein sehr kleines Volumen der Kammer ausfüllen, ist ihre Pumpleistung gerade bei sehr niedrigen Drücken gering.

Die größte Verbesserung des Vakuums nach Abschalten der Heizung ist wohl auf die frisch aktivierte SAES Getterpumpe zurückzuführen. Diese sorgte noch über Tage für ein fallendes Vakuum, bevor sich der Druck bei ca. $1.2 \cdot 10^{-11}$ mbar stabilisierte. Auch ohne Nutzung der Titan-Sublimationspumpe und des Kryo-Schildes stellte sich hier ein Gleichgewicht ein.

3.2.1.2 Überschallgasjet

Um eine Messung mit einer ColTRIMS-Apparatur durchführen zu können, muss ein definiertes Reaktionsvolumen erzeugt werden. Hierzu dient bei den durchgeführten Experimenten der Überlapp zwischen Laserfokus und dem nun beschriebenen Gasstrahl (im Folgenden auch Jet). Zusätzlich müssen die im Reaktionsvolumen befindlichen Teilchen noch eine sehr geringe Temperatur besitzen. Nur wenn der Eigenimpuls der Teilchen kleiner ist, als die Bindungsenergie des Moleküls, ist dieses stabil. Diese Voraussetzung verlangt gerade bei Heliumdimeren und -trimeren eine niedrige interne Temperatur der Teilchen.

Über eine 5 μm Düse ist eine Gasleitung mit der Expansionskammer des Aufbaus verbunden. Legt man nun auf der Leitung einen hohen Druck (im Bereich weniger bar) an und pumpt gleichzeitig die Expansionskammer auf ein Vakuum, so kommt es an der Düse zu einem Druckgradienten. Dieser sorgt dafür, dass ein gerichteter Gasstrahl entsteht. Thermodynamisch betrachtet bedeutet dies, dass die komplette Enthalpie des Gases, welche sich aus thermischer Energie und Kompressionsenergie zusammensetzt, in gerichtete kinetische Energie umgewandelt wird:

$$\begin{array}{rcccl} \frac{1}{2}mv^2 & = & \frac{3}{2}k_B T_0 & + & k_B T_0 \\ \text{kin.} & & \text{therm.} & & \text{Kompr.} \\ \text{Energie} & & \text{Energie} & & \text{Energie} \end{array} \quad (3.8)$$

mit der Masse der Gasteilchen m , deren Geschwindigkeit nach der Expansion v , der Boltzmannkonstante k_B und der Temperatur vor der Expansion T_0 . In dieser theoretischen Überlegung, welche jedoch nur für ideale Gase gilt, wandelt sich die komplette Energie in eine gerichtete Geschwindigkeit um. Diese ist für alle Teilchen konstant, wodurch das Gas im mitfliegenden Bezugssystem in alle Raumrichtungen keine Bewegung aufweist und damit eine Temperatur von 0 K hat. Für ein reales Gas kann dies nur als Näherung betrachtet werden.

Um eine genauere Betrachtung zu ermöglichen, müssen mehrere Effekte berücksichtigt werden. Zum einen findet die Expansion des Gases nicht in ein perfektes Vakuum, sondern in ein Volumen mit einem Restdruck von etwa 10^{-5} mbar statt. Hierdurch kann die in der Expansion aufgenommene Energie verändert werden, indem Stöße mit Restgasteilchen passieren. Zum anderen handelt es sich um ein reales Gas. Dies hat zur Folge, dass zwischen den Teilchen nicht nur Stöße, sondern auch weitere anziehende und abstoßende Kräfte wirken. Diese sorgen zusätzlich zu den Stößen mit dem Restgas noch für einen divergierenden Strahl.

Ein Maß für die Auswirkungen dieser Effekte ist das sogenannte „Speedratio“. Es wird über das Verhältnis zwischen Jetgeschwindigkeit und der Relativgeschwindigkeit berechnet, welche die Teilchen durch die eben beschriebenen Effekte erlangen:

$$S = \frac{v_{jet}}{\sqrt{\frac{2 \cdot k_B T_{jet}}{m}}}. \quad (3.9)$$

Hierbei ist v_{jet} die Jetgeschwindigkeit nach der Expansion, T_{jet} die Temperatur nach der Expansion.

Berücksichtigt man, anders als in Gleichung 3.8, auch die endliche Endtemperatur des Gases, so lässt sich ein Zusammenhang zwischen Speedratio, Anfangs- und Endtemperatur des Gases herstellen:

$$\frac{5}{2}k_B T_0 = \frac{1}{2}mv^2 + \frac{5}{2}k_B T_{jet} \quad (3.10)$$

$$\Rightarrow v = \sqrt{\frac{5k_B}{m}(T_0 - T_{jet})}. \quad (3.11)$$

Setzt man diesen Wert für v in Gleichung 3.9 ein, ergibt sich über triviale Umformungen der Wert für die Teilchentemperatur im Jet in Abhängigkeit von Anfangstemperatur und Speedratio:

$$T_{jet} = \frac{5}{2} \frac{T_0}{S^2}. \quad (3.12)$$

Da das Speedratio in Realität auch abhängig von Düsendurchmesser und Vordruck ist, werden zum Berechnen der Jettemperatur gemessene Speedratio Werte aus der Literatur verwendet. Über Flugzeitmessungen mit gepulsten Strahlen ist es möglich diese experimentell zu ermitteln. An dieser Stelle soll jedoch nur auf die Literatur verwiesen werden [Bru02] und der Wert für ähnliche wie die verwendeten Parameter gegeben werden. Bei einem Vordruck von 1,8 bar und einer Temperatur von 12 K wurde ein Speedratio von $S = 170$ gemessen. Über Gleichung 3.12 liefert dies eine Jettemperatur von ca. 1 mK.

Will man nun den in der freien Gasexpansion entstandenen Gasstrahl nutzen (ist die Druckdifferenz zwischen Gasleitung und Expansion groß genug, spricht man von einer Überschallgasexpansion (Supersonic Gasexpansion), genaue Kriterien hierfür in [Hoh02] und Referenzen darin), muss dieser noch aus dem schlechten Vakuum der Expansionsstufe heraus „geschält“ werden. Würde man dies nicht tun, würde hinter dem Bereich in dem die Gasteilchen nahezu ohne Stöße propagieren (die sogenannte „Zone of Silence“) das Restgas mit den Jetteilchen interagieren. Dies würde dazu führen, dass der Jet seinen gerichteten Impuls verliert. Um dies zu verhindern wird in die Zone of Silence der Skimmer eingeführt. Dieser ist ein speziell geformter Kegel, der das nicht durch seine 300 μm große Öffnung herausgeschälte Gas nahezu ohne Verwirbelungen von der Zone of Silence weggleitet. Der transmittierte Teil des Gases erzeugt hinter dem Skimmer einen gerichteten Strahl, dessen Teilchen untereinander nahezu nicht miteinander wechselwirken. Dieser Jet kann im

guten Vakuum der zweiten Jet-Stufe ungehindert in Richtung Reaktionszone weiter propagieren.

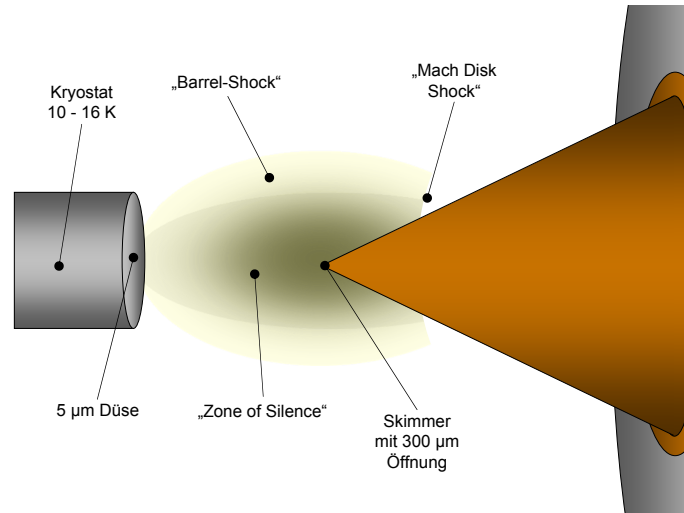


Abbildung 3.7: Schematische Darstellung der Zone of Silence, welche durch Expansion eines Gases durch eine 5 µm Düse entsteht

Erzeugung von kleinen Heliumclustern

In der eben beschriebenen Überschallgasexpansion können die Gasteilchen bevorzugt im Bereich nahe der Düse, wo die Dichte am höchsten ist, miteinander wechselwirken. Bei dieser Wechselwirkung kann es zu Dreiteilchenstößen kommen, bei denen die komplette Energie der Teilchen vom dritten Reaktionspartner weggetragen wird. Teilchen eins und zwei müssen nun eine geringere Energie als die Bindungsenergie des Dimers haben um über Van-der-Waals-Kräfte eine Bindung einzugehen. Dieser Prozess ist jedoch sehr unwahrscheinlich und würde daher zu einer sehr geringen Ausbeute an Clustern führen. Wie [Bun60] und [Knu77] gezeigt haben, kann dies in Realität auch über einen Zweistufenprozess geschehen. Hierbei kommt es bei der ersten Interaktion zwischen zwei Teilchen zu einem metastabilen, angeregten Zustand. Kommt es nun bevor dieser zerfällt zu einem weiteren Stoß, so kann die Anregungsenergie des Paares vom dritten Teilchen aufgenommen werden. Ein über Van-der-Waals-Kräfte gebundenes Dimer bleibt zurück:



Genaue Berechnungen hierzu wurden für Helium von Suno et al. [Sun02] durchgeführt.

Um größere Cluster zu erzeugen, muss die Anzahl der Stöße erhöht werden. Dies erhöht automatisch auch die Anzahl an Reaktionen von bereits gebundenen Atomen miteinander. Ein Trimer könnte so zum Beispiel durch den Stoß zweier Dimere entstehen, wobei die überschüssige Energie vom vierten Teilchen weggetragen wird. Eine weitere Möglichkeit ist natürlich auch der Prozess, in dem ein größerer Cluster zerbricht und auf diese Weise ein Trimer erzeugt. Allgemein ist eine Abhängigkeit der Clustergröße von $p_0 d_0 / T_0$ festzustellen [Toe77].

Wie Experimente der Gruppe Toennies, Schöllkopf und Grisenti zeigten [Gri] ist der Düsendurchmesser bei der Produktion von Heliumdimeren sehr eingeschränkt (bereits mit einer 30 μm Düse sind nahezu keine Heliumdimere mehr zu produzieren), wodurch er in dieser Arbeit auf 5 μm fixiert ist. Demnach gibt es für jede Clustergröße eine Kombination aus Vordruck und Temperatur um eine maximale Ausbeute zu erlangen. Da sich mit steigendem Vordruck das Vakuum in der Expansionskammer verschlechtert, steigt auch die Wahrscheinlichkeit, dass bereits erzeugten Dimere durch einen Stoß mit den Restgasteilchen wieder zerstört werden. Da dieser Effekt von der Theorie nicht berücksichtigt wird, ist die richtige Einstellung von Vordruck und Temperatur am besten mit den Messungen von Bruch et al. [Bru02] und Kariotis et al. [Kar04] zu finden. Mit Hilfe eines Beugungsgitters vermaßen sie die Raten an kleinen Heliumclustern bei verschiedenen Drücken und Temperaturen auch in Abhängigkeit vom Expansionskammervakuum (siehe Abb. 3.8).

Da beim verwendeten Aufbau Temperaturen unter 10 K nur mit stark erhöhtem Verbrauch von flüssigem Helium realisierbar waren, wurde das Experiment bei einem Vordruck von etwa 2-3 bar und Temperaturen um 12 K durchgeführt. Hier sind nach [Bru02] ein vergleichsweise großer Anteil an Dimeren und Trimeren im Jet vorhanden.

Da es im Experiment möglich war mit Hilfe eines Transmissionsbeugungsgitters Dimere von Trimeren zu trennen, war dies die ideale Einstellung. Hier liegen beide Clustergrößen zwar nicht in ihrem absoluten Maximum vor, es stellt aber einen guten Kompromiss dar. Wie in Kapitel 2.5.2 gezeigt wurde, hängt das Beugungsbild von der Jetgeschwindigkeit und damit von der Temperatur ab. Demnach war es für die Durchführung des Experimentes erstrebenswert Dimere und Trimere bei gleicher Temperatur zu messen um das Beugungsbild nur einmal vermessen zu müssen.

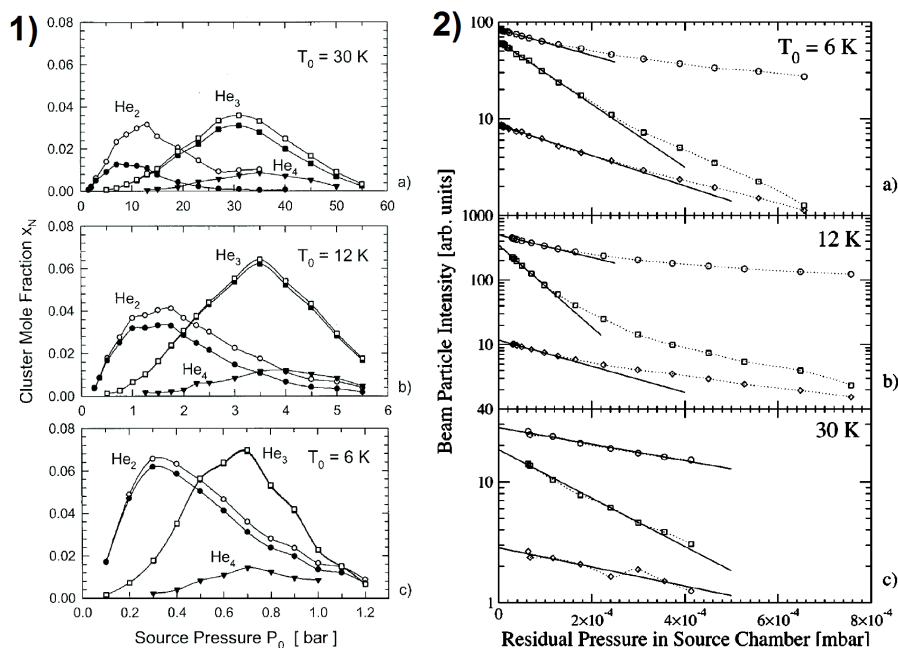


Abbildung 3.8: links: Gemessene (gefüllte Symbole) und theoretisch berechnete (offene Symbole) Mol-Anteile von Heliumdimeren, -trimeren und -tetrameren bei a) 30 K, b) 12 K und c) 6 K in Abhängigkeit vom Vordruck (aus [Bru02]). **rechts:** Gemessene Mol-Anteile von Monomer ($\circ$), Dimer ($\square$) und Trimer ($\diamond$) in Abhängigkeit vom Vakuum der Expansionskammer bei a) 6 K, b) 12 K und c) 30 K und einem Vordruck von 0.6, 4.5 bzw. 15 bar (aus [Kar04])

3.2.1.3 Spektrometer

Ziel des Spektrometers ist es, die in der Reaktion entstehenden Ionen auf den Detektor zu leiten, um so eine Messung der Flugzeiten und Auftrefforte der Teilchen zu ermöglichen. Mit Hilfe dieser Informationen ist es möglich, die Impulse der Fragmente zu bestimmen.

Ursprünglich wurde das Spektrometer für den gleichzeitigen Nachweis von Ionen und Elektronen entworfen. Um im Experiment mit einer höheren Laserleistung messen zu können, wurde jedoch auf das Detektieren der Elektronen verzichtet. Diese hätten bei der verwendeten Laserleistung von ca. 3 Watt eine viel zu hohe Rate ergeben. Entstehen pro Ereignis zu viele Elektronen, so ist es nicht mehr möglich zwischen Elektronen aus der Reaktion und aus den Untergrundereignissen zu unterscheiden. Zusätzlich würden aufgrund der Totzeit des Detektors viele Elektronen nicht detektiert werden.

Da deshalb in den Messungen nur Ionen betrachtet wurden, ist ein elektrisches Feld ausreichend um die Fragmente auf den Ionendetektor zu leiten. Ein zusätzliches magnetisches Feld, wie häufig bei ColTRIMS-Experimenten verwendet, ist nicht nötig. Dieses homogene E-Feld steht senkrecht zum Jet und zum fokussierten Laser. Erzeugt wird es durch eine Aneinanderreihung von quadratischen Kupferplatten mit 115 mm Kantenlänge. Diese sind mit-

tig durchsetzt von einem kreisförmigen Loch mit 85 mm Durchmesser. Eine Kupferplatte hat eine Stärke von 0,5 mm und ist über einen 100 kOhm Widerstand mit der nächsten verbunden. Durch Abstandhalter aus Keramik wird dafür gesorgt, dass die Platten parallel zueinander sind. Auf diese Weise werden beim Anlegen einer Spannung an der ersten und letzten Platte des Spektrometers Äquipotentialflächen definiert, welche in dessen Inneren für ein homogenes elektrisches Feld sorgen.

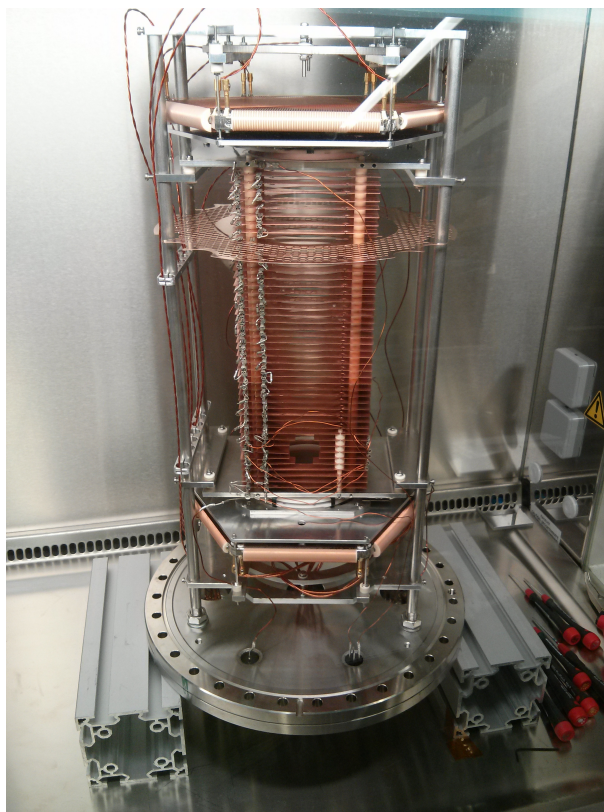


Abbildung 3.9: Fotografie des Spektrometers. Im unteren Abschnitt der Kupferplatten ist das für den Laser eingefügte Loch zu erkennen. Im 90° Winkel hierzu ist eine Platte durchtrennt um ein Loch für den Jet zu erzeugen. Abgeschlossen werden die Kupferplatten je durch ein 140 μm Gitter, welches vor den zwei Hex-Detektoren (siehe nächster Abschnitt) installiert ist.

Der Überlapp zwischen Jet und Laserfokus bildet im Inneren des Spektrometers nun die Reaktionszone. Um sowohl den Gasstrahl, als auch den zuerst unfokussierten Laserstrahl durch das Spektrometer zu bekommen, ohne dass sie von einer Kupferplatte gestört werden, wurden auf Höhe der Reaktionszone eine Kupferplatte geviertelt und darüber bzw. darunter je zwei Platten halbiert. Auf diese Weise entsteht für den Jet, der aufgrund der durch Schlitz und Lochblende definierten Geometrie einen Durchmesser von unter 750 μm hat, ein Loch von 10,5 mm. So kann dieser trotz seines leicht schrägen Winkels und mit leichtem Versatz von der Idealposition ohne Probleme durch das Spektrometer hindurch passieren. Für den Laser wurden an den anderen Sei-

ten des Spektrometers fünf Platten so geteilt, dass ein 32,5 mm großes, rundes Loch entsteht. Dies wurde so groß gewählt, dass ein Spiegel mit nur 50 mm Brennweite und 1 inch (25,4 mm) Durchmesser verwendet werden kann, welcher in das Spektrometer eintauchen würde. Auf diese Weise ließe sich bei gleicher Laserleistung die Fokusintensität erhöhen. Aufgrund einer bereits ausreichenden Intensität wurde jedoch nur ein Spiegel mit 75 mm Fokus verwendet.

Da diese Löcher im Spektrometer die Homogenität des elektrischen Feldes stören können, ist besonders darauf zu achten, dass es von außen keine Feldeingriffe durch das Potential der Detektoren gibt. Um dies zu verhindern wurde zwischen Ionendetektor und Reaktionszone eine Spektrometerplatte verbaut, die nahezu den kompletten Kammerdurchmesser umfasst. Sie sorgt dafür, dass der über 2000 V große Potentialsprung nur auf den Bereich zwischen Ionendetektor (Front auf etwa 2000 V) und dieser Platte begrenzt ist. Der Reaktionsort sieht nur den verhältnismäßig geringen Potentialsprung zwischen dem zweiten Detektor, welcher im Experiment nicht genutzt wurde und daher bei 0 V lag, und dem Spektrometer (ca 100 V). Damit das Pumpverhalten der Turbomolekularpumpen durch diese Spektrometerplatte nicht übermäßig gestört wird, wurde diese Platte außerhalb des Spektrometers mit wabenförmigen Löchern durchsetzt (siehe Abb. 3.9).

Weitere Stellen an denen eine Störung des homogenen elektrischen Feldes verhindert werden muss, sind die zwei Enden des Spektrometers. Sie werden daher durch ein feinmaschiges Gitter abgeschlossen. Dieses verhindert, dass sich durch den Potentialsprung von Detektor zu Spektrometer eine starke Verformung des homogenen Feldes ereignet. Diese Verformung des E-Feldes würde eine elektrostatische Linse bilden. Statt einer großen elektrostatischen Linse erlaubt das Gitter nur kleine Verformungen zwischen den Maschen. Diese kleinen Linsen limitieren die Ortsauflösung des Detektors. Die Maschenweite des Gitters betrug im verwendeten Aufbau 140 μm . Da kleinere Maschen auch die Transmission des Gitters reduzieren, stellt dieses Gitter mit einer Transmission von etwa 80 % nach derzeitigem Wissen den idealen Kompromiss zwischen Transmission und Auflösung dar.

Im Vergleich zu anderen Aufbauten (z.B. [Sch06][Met10][Tri11]) besteht das Spektrometer nur aus einer homogenen Beschleunigungsstrecke. Eine flugzeitfokussierende und ortsfokussierende Geometrie, welche den Unterschied kompensiert, der durch Ionisation in verschiedenen Regionen des Reaktionsvolumens entsteht, ist nicht nötig. Da der Überlapp zwischen Jet und Laser

ein sehr kleines Reaktionsvolumen definiert, kann dieser Effekt vernachlässigt werden.

In den in dieser Arbeit vorgestellten Messungen wurde das Spektrometer sowohl mit der kurzen, als auch mit der langen Seite als Ionenseite verwendet. Der kurze Spektrometerarm besteht aus sechs Kupferplatten, sieben Keramikabstandshaltern und wird von einem Gitterhalter abgeschlossen. Seine Gesamtlänge beträgt damit 42 mm. Die lange Seite des Spektrometers besteht aus 39 Kupferplatten, 40 Keramikabstandshaltern und wird ebenfalls von einem Gitterhalter abgeschlossen. Damit ergibt sich für sie eine Länge von 223,5 mm. Diese, inklusive der mittleren Platte, 46 Kupferplatten waren mit den Gitterhaltern über 48 Widerstände zu je 100 kOhm verbunden, wobei bei den geteilten Platten je eine Verbindung zwischen den Teilen bestand (siehe Abb. 3.9). Durch das Anlegen einer Spannung an den Gitterhaltern konnte über diesen Aufbau ein homogenes E-Feld erzeugt werden, das je nach Ziel der Messung verschieden stark oder schwach ausfiel.

Die im Ergebnisteil dieser Arbeit vorgestellte Messung wurden beide auf der langen Spektrometerseite gemessen. Die Dimere wurden bei einem elektrischen Feld von 3,8 V/cm untersucht. Die Messungen des Grundzustandes des $^4\text{He}_3$, sowie die am $^3\text{He}^4\text{He}_3$, wurden durch Anlegen einer Gesamtspannung von 400 V bei 15,25 V/cm durchgeführt. Für die Suche des angeregten $^4\text{He}_3$ -Zustandes wurde das elektrische Feld auf 3,74 V/cm eingestellt. Die im Anhang gezeigten Vergleichsmessungen wurden teils bei anderen Einstellungen getätigt. Der jeweilige Wert des E-Feldes und die verwendete Spektrometerseite werden im Anhang genannt.

3.2.1.4 Detektoren

Die Detektoren sind mit einem Abstand von etwa 5 mm zum Gitter an beiden Enden des Spektrometers angebracht. Sie haben die Aufgabe den Zeitpunkt des Auftreffens der Ionen und deren Auftreffort zu messen. Unter Kenntnis der Spektrometergeometrie, dem Reaktionszeitpunkt und dem elektrischen Feld kann mit diesen Informationen der Impuls der Teilchen bestimmt werden (siehe Kapitel 4.1.2).

Die Basis für die Zeitgebung bildet das Micro Channel Plate (ab hier verkürzt MCP). Es besteht aus einer Glasplatte, welche sich aus sehr vielen kurzen Kapillaren zusammensetzt. Diese haben bei den verwendeten MCPs einen Durchmesser von 25 μm . Um die Austrittsarbeit für Elektronen zu verringern, ist das Glas mit speziellen Materialien beschichtet (z.B. Cäsiumjodid, Magnesiumfluorid oder Kupferjodid [Cza99]). Trifft nun ein Teilchen in einen

der Kapillar-Kanäle, so löst es bei ausreichender Geschwindigkeit dort ein Elektron aus. Durch eine Potentialdifferenz von 800-1200 V pro MCP wird dieses Elektron weiter in die Kapillare hinein gezogen. Da diese um einen Winkel von 5-15° geneigt ist [Dro06], löst es eine Kaskade weiterer Wandberührungen aus. Bei jeder dieser Kontakte werden weitere Sekundärelektronen ausgelöst, so dass pro MCP eine Verstärkung von ca. 10^3 entsteht. Um diesen Faktor noch zu erhöhen, werden üblicherweise entweder zwei („Chevron Anordnung“) oder drei („Z-Stack Anordnung“) MCPs gestapelt. Hierbei ist darauf zu achten, dass die Neigung der Kapillaren möglichst in entgegengesetzte Richtungen zeigt. Hiermit sind Verstärkungen $> 10^6$ möglich. Die offene Fläche der MCPs beträgt etwa 50-60% und entspricht auch deren Nachweiseffizienz [Kre05]. Wurde eine Elektronenlawine ausgelöst, so ist das MCP nach ihr positiv geladen. Über die Spannungsversorgung wird dies ausgeglichen. Dieser Wechselstrom lässt sich über die verwendete Elektronik kapazitiv auskoppeln und als Zeitsignal verwenden.

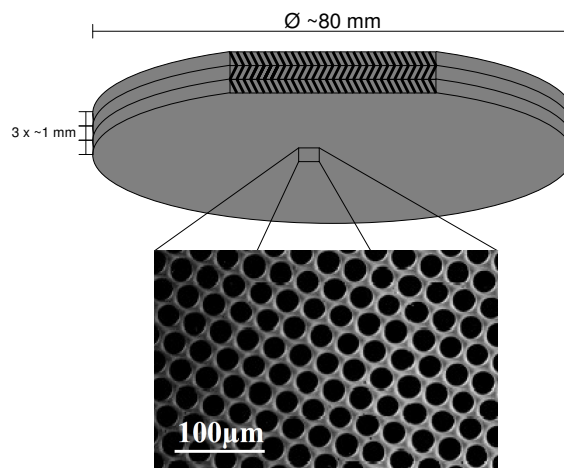


Abbildung 3.10: Schematische Darstellung eines Micro Channel Plate Z-Stacks mit einer vergrößerten Aufnahme der Oberfläche des MCPs [Jah05]

Die Ortsinformation erhält man durch die hinter den MCPs platzierte Anode. Diese besteht aus einem durch Keramik isolierten Metallkörper, um den Drähte aus einer Kupferlegierung helisch gewickelt sind. Durch einen Potentialsprung wird die aus dem MCP austretende Elektronenlawine auf diese Drähte gezogen. Auf einem Draht gelandet, läuft diese Ladung nun zu dessen beiden Enden, wo sie als Wechselstrom detektiert werden kann. Über die Laufzeitdifferenz dieser Signale gegenüber dem MCP-Signal lässt sich nun der Auftreffort der Elektronenwolke bestimmen. Um eine Leitung mit geringerer Dispersion zu erlangen, sind nicht ein Draht, sondern zwei Drähte parallel um den Kern gewickelt. Liegen diese nun auf einem unterschiedlichen Potential (schon etwa 50 V reichen), werden die Elektronen nahezu

ausschließlich vom positiveren Draht (der Signaldraht) aufgenommen. Der weniger positive Draht (Referenzdraht) bildet daraufhin eine im Vorzeichen umgekehrte Spiegelladung, welche parallel zum eigentlichen Puls über den Draht propagiert. Dieses Prinzip ist eine einfache Realisierung einer Lecher-Leitung [Lex3]. Durch Differenzbildung zwischen Signal und Referenz an den Enden mit Hilfe eines Differenzenverstärkers, lässt sich das Signal auf diese Weise verstärken. Ein positiver Zusatzeffekt hiervon ist es, dass Störsignale auf beiden Drähten identisch vorliegen und sich daher bei Differenzbildung auslöschen.

Trotz eines Abstandes von 1 mm zwischen zwei Wicklungen des Signaldrahtes ist die Ortsauflösung einer solchen Anode $< 100 \mu\text{m}$. Dies ist durch den 5-10 mm großen Abstand zwischen MCP und Anode zu erklären. In diesem Bereich weitet sich die Elektronenwolke soweit auf, dass sie gleich mehrere Signaldrähte trifft. Über eine Schwerpunktsbildung lässt sich nun diese gute Ortsauflösung erreichen.

Da eine Wicklung um den Anodenkörper nur eine Ortsinformation in eine Richtung bringt, sind mindestens zwei orthogonale Wicklungen um einen quadratischen Körper („Quad-Anode“) nötig. Trifft jedoch nicht nur ein Teilchen, sondern zwei mit einem kurzen Zeitabstand auf den Detektor, so kann es beim Nachweis des zweiten zu Schwierigkeiten kommen. Da die Signale auf dem Draht trotz Lecher-Leitung noch an Breite gewinnen, kann es passieren, dass Signale die nahe nebeneinander entstehen bis zum Ende des Drahtes ineinander gelaufen sind und nur als ein Puls detektiert werden. Auf diese Weise kann die Ortsinformation des zweiten Teilchens in mindestens eine Richtung verloren gehen. Um die Wahrscheinlichkeit hierfür zu verringern kann man eine dritte Wicklung (um einen hexagonalen Körper) hinzufügen; man bezeichnet die Anode als „Hex-Anode“. Auf diese Weise erhält man zwei redundante Ortsinformationen, welche den Bereich in dem das eben beschriebene Problem auftritt, stark reduziert (siehe Abb. 3.11).

Hat man einen Einschlag von zwei Teilchen im MCP der nahezu gleichzeitig ist, so ist es möglich, dass die zeitgebenden MCP-Signale ineinander verlaufen und nur als ein Ereignis detektiert werden. Die Zeitauflösung des MCPs liegt bei einem 80 mm MCP mit $25 \mu\text{m}$ Kapillardurchmesser in etwa bei 200 ps [Voi09]. Lassen sich diese jedoch durch die Anode im Ort voneinander trennen, so kann auch die Zeitinformation rekonstruiert werden. Hierzu nutzt man die Tatsache, dass die Laufzeit über die komplette Anodenwicklung (die Summe der Einzellaufzeiten) sich aus der Länge des Anodendrahtes und ei-

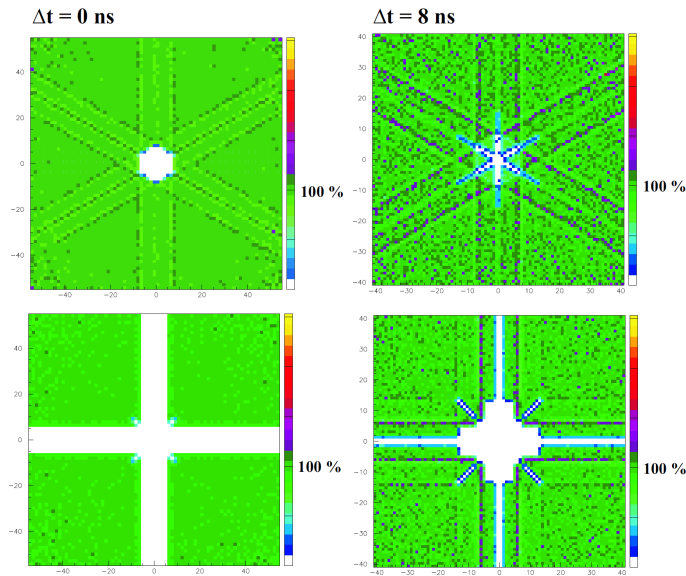


Abbildung 3.11: Nachweiseffektivität für ein zweites Ereignis nach einer Zeitdifferenz Δt von 0 ns und 8 ns auf einer Quad-Anode (unten) und einer Hex-Anode (oben). Das erste Ereignis tritt hierbei im Ursprung auf. In weißen Regionen ist der Nachweis des zweiten Ereignisses ausgeschlossen. (aus [Jah05])

nem konstanten Zeitversatz, der Flugzeit zwischen MCP und Anode, zusammensetzt.

Um die Nachweiseffektivität für mehrere Teilchen zu verbessern, wurde auf einer Seite des Spektrometers eine erst kürzlich entwickelte 2/3-Anode verwendet. Im Vergleich zur normalen Hex-Anode ist hier der Abstand zwischen Signal- und Referenzdraht auch 0,5 mm, der zum nächsten Signal- und Referenzpaar jedoch 1 mm. Die Idee hierbei ist, eine klare Zugehörigkeit von Signal- und Referenzdraht zu schaffen, wodurch nur auf einem benachbarten Draht eine Bildladung entsteht. Auf diese Weise sollte das Prinzip der Lecher-Leitung besser funktionieren und weniger Dispersion entstehen. Ein weiterer Vorteil dieser Bauart ist die Verkürzung des Anodendrahtes. Auch dies sollte dazu führen, dass die Signale am Ende des Drahtes eine geringere Breite haben und daher besser zu trennen sind. Ein möglicher Nachteil dieser Variante ist die durch den erhöhten Abstand der Drähte verringerte Ortsauflösung. In den getätigten Messungen konnte jedoch weder deutliche Vor- noch Nachteil gesehen werden.

3.2.1.5 Elektronik und Datenaufnahme

Nachdem die Signale vom MCP bzw. vom Differenzenverstärker hinter der Anode die Vakuumkammer verlassen, werden sie über ein RC-Glied vom hohen Potential des Detektors getrennt. Diese reinen Wechselstromsignale wer-

den dann von einem Verstärker auf über 1 V Höhe verstärkt [Famp] und das MCP auf negative Polarität invertiert.

Die verstärkten Signale werden zum Constant Fraction Discriminator (CFD) weitergeleitet. Dieser hat die Aufgabe aus dem analogen Puls ein genormtes digitales Signal zu erzeugen, welches zeitlich unabhängig von der Höhe des Ausgangspulses ist. Durch Aufspaltung des Eingangssignals werden zwei, über ein Potentiometer einstellbare, unterschiedlich hohe Pulse erzeugt. Einer von ihnen wird invertiert, der andere zeitlich verzögert. Werden diese zwei Pulse nun wieder addiert, so entsteht ein bipolarer Puls. Dieser fällt zuerst zu negativen Werten ab, bevor er in seiner Mitte einen Nulldurchgang hat. Hiernach kommt ein Anstieg ins Positive, bevor das Signal wieder auf die Nulllinie fällt. Eine positive Eigenschaft dieses Signals ist es, dass der mittlere Nulldurchgang zeitlich unabhängig von der Höhe des ursprünglichen Signals ist. Zum Zeitpunkt dieses Nulldurchgangs erzeugt der CFD nun ein NIM-Signal (Nuclear Instrumentation Method). Um Untergrund und Rauschen nicht in NIM-Signale zu verarbeiten, besitzt der CFD noch eine Schwelleneinstellung welche festlegt, ab welcher ursprünglichen Pulshöhe ein Ausgangssignal erzeugt wird (näheres zum CFD in [CFD]).

Verarbeitet wird dieses Signal von der Time-to-Digital-Converter-Karte (TDC) [TDC]. Diese Karte liest das Signal mit einer Zeitauflösung von 25 ps in den PC ein. Der verwendete TDC besitzt 16 Kanäle von denen jedoch nur acht aktiv verwendet wurden. Die Informationen der sechs Anodensignale, des MCP-Signals und einer Photodiode wurden im Computer mittels einer Software namens Cobold aufgenommen und für eine erste Online-Analyse verarbeitet. Die absoluten Flugzeiten, welche zur Berechnung der Impulse benötigt werden, berechnen sich als Differenz des Laserpulses (der Photodiode) und des MCP-Signals. Dieses wiederum wurde als Start der Aufnahme (als „Trigger“) verwendet. Die Ereignisse werden demnach nur notiert, wenn mindestens ein Ion gemessen wurde. Näheres zur Berechnung der Flugzeiten und der Auftrefforte, sowie zur weiteren Analyse ist in Kapitel 4 zu finden.

3.2.2 Beugungsgitter

Um die im Jet enthaltenen Cluster zu separieren wurde in die Mitte zwischen Düse und Reaktionszone ein Transmissionsbeugungsgitter platziert. Dieses wurde durch ein lasinterferometrisches Verfahren aus einer dünnen Silizium-Nitrit Platte am MIT (Massachusetts Institute of Technology) hergestellt. Hierbei entstehen trapezförmige Gitterstäbe mit einer sehr homogenen Breite und Dicke [Gri00c]. Dieses Verfahren wurde in der MIT-Gruppe von

Hank Smith perfektioniert, so dass Gitter mit einer so kleinen Periode produziert werden konnten, die die Untersuchung der Beugungsbilder von Atom- und Molekülstrahlen ermöglichten.

Die in dieser Arbeit verwendeten Gitter befinden sich etwa 50 cm hinter der Düse und die gleiche Strecke vor der Reaktionszone entfernt und sind an einem 1D-Manipulator mit zwei Rotationsachsen befestigt. Auf einem Gitterhalter befinden sich drei identische Gitter mit einer Periode von 100 nm (siehe Bild 3.12 a)). Diese setzt sich aus je 50 nm breiten Stegen und Spalten zusammen. Hierbei ist der Steg jedoch wie ein Trapez geformt und wird mit der schmalen Kante in Richtung Düse platziert (siehe Bild 3.12 b)). Die drei Gitter sind je 1 mm breit und ebenfalls 1 mm voneinander entfernt. Da die Höhe der Gitter etwa 9 mm beträgt, sind die 50 nm breiten Stege nicht stabil genug und werden daher alle 5 μm von einer orthogonalen Strebe verstärkt (siehe Bild 3.12 c)).

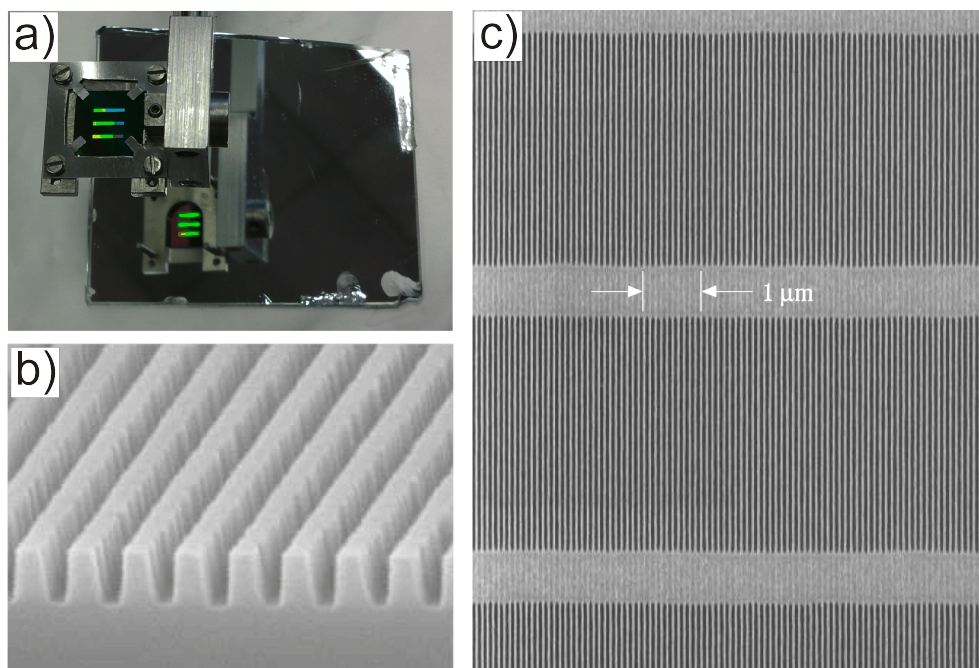


Abbildung 3.12: a) Fotografie des Transmissionsdiffraktionsgitters in seiner Halterung, b) Aufnahme mit einem Elektronenmikroskop von der Form der Gitterstäbe, bevor diese vom Substrat per Ätzung getrennt werden (aus [Gri00c]) und c) elektronenmikroskopische Aufnahme des Gitters samt seiner Stabilisierungsstege (aus [Gri00c]).

Um den Jet zu kollimieren, ist vor der Gitterhalterung an einem weiteren 1D-Manipulator ein 25 μm breiter Schlitz angebracht. Dieser wird so platziert, dass nur eines der drei Gitter vom Jet getroffen wird.

Wie bereits in Kapitel 2.5.2 theoretisch beschrieben, besitzen die in der freien Gasexpansion entstandenen Cluster unterschiedliche Wellenlängen. Dies

führt dazu, dass sie vom Beugungsgitter unterschiedlich stark abgelenkt werden. Um das so entstehende Beugungsbild zu untersuchen, wurden nun sowohl die Düse, als auch der Laserfokus auf einem fixen Ort gelassen und der Schlitz und das Gitter mit Hilfe der Mikrometerschrauben parallel verfahren. Auf diese Weise kann über das ColTRIMS, bzw. alternativ über das im Jet-Dump befindliche Massenspektrometer, das Beugungsbild abgerastert werden.

Um eine grobe Vorstellung zu bekommen, an welcher Stelle die verschiedenen Maxima des Beugungsbildes zu erwarten sind, ist es hilfreich die zu erwartende Ablenkung vorher zu berechnen. Hierfür muss zuerst der Aufbau betrachtet werden.

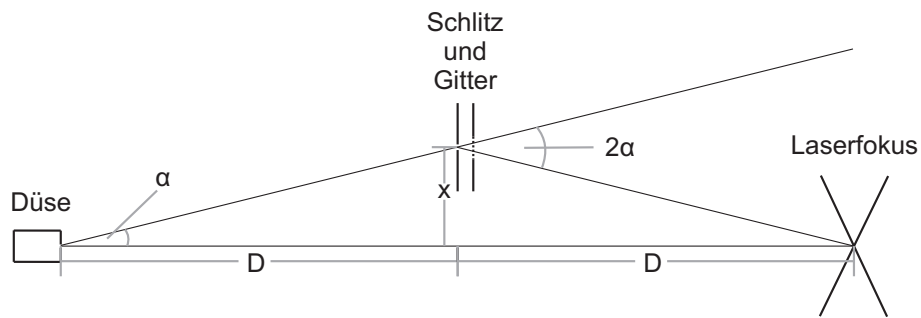


Abbildung 3.13: Schematische Darstellung des Beugungsapparates. Per Schlitz wird aus dem Jet ein Teil ausgeschnitten, der einen gewissen Winkel (α) zur geraden Ausbreitung hat. Das Gitter beugt diesen Teil um den Winkel $2 \cdot \alpha$, so dass er vom Laserfokus ionisiert werden kann. Der direkte Weg ist hierbei durch die Gitter- und Schlitzhalterungen versperrt.

Wie aus Abbildung 3.13 zu erkennen ist, ist der in Gleichung 2.37 gegebene Ablenkwinkel $\sin(\Phi)$ durch $\sin(2\alpha)$ gegeben. Da es sich im Experiment nur um sehr kleine Winkel handelt, kann $\sin(\Phi)$ durch Φ genähert werden. Zudem ist es möglich die Näherung $\alpha = x/D$ zu machen. Setzt man dies nun in Gleichung 2.37 ein und stellt nach x um, erhält man für die erste Ordnung der Monomere:

$$x = \frac{D \cdot h}{2 \cdot m \cdot v \cdot g}, \quad (3.14)$$

hierbei ist D der Abstand zwischen Quelle und Gitter, h das Planck'sche Wirkungsquantum, m die Masse des Heliums, v die Jetgeschwindigkeit und g die Gitterkonstante. Setzt man nun eine Jetgeschwindigkeit von 380 m/s und eine Gitterkonstante von 100 nm ein, so erhält man die Position des ersten Monomermaximums:

$$x = 0,65 \text{ mm}. \quad (3.15)$$

Die Position des Dimers muss daher bei $x = 0,325$ mm und die des Trimers bei $0,217$ mm liegen. Befinden sich im Experiment die Maxima in etwa an diesen Positionen kann davon ausgegangen werden, dass das Gitter unbeschädigt ist und die Auftrennung der verschiedenen Cluster funktioniert.

Eine Berechnung der Breite der einzelnen Maxima soll an dieser Stelle nicht getätigt werden. Sie wurde bereits in der Bachelor-Arbeit von Jasper Becht [Bec12] durchgeführt und kam zum Ergebnis, dass die Breite der einzelnen Maxima ausreichend schmal sind um eine Trennung zu gewährleisten. Die damals betrachtete Auflösung wurde seit dem noch verbessert indem anstelle eines $100\text{ }\mu\text{m}$ Schlitzes einer mit $25\text{ }\mu\text{m}$ verwendet wurde.

4. Datenanalyse und Kalibration

Um eine Impulsspektroskopie mit der inzwischen weltweit etablierten ColTRIMS-Technik durchzuführen, müssen aus den im Experiment gemessenen Zeiten zuerst elementare Größen wie die Teilchen-Flugzeit und Auftreffort errechnet werden. Mit Hilfe dieser Größen können dann Teilchen-Impulse bestimmt werden.

Über das Vermessen bereits bekannter Systeme kann das verwendete ColTRIMS-System nun kalibriert werden. Dies ist nötig um das zu untersuchende unbekannte System richtig zu analysieren. Ist die Kalibration gelungen, können die Impulse und andere abgeleitete Größen des Systems in verschiedenen Spektren gegeneinander aufgezeichnet werden, um eine bessere Einsicht in das unbekannte System zu erhalten.

Diese einzelnen Schritte der Analyse, sowie die nötigen Spektren, sollen in diesem Kapitel erläutert werden, um die in den folgenden Kapiteln getätigte Ergebnisanalyse zu verstehen.

4.1 Datenanalyse

4.1.1 Flugzeiten und Orte

Wie bereits in Kapitel 3.2 beschrieben, detektiert die ans Experiment angeschlossene Elektronik folgende Signale:

- 6 Anoden-Signale
- 1 MCP-Signal
- 1 Photodioden-Signal

Notiert werden die Signale hierbei als Zeitdifferenzen zum „Trigger“, dem Signal, welches der Software den Befehl zum Aufnehmen der Daten gibt. In den in dieser Arbeit beschriebenen Messungen wurde immer das Signal des Microchannel Plates des Ions als Trigger verwendet.

Um den Auftreffort eines Teilchens auf dem Detektor zu bestimmen, benutzt man das Signal der Delay-Line Anoden. Der Ort entlang einer Anodenwicklung (auch „Layer“) wird über die Differenz der zwei Enden berechnet:

$$u = (t_{u1} - t_{u2}) \cdot u_{scale}. \quad (4.1)$$

Hierbei ist u_{scale} ein Faktor welcher für die Umrechnung von gemessenen Laufzeiten der Signale auf der Anode (in ns) in die Größe des Detektors (in mm) sorgt (siehe Kapitel 4.2.1). Analoges Vorgehen gilt auch für die v und w Wicklung der Hexanode, wobei die Skalierfaktoren aufgrund der leicht unterschiedlichen Länge der Wicklungen verschieden sind.

Treffen zwei oder mehrere Teilchen auf den Detektor, so kann schon die richtige Zuordnung der Signale zu Problemen führen. Diese lassen sich jedoch für die meisten Ereignisse lösen indem man die Zeitsumme betrachtet:

$$t_{sum} = t_{u,1} + t_{u,2} - 2 \cdot t_{MCP}. \quad (4.2)$$

Sie ist für jeden Layer eine Konstante, die nur von deren Länge und der vom Material abhängigen Ausbreitungsgeschwindigkeit der Signale auf dem Draht abhängt. Nur, wenn zwei Signale den spezifischen Wert der Zeitsumme ergeben, gehören sie zu einem Ereignis.

Für kurz hintereinander und nahe beieinander auftreffende Teilchen kann jedoch der Fall eintreten, dass die verschiedenen Signale aufgrund der Dispersion ineinander laufen. Passiert dies, ist die Zeitsumme nicht mehr ausreichend um eine korrekte Zuordnung zusammengehöriger Signale auf einem Layer zu gewährleisten. Die Anodenwicklung kann nun keine Ortsinformation für das zweite Ereignis mehr liefern (siehe Abbildung 3.11).

Für Experimente bei denen mit mehreren nahe beieinander liegenden Ereignissen zu rechnen ist (Multi-Hit Ereignisse), wird daher eine Hex-Anode (Sechseckiger Korpus mit drei Wicklungen) verwendet. Da hier die einzelnen Layer um 60° gegeneinander verdreht sind, berechnen sich die kartesischen Koordinaten nach folgenden Formeln:

$$X_{uv} = u \quad (4.3)$$

$$Y_{uv} = \frac{1}{\sqrt{3}}(u - 2v) \quad (4.4)$$

$$X_{uw} = u \quad (4.5)$$

$$Y_{uw} = \frac{1}{\sqrt{3}}(2w - u) \quad (4.6)$$

$$X_{vw} = v + w \quad (4.7)$$

$$Y_{vw} = \frac{1}{\sqrt{3}}(w - v) \quad (4.8)$$

Wie zu erkennen ist, sind nur zwei der drei Layer nötig, um eine 2d-Ortsbild zu erstellen. Aufgrund dieser redundanten Informationen ist es möglich nicht detektierte Signale zu rekonstruieren. Dies geschieht vollkommen automatisch durch einen von A. Czasch et al. geschriebenen Algorithmus (enthalten in `lmf2root` [Cza11]).

Für die Impulsberechnung sind jedoch nicht nur die Auftrefforte der Teilchen, sondern auch die Flugzeit der Ionen (auch kurz TOF, „Time of Flight“) und damit auch der Reaktionszeitpunkt nötig. In den getätigten Messungen wird der Reaktionszeitpunkt durch den etwa 40 fs langen Laserpuls definiert. Dieser wird mit Hilfe einer Photodiode etwa 40 cm vor der Reaktionszone gemessen. Diese Distanz kann aufgrund der Lichtgeschwindigkeit vernachlässigt werden. Die Flugzeit berechnet sich daher mit der einfachen Formel:

$$t_{TOF} = t_{MCP} - t_{DIODE} \quad (4.9)$$

Unter Kenntnis der in Kapitel 3.2.1.3 beschriebenen Spektrometer-Geometrie und der elektrischen Feldstärke kann man mit Informationen über Auftreffort und Flugzeit die Anfangsimpulse der Teilchen berechnen. Dies soll im nächsten Abschnitt hergeleitet werden.

4.1.2 Impulse

In dem in dieser Arbeit verwendeten Spektrometer wurde auf jegliche Orts- und Flugzeitfokussierung verzichtet (siehe Kapitel 3.2.1.3). Es besteht nur aus einer Beschleunigungsstrecke, die durch ein homogenes elektrisches Feld gebildet wird. Demnach erfährt ein geladenes Teilchen nur entlang der Spektrometerachse (Z-Achse) eine beschleunigende Kraft durch das Spektrometer. Die Beschleunigung wird dabei durch folgende Formel ausgedrückt:

$$a = \frac{q \cdot E}{m} \quad (4.10)$$

mit der Teilchenladung q (in atomaren Einheiten), dem elektrischen Feld E und der Teilchenmasse m .

Will man die Bewegung eines Teilchens in Richtung der Z-Achse beschreiben, so kann man dies mit klassischer Mechanik tun:

$$r_z = \frac{p_z \cdot t}{m} + \frac{1}{2} \frac{q \cdot E \cdot t^2}{m} \quad (4.11)$$

hier ist r_z die Position in Z-Richtung und p_z der Anfangsimpuls.

Löst man diese Gleichung nach dem Impuls auf, so erhält man durch Einsetzen von Ladung q , Flugzeit t , Masse m , E-Feld E und Spektrometerlänge s_z den Startimpuls:

$$p_z = \frac{s_z \cdot m}{t} - \frac{1}{2} \cdot qEt \quad (4.12)$$

Da in der Detektorebene (XY-Ebene) keine beschleunigenden Kräfte wirken, ist die Berechnung des Anfangsimpulses hier noch einfacher. Er ergibt sich durch Umformung aus einer konstanten Bewegung $s = v \cdot t = \frac{p}{m} \cdot t$ zu:

$$p_{x/y} = m \cdot \frac{s_{x/y}}{t} \quad (4.13)$$

Diese simplen Formeln sind ausreichend für die Kalibration des Spektrometers. Nutzt man jedoch einen Zweiteilchenaufbruch und misst beide Fragmente in Koinzidenz, kann man es sich noch leichter machen [Mec11].

Betrachtet man Gleichung 4.11 nicht nur für das erste, sondern für beide Teilchen, ist sofort zu erkennen, dass sich die Spektrometerlänge s_z aus der Gleichung kürzen lässt:

$$\begin{aligned} s_{z,i} &= \frac{p_{z,1} \cdot t_1}{m_1} + \frac{1}{2} \frac{q_1 \cdot E \cdot t_1^2}{m_1} \\ &= \frac{p_{z,2} \cdot t_2}{m_2} + \frac{1}{2} \frac{q_2 \cdot E \cdot t_2^2}{m_2} \end{aligned} \quad (4.14)$$

Unter Berücksichtigung der Impulserhaltung ($p_1 = -p_2$, unter Vernachlässigung des Elektronenimpulses) ergibt sich für den Anfangsimpuls in Spektrometerrichtung folgender Zusammenhang:

$$p_z = \frac{1}{2} E \frac{m_1 q_2 t_2^2 - m_2 q_1 t_1^2}{m_2 t_1 + m_1 t_2} \quad (4.15)$$

Bei gleicher Masse und Ladung lässt sich dieser Ausdruck noch weiter vereinfachen zu:

$$p_z = \frac{1}{2} q \cdot E (t_2 - t_1) \quad (4.16)$$

Diese Formel eliminiert sogar mögliche Verschiebungen in der Flugzeit, ist jedoch nur anwendbar, wenn entlang der Spektrometerachse, in Flugzeitrichtung, von einem vernachlässigbaren Schwerpunktsimpuls ausgegangen werden kann. Ansonsten ist Gleichung 4.12 vorzuziehen. Für die Berechnung des KER wurden letztendlich die Formeln 4.15, 4.18 und 4.19 verwendet. Im Vergleich zu Formeln 4.12 und 4.13 ergaben diese die schmalere Maxima in den Kalibrationsmessungen. Daher ist davon auszugehen, dass die Unsicherheit im Startort, welche durch die Formeln 4.15, 4.18 und 4.19 eliminiert wird, größer ist, als der Fehler durch den Schwerpunktsimpuls, der durch die Differenz von Formeln 4.12 und 4.13 gekürzt wird.

Einen ähnlichen Ansatz kann man auch für die Impulse in der Detektorebene, in Ortsrichtung, wählen. Bildet man die Differenz zwischen zwei korrelierten Auftrefforten, kann man sich einer möglichen Ortsverschiebung ($r_{0_{X,Y}}$) entledigen:

$$\begin{aligned} r_{2_{X,Y}} - r_{1_{X,Y}} &= (r_{2_{X,Y}} + r_{0_{X,Y}}) - (r_{1_{X,Y}} + r_{0_{X,Y}}) \\ &= v_{2_{X,Y}} \cdot t_2 - v_{1_{X,Y}} \cdot t_1 \\ &= p_{2_{X,Y}} \frac{t_2}{m_2} - p_{1_{X,Y}} \frac{t_1}{m_1} \end{aligned} \quad (4.17)$$

Geht man auch hier von Impulserhaltung ($p_1 = -p_2$) aus und löst die Gleichung nach dem Anfangsimpuls auf, erhält man:

$$p_{X,Y} = m_1 m_2 \cdot \frac{r_{2_{X,Y}} - r_{1_{X,Y}}}{m_2 t_1 + m_1 t_2} \quad (4.18)$$

Auch hier ist einem eventuellen Schwerpunktsimpuls keinerlei Rechnung getragen. Dieser ist bei einem ColTRIMS-Experiment zumindest in Ausbreitungsrichtung des Jets immer vorhanden. Um dieses „Jet-Offset“ zu korrigieren, müssen wir in Richtung des Gasstrahls (Y-Richtung) den Schwerpunktsimpuls berücksichtigen. Der Relativimpuls in Y-Richtung ergibt sich damit zu:

$$p_{Y,rel} = m_1 m_2 (y_1 - y_2) + \frac{v_{jet}(t_2 - t_1)}{t_2 m_1 + t_1 m_2} \quad (4.19)$$

4.1.3 Histogramme

Um Einsichten in die gemessenen Daten zu bekommen, müssen diese in Histogrammen dargestellt werden. Dies wird bereits während der Messung mit

der in Frankfurt entwickelten Software Colbold [Cob08] getan. Hierdurch erlangt man erste Erkenntnisse, die helfen können das Experiment besser zu konfigurieren. Man spricht in diesem Fall von einer „Online-Analyse“.

Die eigentliche Auswertung der Daten geschieht erst nach Ende der Messung: die „Offline-Analyse“. Dazu wird die am CERN (Conseil Européen pour la Recherche Nucléaire) entwickelte Software Root [root] verwendet. Diese basiert auf der Programmiersprache C++ und bildet ein mächtiges Gerüst mit höherer Variabilität als Colbold.

Hierfür müssen die über den TDC aufgenommenen Daten, welche als Liste von Zeitdifferenzen zum Trigger („List Mode Files“, *.lmf) notiert wurden, erst in Orte und Flugzeiten umgerechnet werden. Dies geschieht über einen von A. Czasch et al. [Cza11] geschriebenes Programm namens „lmf2root“. In dessen Quelltext kann die Berechnung der Impulse und weiterer Größen implementiert und Histogramme zur Analyse definiert werden.

Die für die Datenanalyse und Darstellung der Ergebnisse wichtigsten Histogramme sollen an dieser Stelle kurz erklärt werden.

Photoion-Photoion-Coincidence

Besteht eine Messung aus dem Aufbruch eines Moleküls in zwei oder mehr Fragmente, ist es meist hilfreich deren korrelierte Flugzeiten zu betrachten. Dies geschieht im sogenannten Photoion-Photoion-Coincidence (PiPiCo) Histogramm. In dieser zweidimensionalen Darstellung ist auf der X-Achse die Flugzeit des ersten Ions dargestellt, auf der Y-Achse die des zweiten.

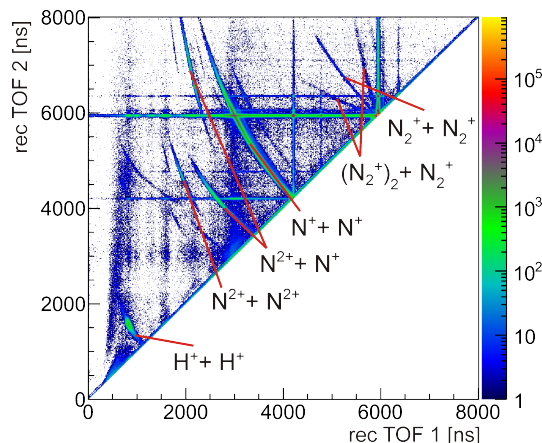


Abbildung 4.1: Exemplarische Darstellung eines PiPiCo Histogramms anhand einer Messung von Stickstoff.

Für einen Aufbruch lassen sich in diesem Bild gut verschiedene Reaktionskanäle erkennen. Handelt es sich um die Darstellung zweier Teilchen aus einem Aufbruch, in dem Impulserhaltung gilt, der Summenimpuls null ist, bildet sich eine scharfe Linie als Signatur des Kanals. Haben die zwei Teilchen die gleiche Masse, ist diese Linie diagonal.

Werden zwei Teilchen dargestellt, deren Summenimpuls ungleich null ist, so ergeben sich keine scharfen Strukturen im Histogramm. Dies können Ereignisse sein, bei denen ein drittes, nicht dargestelltes Teilchen einen gewissen Impuls besitzt, was zu einer Verschmierung der Linien führt. Eine weitere Möglichkeit, dass bei Ereignissen der Impuls nicht erhalten ist, ist durch falsche Koinzidenzen gegeben. Diese können entstehen wenn ein Laserpuls mehrere Moleküle ionisiert und die zwei Ionen damit nicht aus einem Aufbruch stammen.

Äquivalent zum PiPiCo Histogramm für zwei Ionen gibt es auch eine Darstellung für drei. Dieses Dreiteilchen-PiPiCo (auch PiPiPiCo oder TriPiCo) Histogramm bildet auf der X-Achse die Summe der Flugzeiten von den zwei zuerst detektierten Ionen ab und auf der Y-Achse die Flugzeit des dritten. Genau wie beim PiPiCo Histogramm würde ein dreiteilchen Aufbruch hier eine scharfe Linie ergeben.

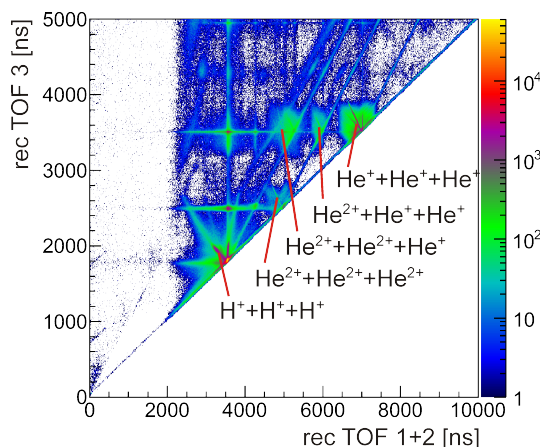


Abbildung 4.2: Exemplarische Darstellung eines PiPiPiCo Histogramms anhand einer Messung von Heliumtrimeren. Neben Ereignissen, die scharfe Strukturen erzeugen, sind auch Bereiche mit höherer Zählrate zu erkennen. Diese entstehen durch Ereignisse, bei denen die dargestellten Teilchen einen Summenimpuls ungleich null haben.

Wie später in Kapitel 4.2 zu sehen ist, haben PiPiCo und Dreiteilchen-PiPiCo eine wichtige Rolle beim Aussortieren uninteressanter Reaktionskanäle und falscher Koinzidenzen.

Analog zum PiPiCo Histogramm, welches die Reaktion nur in Z-Richtung beschreibt, kann man auch für die Raumrichtung in der Detektorebene ein Hi-

stogramm mit ähnlicher Aussage erstellen. Hierzu trägt man den Teilchenimpuls in eine Raumrichtung des ersten Teilchens gegen den des zweiten auf. Auch hier ergeben Ereignisse die aus einer Coulomb-Explosion entstehen und einen Summenimpuls von null haben, scharfe (diagonale) Linien. Auch dieses Histogramm lässt sich gut zur Unterdrückung unerwünschter Ereignisse verwenden.

KER und Abstand

Während das eben beschriebene PiPiCo Histogramm bevorzugt zur Bestimmung der Aufbruchkanäle und zur Eliminierung des Untergrundes dient, werden die Verteilungen des „kinetic energy releases“ (KER) und des Abstandes üblicherweise nur für die verbleibenden Ereignisse nach dem Abzug des Untergrundes verwendet.

Für einen Zweiteilchenaufbruch berechnet sich der KER, die kinetische Energie der Fragmente im Schwerpunktsystem, einfach aus dem relativen Impuls, den sie in der Coulomb-Explosion erhalten. Hierfür muss erst aus den in Gleichung 4.15 und 4.18 bzw. 4.19 beschriebenen Formeln der gesamte Relativimpuls berechnet werden:

$$p_{rel} = \sqrt{p_x^2 + p_y^2 + p_z^2} \quad (4.20)$$

Aus diesem Relativimpuls des Gesamtsystems kann nun die kinetische Energie berechnet werden:

$$KER = \frac{p_{rel}^2}{2\mu}, \quad (4.21)$$

mit der reduzierten Masse μ .

Aus der „Reflection Approximation“ [Gis73] (siehe 2.6.1) kann aus diesem KER eine gute Näherung für den Abstand der Atome vor der Coulomb-Explosion gewonnen werden. Waren sie nahe beieinander, so erhalten sie durch die Abstoßung viel kinetische Energie. Waren sie weit entfernt, einen niedrigen KER. Dieser antiproportionale Zusammenhang lässt sich in guter Näherung über folgende Formel beschreiben:

$$R = \frac{1}{KER}. \quad (4.22)$$

Bei drei oder mehr Teilchen errechnet man den Impuls jedes einzelnen Teilchens im Bezug auf den Massenschwerpunkt des Systems. Daraus kann die

relative kinetische Energie jedes Teilchens berechnet werden. Durch Summation ergibt sich schließlich der gesamt KER des Systems.

Per Reflection Approximation lässt sich in diesem Fall nur noch der mittlere Teilchenabstand berechnen. Dieser ist nur unter der Annahme korrekt, dass die Teilchen einen symmetrischen Aufbau zum Massenschwerpunkt haben. Auch wenn dies nicht der Fall ist, kann der über die Reflection Approximation berechnete Abstand eine Abschätzung der Ausdehnung des Moleküls vor der Ionisation geben. Für eine konkrete Aussage über den Abstand der Atome ist sie jedoch ungeeignet, da man hierfür auch die Form des Moleküls berücksichtigen muss.

Zur Kalibration des Spektrometers vermisst man ein System, bei dem der KER sehr genau aus der Literatur bekannt ist. Durch kleine Anpassungen des elektrischen Feldes und der Spektrometerlänge (beide unterliegen einem gewissen Messfehler) kann nun der gemessene KER mit dem Literaturwert in Einklang gebracht werden. Macht man dies mit mehreren Aufbruchskanälen/mehreren Systemen, ist das Spektrometer im kompletten messbaren Energiespektrum kalibriert. Näheres hierzu in Kapite 4.2.

Dalitz Diagramm

Um mehr Informationen über einen Dreiteilchenaufbruch zu gewinnen, wurde 1953 eine neue Darstellungsform von R. H. Dalitz vorgeschlagen [Dal53]. In seiner Veröffentlichung beschrieb er den Zerfall von K-Mesonen (damals noch Tau Mesonen). Dieses aus der Kernphysik kommende Histogramm kann jedoch auf viele Zerfallsmechanismen angewendet werden. In dieser Arbeit wird diese Darstellung sowohl im Ortsraum, als auch im Impulsraum verwendet. Hierbei werden die Energien im Bezug auf die Gesamtenergie des Systems dargestellt, die Ortsvektoren auf die Gesamtgröße. Es gilt allgemein:

$$X = x_1 + x_2 + x_3. \quad (4.23)$$

Die Basis für das Histogramm bildet ein gleichseitiges Dreieck ABC, dessen Seiten die Länge $\frac{2X}{\sqrt{3}}$ haben. Zeichnet man nun einen Punkt in dieses Dreieck ein, hat er zu jeder Seite einen gewissen Abstand ($\overline{pa}$, $\overline{pb}$, $\overline{pc}$). Die Summe dieser drei Abstände ergibt wieder genau die Höhe des Dreiecks (Satz von Viviani), die ebenfalls der Vektorsumme X entspricht. Jeder Punkt innerhalb des Dreiecks entspricht einer anderen Kombination der Vektoren und daher einem anderen Ausgangszustand des Systems.

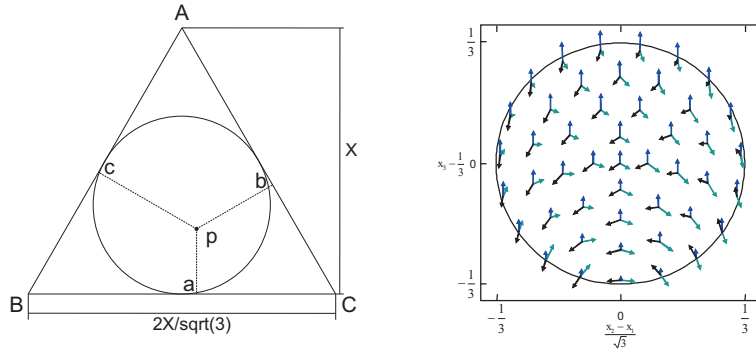


Abbildung 4.3: Links: allgemeiner Aufbau eines Dalitz Diagrams, rechts: Darstellung der verschiedenen Konfigurationen in einem Dalitz Diagramm, wie es in dieser Arbeit verwendet wird. Aufgrund von Erhaltungsgrößen kann nur der kreisförmige innere Bereich mit Ereignissen gefüllt sein.

Um viele verschiedene Ereignisse in ein Diagramm zeichnen zu können, bietet es sich an, die eingezeichneten Vektoren zu normieren. Hierfür wird jeder dargestellte Vektor durch die Summe der Beträge aller Vektoren geteilt. Hiernach ist es möglich eine „Karte“ zu erstellen, die die Häufigkeit der verschiedenen Konfigurationen wiedergibt.

Zur Darstellung eines Dalitz Diagramms ist es hilfreich, die Punkte innerhalb des Dreiecks durch kartesische Koordinaten darzustellen. Dies ist über folgende Relationen möglich:

$$X_{Dalitz} = x_1 - \frac{1}{3} \quad (4.24)$$

$$Y_{Dalitz} = \frac{x_2 - x_3}{\sqrt{3}} \quad (4.25)$$

Newton Diagramm

Eine weitere Darstellungsform eines Dreiteilchenaufbruchs ist das Newton Diagramm. Dieses wird häufig verwendet, um die Aufbruchsdynamik eines Prozesses zu illustrieren. Hierfür werden die relativen Geschwindigkeiten der Teilchen aufgetragen. Geschieht ein Aufbruch z.B. sequentiell, ist dies nicht im Dalitz Diagramm zu erkennen, jedoch im Newton Diagramm.

Zerfällt Molekül ABC zuerst in die Fragmente A und BC, bewegen sich diese unter einem 180° Winkel voneinander weg. Zerbricht nun Teilchen BC zu einem späteren Zeitpunkt in einer Entfernung, in der die Coulomb-Kraft von Teilchen A vernachlässigt werden kann, erhalten sie einen zusätzlichen Impuls unter 180° . Dieser führt, wegen verschiedenen Orientierungen von BC

zum Zeitpunkt ihres Aufbruchs, zu einer kreisförmigen Struktur um ihren Massenschwerpunkt.

Dargestellt wird das Newton Diagramm indem man die Geschwindigkeit des ersten Teilchens auf die positive X-Achse dreht. Das zweite und dritte Teilchen werden mit der selben Drehmatrix rotiert, so dass Teilchen zwei in der oberen Hälfte des Histogramms liegt (Bereich positiver Y-Achse) und Teilchen drei in der unteren Hälfte (Bereich negativer Y-Achse).

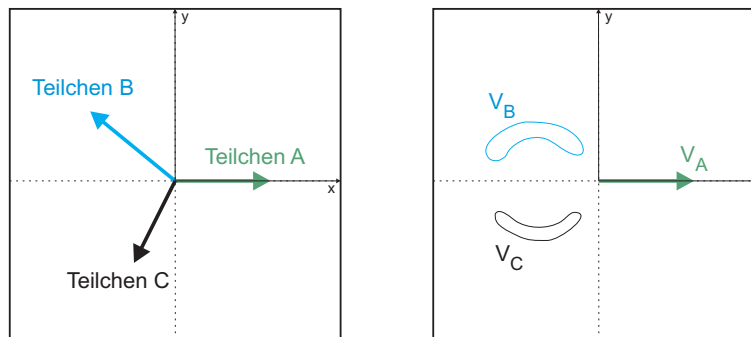


Abbildung 4.4: Links: allgemeiner Aufbau eines Newton Diagramms, rechts: Visualisierung des Newton Diagramms im Falle eines sequentiellen Aufbruchs. Der durch V_B und V_C beschriebene Kreis ist im Bezug auf den Ursprung des Koordinatensystems nach links verschoben

Haben alle Teilchen die gleiche Masse, ist das Newton Diagramm analog auch mit den Teilchenimpulsen zu verwenden.

In dieser Arbeit ist dieser übliche Nutzen des Newton Diagramms jedoch nur ein Test, da es sich bei der dreifachen Tunnelionisation eines Heliumtrimers in einem Femtosekunden-Laser nicht um einen sequentiellen Prozess handeln sollte. Der eigentliche Nutzen des Diagramms in dieser Arbeit besteht darin, dass in ihm, anders als im Dalitz Diagramm, die Größe des Impulses abgelesen werden kann. Da dies das eigentliche Ziel des Diagramms ist, werden keine relativen Geschwindigkeiten eingezeichnet, sondern die absoluten Impulse. Dies ermöglicht einen sehr guten Einblick in die Impulsverteilungen der einzelnen Fragmente. Gäbe es nun verschiedene Zustände des Trimers, welche sich in Bindungsenergie und damit im Impuls der Fragmente unterscheiden, sollten diese im Newton Diagramm leicht identifizierbar sein.

4.2 Kalibration der Messungen

Ein perfektes Spektrometer besteht aus einer genau bekannten Länge, einem perfekt homogenen Feld und einem exakt definierten Reaktionsort und

-zeitpunkt. In diesem System wäre eine Kalibration überflüssig, da aus den bekannten Größen die Impulse exakt bestimmt werden könnten.

In der Realität unterliegen sämtliche Größen jedoch einem Messfehler, Bauteile einer Toleranz und die angelegten Felder sind weder komplett homogen, noch exakt bekannt. Hinzu kommt, dass ein Spektrometer, das nur aus einer Beschleunigungsstrecke besteht, von einem Gitter abgeschlossen wird. Im kleinen Spalt zwischen diesem Gitter und dem Detektor liegt ein anderes Feld an. Diese zusätzliche Beschleunigungsstrecke ist in den zuvor beschriebenen Formeln nicht enthalten und sorgt daher für weitere Ungenauigkeiten.

Da diese und weitere Kleinigkeiten zu einer Abweichung vom idealen Spektrometer führen, ist es notwendig, das verwendete Spektrometer zu kalibrieren. Hierzu verwendet man Aufbruchskanäle bereits bekannter Systeme deren Energien in Referenzmessungen exakt bestimmt wurden. Ein gutes Kalibrationssystem hat daher bei einer bekannten Energie einen dominanten Reaktionskanal. Ist dieser in der Kalibrationsmessung als schmales Maximum zu erkennen, bietet das System eine gute Kalibration.

Da eines der Ziele dieser Arbeit eine sehr genaue Bestimmung der Bindungs- und damit auch Aufbruchsenergie des Heliumdimers ist, hat die exakte Kalibration eine besonders wichtige Bedeutung. Im Laufe der getätigten Messungen wurden daher vier verschiedene Kalibrationssysteme untersucht, um das bestmögliche Ergebnis zu erlangen.

4.2.1 Detektorkalibration und Vorsortierung

Um eine genaue Kalibration des Spektrometers zu erlangen, müssen zuerst einige Schritte durchgeführt werden, welche teilweise schon kurz in Kapitel 4.1.1 erwähnt wurden. Auf diese soll nun genauer eingegangen werden, um den Vorgang der Kalibration möglichst verständlich zu erklären.

Der erste Schritt besteht darin die in Gleichung 4.1 erwähnten Kalibrationsfaktoren für jeden Layer auf denselben Wert zu setzen. Damit lässt man sich die aufgenommenen Daten in Root anzeigen und übergibt an den `lmf2root` Algorithmus [Cza11] die zeitlichen Positionen und Breiten der Zeitsummen der einzelnen Wicklungen. Nun passt man die Skalenfaktoren gleichmäßig an, dass sie eine Umrechnung der gemessenen Laufzeiten in die Größe des MCPs liefern.

In einem nächsten Schritt verschiebt man den Detektor so, dass das runde MCP symmetrisch um den Koordinatenursprung liegt. Um Ereignisse her-

auszufiltern, welche nicht innerhalb des MCP Radius entstanden sind, wird nun eine maximale Laufzeit, die dem MCP Durchmesser entspricht, festgelegt.

Hat man diese Schritte richtig ausgeführt, nutzt man als nächstes die in den Algorithmus integrierte „Auto-Calibration“. Diese betrachtet die Ereignisse und berechnet neue Skalenfaktoren für die einzelnen Layer, die dafür sorgen, dass die Ereignisse aller Wicklungen eine identische Detektorgröße liefern. Zudem berechnet sie dem Anwender noch eine Verschiebung für den dritten, redundanten Layer, so dass dieser Deckungsgleich auf dem durch die zwei ersten Wicklungen aufgespannten Ortsbild liegt.

Zusätzlich erzeugt die „Auto-Calibration“ noch eine Korrektur-Tabelle, die für jeden Ort auf dem Detektor eine Zeitsummenkorrektur beinhaltet. Diese Korrektur wird beim weiteren Vorgehen auf jedes Ereignis angewandt.

Im nächsten Schritt der in jeder Messung neu getätigten Kalibration, werden die aufgenommenen Daten automatisch rekonstruiert. Dies bedeutet, dass der Algorithmus die Überbestimmtheit der Ortsinformationen ausnutzt um eventuell nicht detektierte Signale eines Ereignisses zu rekonstruieren. Dies ist auch für ein verlorenes MCP Signal möglich, da sich die Zeitsumme jeder Wicklung aus der Drahtlänge und einem konstanten MCP Offset zusammensetzt (siehe Gleichung 4.2).

Zusätzlich kann jeder Nutzer von `lmf2root` optional noch eigene Bedingungen in den Quelltext einfügen um unerwünschte Aufbruchkanäle zu eliminieren und die Datenmengen für die weitere Analyse zu reduzieren. Eine nützliche Funktion hierfür hat sich unter dem Namen `t2-Funktion` etabliert. Unter Kenntnis der Masse und Ladung der Teilchen eines Zweiteilchenaufbruches und unter Kenntnis einer groben Spektrometerlänge und des E-Feldes, berechnet sie aus der gemessenen ersten Flugzeit die theoretisch zu erwartende zweite Flugzeit.

$$t_2 = z + \sqrt{\frac{2 \cdot s \cdot m_2}{q_2 \cdot E} + z^2}, \quad \text{mit :} \quad (4.26)$$

$$z = \frac{s \cdot m_1}{q_2 \cdot E \cdot t_1} - \frac{q_1 \cdot t_1}{2 \cdot q_2} \quad (4.27)$$

Hierbei ist s die Beschleunigungsstrecke, m_i die Teilchenmasse, q_i die Teilchenladungen, E das elektrische Feld und t_1 die Flugzeit.

Verlangt man nun, dass die Differenz zwischen berechneter und gemessener zweiter Flugzeit klein ist, kann man auf diese Weise einen Reaktionskanal

„herausschneiden“. Analog hierzu könnte man auch einen Summenimpuls von null entlang der Spektrometerachse verlangen.

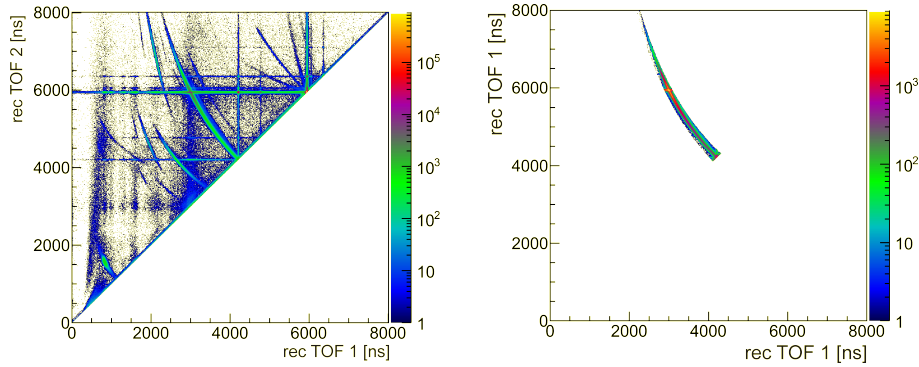


Abbildung 4.5: Links: Exemplarisch ausgesuchtes PiPiCo Histogramm einer Messung von N_2 , rechts: Gleiche Messdaten und Darstellung nach Verwendung der t_2 -Funktion

Für einen Dreiteilchenaufbruch lässt sich analog eine Funktion finden, die aus den ersten beiden gemessenen Flugzeiten die theoretische dritte berechnet. Auch hier sorgt die Differenzbildung der gemessenen dritten Flugzeit und der berechneten für eine einfache Methode den zu begutachtenden Reaktionskanal vom unerwünschten Untergrund zu trennen:

$$t_3 = -z - \sqrt{z^2 + \frac{2 \cdot s \cdot m_3}{E \cdot q_3}}, \quad \text{mit :} \quad (4.28)$$

$$z = -\left(\frac{s \cdot m_1}{t_1 \cdot E \cdot q_1} + \frac{s \cdot m_2}{t_2 \cdot E \cdot q_2} - \frac{t_1}{2} - \frac{t_2}{2} \right) \quad (4.29)$$

Äquivalent hierzu ist auch eine Berechnung der Impulse möglich. Werden diese vektoriell aufsummiert kann man den Untergrund eliminieren, indem man einen kleinen Summenimpuls verlangt. Dies würde jedoch mehr Rechenzeit in Anspruch nehmen und ist daher gerade bei großen Datenmengen die ineffektivere Lösung.

Im nächsten Schritt der Kalibration betrachtet man nur noch die vorsortierten Daten. Für diese reduzierte Datenmenge berechnet man nach Formel 4.12 bzw. 4.13 die Impulskomponenten, bzw. nach Formel 4.16, 4.18 bzw. 4.19 die relativen Impulskomponenten der einzelnen Ereignisse. Verlangt man einen kleinen Summenimpuls für die einzelnen Raumrichtungen, können weitere Untergrundereignisse eliminiert werden.

Mit den verbliebenen Ereignissen kann nun der kinetic energy release (KER) berechnet werden (siehe Formel 4.21), welcher mit der Literatur verglichen werden kann.

Zusätzlich zu dieser Information ist es besonders beim Aufbruch zweiatomiger Moleküle noch wichtig die Orientierung im Raum zu Beginn des Aufbruchs zu wissen. Da ein zweiatomiges Molekül in einer Coulomb-Explosion immer in einem 180° Winkel zerbricht, ist diese Orientierung in den Impulsvektoren zu sehen. Dargestellt wird die Ausrichtung zum einen über den Winkel zur Spektrometerachse ($\theta = \arccos(p_{z,rel}/p_{rel})$), zum anderen über einen Winkel in der Detektorebene ($\phi = \text{atan2}(x_1, x_2) \cdot \frac{180}{\pi}$). Diese Winkel sind gleich denen in Kugelkoordinaten definiert.

4.2.2 Ungeeignete Kalibrationssysteme

Um eine möglichst genaue Bestimmung des kinetic energy release zu erhalten wurden im Laufe dieser Arbeit vier verschiedene Systeme zur Kalibration verwendet. Hiervon erwiesen sich zwei als besser geeignet, als die anderen. Hier werden nun kurz die Systeme aufgezeigt, welche keine ausreichend gute Kalibration ermöglichten und erläutert, warum dies der Fall war.

Stickstoff

Das geläufigste Kalibrationssystem (z.B. bei Synchrotron Messungen) für eine ColTRIMS Messung ist Stickstoff. Hierbei stellt eine Messung von Lundqvist et al. [Lun96] die bekannte Referenz dar. In seinen Messungen beschoss Lundqvist die N_2 Moleküle mit Elektronen und war mit einer doppler-freien Flugzeit-Koinzidenz Messmethode in der Lage, verschiedene Anregungszustände des Moleküls aufzulösen. Diese konnte er mit theoretisch berechneten Moleküzuständen identifizieren.

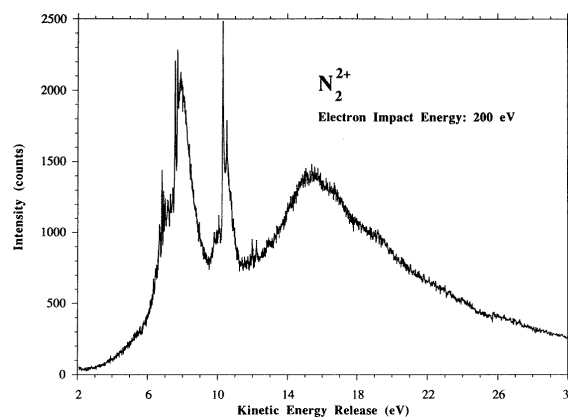


Abbildung 4.6: Von Lundqvist et al. gemessenes KER Spektrum von Stickstoff [Lun96]

Dominant ist das doppelte Maximum bei 10,316 bzw. 10,546 eV. Hierbei handelt es sich um den Zerfall eines $D^1\Sigma_u^+$ Zustandes in ein geladenes $N^+(^3P)$ und ein $N^+(^1D)$. Als experimentelle Auflösung gibt Lundqvist einen Wert von 30 meV an.

Ziel der Kalibrationsmessung ist diesen schmalen Übergang in den Daten zu identifizieren. Ist er deutlich zu erkennen, kann man ihn nun durch leichte Veränderungen der Spektrometerlänge und des elektrischen Feldes auf den mit der Literatur übereinstimmenden Wert verschieben.

In einer Messung mit einem Laser ist es jedoch nicht möglich gezielt nur einen Zerfallsmechanismus zu erzeugen. Im Laserfokus herrscht eine breite Verteilung an Intensitäten, was auch zu vielen verschiedenen Zerfallskanälen führt. Die Intensität des Lasers muss daher so eingestellt werden, dass der bei einem hohen KER liegende Kalibrationskanal möglichst dominant populierte wird. Gleichzeitig darf das Laserfeld jedoch nicht so stark sein, dass es die atomaren und ionischen Zustände des Stickstoffes und damit die Energien der Zerfallskanäle beeinflusst.

Zuerst betrachtet man nur die Aufbrüche entlang der Spektrometerachse. Bei diesen ist die Berechnung des KER unabhängig von der Spektrometerlänge (siehe Gleichung 4.15). Um diese Aufbrüche auszuwählen, wurden nur Ereignisse betrachtet bei denen $\cos(\theta)$ einen Wert größer 0,97 hat. Hiermit schneidet man einen schmalen Kegel aus der dreidimensionalen Impulskugel aus, welcher entlang der Spektrometerachse orientiert ist.

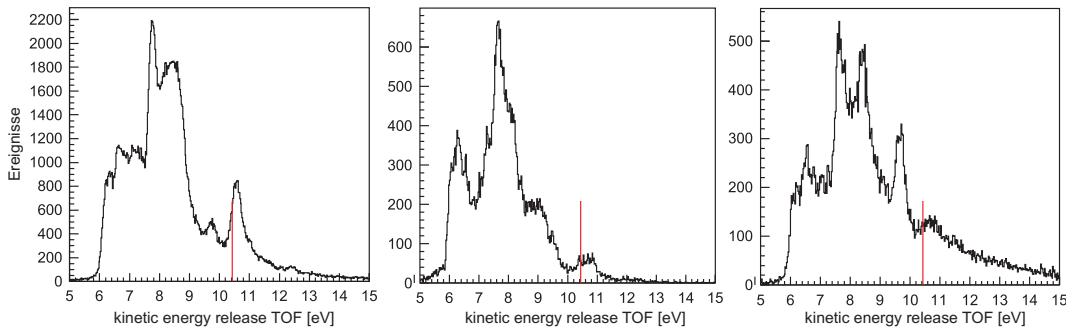


Abbildung 4.7: Vergleich dreier Kalibrationsmessungen am N_2 . Trotz gleicher Apparatur und nur leicht unterschiedlichen Laserintensitäten (links: 80 mW, mitte: 400 mW, rechts: 250 mW. Alle mit linearer Polarisierung in Y-Richtung) sind die entstandenen Verteilungen stark unterschiedlich und nicht reproduzierbar. Der dominante Kalibrationskanal von Lundqvist et al. [Lun96] bei 10,316 eV ist in rot eingezeichnet.

Hat man die Ereignisse entlang der Spektrometerachse mit der Literatur abgeglichen, wird im nächsten Schritt die komplette Statistik betrachtet. Hierbei kann man äquivalent zur bisherigen Analyse ein 1d-Histogramm betrachten oder man erstellt sich ein 2d-Histogramm in welchem man den KER ge-

gen den bereits erwähnten Winkel zur Spektrometerachse θ bzw. dessen Kosinus darstellt. Hier sollten die verschiedenen Maxima aus Abbildung 4.7 horizontale Strukturen ergeben. Ist dies nicht der Fall, so hat man bei der Detektorkalibration (siehe Kapitel 4.2.1) die Umrechnung der Anodenlaufzeiten auf die Detektorgröße ungenau oder falsch berechnet. Um dies zu korrigieren wurde in die Analyse ein Parameter eingefügt, welcher als Faktor auf die Impulse in X- und Y-Richtung wirkt. Diesen verändert man bis die KER Maxima auch bei kleinen $\cos(\theta)$ mit Lundqvist et al. übereinstimmen (siehe Abbildung 4.8).

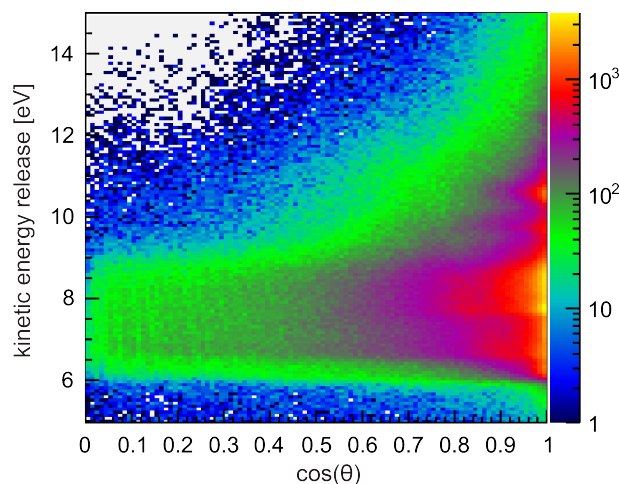


Abbildung 4.8: Darstellung des KER gegen die Orientierung des Moleküls zur Spektrometerachse (linke Verteilung aus Abb. 4.7). Da bei dem gewählten E-Feld nicht die Aufbrüche in allen Orientierungen detektiert wurden, sind hohe KER nur entlang der Spektrometerachse zu sehen. Maxima bei niedrigerem KER ergeben horizontale Linien, was für einen guten Abgleich zwischen Z-Richtung und Detektorebene spricht.

Eine weitere Kontrolle der Daten liefert der Winkel in der Detektorebene, ϕ . Auch diesen kann man gegen den kinetic energy release auftragen. Hierbei sieht man, wie genau der Reaktionsursprung in der Analyse auf den Koordinatenursprung geschoben wurde. Zusätzlich wären hier Verformungen des Ortsbildes zu erkennen, welche durch Inhomogenitäten des E-Feldes entstehen können.

Auch wenn nur leichte Verformungen im Winkel ϕ zu erkennen sind (siehe Abbildung 4.9), ist beim N_2 , unabhängig von der schlechten Statistik in der Detektorebene, keine reproduzierbare KER-Verteilung zu messen (siehe Abbildung 4.7). Bereits kleinste Veränderungen an den Lasereinstellungen führten zu anderen Aufbruchkanälen. Aufgrund dieser Tatsache erwies sich N_2 als ein nur bedingt geeignetes System um eine ColTRIMS Messung mit einem Laser zu kalibrieren. Für die in dieser Arbeit nötige Genauigkeit bei der

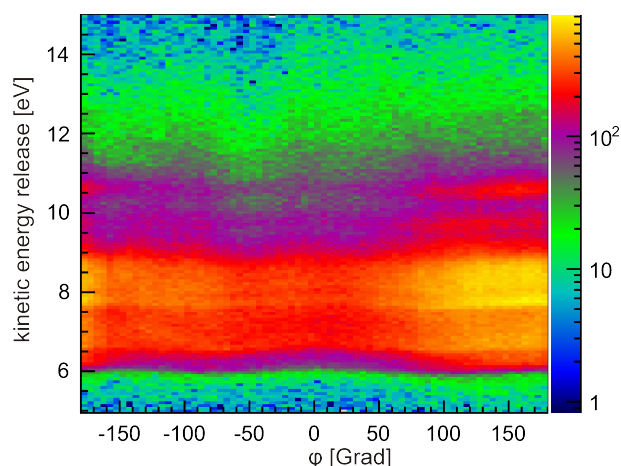


Abbildung 4.9: Darstellung des KER gegen die Orientierung des Moleküls in der Detektorebene (linke Verteilung aus Abb. 4.7). Abgesehen von einer leichten Wellenstruktur sind die Maxima der 1d-KER-Verteilungen auch hier als horizontale Strukturen zu identifizieren.

Kalibration bietet Stickstoff weder die ausreichende Energieauflösung, noch die nötige Reproduzierbarkeit.

Kohlenstoffmonoxid

Ein weiteres System, das von Lundqvist et al. vermessen wurde, ist Kohlenstoffmonoxid. Für seine Veröffentlichung verwendeten Lundqvist et al. [Lun95] die bereits bei N_2 beschriebene Methode um die Vibrationsniveaus des Gases aufzulösen. Hierbei ergab sich eine KER Verteilung mit zwei charakteristischen Maxima. Diese bieten aufgrund ihrer Breite und ihrer Aufbruchenergie das Potential einer sehr exakten Kalibration.

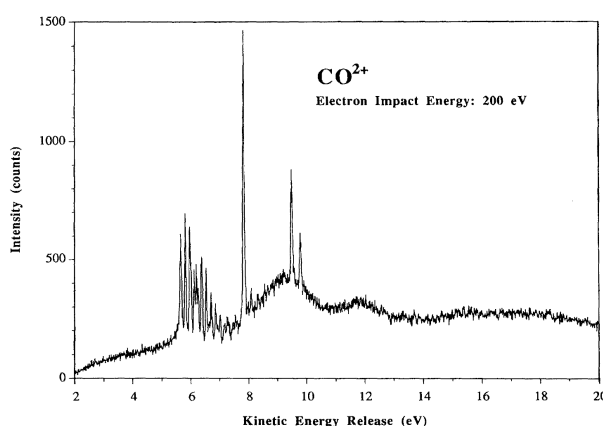


Abbildung 4.10: Von Lundqvist et al. gemessenes KER Spektrum von Kohlenmonoxid [Lun95]

Der $^3\Sigma^+$ Zustand des Moleküls befindet sich bei einem Wert von 7,833 eV . Zusätzlich beobachtete Lundqvist den Zerfall des $2^1\Sigma^+$ Zustandes bei einer

Energie von 9,493 eV. Die Auflösung der Messung ist laut den Autoren allein durch die thermische Energie des neutralen Grundzustandes begrenzt und mit 25 meV angegeben.

Könnte man diese zwei Zerfallskanäle auch in den mit ColTRIMS gemessenen Daten deutlich erkennen, würde die Messung mit CO ausreichen um das gesamte Energiespektrum der Apparatur exakt zu Kalibrieren.

Daher wurde wieder zuerst der KER in Richtung der Spektrometerachse betrachtet. Hierzu wurde die Laserintensität so eingestellt, dass sich die verschiedenen Strukturen des KER Spektrums möglichst scharf abzeichnen und gleichzeitig eine ausreichende Zählrate vorhanden war. Trotz dieser Optimierung ergab sich in der vermeintlich besten Konfiguration nur das in Abbildung 4.11 dargestellte KER Spektrum.

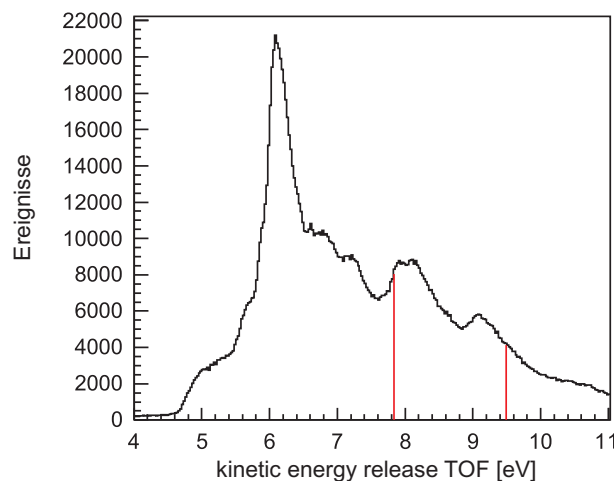


Abbildung 4.11: Bei einer Laserleistung von 140 mW und linearer Polarisierung gemessene KER Verteilung von Kohlenstoffmonoxid. Die Werte der von Lundqvist [Lun95] vermessenen Kalibrationskanäle sind in rot eingezeichnet.

In Abbildung 4.11 ist deutlich zu sehen, dass die von Lundqvist et al. beobachteten Maxima in der mit ColTRIMS getätigten Kalibrationsmessung nur als breite Strukturen zu erkennen sind. Der Grund hierfür ist in der Interaktion des Laserfeldes mit den molekularen Zuständen zu sehen. Die Potentialkurven der relevanten Zustände werden durch das E-Feld des Lasers so beeinflusst, dass sich in der Messung nicht die bei Lundqvist et al. [Lun95] sehr dominant hervortretenden Maxima zeigen. Die mit dem Laser und ColTRIMS gemessene Verteilung bietet daher nicht die nötigen Strukturen, welche für eine ausreichend gute Kalibration nötig sind.

4.2.3 Geeignete Kalibrationssysteme

Im vorigen Abschnitt wurde gezeigt, dass Systeme, welche sich z.B. bei Synchrotron- oder Ionenstoß-Messungen mit einer ColTRIMS-Apparatur bewährt haben, für eine Messung mit einem Laser keine ausreichende Genauigkeit liefern können. Der Grund hierfür liegt in der Interaktion des Laserfelds mit den molekularen Zuständen. Hierbei sorgt die Überlagerung der Potentialkurven des ungestörten Moleküls mit dem E-Feld des Lasers für Zustände, die nicht mehr mit den aus der Literatur bekannten Vermessungen übereinstimmen. Daher geht es in dieser Arbeit auch darum neue Kalibrationssysteme zu finden, welche bei Experimenten mit einem Femtosekunden-Laser eine höhere Genauigkeit liefern. Diese werden nun hier vorgestellt.

Sauerstoff

Genau wie bei N_2 und CO wurde auch das Sauerstoffmolekül von Lundqvist et al. vermessen [Lun96a]. Mit ihrer doppler-freien Koinzidenz-Messmethode nahmen sie auch hier ein KER Spektrum auf, welches die einzelnen Vibrationsanregungen des Moleküls auflöst.

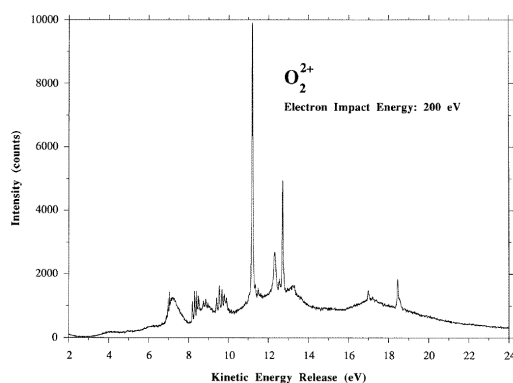


Abbildung 4.12: Von Lundqvist et al. gemessenes KER Spektrum von Sauerstoff [Lun96a]

Auch hier sticht ein Maximum deutlich heraus. Dieses liegt bei 11,198 eV und entsteht durch den Übergang eines $B^3\Pi_g$ Zustandes in zwei $O^+(^4S)$. Ist dieser Reaktionskanal auch in der Kalibrationsmessung zu erkennen, ist es mit ihm möglich das Spektrometer zu kalibrieren.

In den verschiedenen Kalibrationsmessungen, welche im Laufe dieser Arbeit mit Sauerstoff getätigt wurden, gelang dies verschieden gut. Auch hier zeigte sich eine Abhängigkeit von der eingestellten Laserleistung. Ein weiteres Problem bei O_2 ist, dass der gesuchte Kanal bei einer relativ hohen Energie liegt

und die späteren Messungen am Helium jedoch nur sehr geringe Energien erzeugen (besonders im Falle des Dimers). Daher ist die Spektrometerspannung so einzustellen, dass man eine gute Auflösung in diesem niederenergetischen Bereich hat (niedriges E-Feld). Dies hat aber zur Folge, dass die hohen Aufbruchenergien des Sauerstoffs nur noch in einem sehr kleinen Bereich um die Spektrometerachse detektiert werden können. Aufbrüche in der Detektorebene verlassen das Spektrometer und treffen nicht auf die Detektoren. Man spricht in diesem Fall von einem, im Vergleich zu den vollen 4π , kleinen Raumwinkel. Dies führt zu einer starken Unterdrückung des Kalibrationskanals im KER Spektrum.

Um ihn einfacher identifizieren zu können, ist es auch hier hilfreich zuerst nur die Ereignisse zu betrachten, welche entlang der Spektrometerachse aufbrechen. Hierfür wird, genau wie bei den bereits besprochenen Systemen, eine Bedingung auf $\cos(\theta) > 0,97$ gesetzt. Hierdurch ergaben sich die in Abbildung 4.13 dargestellten KER Histogramme.

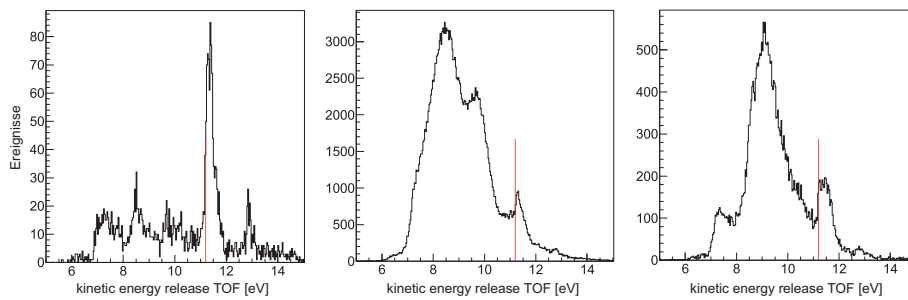


Abbildung 4.13: Drei verschiedene Kalibrationsmessungen mit Sauerstoff (links: 210 mW Laserleistung und lineare Polarisation in Y-Richtung, mitte: 100 mW und lineare Polarisation in Y-Richtung, rechts: 140 mW und zirkuläre Polarisation). Obwohl sich die Verteilungen stark unterscheiden ist der Kalibrationskanal bei 11,198 eV (rote Linie) immer zu erkennen.

Auch im Falle von O_2 ist eine starke Abhängigkeit von der eingestellten Laserintensität zu erkennen. Im Gegensatz zum N_2 ist hier jedoch der Übergang, der zur Kalibration genutzt wird immer zu erkennen. Dies ermöglicht im Falle der in Abb. 4.13 links gezeigten Messung eine sehr exakte Kalibration, im Falle der mittleren Messung jedoch nur eine nicht ausreichende. Bei der Messung mit zirkular polarisiertem Licht ist zudem eine Verschiebung zu höheren Aufbruchenergien zu erkennen. Bei dieser Messreihe gelang es nicht eine bessere Übereinstimmung aller Kalibrationsmessungen zu erlangen.

Bei Betrachtung des zweidimensionalen Histogramms, $\cos(\theta)$ gegen KER, deutlich zu erkennen, dass bei den getätigten Einstellungen für das elektrische Feld nur ein sehr kleiner Raumwinkel detektiert werden kann. Demnach

ist eine Kalibration in der Detektorebene mit diesem System nicht gut möglich.

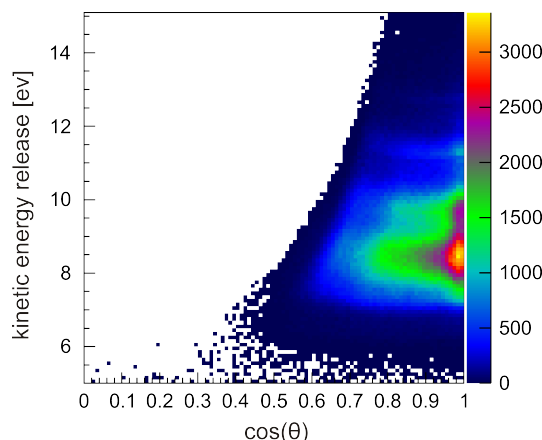


Abbildung 4.14: Darstellung des KER gegen die Orientierung des O_2 Moleküls zur Spektrometerachse (rechte Verteilung aus Abb. 4.13). Aufgrund des kleinen Raumwinkels sind bei einem $\cos(\theta) < 0,7$ keine Ereignisse mehr im Kalibrationskanal zu finden. Daher ist dieses Kalibrationssystem nur für die Flugzeitrichtung, entlang der Spektrometerachse, zu verwenden.

Um eine ausreichende Kalibration des ColTRIMS-Spektrometers zu garantieren, muss daher noch ein weiteres System gefunden werden. Dieses sollte einen Aufbruchskanal besitzen der bei einem niedrigeren KER ist. Hierdurch ist, im Idealfall, der komplette $\cos(\theta)$ abgedeckt und daher auch eine ideale Kalibration in X- und Y-Richtung möglich.

Argondimere

Bei den bisher beschriebenen Kalibrationssystemen handelte es sich ausschließlich um kovalent gebundene Moleküle, deren Kalibrationskanal immer eine Aufbruchsenergie von deutlich mehr als 5 eV hatte. Für eine Kalibration im niedrigeren Energiebereich ist daher ein anderes System zu finden. Eine Möglichkeit hierfür sind Van-der-Waals gebundene Moleküle. Deren Bindung ist deutlich schwächer, was auch eine niedrigere Aufbruchsenergie zur Folge hat. Ein Nachteil dieser Systeme ist jedoch, dass in ihrer KER Verteilung, im Vergleich zu den bisher betrachteten Systemen, keine schmalen Maxima existieren. Die Bindung selbst sorgt bei Van-der-Waals-Dimeren immer für eine Verteilung von Abständen. Je nach Abstand erhalten die Ionen daher für den gleichen Aufbruch unterschiedliche Energien.

Dieses Problem kann durch die Referenzmessung von Wu et al. [Wu11] umgangen werden. In seiner Messung bestimmte er über ein Pump-Probe-Experiment die sich wiederholenden Ausrichtungszustände des diatomaren

Moleküls. Durch einen schwachen ersten Puls regte er die Argondimere zu einer Rotation an. Über einen zeitlich verzögerten zweiten Puls konnte die räumliche Orientierung des Systems abgefragt werden. Hierüber gelang es die Rotationskonstante ($B_0=0.05756\pm0.00004\text{ cm}^{-1}$) des Systems sehr exakt zu bestimmen. Diese kann unter Kenntnis der Masse in einen Abstand der Kerne umgerechnet werden. Ist der Abstand bekannt, kann man über diesen die kinetische Energie berechnen, die in der Coulomb-Explosion freigesetzt wird.

Will man diese Energie mit dem im Experiment gemessenen KER vergleichen muss vorher die Unterdrückung der Doppelionisation in Abhängigkeit des Abstandes der zwei Atome berücksichtigt werden. Sind zwei Atome näher beieinander, wird das zweite Atom durch seinen bereits ionisierten Nachbarn beeinflusst. Dies führt zu einem erhöhten Ionisationspotential für die zweite Ionisation. Für große Abstände ist dieser Effekt geringer als für kleine. Berechnen lässt er sich über die bereits in Kapitel 2.4.2 erwähnte ADK-Theorie. Aus ihr ergibt sich eine KER-Verteilung deren Maximum bei einem Wert von 3,67 eV liegt. Ohne Berücksichtigung der ADK-Theorie läge das Maximum bei 3,735 eV (siehe Abb. 4.15).

Die experimentellen Daten kann man nun z.B. mit einer Gaußkurve annähern, um deren Mittelwert, der bei einer Gaußkurve dem Maximum entspricht, zu erhalten. Dies wurde im ersten Schritt mit den Ereignissen der Argondimere getan, welche entlang der Spektrometerachse aufbrechen (siehe Abbildung 4.15).

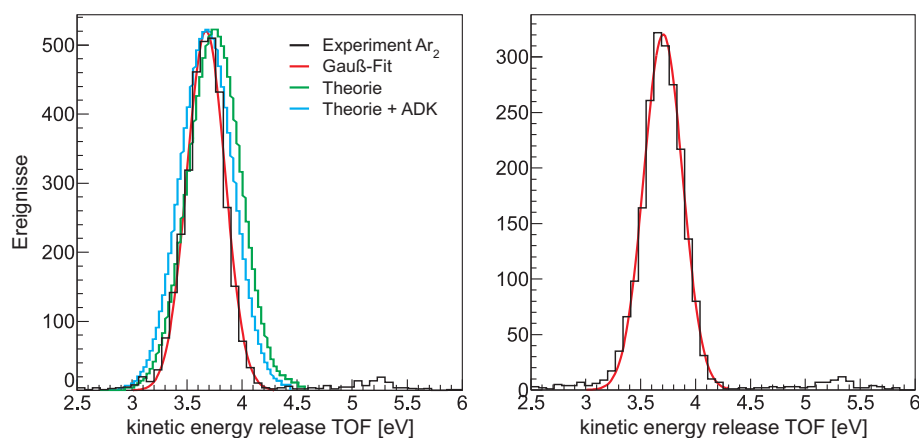


Abbildung 4.15: Kalibrationsmessungen mit Argondimeren. Links: Messung mit 90 mW Laserleistung und linearer Polarisation, rechts: 130 mW und zirkuläre Polarisation. Die in rot eingezeichneten Gaußkurven ergaben einen Mittelwert von links: $3,6727 \pm 0,006(\text{stat})$ bzw. rechts: $3,7056 \pm 0,008(\text{stat})$ eV. Im linken Bild ist ein Vergleich mit mit einer theoretisch berechneten Verteilung eingezeichnet. In grün ohne Berücksichtigung der ADK-Theorie in blau mit.

Der Vorteil dieser Kalibrationsmessung ist, dass nicht ein spezieller angeregter Zustand zerfallen muss, sondern eine direkte Coulomb-Explosion des Grundzustandes den entscheidenden Kanal liefert. In diesem befindet sich der Großteil der im Gas-Jet enthaltenen Dimere. Daher stellt er den dominanten Aufbruch im KER Spektrum.

Ein weiterer Vorteil ist es, dass der Zerfall relativ unabhängig von der Laserintensität ist. Ist diese zu hoch eingestellt, erhalten lediglich die Ionen einen größeren Rückstoßimpuls von den Elektronen. Dies bewirkt nur eine leichte Verbreiterung des Maximums. Die leichte Abweichung der zwei in Abbildung 4.15 gezeigten Messungen kommt daher, dass bei einer Messreihe alle bei einer Feldstärke im Spektrometer getätigten Kalibrationsmessungen in Einklang mit den Literaturwerten gebracht werden müssen. Sie zeigt damit auf, in welcher Größenordnung der anzunehmende Fehler der Messungen ist (siehe Kapitel 4.3).

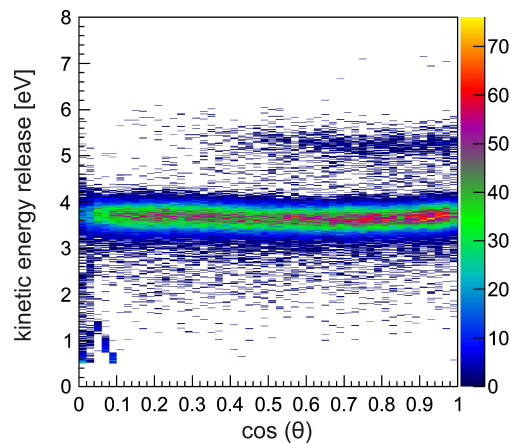


Abbildung 4.16: Daten der Kalibrationsmessung mit Argondimeren (Abb. 4.15 rechts). Der Kalibrationskanal bei 3,67 eV stellt den dominanten Kanal und ist über den kompletten $\cos(\theta)$ vorhanden. Ein guter Abgleich der bereits Kalibrierten Z-Richtung und der XY-Ebene ist möglich.

Da die Aufbruchsenergie vom Argondimer nur 3,67 eV beträgt, ist es mit dieser Kalibrationsmessung auch möglich die XY-Ebene zu kalibrieren. Im Vergleich zu Abbildung 4.14 ist hier der komplette $\cos(\theta)$ abgedeckt.

Für die im Folgenden in dieser Arbeit beschriebenen Messungen wurde immer mehr als eine Kalibrationsmessung getätigt. Hierbei wurde die höchste Genauigkeit mit einer Kombination aus einer Sauerstoffmessung und einer Messung an Argondimeren erreicht.

4.3 Betrachtung des experimentellen Fehlers

Wie bereits im vorigen Teil beschrieben, ergaben sich bei der Kalibration des Spektrometers Probleme die nötige Genauigkeit zu erlangen. Der Hauptgrund hierfür liegt vermutlich in dem, durch den Laser gestarteten Ionisationsvorgang. Bei diesem koppelt das E-Feld des Lasers an das Potential des Moleküls. Dies kann zu Verschiebungen der Energieniveaus im Molekül und damit auch zu anderen Aufbruchsennergien führen. Zusätzlich ist davon auszugehen, dass noch weitere Fehlerquellen einen Anteil an der erreichbaren Genauigkeit tragen. Hierbei sind besonders Inhomogenitäten des elektrischen Feldes eine Fehlerquelle, deren Auswirkungen nicht eindeutig identifiziert werden können.

Um eine Vorstellung für den vorhandenen Fehler zu erhalten, ist es daher am geschicktesten die Abweichungen der verschiedenen Kalibrationsmessungen zu betrachten. Hierfür wird exemplarisch die Kalibration der in Kapitel 5.3 gezeigten Ergebnisse des Heliumtrimers gezeigt.

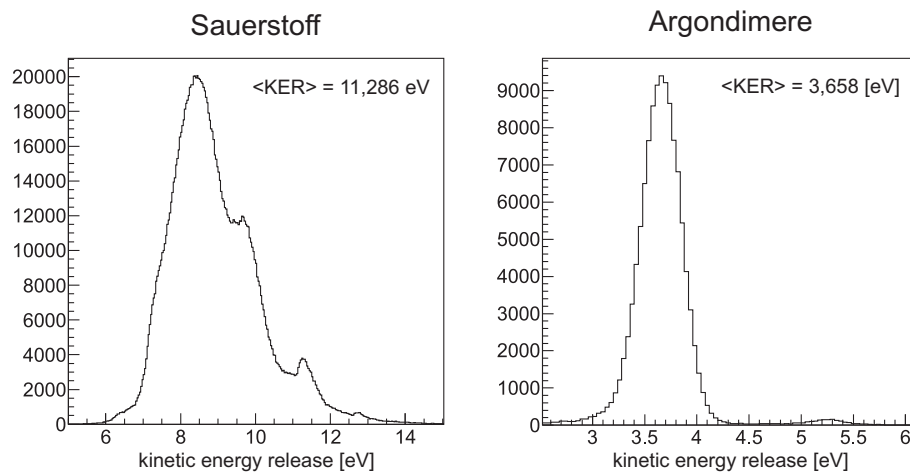


Abbildung 4.17: Vergleich der KER-Verteilungen der zwei Kalibrationsmessungen zur Untersuchung der Heliumtrimere. Die Mittelwerte der Gauß-Verteilungen, welche an die Kalibrationskanäle angepasst wurden, sind angegeben und weisen eine Abweichung von +0,7 % (O_2) bzw. -0,3 % (Ar_2) im Vergleich zu den Literaturwerten auf.

In Abbildung 4.17 ist zu erkennen, dass weder die Messung am O_2 , noch die an den Ar_2 exakt den in der Literatur angegebenen Wert für den Kalibrationskanal ergeben. Im Falle von Argon weicht die Messung um -0,012 eV von der Referenzmessung Wus [Wu11] ab, bzw. um -0,077 eV im Vergleich zur Verteilung ohne ADK-Korrektur. Im Falle von Sauerstoff ist eine Abweichung von +0,088 eV gegenüber Lundqvist [Lun96a] zu erkennen. In einem Energiebereich von 7,5 eV besteht demnach ein Fehler von 0,1 eV, eine Abweichung von 1,3 %.

Dieser Fehler ist auf die komplette Messung bezogen, unabhängig von der Richtung des Aufbruchs. Betrachtet man die Abweichungen jedoch im Bezug auf die Orientierung des Moleküls, kann noch festgestellt werden, ob der Fehler dominant in Richtung der Spektrometerachse, der XY-Ebene oder unabhängig von der Ausrichtung des Moleküls ist. Hierzu werden zuerst die Aufbrüche entlang der Spektrometerachse kontrolliert, indem die gleichen Daten mit einer Bedingung auf $\cos(\theta) > 0,97$ dargestellt werden (siehe Abb. 5.18).

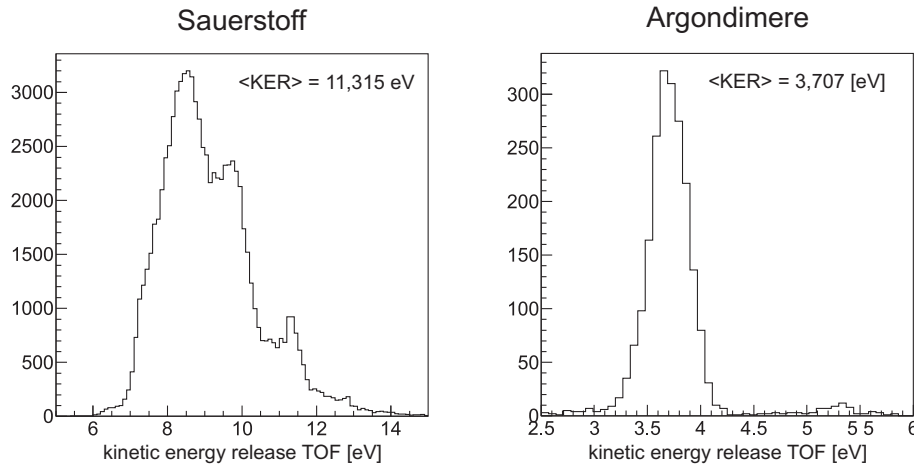


Abbildung 4.18: Vergleich der KER-Verteilungen in Flugzeitrichtung der zwei Kalibrationsmessungen. Die Mittelwerte der Gauß-Verteilungen weisen eine größere Abweichung von der Literatur auf, als bei den über alle Raumrichtungen integrierten Darstellungen (Abb. 4.17).

Obwohl die Messung am Argondimer verwendet wurde um die Aufbrüche in der Detektorebene auf die entlang der Spektrometerachse anzupassen, gelang keine perfekter Abgleich mit dem Sollwert für den kompletten Winkelbereich von θ . Dies liegt daran, dass sich keine Einstellung finden ließ, in der die Darstellung KER gegen $\cos(\theta)$ eine perfekte gerade bildete. Während der KER bei den Argondimeren für die komplette Statistik eine Abweichung von $-0,012 \text{ eV}$ beträgt, ist sie rein in Flugzeitrichtung $+0,037 \text{ eV}$. Im Falle des Sauerstoffs hat sich die Abweichung von $+0,088 \text{ eV}$ noch weiter auf $+0,117 \text{ eV}$ vergrößert. Betrachtet man diese Fehler wieder prozentual im Vergleich zu den Literaturwerten, ergibt sich für die Argondimere eine Abweichung von $1,00 \%$, für das Sauerstoffmolekül eine Abweichung von $1,04 \%$.

In der Detektorebene kann der Fehler nicht durch beide Messungen abgeschätzt werden, da das Sauerstoffmolekül eine zu große Aufbruchenergie besitzt. Daher war es beim angelegten E-Feld nur möglich Aufbrüche entlang der Spektrometerachse zu messen. Für Argondimere betrug der Raumwinkel in dem der Kalibrationskanal gemessen wurde jedoch 4π , daher ist für deren Aufbruch ein Vergleich zwischen Flugzeitrichtung und Detektorebene möglich. Hierfür wurde der Aufbruchswinkel zur Z-Achse ($\cos(\theta)$) in fünf gleich-

große Abschnitte unterteilt und von den resultierenden KER-Verteilungen jeweils der Mittelwert einer Gauß-Verteilung an den Kalibrationskanal ermittelt.

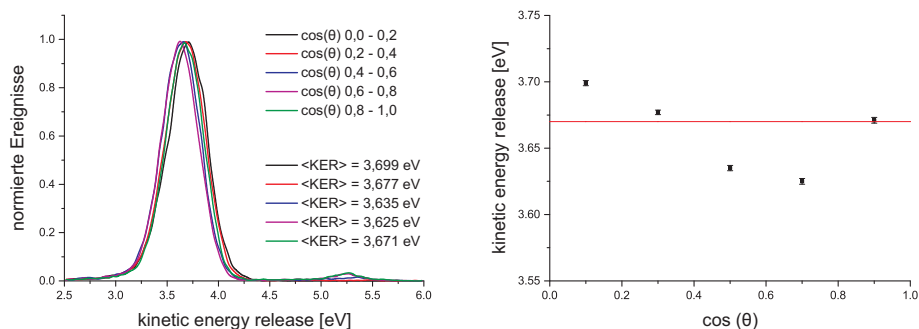


Abbildung 4.19: KER-Verteilungen des Argondimers im Bezug auf seine Aufbruchsrichtung zur Z-Achse. Links: Die fünf Bereiche von $\cos(\theta)$ wurden mit Gauß-Verteilungen angenähert, deren Mittelwerte zwischen 3,625 und 3,699 eV liegen. Rechts: Zweidimensionale Darstellung des Mittelwerts der Gauß-Verteilung gegen die Orientierung $\cos(\theta)$.

In den Darstellungen in Abbildung 4.19 ist zu erkennen, dass die maximale Abweichung von 0,045 eV zum Literaturwert von 3,67 eV für einen $\cos(\theta)$ zwischen 0,6 und 0,8 auftritt. Dies entspricht Molekülen, welche nicht exakt, jedoch annähernd entlang der Spektrometerachse aufbrechen. Sowohl Ereignisse exakt entlang der Z-Achse, als auch Ereignisse in der Detektorebene ergeben eine bessere Übereinstimmung mit dem Sollwert. Dies zeigt, dass das Hauptproblem der Kalibration an einer Stelle liegt, die weder durch eine Anpassung des E-Feldes oder der Spektrometerlänge, noch durch eine Anpassung der Skalenfaktoren zu beheben ist.

Als letzten Schritt der Fehleranalyse wird nun die Aufbruchenergie des Argondimers in Bezug auf die Orientierung des Moleküls in der Detektorebene (ϕ) betrachtet. Hierfür werden nur die Ereignisse analysiert, die unter einem $\cos(\theta) < 0,2$ aufbrechen. Diese Submenge wird weiter aufgeteilt in Ereignisse die in X-Richtung des Detektors orientiert sind und welche in Y-Richtung. Ereignisse in X-Richtung ergaben hierbei einen KER von 3,709 eV und damit eine Abweichung von 1,07 %, wohingegen die in Y-Richtung einen KER von 3,688 eV und damit nur eine Abweichung von 0,48 % zeigten. Dieses Verhalten der Aufbrüche parallel zum Detektor konnte auch in anderen Messungen beobachtet werden (siehe Abb. 5.15).

Eine vergleichbare Kalibration zeigte sich auch in den Messungen am Dimer. Hier ist eine Fehleranalyse jedoch noch schwieriger, da die Messungen mit einem deutlich niedrigeren E-Feld durchgeführt wurden. Dies hatte zur Folge, dass selbst Argondimere nicht mit einem Raumwinkel von 4π nachgewiesen wurden. Die Kalibration der Detektorebene ist hier daher nicht so

zuverlässig, wie in den Messungen des Trimers. Abgesehen von diesen Einschränkungen zeigten die Kalibrationsmessungen für das Dimer jedoch Ungenauigkeiten in der gleichen Größenordnung wie die des Trimers. Im Falle von Sauerstoff war die maximale Abweichung zum Literaturwert bei +0,13 eV, die Messung an Argondimeren hatte eine maximale Abweichung von nur -0,00052 eV.

5. Ergebnisse und Interpretation

Die Untersuchungsobjekte dieser Arbeit stellen die exotischen Moleküle des Heliumdimers und Heliumtrimers dar. Diese sind bisher experimentell weitgehend unerforscht, da sie sowohl kompliziert zu produzieren, als auch schwierig zu untersuchen sind. Ein Grund hierfür ist, dass sie in einem Experiment immer in einem Untergrund von Monomeren und größeren Clustern vorliegen.

Um dieses Problem zu lösen wurde in dieser Arbeit eine neue ColTRIMS-Apparatur aufgebaut. Diese ermöglicht es zum ersten Mal einen Gasstrahl bestehend aus nur einer Clustergröße zu untersuchen. Realisiert wird diese Massentrennung durch ein in die Kammer integriertes Beugungsgitter und das Prinzip der Materiewellenbeugung. Hierbei wird ausgenutzt, dass die verschiedenen, im Jet enthaltenen, Cluster unterschiedliche de-Broglie-Wellenlängen besitzen. Über die Positionierung des Gitters kann so ausgewählt werden, welche Clustergröße durch den Ti:Sa-Laser ionisiert und mit Hilfe des Spektrometers und der Detektoren nachgewiesen wird.

Im folgenden Kapitel wird zuerst auf diese Massentrennung eingegangen. Hierfür werden Beugungsbilder analysiert, welche beweisen, dass eine Trennung von Dimeren und Trimeren möglich ist. Im nächsten Teil werden die Daten des Dimers betrachtet. Ziel der Auswertung ist es eine Größenverteilung zu gewinnen und durch diese Rückschlüsse auf die Bindungsenergie zu ziehen. Im letzten Abschnitt werden die Ergebnisse des Trimers analysiert. Hierbei wird sowohl die Größe des Moleküls, als auch der geometrische Aufbau der drei Heliumatome betrachtet. Unterteilt wird dieser Abschnitt durch die zwei verschiedenen Trimervarianten $^4\text{He}_3$ und $^3\text{He}^4\text{He}_2$.

5.1 Beugungsbilder

Wie in Kapitel 3.2.2 erläutert, war es bereits Mitte der 90er möglich mit Hilfe eines Transmissionsbeugungsgitters Heliummonomere, -dimere und -trimere voneinander zu trennen [Sch96]. Hierzu benutzten Schöllkopf et al. ein zu dem in dieser Arbeit verwendeten identisches Gitter. Ein Unterschied bestand nur in der Größe des verwendeten Gasstrahls. Dieser war bei Schöllkopf durch zwei Schlitze auf $10\text{ }\mu\text{m}$ begrenzt, wodurch eine deutlich bessere Winkelauflösung erzielt wurde. Diese extreme Kollimierung ist bei einer Messung mit einer ColTRIMS-Apparatur nicht möglich, da hiernach die Teilchendichte in der Reaktionszone zu niedrig wäre und damit die Ereignisrate der Koinzidenzmessung zu gering. Daher wurde der Jet in dieser Arbeit durch einen nur $25\text{ }\mu\text{m}$ breiten Schlitz begrenzt. Die hierdurch mögliche Divergenz des Gasstrahls reduziert die Winkelauflösung des Beugungsbildes stark, die Dichte des Jets ermöglicht aber eine Messung mit ausreichender Ereignisrate.

Um festzustellen, ob mit dieser geringen Winkelauflösung eine Trennung von Heliummonomeren, -dimeren und -trimeren noch möglich ist, wurden vor den eigentlichen Messungen zur Untersuchung der Dimere und Trimere Beugungsbilder aufgenommen. Hierfür wurde das Gitter und der davor befindliche Spalt parallel in kleinen Schritten verfahren und an jeder Position eine kurze Messung getätigt. In einem ersten Analyseschritt wurde aus diesen gleichlangen Messungen die Flugzeiten aller Teilchen durch Differenzbildung des Signals der Photodiode und des MCPs des Ionendetektors berechnet. Es ergaben sich Flugzeitspektren in denen, unter Kenntnis der Spektrometergeometrie und des elektrischen Feldes, die Heliumionen identifiziert werden konnten (siehe Abbildung 5.1).

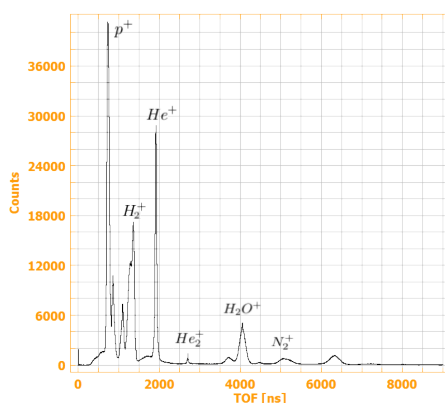


Abbildung 5.1: Exemplarisch ausgewähltes Flugzeitspektrum des als erstes detektierten Ions. Das Gitter und der Spalt waren dabei so positioniert, dass es sich bei einer Flugzeit von etwa 1900 ns um Heliumionen aus dem zweiten Trimermaximum des Beugungsbildes handeln muss (entnommen aus [Bec12]).

In den Flugzeitspektren sind deutlich verschiedene Maxima zu erkennen, die den unterschiedlichen Atom- und Molekülen zugeordnet werden können. Ein solches Flugzeitspektrum wurde an jeder Gitter-/Spaltposition aufgenommen, wobei die Aufnahmezeit immer 120 s betrug. Durch Integration der Ereignisse um die Flugzeit des Heliums an den jeweiligen Gitter-/Spaltpositionen konnte so ein Beugungsbild erstellt werden. In diesem wurde die Zählrate der Heliumionen noch durch die Gesamtzahl der Ereignisse geteilt, um eine eventuell nicht konstante Laserintensität zu korrigieren.

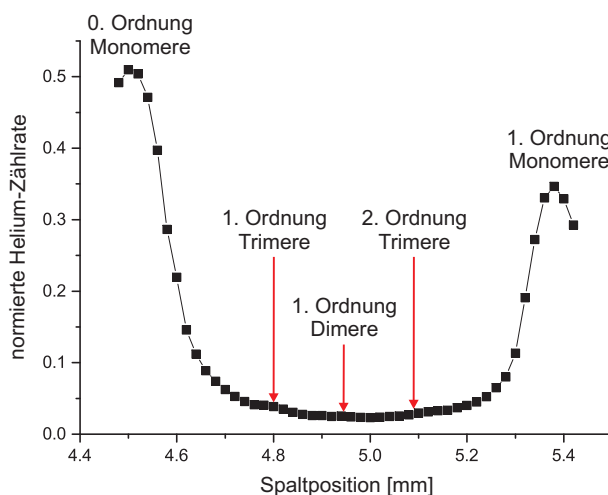


Abbildung 5.2: Beugungsbild resultierend aus der Zählrate an Heliumionen einer Messung bei einer Düsentemperatur von 10 K und einem Vordruck von 2,5 bar. Nullte und erste Ordnung der Monomere sind klar zu erkennen, die Position der Dimer- und Trimermaxima sind mit roten Pfeilen markiert.

Wie in Abbildung 5.2 zu sehen ist, kann man in der Zählrate der Heliumionen gegen die Spaltposition klar die nullte, als auch die erste Ordnung der Monomerbeugung erkennen. Die Maxima der Verteilungen haben einen Abstand von 0,87 mm. Dieser Wert entspricht einer Jetgeschwindigkeit von 285 m/s und damit einer de-Broglie-Wellenlänge des Heliums von 0,35 nm. Diese Jetgeschwindigkeit und Wellenlänge würde ein Heliumgasstrahl bei einer Düsentemperatur von etwa 8 K annehmen. Bei der eingestellten Düsentemperatur von 10 K sollte das Heliummonomer eine Auslenkung von 0,77 mm haben. Dieser leichte Unterschied von 100 μm entspricht an der Mikrometerschraube einem Winkel von nur 72°. Dieser ist durch das Ablesen des Wertes nicht zu erklären, könnte jedoch durch die allgemeine Ungenauigkeit der Schraube, deren Spiel, zu erklären sein. Ein weiterer Faktor, dessen Auswirkung nur schwer eingeschätzt werden kann ist die Genauigkeit der Diode, die für die Temperaturmessung an der Düse verantwortlich ist.

In dem Beugungsbild sind keine klaren Maxima für Dimere und Trimere zu erkennen. Betrachtet man Abbildung 3.8, sollten bei diesen Bedingungen der

Gasexpansion weniger als 10 % des Gasstrahls aus Dimeren und Trimeren bestehen. Da dieser Prozentsatz klein ist und von ihm wiederum nur wenige Prozent in die Maxima erster Ordnung abgelenkt wird, könnte es sein, dass er in dieser einfachen Darstellung des Beugungsbildes nicht zu erkennen ist. Um sicherzustellen, dass an den markierten Positionen wirklich Dimere bzw. Trimere vorhanden sind, wurde in einem zweiten Schritt der Analyse nicht nur das erste detektierte Ion, sondern auch das zweite und dritte betrachtet. Mit Hilfe dieser Informationen lässt sich ein neues Beugungsbild erstellen, in dem nur ein Ereignis eingetragen wird, wenn sowohl die Flugzeit des zuerst detektierten Teilchens, als auch die des zweiten (bzw. auch des dritten) Ions der des Heliums entspricht.

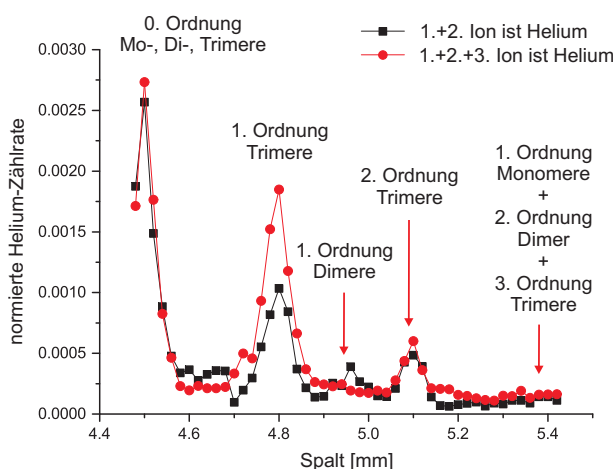


Abbildung 5.3: Beugungsbild der Heliumionen der selben Messung wie in Abb. 5.2. In schwarz sind die Ereignisse dargestellt bei denen sowohl das zuerst, als auch das als zweites detektierte Ion die Flugzeit von Helium hat. Die rote Verteilung zeigt die Ereignisse bei denen die ersten drei Ionen ein Heliumatom waren.

In diesem Beugungsbild ist deutlich zu erkennen, dass die Aufspaltung des Jets auch für die kleinen Cluster funktioniert. Besonders die Maxima des Trimers sind bei den verwendeten Einstellungen gut zu erkennen. Sogar das zweite Maximum hebt sich hierbei deutlich vom Untergrund ab. Die Trimermaxima sind sogar in den Daten, in denen nur die ersten zwei Ereignisse betrachtet wurden, zu erkennen. Diese wurden durch einen Schnitt auf den Heliumaufbruch im PiPiCo Histogramm gewonnen. Da diese Ereignisse damit zumindest in Richtung der Spektrometerachse einen Summenimpuls von null haben müssen, stammen sie wohl aus Ereignissen, bei denen nur zwei Atome des Trimers ionisiert wurden und ein neutrales Heliumatom, mit vernachlässigbarem Impuls, zurückblieb. Betrachtet man die rote Verteilung, in der die ersten drei Teilchen berücksichtigt wurden, sie wurde aus einem Schnitt im PiPiPiCo Histogramm gewonnen, so sind die Trimermaxima an der selben Position noch ein wenig deutlicher zu erkennen.

Das Dimermaximum in der Mitte, zwischen denen der Trimere, ist nur sehr schwach zu erkennen. Hierfür kann es mehrere Gründe geben. Der wahrscheinlichste ist, dass bei den gewählten Jeteinstellungen deutlich mehr Trimere als Dimere vorliegen. Eine weitere Möglichkeit könnte jedoch sein, dass das Dimer, aufgrund seiner geringeren Bindungsenergie, durch die Ablenkung am Gitter bereits zerfällt. Um zu testen, ob es an der Produktionsrate liegt, wurde noch ein weiteres Beugungsbild bei einer Düsentemperatur von 16 K bei nur 2 bar Vordruck aufgenommen. Hier ist man mit den Parametern der freien Gasexpansion weiter weg von der Idealkonfiguration zur Herstellung von Trimeren und näher an der von Dimeren.

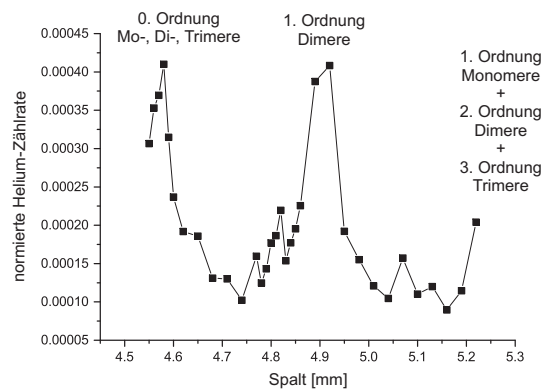


Abbildung 5.4: Beugungsbild der Heliumionen bei einer Messung mit einer Düsentemperatur von 16 K und 2 bar Vordruck. Es sind keine Trimermaxima zu erkennen, nur die 1. Beugungsordnung der Dimere bei einer Ablenkung von 0,33 mm ist deutlich zu sehen.

Im Vergleich zu dem zuvor gezeigten Beugungsbild sind bei diesen Einstellungen für den Gasstrahl keine Trimermaxima zu erkennen, es sind keine Trimere mehr im Jet. In der Mitte zwischen den Monomermaxima ist jedoch ein klares Dimermaximum zu sehen. Betrachtet man die mit den Hintergrundereignissen normierte Zählrate der Dimere, so ist zu erkennen, dass auch bei diesen Einstellungen prozentual nicht deutlich mehr Dimere im Gasstrahl sind. Ob dies nun daran liegt, dass bei diesen Einstellungen nicht mehr Dimere produziert werden oder ob ein größerer Prozentsatz produziert, jedoch auch wieder durch Beugung am Gitter zerstört wird, kann nicht gesagt werden. Die Tatsache, dass der Anteil an Dimeren bei keiner der zwei Jeteinstellungen in etwa so groß ist wie der maximale Anteil an Trimeren spricht jedoch dafür, dass die Dimere, aufgrund ihrer geringeren Bindungsenergie, in der Kammer zerstört werden, bevor sie den Laserfokus erreichen. Dies könnte nicht nur am Gitter, sondern bereits in der Expansionsstufe geschehen. Hier könnten die Dimere durch Wechselwirkungen mit dem Restgas aufbrechen, während die stärker gebundenen Trimere diese Interaktion überstehen.

Ein Vorteil bei einer Messung der Dimere bei höherer Temperatur und geringerem Druck ist jedoch, dass ein Untergrund durch die Ausläufer der Trimermaxima prinzipiell ausgeschlossen werden kann. Dieser sollte auch bei niedrigen Temperaturen sehr gering sein, wie in Abbildung 5.3 zu erkennen ist. Die verschiedenen Maxima sind ausreichend weit voneinander entfernt, um von einem reinen Dimer- bzw. Trimerjet ausgehen zu können.

5.2 Messungen am Dimer

Die Elektronen des Heliumatoms sind besonders stark gebunden. Kein anderes Element besitzt nicht mindestens ein Elektron, welches schwächer gebunden ist. Daher ist Helium auch das Element mit der niedrigsten Polarisierbarkeit ($\alpha = 1,35 \pm 0,03$ a.u. [Mas03]). Dies hat zur Folge, dass in keinem anderen System das temporäre elektrische Dipolmoment so gering ist, das für eine Van-der-Waals-Bindung (siehe Kapitel 2.1.4) nötig ist. Eine andere Bindungsart ist jedoch bei Heliumatomen nicht möglich. Daher gelingt es erst bei einer Temperatur von etwa 1 mK ein Heliumdimer zu bilden. Erst hier ist die kinetische Energie der Atome so gering, dass die schwache Dipolwechselwirkung für ein ausreichend attraktives Potential sorgt.

Dass diese Einsicht nicht trivial ist wurde bereits in Kapitel 2.2 über die Historie der Berechnung und experimentellen Beobachtung des Dimers belegt. Weitere Indizien für den komplexen Charakter des Systems sind die bislang sehr wenigen experimentellen Arbeiten zu diesem Molekül. In diesen gelang es bislang nur über eine komplizierte Analyse des Transmissionsverhaltens durch ein Sieb [Luo95] bzw. von Beugungsbildern [Gri00] eine Abschätzung für die mittlere Größe des Dimers zu erlangen. Diese Werte waren jedoch entweder umstritten oder es war ein komplexes theoretisches Model der Materiewellenbeugung am Gitter nötig, um sie zu erlangen. Die Experimente stellen daher nur eine sehr indirekte Beobachtung des Systems dar. In vorangegangenen experimentellen Arbeiten [Hav10, Hav10a, Hav10b, Hav10c, Tri13, Tit11, Tit11a, Kim14] wurden unter anderem verschiedene Ionisationsmechanismen des Heliumdimers mit Hilfe der ColTRIMS-Technik untersucht. Die komplette Grundzustandswellenfunktion des Dimers wurde jedoch in keinem dieser Experimente vermessen.

Ein Ziel dieser Doktorarbeit ist es daher, einen direkteren Ansatz zur Untersuchung des Dimers zu finden, mit dem die komplette Abstandsverteilung gemessen werden kann. Um dies zu realisieren wurde erstmals ein Transmissionsbeugungsgitter in eine ColTRIMS-Apparatur integriert (siehe Kapitel 3.2.2). Durch die Kombination dieser zwei Techniken sollte es möglich sein gezielt die Coulomb-Explosion von Dimeren zu beobachten und damit Rückschlüsse auf den ursprünglichen Zustand des Moleküls zu ziehen. Diese seit langem etablierte Technik bietet einen sehr direkten Zugang einzelne Moleküle zu ionisieren und so Rückschlüsse auf den Zustand des Forschungsobjekts zu schließen.

Alle bisherigen Untersuchungen des Heliumdimers mit Hilfe der ColTRIMS-Technik hatten das Manko, dass sie nicht in der Lage waren, einen Gasstrahl nur aus Heliumdimeren zu erzeugen. Der Jet bestand immer zu einem großen Teil aus Monomeren und nur zu wenigen Prozent aus kleinen Clustern. Daher war es in der Analyse schwer den Monomeruntergrund von den Dimeren zu trennen, da die Aufbruchsenergie eines Dimers ähnlich gering ist, wie die kinetische Energie zweier einfach ionisierter Heliumatome. Zusätzlich bestand eine Schwierigkeit darin, den Aufbruch eines Dimers von dem eines Trimers, bei dem nur zwei der drei Atome ionisiert wurden, zu unterscheiden. Als letzte Schwierigkeit war bei Messungen am Synchrotron oder mit Ionenstoß auch die Ionisationswahrscheinlichkeit abhängig vom Abstand der Atome. Dies führte dazu, dass immer nur ein kleiner Bereich der kompletten Abstandsverteilung untersucht werden konnte. In diesem Bereich herrscht nahezu kein Unterschied zwischen Dimer und Trimer.

Ionisiert man das Molekül jedoch mit einem Laser, werden alle Atome innerhalb des Fokusvolumens nahezu unabhängig voneinander ionisiert. Die bereits in Kapitel 4.2.3 im Abschnitt über das Argondimer diskutierte Abstandsabhängigkeit der Doppelionisation spielt im Heliumdimer eine untergeordnete Rolle. Sind zwei Atome nahe beieinander, so steigt das Ionisationspotential von Atom B, sobald Atom A ionisiert ist. Diese abstandsabhängige Ionisationswahrscheinlichkeit lässt sich über die ADK-Theorie berechnen. Aufgrund der enormen internuklearen Abstände des Heliumdimers kann sie an dieser Stelle vernachlässigt werden.

Im Vergleich zweier Messungen mit und ohne Gitter ist zudem gut zu erkennen, dass sowohl Untergrund durch Monomere, als auch durch eventuell vorhandene größere Cluster effektiv entfernt wird (siehe Abbildung 5.5).

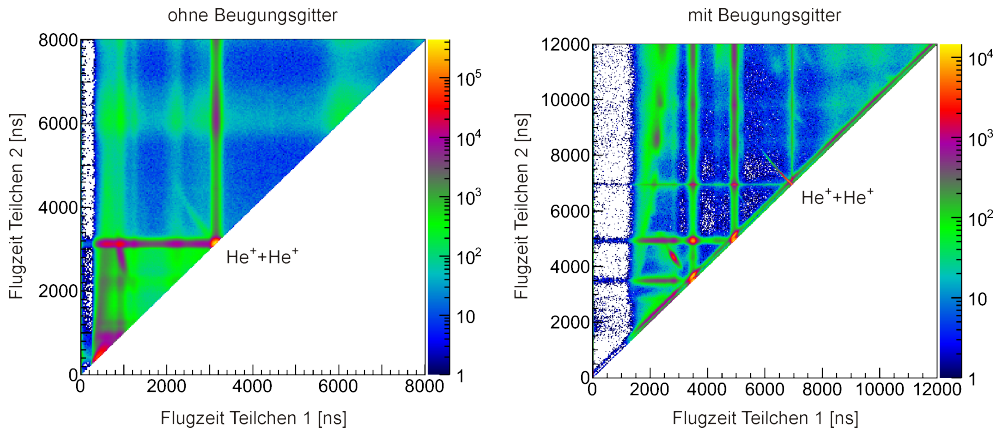


Abbildung 5.5: Vergleich der PiPiCo Histogramme zweier Messungen am Helium. Das linke Bild entstand in einer Messung ohne Beugungsgitter, wohingegen das rechte bei einer Messung mit Gitter an der Dimerposition aufgenommen wurde.

In der Messung ohne Gitter (Abb. 5.5 links) liegen die größten Intensitäten in der waagrechten und senkrechten Linie, knapp über 3000 ns. Diese Linien entsprechen dem Nachweis eines Heliummonomers mit einem zufälligen zweiten Ion. Der Aufbruch von Dimeren (diagonale Linie) ist im Vergleich nur schwach zu erkennen. Anders sieht die Situation mit Gitter (Abb. 5.5 rechts) aus. Hier stellt der Aufbruch von Dimeren die Struktur mit höchster Intensität (etwa bei 7000 ns). Die senkrechte und waagrechte Linie sind dagegen deutlich weniger dominant. Die verschiedene Breite der Linien im linken und rechten Bild ist durch die unterschiedliche Polarisation des Lasers zu erklären. Im linken Bild erhalten die Ionen den Rückstoßimpuls des Elektrons in Richtung der Spektrometerachse, im rechten dagegen nicht.

Diese PiPiCo Histogramme werden aus den Rohdaten erstellt. Will man das Dimer genauer untersuchen besteht der nächste Schritt der Analyse darin, die Aufbrüche des Dimers vom Untergrund zu trennen. Hierbei verwendet man zuerst die in Kapitel 4.2.1 in Gleichung 4.26 beschriebene t_2 -Funktion. Diese schneidet unter Vorgabe der Spektrometergeometrie, des E-Feldes und der Massen sowie Ladungen der Teilchen exakt die Linie im PiPiCo Histogramm des Aufbruchs von den Dimeren heraus. Die im Folgenden diskutierte Messung wurde bei einer Düsentemperatur von 16 K mit einem Vordruck von 2 bar durchgeführt. Die Ionenseite des Spektrometers war hierbei 222,4 mm lang und das elektrische Feld betrug etwa 3,8 V/cm. Der Laser lieferte eine Fokusintensität von etwa $2 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ und war linear in Y-Richtung ($\phi = 0^\circ$ bzw. 180°) polarisiert.

Mit den übrig gebliebenen Ereignissen beginnt nun die weitere Analyse, in der für jedes Ereignis die Impulse der zwei Teilchen berechnet wird. Addiert

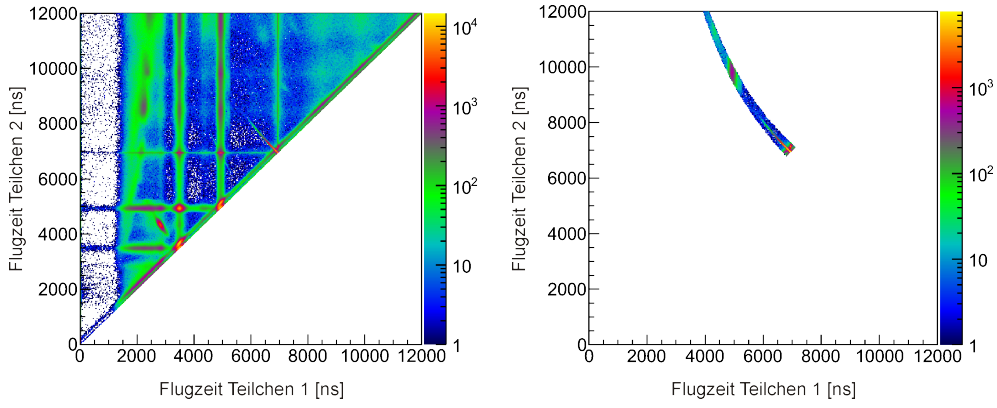


Abbildung 5.6: Links: PiPiCo aus den Rohdaten einer Messung bei einer Düsentemperatur von 16 K und einem Vordruck von 2 bar. Rechts: Die Daten des selben Histogramms nach Anwendung der t_2 -Funktion.

man die Impulse zweier Ionen die aus einem Dimer stammen, so muss diese Summe, abgesehen vom Rückstoßimpuls der Elektronen, null ergeben. Diese Tatsache wird ausgenutzt um zufällige Koinzidenzen, die noch in den Daten sind, weiter herauszufiltern (siehe Abbildung 5.7).

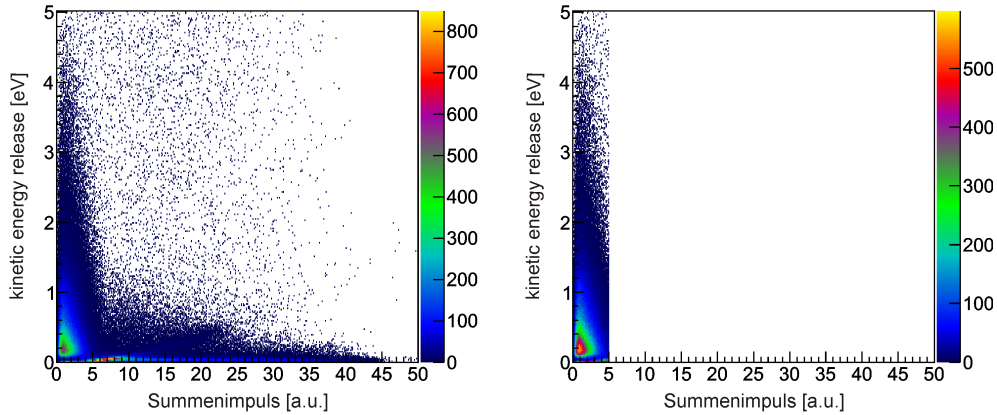


Abbildung 5.7: Darstellung des Summenimpulses gegen den KER. Im linken Histogramm ist zu erkennen, welche Ereignisse nicht aus dem Aufbruch eines Dimers stammen. Diese wurden rechts mit einer Bedingung auf einen Summenimpuls < 5 a.u. entfernt.

Mit einer Bedingung auf einen kleinen Summenimpuls lassen sich bereits ein Großteil der verbleibenden Untergrundereignisse herausfiltern. Wie in Abbildung 5.7 rechts in der linken unteren Ecke zu sehen ist, sind jedoch auch nach dieser Bedingung noch Ereignisse übrig die einen zu kleinen KER haben um aus einem Dimeraufbruch zu stammen. Um auch diese noch zu entfernen wird der Summenimpuls nicht im Ganzen, sondern in seinen einzelnen Komponenten betrachtet. Da der Laser in dieser Messung linear polarisiert war, werden die Elektronen bevorzugt in Y-Richtung emittiert. Dies hat zur Konsequenz, dass der Summenimpuls in X- und Z-Richtung eine viel schmalere

Verteilung ergibt als in Y-Richtung. Demnach lässt sich in diesen Raumrichtungen auch eine engere Bedingung setzen.

Ein letzter Abzug des Untergrundes kann noch in den Relativimpulsen der Teilchen getätigt werden. In diesen ist, mit den bisherigen Bedingungen, die Impulsverteilung der Dimerereignisse klar zu erkennen. Zusätzlich hierzu sind jedoch einzelne Bereiche, bei sehr kleinen Relativimpulsen, zu erkennen, die klar nicht zu dieser Verteilung gehören. Durch eine Verknüpfung von Bedingungen in allen drei Raumrichtungen des Relativimpulses konnte dieser letzte Untergrund entfernt werden, ohne viele der Dimerereignisse auszusortieren.

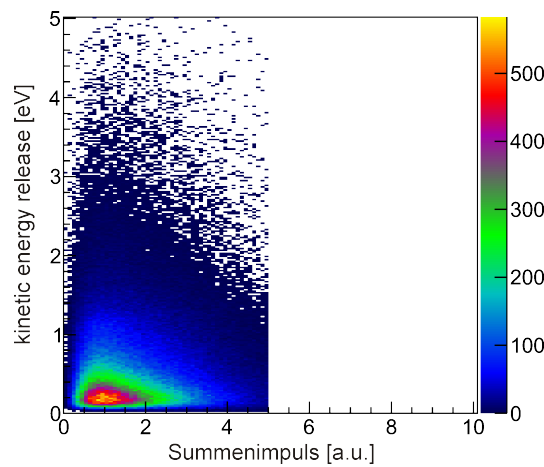


Abbildung 5.8: Verbleibende Ereignisse nach Abzug des Untergrundes. Im Histogramm ist nur eine Verteilung zu erkennen, die aus den wahren Dimerereignissen besteht.

Die verbleibenden Ereignisse bilden in Abbildung 5.8 eine kontinuierliche Verteilung in der keine Sprünge mehr zu erkennen sind, die auf unterschiedliche Reaktionen schließen lassen. Es ist daher davon auszugehen, dass es sich hierbei nur noch um Ereignisse handelt, bei denen Heliumdimere zweifach ionisiert wurden, worauf eine Coulomb-Explosion zu zwei einfach geladenen Heliumionen führte. Diese können nun weiter in anderen Histogrammen dargestellt werden, um möglichst viele Informationen über das System zu erhalten.

Eine der wichtigsten Größen beim Coulomb Explosion Imaging (siehe Kapitel 2.6) ist die Energie, die die Teilchen während der Coulomb-Explosion aufnehmen. Sie wurde zuvor bereits bei der Untergrundentfernung auf der Y-Achse dargestellt. Der „kinetic energy release“ (KER) berechnet sich hierbei nach Formel 4.21. Besser ist der KER jedoch in einem eindimensionalen Histogramm zu analysieren (siehe Abbildung 5.9).

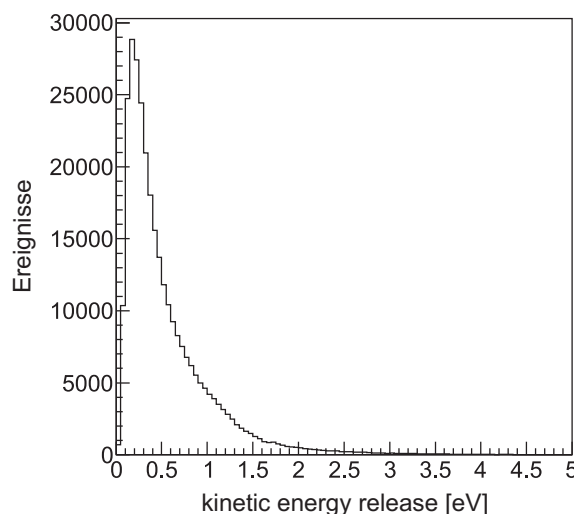


Abbildung 5.9: Verteilung des KERs der Heliumdimere. Nach einem steilen Anstieg erreicht die Verteilung bei etwa 0,2 eV ihr Maximum und fällt von dort an bis etwa 3 eV exponentiell ab.

Vergleicht man die KER-Verteilung mit der eines kovalent gebundenen Moleküls (z.B. Sauerstoff in Abbildung 4.13), ist ein deutlicher Unterschied zu erkennen: Während der KER von Sauerstoff mehrere Maxima besitzt und über einen großen Energiebereich geht, hat der KER der Heliumdimere nur ein Maximum bei einem Wert von etwa 0,2 eV, von wo er relativ schnell abfällt. Dieser Unterschied liegt daran, dass im Falle von Sauerstoff das Molekül über verschiedene Kanäle, bzw. aus verschiedenen Zuständen, aufbrechen kann. Das Heliumdimer hat jedoch nur einen gebundenen Zustand. Es ist daher besser mit einem anderen Van-der-Waals-System zu vergleichen wie z.B. dem Argondimer (siehe Abb. 4.15). Dieses hat in seiner KER-Verteilung genau wie das Heliumdimer auch nur ein dominantes Maximum. Es liegt jedoch bei einem Wert von 3,67 eV und ist damit bei einer Energie, die mehr als eine Größenordnung größer ist als die des Maximums der Heliumdimere.

Anders als im Falle von Argon hat die Verteilung des Heliumdimers eine komplett andere Form. Während der KER des Argondimers eher einer Gauß-Verteilung entspricht, steigt die Verteilung des Heliumdimers zuerst steil an bis sie ihr Maximum erreicht. Von hier gleicht der Verlauf einem exponentiellen Abfall bis hin zu etwa 3 eV.

Um diese geringe kinetische Energie der Teilchen mit einer guten Auflösung detektieren zu können, wurde für die Messung der Dimere ein sehr niedriges elektrisches Feld gewählt. Dies hat jedoch zur Folge, dass die hohen Aufbruchenergien der Kalibrationssysteme nur mit einem sehr geringen Raumwinkel detektiert werden können. Hierdurch ist in der Kalibration, wie bereits in Kapitel 4.3 festgestellt, der Abgleich zwischen Spektrometerachse und parallel

zum Detektor, in XY-Ebene ungenauer. Um zu kontrollieren, welche Auswirkungen dies auf die Dimerereignisse hat, die nicht in Flugzeitrichtung aufbrechen, bietet es sich an den KER gegen Winkel zur Spektrometerachse (θ) bzw. dessen Kosinus zu betrachten.

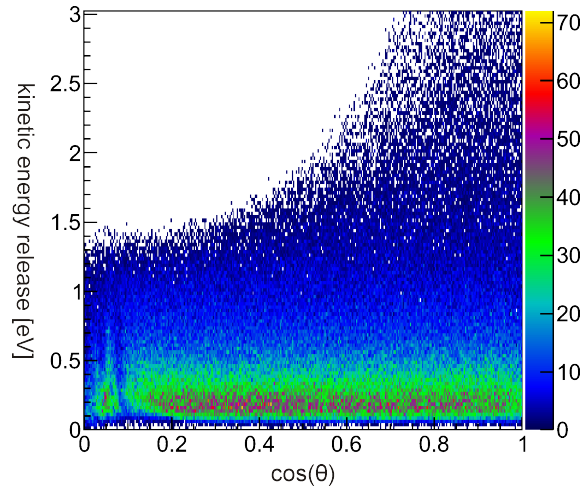


Abbildung 5.10: Darstellung der KER-Verteilung gegen den Kosinus des Winkels zur Spektrometerachse. Im Bereich $\cos(\theta)$ zwischen 0,2 und 1,0 scheint der KER sich nicht zu ändern. Bei Aufbrüchen (beinahe) in der Detektorebene ist eine Struktur im KER zu erkennen. Die Polarisation des Lasers ist linear in Y-Richtung.

In Abbildung 5.10 ist zu erkennen, dass im Bereich oberhalb von $\cos(\theta) = 0,2$ der kinetic energy release in dieser Darstellung keine Abhängigkeit vom Winkel erkennen lässt. Im Bereich darunter ist jedoch eine vom Winkel zur Spektrometerachse abhängige Struktur zu sehen. Dieser Bereich im Histogramm gehört zu den Ereignissen, bei denen das Dimer (nahezu) parallel zum Detektor aufbricht. Bei diesen Ereignissen ist der Zeitunterschied, mit dem die Ionen auf dem Detektor ankommen, sehr gering. Die Struktur ist daher wahrscheinlich durch die Pulsform des zeitgebenden MCP-Signals zu erklären. Hat dies hinter dem eigentlichen Signalpuls noch Nachschwinger, können diese dazu führen, dass das nächste Signal zu diesem Zeitpunkt nicht detektiert werden kann. Aufgrund dieses Effektes sollten die Ereignisse in diesem Bereich als problematisch angesehen werden und für die weitere Analyse der Daten ausgeschlossen werden.

Weiterhin ist in Abbildung 5.10 ein Effekt des niedrigen E-Feldes zu erkennen. Dies beschneidet unterhalb von $\cos(\theta) = 0,75$ bereits den KER. So ist bei dieser Spektrometereinstellung nur bis zu einem KER von 1,3 eV ein Nachweis der zwei Ionen unabhängig von der Orientierung des Moleküls möglich. Höhere Aufbruchenergien können das Spektrometer verlassen, wenn das Molekül zu Beginn der Ionisation parallel zum Detektor orientiert war. Dieser Effekt muss in der weiteren Auswertung berücksichtigt werden.

Eine weitere Kontrollmöglichkeit der Kalibration stellt der Winkel (ϕ) in der Detektorebene dar. Auch diesen kann man in einem zweidimensionalen Histogramm gegen den KER darstellen. Ist der Detektor gut kalibriert, sollte keine Abhängigkeit des KER von diesem Winkel sichtbar sein.

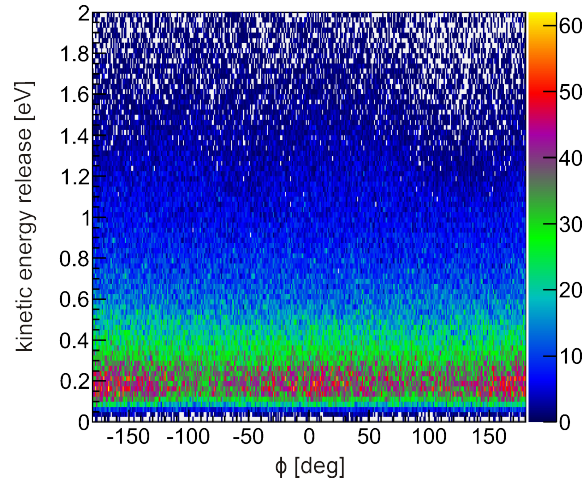


Abbildung 5.11: Kinetic energy release gegen den Winkel (ϕ) in der Detektorebene. Über den kompletten Wertebereich ist keine Abhängigkeit des KER vom Winkel zu erkennen. Die Polarisation des Lasers ist linear in Y-Richtung.

In diesem Histogramm ist keinerlei Abhängigkeit des KER vom Winkel zu erkennen. Dies zeigt, dass die X- und Y-Richtung des Detektors gut aufeinander abgeglichen sind. Zusätzlich bedeutet es, dass in dieser Ebene keine Abhängigkeit des KER von der Laserpolarisation zu erkennen ist, welche in Y-Richtung (d.h. $\phi = 0^\circ$ bzw 180°) lag. Demnach kann davon ausgegangen werden, dass es sich bei dem vorliegenden Ionisationsmechanismus des Dimers um einen Prozess handelt, der keine dominante Auswirkungen auf die Aufbruchenergie und die Bindungsenergie hat. Für die weitere Analyse können daher, abgesehen vom Bereich $\cos(\theta)$ 0,0 - 0,2, alle Ereignisse berücksichtigt werden.

Eine intuitiv einfacher zu verstehende und anschaulichere Größe als der KER ist der internukleare Abstand. Dieser lässt sich über die in Kapitel 2.6.1 beschriebene „Reflection Approximation“ aus dem KER berechnen. Hierbei herrscht ein antiproportionaler Zusammenhang; starten die Ionen nahe beieinander, so erhalten sie in der Coulomb-Explosion eine hohe kinetische Energie, starten sie weit entfernt voneinander, so ist der KER klein. Der Abstand berechnet sich hierbei durch Formel 4.22 und kann in einem eindimensionalen Histogramm dargestellt werden (siehe Abb. 5.12).

Der Abstand der zwei Atome des Heliumdimers ergibt, anders als bei kovalent gebundenen Molekülen, eine sehr ausgedehnte Verteilung. Diese startet

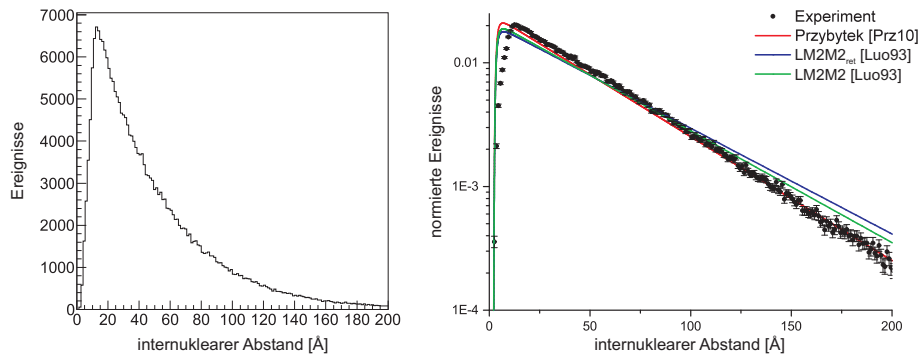


Abbildung 5.12: Links: Verteilung der internuklearen Abstände im Heliumdimer. Das Maximum liegt bei einem Abstand von etwa 12 Å, von wo die Verteilung exponentiell abfällt. Auch bei Werten über 200 Å sind noch Ereignisse zu sehen. Rechts: Logarithmische Darstellung der Verteilung verglichen mit drei theoretischen Berechnungen von Przybytek et al. [Prz10] und Luo et al. [Luo93]. Die Verteilungen sind auf ein Integral von 1 normiert, die Fehlerbalken stellen den statistischen Fehler dar.

bei einem Wert von etwa 2 Å und hat bei ca. 12 Å ihr Maximum. Von hier an fällt die Verteilung exponentiell ab, hat jedoch auch bei sehr großen internuklearen Abständen (> 200 Å) noch Einträge.

In Abbildung 5.12 rechts ist die gleiche Verteilung logarithmisch dargestellt und mit drei verschiedenen theoretischen Berechnungen verglichen. Die beste Übereinstimmung herrscht hier zwischen Messung und der aktuellsten Rechnung von Przybytek et al. [Prz10]. Die aus dem LM2M2-Potential berechneten Abstandsverteilungen von Luo et al. [Luo93] (mit und ohne Retardierungseffekt) besitzen in dieser Darstellung eine andere Steigung.

Auffällig im Vergleich der experimentellen Daten mit den theoretisch berechneten Verteilungen ist die Abweichung bei kleinen Abständen. Hier stimmen die Rechnungen exakt überein, scheinen jedoch dem Experiment zu widersprechen (siehe Abb. 5.13). Eine mögliche Ursache hierfür ist der bereits in Abbildung 5.10 zu erkennende Effekt des geringen elektrischen Feldes am Spektrometer. Dieses sorgt dafür, dass nur oberhalb eines $\cos(\theta)$ von 0,75 auch die hohen Aufbruchsenergien und damit kleinen Abstände detektiert wurden. Um diese Vermutung zu überprüfen wird dieser Bereich kleiner Abstände für verschiedene Bereiche von $\cos(\theta)$ mit den theoretischen Berechnungen verglichen (siehe Abb. 5.13).

Auch in der stark vergrößerten Darstellung des Bereichs kleiner internuklearen Abstände zeigen die theoretischen Rechnungen [Luo93, Prz10] keinen Unterschied. Dies legt nahe, dass sich der innere Bereich des Potentials, der für diese kleinen Abstände verantwortlich ist, in den verschiedenen Berechnungen nur wenig unterscheidet und daher eine gute Kontrolle für die Kalibration der Messung ist. In Abbildung 5.13 rechts ist zu erkennen, dass der Unter-

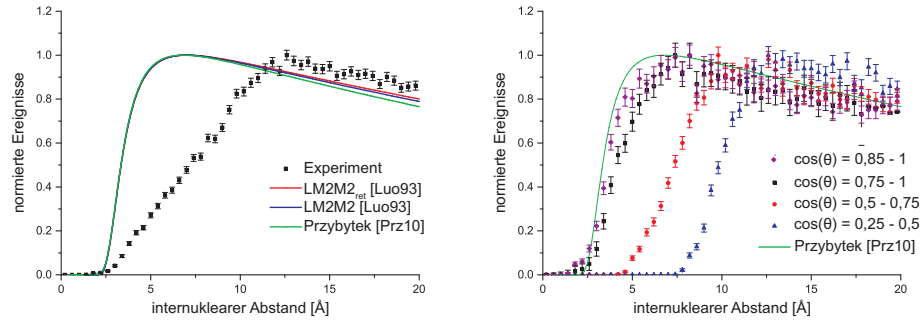


Abbildung 5.13: Links: Vergleich der internuklearen Abstände $< 20 \text{ Å}$ zwischen allen experimentellen Ereignissen und den Rechnungen von Luo et al. [Luo93] und Przybytek et al. [Prz10]. Rechts: Messdaten je nach Orientierung des Dimers ($\cos(\theta)$) verglichen mit der von Rechnung Przybytek et al. [Prz10].

schied zwischen Experiment und Rechnung, wie vermutet, auf das niedrige E-Feld des Spektrometers zurückzuführen ist. Dimere die entlang der Spektrometerachse aufbrechen stimmen gut mit dem inneren Bereich der berechneten Verteilungen überein. Je weiter die Orientierung des Dimers von dieser Stellung abweicht, desto größer ist der Unterschied.

In einer Abstandsverteilung für den Bereich $\cos(\theta) > 0,85$ ist davon auszugehen, dass alle Aufbrüche detektiert wurden. Für diesen Bereich ist es daher möglich den Mittelwert der Verteilung internuklearer Abstände zu berechnen um ihn mit bereits existierenden Werten zu vergleichen.

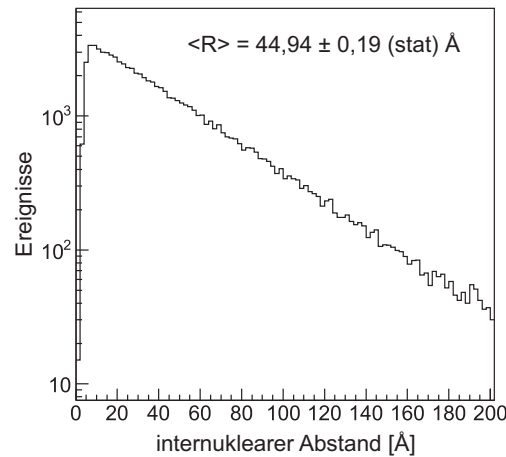


Abbildung 5.14: Verteilung der internuklearen Abstände der Ereignisse mit $\cos(\theta) > 0,85$. Die Verteilung hat einen Mittelwert von $44,94 \pm 0,19 \text{ (stat) Å}$.

Die Abstandsverteilung der Ereignisse die entlang der Spektrometerachse orientiert sind ($\cos(\theta) > 0,85$) ergibt einen Mittelwert von $44,94 \pm 0,19 \text{ (stat) Å}$. Verglichen mit den zwei bisher existierenden experimentellen Werten, für den Mittelwert des internuklearen Abstandes, ist der hier ermittelte kleiner. Während Luo [Luo95] einen Wert von $62 \pm 10 \text{ Å}$ bestimmte, ergab das Experiment

von Grisenti et al. [Gri00] einen Wert von $52 \pm 4 \text{ \AA}$. Diese zwei experimentellen Werte sind jedoch auch größer als der Mittelwert der Wellenfunktion von Przybytek et al. [Prz10]. Dieser liegt bei $47,1 \pm 0,5 \text{ \AA}$ und ist damit dem Wert dieser Arbeit sehr nahe.

In [Spi13] gelang es V. Spirko et al. einen simplen Zusammenhang zwischen dem mittleren Abstand und der Bindungsenergie bei langreichweitigen, diatomaren Molekülen herzustellen.

$$D_0 = 2,981 \cdot 10^3 (1 + 9,468 / \langle R \rangle) / \langle R \rangle^2 \quad (5.1)$$

Hierbei ist D_0 die Dissoziationsenergie in mK und $\langle R \rangle$ der mittlere internukleare Abstand in $\text{\AA}$. Für den gemessenen Mittelwert der Bindungslänge ergibt dies eine Dissoziationsenergie, die der Bindungsenergie entspricht, von $154,140 \pm 1,43$ (stat) neV. Dieser Wert wurde jedoch nur mit einer kleinen Submenge aller Ereignisse ($\cos(\theta) > 0,85$) bestimmt. Wünschenswert wäre es jedoch alle Ereignisse nutzen zu können.

Wie sowohl in Abbildung 5.12 rechts, als auch in Abbildung 5.14 in der logarithmischen Darstellung zu erkennen ist, haben die Verteilungen nach Erreichen des Maximums ein exponentiell Abfallendes Verhalten, was sich als Gerade darstellt. Durch einen Vergleich der Verteilung mit dem in Abbildung 2.3 gezeigten Potential lässt sich dieser Verlauf erklären. Das Potential hat seine tiefste Stelle bei etwa $3 \text{ \AA}$ und damit weit entfernt vom Maximum der Abstandsverteilung. Unter einer angenommenen Bindungsenergie von 140 neV endet der klassisch erlaubte Bereich des Zustandes bereits bei $13,5 \text{ \AA}$, da hier das Potential die Bindungsenergie übersteigt. Klassisch müsste demnach an dieser Stelle die Wellenfunktion und damit die internuklearen Abstände enden, unsere Messung zeigt jedoch, dass etwa 88 % der Ereignisse bei größeren Abständen liegt.

Die Erklärung hierfür ist, dass das Heliumdimer nicht klassisch betrachtet werden kann, es ist eine quantenmechanische Anschauung nötig. In dieser hat jede Welle eine gewisse Eindringtiefe in eine endlich hohe Potentialbarriere. Dies gilt demnach auch für die Wellenfunktion des Dimers, sie kann in den klassisch verbotenen Bereich des Potentials tunneln. Die Tunnelwahrscheinlichkeit ist hierbei, analog zur in Formel 2.21 beschriebenen ADK-Theorie, exponentiell abfallend. Anders als bei der Tunnelionisation ist das Potential in diesem Fall jedoch nicht von endlicher Breite, es besteht daher keine Möglichkeit für den Zustand aufzubrechen. Statt dessen hat die Wellenfunktion des Dimers nur eine gewisse Eindringtiefe in den klassisch verbotenen Bereich des Potentials. Diese Eindringtiefe ist, analog zu dem in Lehrbüchern

betrachteten System einer Potentialstufe, abhängig von der Masse des Teilchens und von der Differenz der Energie des Zustandes und der Höhe der Potentialstufe. Für große Abstände ($> 30 \text{ \AA}$) kann das Potential aufgrund seiner geringen Tiefe als 0 eV angenommen werden. Unter dieser Näherung ist die Differenz zwischen der Energie des Zustandes und der Potentialbarriere exakt die Bindungsenergie. Die Wellenfunktion muss daher in diesem Wertebereich der internuklearen Abstände, analog zum Beispiel einer Potentialstufe, folgendem exponentiellen Verlauf gehorchen.

$$\Psi(R) \propto \exp\left(-\sqrt{\frac{2m \cdot E_{bind}}{\hbar^2}} R\right) \quad (5.2)$$

Demnach ergibt sich für den Messwert der Wahrscheinlichkeitsdichte, dem Quadrat der Wellenfunktion, folgender Zusammenhang:

$$|\Psi(R)|^2 \propto \exp\left(-2\sqrt{\frac{2m \cdot E_{bind}}{\hbar^2}} R\right) \quad (5.3)$$

Multipliziert man diese Formel nun noch mit einem Faktor, der die Funktion auf die Fläche der experimentellen Verteilung normiert, kann man mit ihr die Abstandsverteilung für Werte größer $30 \text{ \AA}$ annäheren. Der einzige freie Parameter, der die Form der Verteilung beeinflusst, ist hierbei die Bindungsenergie. Demnach kann aus der gemessenen Abstandsverteilung (siehe Abb. 5.12) die Bindungsenergie des Heliumdimers gewonnen werden.

Der große Vorteil dieser Methode ist es, dass sie nur die mittleren bis großen Abstände verwendet. Da diese unabhängig von der Orientierung des Moleküls detektiert wurden, kann die komplette Statistik der Messung genutzt werden um die Bindungsenergie zu bestimmen.

Nähert man mit Formel 5.3 die in Abbildung 5.14 dargestellte Verteilung der Ereignisse, die entlang der Spektrometerachse orientiert sind, an, so erhält man einen Wert für die Bindungsenergie von $161,767 \pm 0,26(\text{stat}) \pm 2,33(\text{Fit}) \text{ neV}$, wobei die Unsicherheit der Funktion durch den Fehler „Fit“ angegeben. Die auf diese Weise bestimmte Bindungsenergie ist damit 7 neV größer, als die aus dem mittleren internuklearen Abstand erhaltene.

Welcher der zwei Werte die wahre Bindungsenergie des Heliumdimers besser wiedergibt ist schwer festzustellen. Die Berechnung der Bindungsenergie aus dem Mittelwert wie in [Spi13] beschrieben ist bereits durch mehrere langreichweitige Systeme erprobt und bestätigt. Hierunter auch das Heliumdimer. Der experimentell gemessene Mittelwert kann jedoch leicht ver-

fälscht werden durch den orientierungsabhängigen Nachweis kleiner Dimere und durch die Totzeit des Detektors. Diese würde besonders bei großen Dimensionen zu einer verringerten Nachweiseffektivität führen und so den Mittelwert verfälschen.

Diese zwei Effekte sollten auf die über den exponentiellen Abfall der Verteilung bestimmte Bindungsenergie nur einen geringen Effekt haben. Hier bestimmt die Form der Verteilung den resultierenden Wert der Bindungsenergie. Kleine Abstände werden nicht berücksichtigt, sondern einzig ein Bereich der internuklearen Abstände zwischen 30 und 200 Å. Dieser Bereich sollte durch die genannten Effekte nicht beeinträchtigt sein. Dieses Verfahren zur Bestimmung der Bindungsenergie wurde bislang nur durch Annäherung von Formel 5.3 an die theoretisch berechneten Verteilungen bestätigt.

Wie bereits erwähnt, ist ein Vorteil der zuletzt beschriebenen Methode zur Bestimmung der Bindungsenergie, dass sie auf die kompletten Messdaten angewendet werden kann, nicht nur auf eine Submenge.

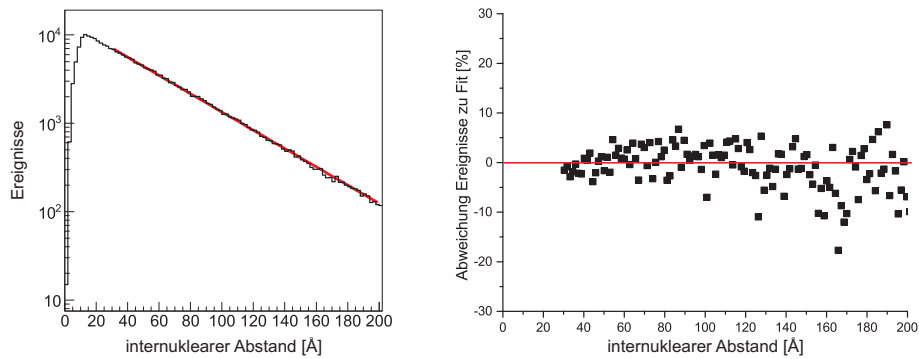


Abbildung 5.15: Logarithmische Darstellung der Abstandsverteilung des Heliumdimers. Die rote Linie ist die, über Formel 5.3 angenäherte, exponentiell abfallende Funktion. Sie ergibt eine Bindungsenergie von $147,211 \pm 0,11(\text{stat}) \pm 0,89(\text{Fit})$ neV. Im rechten Bild ist die prozentuale Abweichung zwischen Experiment und der angenäherten Funktion dargestellt.

Nähert man die Abstandsverteilung mit kompletter Ereignismenge mit Formel 5.3 an, so ergibt dies eine Bindungsenergie von $147,211 \pm 0,11(\text{stat}) \pm 0,89(\text{Fit})$ neV.

Bestimmt man, obwohl Dimere mit kleinem internuklearen Abstand aufgrund des niedrigen E-Feldes am Spektrometer verringert nachgewiesen werden, den Mittelwert der Verteilung ergibt sich ein Wert von $49,81 \pm 0,08(\text{stat})$ Å. Errechnet man aus diesem die Bindungsenergie, erhält man einen Wert von $123,246 \pm 0,43(\text{stat})$ neV. Dies zeigt, wie sensitiv die aus dem Mittelwert errechnete Bindungsenergie ist. Da gerade sehr kleine und sehr große internuklearen Abständen im Experiment problematisch sind und

diese den Mittelwert stark beeinflussen, scheint die Annäherung der exponentiellen Funktion die verlässlichere Methode zu sein, die Bindungsenergie zu bestimmen.

Der Unterschied von über 10 neV für die Ereignisse die entlang der Spektrometerachse aufbrechen und der kompletten Ereignismenge zeigt auf, dass weder der statistische Fehler (stat), noch der Fehler durch das Annähern von Formel 5.3 (Fit) die limitierenden Faktoren für das Ergebnis der Messung sind. Daher wird zuletzt in diesem Kapitel noch der systematische Fehler betrachtet.

Ein erster Anteil am systematischen Fehler entsteht durch die Kalibration. Wie bereits in Kapitel 4.3 festgestellt, gelang es nicht die zwei Kalibrationssysteme Sauerstoff und Argondimere mit einer Konfiguration des Spektrometers auf eine mit der Literatur übereinstimmende Aufbruchsenergie zu bringen. Besonders das O_2 , welches in dieser Messreihe mit zirkular polarisiertem Licht ionisiert wurde, wich vom Literaturwert ab (siehe Abb. 4.13). Es ist daher ein Fehler von 3 % auf den KER anzunehmen. Diese Verschiebung des KER bewirkt auf die angenäherte Bindungsenergie eine Unsicherheit von $\pm 9,3$ neV.

Eine zweite Fehlerquelle die zum systematischen Fehler beiträgt ist der Abgleich zwischen Aufbrüchen entlang der Spektrometerachse und Aufbrüchen orthogonal dazu, in der XY- Ebene parallel zum Detektor. Dieser Abgleich gestaltete sich aufgrund des niedrigen elektrischen Feldes am Spektrometer schwierig. Der Kalibrationskanal des Argondimers wurde nur bis zu einem $\cos(\theta)$ von 0,85 detektiert. Wie exakt dieser Abgleich gelungen ist, lässt sich anhand der Bindungsenergie für verschieden Bereiche des $\cos(\theta)$ bestimmen.

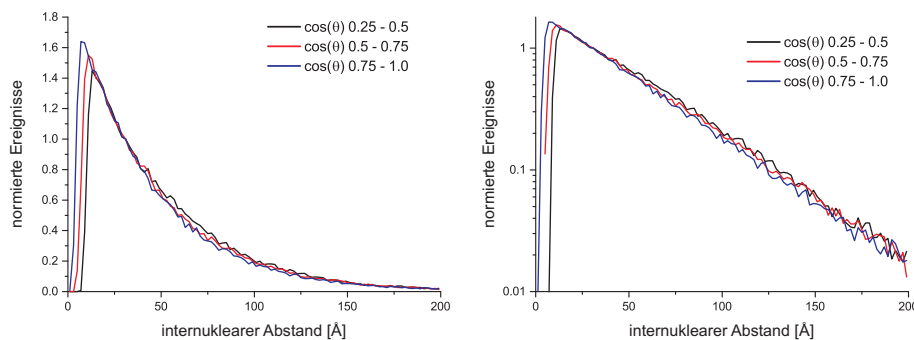


Abbildung 5.16: Links: Verteilung der internuklearen Abstände für drei verschiedene Bereiche des Winkels zur Spektrometerachse. Rechts: Die selbe Messung in einer logarithmischen Darstellung. Normiert sind beide Histogramme auf den maximalen Wert des Bereichs an den Formel 5.2 angenähert wird.

Wie oben bereits erwähnt lag die über Formel 5.3 erlangte Bindungsenergie für Orientierungen mit einem $\cos(\theta) > 0,75$ bei einem Wert von $158,767 \pm 0,20(\text{stat}) \pm 1,74(\text{Fit})$ neV. Aufbrüche mit einem $\cos(\theta)$ zwischen 0,5 und 0,75 ergaben einen Wert von $148,521 \pm 0,17(\text{stat}) \pm 1,61(\text{Fit})$ neV, wohingegen die Bindungsenergie der Ereignisse mit einem $\cos(\theta)$ zwischen 0,25 und 0,5 bei einem Wert von $143,861 \pm 0,17(\text{stat}) \pm 1,51(\text{Fit})$ neV. Im Vergleich zur Messung mit der kompletten Ereignismenge ergibt dies einen systematischen Fehler für den Abgleich der Orientierungen entlang der Spektrometerachse von $^{+11,6}_{-3,4}$ neV. Die unterschiedlichen Höhen der Verteilungen sind durch den Raumwinkel zu erklären, mit dem hohe Aufbruchsennergien detektiert werden können.

Eine weitere Fehlerquelle könnte der Abgleich der X- und Y-Richtung sein, der Detektorebene. Ein Unterschied zwischen diesen zwei Richtungen könnte jedoch auch durch die Laserpolarisation, die linear in Y-Richtung lag oder durch die Aussparungen im Spektrometer für Laser (X-Richtung) und Jet (Y-Richtung) entstehen. Da diese möglichen Einflüsse nicht getrennt werden können, wird der durch sie verursachte systematische Fehler zusammen betrachtet. Hierzu werden die Ereignisse die in der Detektorebene aufbrechen ($\cos(\theta)$ zwischen 0,25 und 0,5) in zwei Submengen anhand des Winkels ϕ unterteilt. Die X-Richtung ist hierbei durch einen Winkel ϕ von $\pm 90^\circ \pm 45^\circ$ gegeben, die Y-Richtung durch $\phi = 0^\circ \pm 45^\circ$ und $\phi = 180^\circ \pm 45^\circ$.

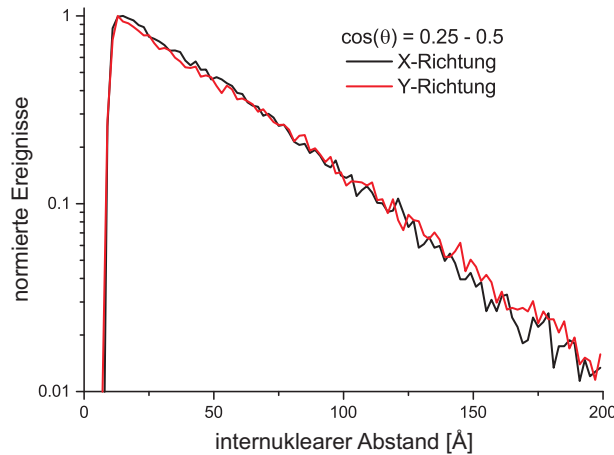


Abbildung 5.17: Vergleich der gemessenen internuklearen Abstände bei Aufbrüchen parallel zum Detektor. Während die Ereignisse von Aufbrüchen, die in X-Richtung orientiert waren, eine Bindungsenergie von $159,275 \pm 0,24(\text{stat}) \pm 2,33(\text{Fit})$ neV ergeben, errechnet sie sich für die vor der Ionisation in Y-Richtung orientierten Moleküle zu $138,211 \pm 0,24(\text{stat}) \pm 2,02(\text{Fit})$ neV.

Auch im Vergleich der Aufbrüche nahe der Detektorebene zeigt sich eine deutliche Abweichung von der Bindungsenergie die aus allen Ereignissen bestimmt wurde. Aufbrüche in X-Richtung ergaben dabei einen Wert für die

Bindungsenergie von $159,275 \pm 0,24(\text{stat}) \pm 2,33(\text{Fit})$ neV. Die Ereignisse mit einem $\cos(\theta)$ zwischen 0,25 und 0,5 und Orientierung in Y-Richtung lieferten einen Wert von $138,211 \pm 0,24(\text{stat}) \pm 2,02(\text{Fit})$ neV. Hier ergibt sich demnach ein systematischer Fehler von $^{+12,1}_{-9,0}$ neV.

Ein weiterer systematischer Fehler der Messung entsteht durch die bereits beim Argondimer (siehe Kapitel 4.2.3) erwähnte abstandsabhängige Ionisationswahrscheinlichkeit der Doppelionisation, die sich durch die ADK-Theorie beschreiben lässt. Ist das erste Atom in einem Molekül bereits ionisiert, ändert sich das Ionisationspotential des zweiten Atoms. Diese Änderung ist abhängig von dem Abstand der zwei Atome. Um diesen Effekt für das Heliumdimer abschätzen zu können wurden für das LM2M2-Potential [Luo93] die vom internuklearen Abstand abhängigen ADK-Raten berechnet. Diese wurden auf die aus dem Potential berechnete Abstandsverteilung angewendet, wodurch eine Bindungsenergie mit und ohne ADK-Theorie berechnet werden kann.

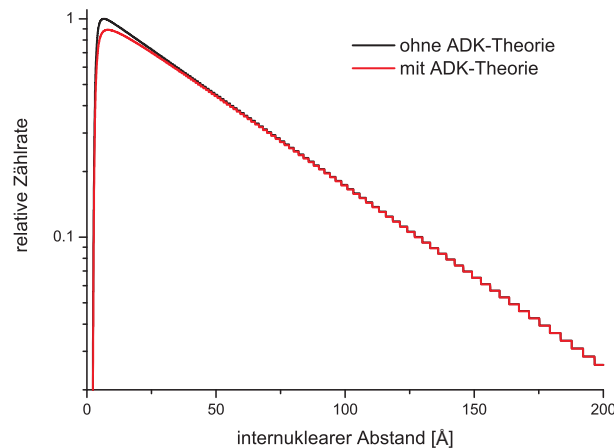


Abbildung 5.18: Vergleich der Abstandsverteilungen des LM2M2-Potentials [Luo93] mit und ohne ADK-Theorie.

Zwischen den zwei Abstandsverteilungen ist nur für Abstände unter $35 \text{ \AA}$ ein deutlicher Unterschied zu erkennen. Da dieser Bereich zur Bestimmung der Bindungsenergie nicht genutzt wird sollten zwischen den zwei Verteilungen nur ein kleiner Unterschied sein. Die Bindungsenergie ohne Berücksichtigung der ADK-Rate beträgt $94,738 \pm 0,03$ neV, die Verteilung nach anwendung der ADK-Theorie ergibt einen Wert von $92,648 \pm 0,04$ neV. In der Messung ist die Unterdrückung der Doppelionisation mit inbegriffen, daher muss auch hier der gleiche Fehler angenommen werden. Die wahre Bindungsenergie muss daher etwa 1,9 % über der gemessenen liegen. Dieser Effekt sorgt daher bezogen auf die Verteilung mit allen Ereignissen für einen systematischen Fehler von +2,8 neV.

Bei der Coulomb-Explosion des Dimers erhalten die zwei Ionen einen Rückstoßimpuls durch die ionisierten Elektronen. Aufgrund der Polarisierung des Lasers liegt dieser entlang der Y-Richtung. Durch den Vergleich der Halbwertsbreiten des Summenimpulses in X- und Y-Richtung lässt sich der mittlere Rückstoßimpuls auf 1,78 a.u. pro Ion abschätzen. Um die Auswirkungen dieses Impulses auf die Bindungsenergie haben abzuschätzen, muss der Relativimpuls der zwei Fragmente betrachtet werden, da sich aus ihm der KER berechnet. Dieser ist in Y-Richtung um 0,43 a.u. verbreitert. Berechnet man die Bindungsenergie mit einem künstlich um diese Verbreiterung reduzierten Relativimpuls, ergibt sich ein Wert von $147,643 \pm 0,11(\text{stat}) \pm 0,90(\text{Fit})$ neV. Da nun, mit einem reduzierten Relativimpuls, die über Formel 5.3 angenäherte Bindungsenergie größer ist zeigt, dass die Ungenauigkeit der Funktion größer ist als der Effekt des Rückstoßimpulses durch die Elektronen. Dieser systematische Fehler kann daher vernachlässigt werden.

Eine letzte Fehlerabschätzung kann noch durch die im Anhang A.1 analysierten Messungen getätigt werden. Hierbei ist schwer einzuschätzen wie verlässlich die einzelnen Ergebnisse sind, da diese Messungen Probleme bei der Kalibration, mit dem Detektor oder mit der angeschlossenen Elektronik besaßen. Bei einer Messung beschränkten sich die Probleme auf die Ereignisse die parallel oder orthogonal zum Detektor orientiert waren. Schließt man diese Ereignisse aus und berücksichtigt nur die restlichen, so ergab sich je nach Orientierung zur Spektrometerachse eine Bindungsenergie zwischen 158,1 und 167 neV.

Zusammenfassend ergibt sich ein systematischer Fehler aus fünf verschiedenen Beiträgen. Dominant ist hierbei der Fehler durch Abgleich zwischen den verschiedenen Orientierungen des Dimers, sowohl zwischen Spektrometerachse und Detektorebene ($^{+11,6}_{-3,4}$ neV), als auch innerhalb dieser zwischen X- und Y-Richtung ($^{+12,1}_{-9,0}$ neV). Der dritte große Beitrag zum gesamten systematischen Fehler kommt durch die Kalibration ($\pm 9,3$ neV). Die Fehler der unterdrückten Doppelionisation ($+2,8$ neV), als auch der Fehler durch den Rückstoßimpuls der Elektronen ($< 0,89$ neV) ist verhältnismäßig klein. Über Gauß'sche Fehlerfortpflanzung lässt sich aus diesen Größen der gesamte systematische Fehler zu $^{+19,4}_{-13,4}$ neV abschätzen. Geht man von diesem systematischen Fehler und der Messung aller Ereignisse aus, so liegt auch die im Anhang A.1 befindliche Messung der Bindungsenergie innerhalb des Gesamtfehlers.

In der beschriebenen Messung wurde das Heliumdimer untersucht, wobei ein Mittelwert der Verteilung internuklearer Abstände von $45,93 \pm 0,15$ (stat) Å bestimmt wurde. Dieser lässt sich über mit Hilfe von Formel 5.1 in eine Bin-

dungsenergie von $146,904 \pm 1,04$ (stat) neV umrechnen. Diese Umrechnung ist jedoch sehr sensitiv und bereits leichte Abweichungen des Mittelwerts führen zu stark unterschiedlichen Ergebnissen. Da gerade besonders große und kleine internukleare Abstände bei den verwendeten Einstellungen des Spektrometers eine reduzierte Nachweiseffektivität (aufgrund der Totzeit und des Raumwinkels) besitzen, ist diese Umrechnung für die Messung ungenau. Daher wurde um die Bindungsenergie zu bestimmen ein alternativer Weg gewählt. Bei diesem wird ausgenutzt, dass der Großteil der Wellenfunktion im klassisch verbotenen Tunnelbereich liegt. Durch das Annähern einer exponentiell abfallenden Funktion ließ sich aus diesen mittleren bis großen internuklearen Abständen die Bindungsenergie verlässlich bestimmen. Es ergab sich ein Wert von $147,211 \pm 0,11$ (stat) $\pm 0,89$ (Fit) $^{+19,4}_{-13,4}$ (syst) neV. Dieser Wert kann mit bisherigen Messungen und theoretischen Berechnungen verglichen werden. Der aktuellste experimentelle Wert der Bindungsenergie wurde von Grisenti et al. [Gri00] mit einem Wert von $94,79^{+25,9}_{-17,2}$ neV bestimmt und liegt damit außerhalb des in dieser Arbeit bestimmten Fehlers. Die aktuellste Theorie von Przybytek et al. [Prz10] dagegen berechnete eine Bindungsenergie von $139,60 \pm 2,59$ neV und ist damit deutlich innerhalb der Fehlereinschätzung dieser Arbeit (siehe Abbildung 5.19).

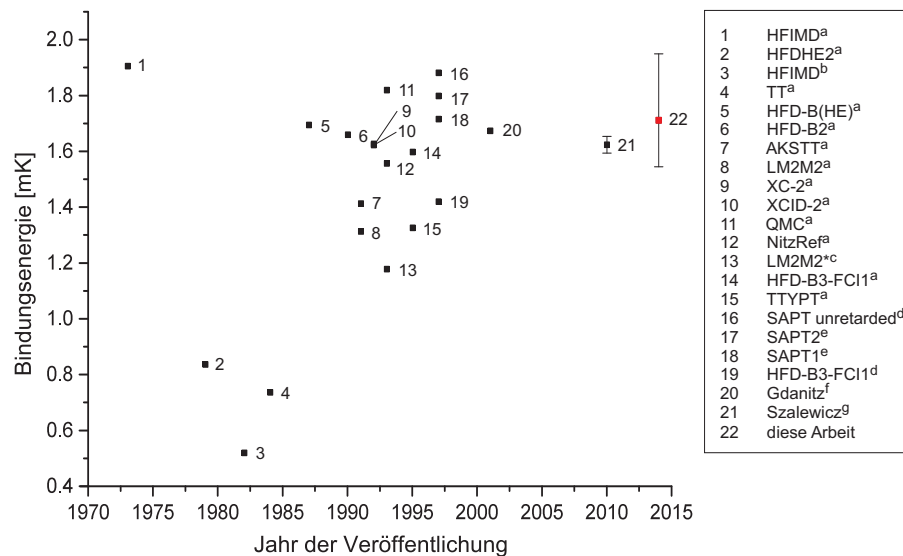


Abbildung 5.19: Vergleich der Bindungsenergien verschiedener theoretischer Berechnungen zum Ergebnis dieser Arbeit (Werte entnommen aus ^a [Jan95], ^b [Fel82], ^c [Luo93], ^d [Jan97], ^e [Kor97], ^f [Gda01], ^g [Prz10]).

5.3 Messungen am Trimer

Das Heliumtrimer ist, genau wie das Dimer, ein sehr außergewöhnliches System. Obwohl die Bindungsenergie von $^4\text{He}_3$ etwa einen Faktor 100 größer ist als die des Dimers, befindet sich ein beträchtlicher Teil der Wellenfunktion im klassisch verbotenen Tunnelbereich des Potentials. Für den Teil, der sich besonders weit weg vom klassisch erlaubten Bereich befindet, ist ein vom eigentlichen Potential unabhängiges Verhalten zu erwarten. Man spricht in diesem Fall von einem universellen Dreikörperproblem [Bra03]. Auch wenn dieses beim Grundzustand von $^4\text{He}_3$ noch nicht vollständig realisiert ist, ist es zumindest eine Annäherung an dieses universelle Verhalten.

Eine bessere Realisierung des universellen Dreiteilchenproblems könnte der erste angeregte Zustand des $^4\text{He}_3$ Trimers bilden. Dieses als „Efimov-Zustand“ vorausgesagte System soll bei gleichem Potential noch einen Faktor 10 größer sein als der Grundzustand. Hierdurch würde er nahezu komplett im klassisch verbotenen Bereich des Potentials liegen und sollte sich unabhängig von dessen genauer Form verhalten.

Das Heliumtrimer bietet zusätzlich noch die Möglichkeit einen Isotopeneffekt zu untersuchen. Tauscht man ein ^4He durch das leichtere Isotop ^3He aus, bleibt das Trimer trotz der größeren Nullpunktschwingung immer noch gebunden. Das so gebildete $^3\text{He}^4\text{He}_2$ Trimer soll einen „Tango-State“ bilden. Dies ist ein System aus drei Teilchen, bei denen nur ein Untersystem, das ^4He - ^4He , eine Zweikörperbindung bildet. In seiner Gesamtheit ist das Trimer jedoch trotz zweier ungebundener Paare stabil.

Im Weiteren werden die Daten des mono-isotopen Trimers betrachtet. Im zweiten Teil dieses Unterkapitels wird $^3\text{He}^4\text{He}_2$ analysiert und mit dem reinen Trimer verglichen. Genau wie beim Dimer wird hier nur eine der getätigten drei Messungen vorgestellt. Ein Vergleich mit den anderen Messungen ist in Anhang A.1 zu finden.

5.3.1 Das isotopenreine $^4\text{He}_3$

Wie in Kapitel 2.3 beschrieben, bilden drei Heliumatome bei ausreichend niedrigen Energien einen stabilen Cluster. Dieses Molekül soll eine Bindungsenergie von etwa $11 \mu\text{eV}$ haben. Aus einem Beugungsexperiment [Brü05] ist bekannt, dass seine mittlere Größe $11_{-5}^{+4} \text{ \AA}$ beträgt. Weitere Kenntnisse des Moleküls stammen bislang nur aus theoretischen Berechnungen.

Das Ziel der getätigten Messungen war es daher, weitere Informationen über dieses System zu erhalten. Zum einen ist eine Größenverteilung des Moleküls

von Interesse, da diese eine genauere Beschreibung darstellt als der reine Mittelwert, zum anderen ist die geometrische Form des Systems experimentell bisher völlig unerforscht. Zusätzlich wurde der angeregte Zustand des Trimers bislang experimentell nicht beobachtet.

Um eine maximale Ausbeute an Trimeren in der freien Gasexpansion zu erzeugen wurde die 5 μm große Düse mit Hilfe von flüssigem Helium auf eine Temperatur von 12 K gekühlt. Das Heliumgas wurde mit einem Vordruck von 3 bar durch die Düse expandiert. Hierdurch waren etwa 3 % Trimere im Jet enthalten.

Wie bereits in Kapitel 4 beschrieben, wurde über eine Bedingung auf einen kleinen Summenimpuls eine Trennung der Trimerereignisse vom Untergrund getätigt. Zusätzlich wurden vergleichbare Bedingungen wie beim Heliumdimer (5.2) in der Analyse gesetzt. In den Messungen wurde nicht nur auf Dreiteilchenkoinzidenzen geachtet, sondern auch auf die Ereignisse bei denen nur zwei Teilchen des Trimers ionisiert wurden. Diese entstehen im äußeren Teil des Laserfokusvolumen. Im Inneren des Fokus herrscht eine Laserintensität (ca. $2 \cdot 10^{-15} \text{ W/cm}^2$), die die Heliumatome mit einer Wahrscheinlichkeit von eins ionisiert.

Impulse

Die erste Messgröße in einer ColTRIMS-Messung stellt meist der KER dar. So auch in der Trimermessung. Über einen Vergleich von Theorie und Experiment kann sichergestellt werden, dass in den Daten kein Untergrund durch falsche Koinzidenzen oder andere Cluster vorhanden ist.

Als Referenz soll eine von D. Bressanini bereitgestellte Rechnung dienen [Bre11]. Diese basiert auf einer „Quanten Monte Carlo Simulation“ (QMC), welche das von Tang, Toennies und Yiu [Tan95] berechnete TTY Potential als Grundlage hat. Hierüber wird über einen Produktansatz die Wellenfunktion des Trimers berechnet. Aus dieser können dann Messgrößen wie KER, Teilchenabstände und Winkel berechnet werden.

Wie zu erkennen ist, herrscht eine ausreichend gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment. Es kann daher davon ausgegangen werden, dass in den experimentellen Daten keine relevante Menge an unerwünschten Ereignissen aus Untergrund oder falschen Koinzidenzen mehr vorhanden ist. Hierbei ist zu beachten, dass die Trimere bei hoher Aufbruchsenergie nicht in jeder räumlichen Orientierung detektiert wurden, der Raumwinkel unter dem alle Trimere nachgewiesen werden konnten lag knapp unter 4π . Dieser

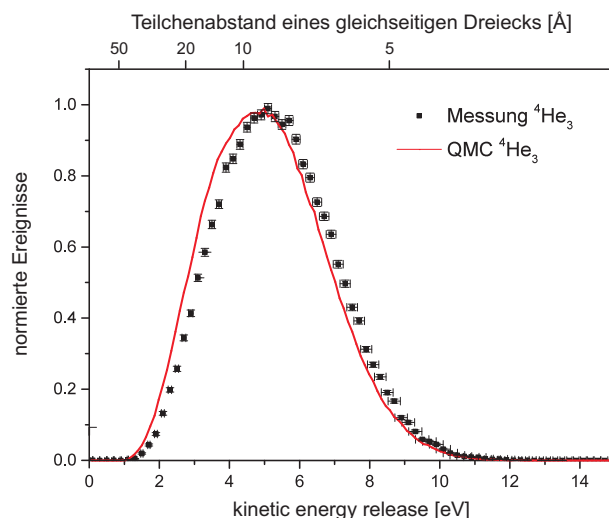


Abbildung 5.20: Vergleich der gemessenen kinetischen Energie der Fragmente des Trimers und der von D. Bressanini [Bre11] getätigten QMC Simulation. Die dargestellten Fehlerbalken ergeben sich aus dem 1σ statistischen Fehler.

Effekt wurde durch eine Raumwinkelkorrektur in den theoretischen Berechnungen berücksichtigt.

Die leichte Abweichung zwischen Theorie und Experiment ist durch die in Kapitel 4.2 beschriebenen Probleme bei der Kalibration des Spektrometers zu sehen. Der Fehler dieser Messung kann aus den Kalibrationsmessungen abgeschätzt werden (siehe Kapitel 4.3). Diese ergaben einen Fehler im KER zwischen den verschiedenen Kalibrationsmessungen und innerhalb der Messung der Argondimere. Diese wurde genutzt um einen bestmöglichen Abgleich zwischen Aufbrüchen entlang der Spektrometerachse und welchen in der Detektorebene, als auch innerhalb dieser zu erhalten. Bildet man aus den so erhaltenen Werten den Gesamtfehler, ergibt dies eine Unsicherheit von 1,94 % auf den KER der Heliumtrimere. Dieser wurde als horizontale Fehlerbalken in Abbildung 5.20 eingezeichnet. Die leichte Abweichung an der ansteigenden Flanke ist durch diesen Fehler nicht zu erklären. Sie könnte aus der Totzeit des Detektors resultieren. Dieser Effekt kann besonders bei drei zu detektierenden Ionen zu einer reduzierten Nachweiseffektivität bei kleinem KER. Die Abweichung an der abfallenden Flanke der Verteilung resultiert vermutlich aus der bereits erwähnten Raumwinkelkorrektur.

Interessanter als diese leichte Abweichung ist die Form der KER-Verteilung. Diese startet bereits bei 2 eV, was auf eine sehr schwache Bindung und, damit einhergehend, auf ein sehr großes Molekül schließen lässt. Von hier an steigt die Verteilung an, bis sie bei etwa 5 eV ihr Maximum erreicht und anschließend bis ca. 10 eV wieder abfällt. Anders als die KER-Verteilung des Dimers hat die des Trimers eine Form, die einer Gauß-Verteilung ähnelt.

Vergleicht man diese breite Verteilung mit anderen Edelgastrimeren (siehe Abb. 5.21), sieht man sofort, dass es sich beim Heliumtrimer um ein sehr extremes System handelt. Seine KER-Verteilung dehnt sich über einen viel größeren Energiebereich aus, welcher jedoch bereits bei Aufbruchenergien endet, bei denen die KER-Verteilungen der anderen Trimere ihre niederenergetische Grenze haben.

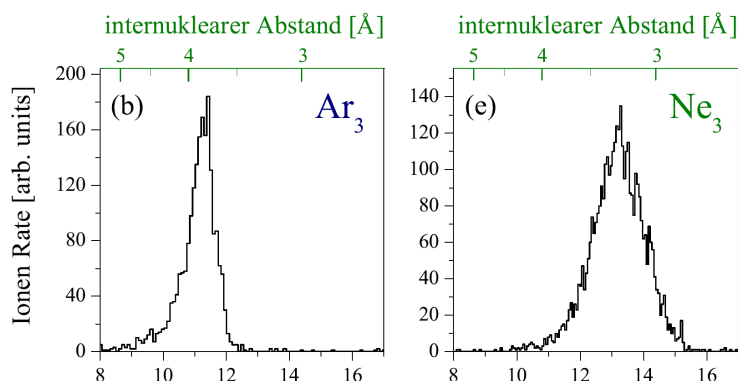


Abbildung 5.21: Gemessene Aufbruchenergie bei der dreifachen Ionisation von Argon- und Neontrimeren (entnommen aus [Ulr11])

Dieser Unterschied wird noch deutlicher, wenn man die oben in den Histogrammen eingezeichnete Achse betrachtet. Diese gibt eine Größe des Systems an, welche analog zum Dimer über die Reflection Approximation berechnet wurde ($R=3/\text{KER}$). Während diese Größe beim Argon- und Neontrimer nur bis etwa 5 Ångström geht, sind beim Heliumtrimer Werte bis fast 50 Å zu finden.

Dieser Zweiteilchenabstand ist jedoch missverständlich. Da es sich um einen gemittelten Abstand aller drei Teilchen handelt, würde er nur stimmen, wenn es sich bei den Systemen um gleichseitige Dreiecke handeln würde. Diese Vermutung ist jedoch bislang nicht begründet, daher soll dieser Abstand hier nur als Richtwert dienen, welcher aufzeigen soll, wie groß die Moleküle in etwa sind.

Internukleare Abstände

Eine genauere Aussage über die Größe des Heliumtrimers gibt eine direkte Messung der Verteilung der Zweiteilchenabstände. Diese ist jedoch aus dem Dreiteilchen-KER nicht zu gewinnen. Um an diese Information zu gelangen, muss der Einfluss des dritten Teilchens in der Coulomb-Explosion eliminiert werden. Dies ist möglich indem man nur die Ereignisse betrachtet, bei denen nur zwei Heliumionen gemessen wurden. Da der Gasstrahl aufgrund des Beugungsgitters nahezu nur aus Trimeren besteht, können diese Ereignisse

nur auf zwei Wegen entstehen. Der erste ist die Dreifachionisation eines Trimers, bei der nur zwei Ionen vom Detektor nachgewiesen wurden. Die zweite Möglichkeit ist eine Zweifachionisation des Trimers, bei der ein neutrales Heliumatom entsteht. Unterscheiden kann man diese zwei Fälle über den Summenimpuls. Sind alle drei Teilchen des Trimers geladen, erhalten sie auch alle einen Rückstoßimpuls in der Coulomb-Explosion. Werden von ihnen jedoch nur zwei nachgewiesen, haben diese keinen Summenimpuls von null. Verlangt man also einen niedrigen Summenimpuls, können die Ereignisse ausgewählt werden, die im äußeren Bereich des Laserfokus entstanden sind, bei denen nur zwei Ionen und ein neutrales Heliumatom entstanden sind. Hier ist das neutrale Helium nur ein Betrachter der Coulomb-Explosion und erhält selbst keinen relevanten Impulsübertrag, wodurch die nachgewiesenen Ionen einen Summenimpuls nahe null haben. Der Zweiteilchen-KER, der von diesen Ereignissen stammt, kann demnach per Refelction Approximation ($R=1/KER$) direkt in einen internuklearen Abstand umgewandelt werden.

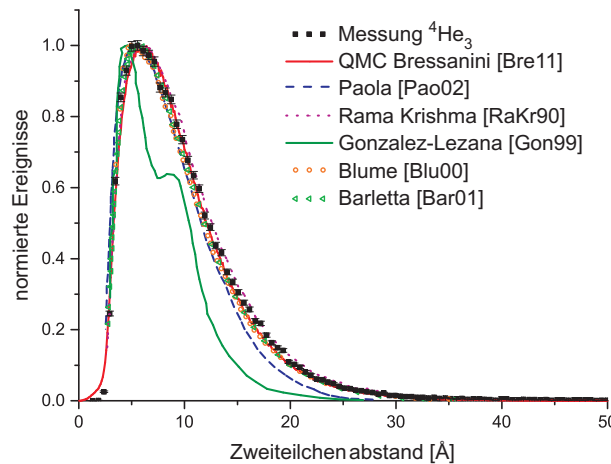


Abbildung 5.22: Verteilung der Zweiteilchenabstände des $^4\text{He}_3$ verglichen mit verschiedenen Rechnungen. Fehlerbalken der Messung ergeben sich durch den 1σ statistischen Fehler [Voi14].

Die gemessenen Zweiteilchenabstände werden in Abbildung 5.22 mit verschiedenen theoretisch Berechnungen verglichen. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Verteilung die von der Theorie vorausgesagte Form hat. Sie fängt etwa bei einem Abstand von 2 Ångström an, hat bei knapp über 5 Å ihr Maximum und fällt von da an bis etwa 30 Å ab. Vereinzelt Ereignisse können noch bis hin zu 50 Å beobachtet werden. Die einzige Ausnahme stellt die Rechnung von Gonzalez-Lezana et al. [Gon99] dar. Sie zeigt einen Höcker in der Verteilung, welcher in den experimentellen Daten nicht zu erkennen ist.

In dieser Messgröße ist wieder der besondere Charakter des Heliumtrimers zu erkennen. Während kovalent gebundene Moleküle eine Größe in der Ordnung von etwa $1 \text{ \AA}$ haben, ist das Trimer deutlich größer. Es ist bildlich gesprochen ein leeres Molekül, da seine drei Atome einen, im Vergleich zu ihrer Größe, riesigen leeren Raum einschließen.

Da die gemessene Verteilung der Zweiteilchenabstände nicht nur sehr große Werte zeigt, sondern auch eine enorme Breite aufweist, kann man davon ausgehen, dass die Atome keine starre Bindung besitzen. Während die meisten Moleküle sich über Kugel-Stab-Modelle darstellen lassen, mit wohl definierter Größe und Form, könnte dies bei Heliumtrimern die falsche Anschauung sein. Die Breite der Zweiteilchenabstände legt die Vermutung nahe, dass $^4\text{He}_3$ keinen starren Aufbau und damit auch keine feste Struktur hat. Diese Behauptung, welche nur aus der Größe des Moleküls gezogen wurde, ist jedoch noch weiter zu belegen.

Geometrische Struktur

Um eine genauere Anschauung des Aufbaus der Cluster zu bekommen, wird wieder zu den Ereignissen, bei denen alle drei Atome ionisiert und in Koinzidenz detektiert wurden, gewechselt. Hier kann die Struktur der Trimere verschiedenen dargestellt werden. Die wahrscheinlich einfachste Methode etwas über den Aufbau des Trimers zu erfahren ist, den zwischen den Relativimpulsen befindlichen Winkel zu betrachten. Würde es sich um ein unbiegsam gebundenes Molekül handeln, so wäre dieser bei einem Wert fest. Für ein gleichseitiges Dreieck liegt er bei 60° .

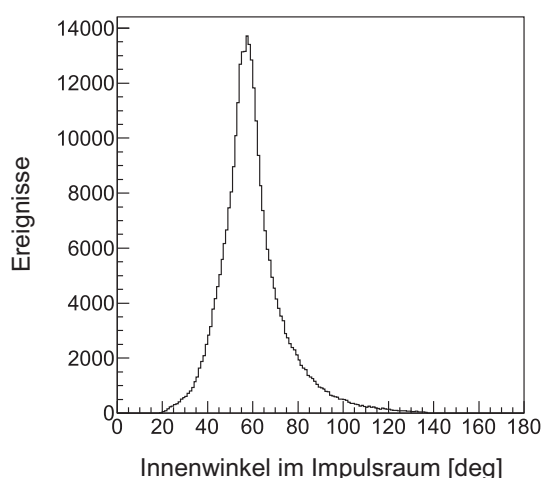


Abbildung 5.23: Innenwinkel zwischen den Relativimpulsen der drei Heliumatome.

Im Falle des Heliumtrimers ergibt sich eine relativ breite Verteilung. Diese beginnt bei etwa 20° und endet erst bei ca. 130° . Auch wenn ein ausgeprägtes

Maximum bei etwa 60° existiert, zeigt dieses Histogramm, dass auch Konfigurationen vorhanden sind, welche kein gleichseitiges Dreieck bilden.

Bei dieser eindimensionalen Darstellung muss berücksichtigt werden, dass ein gleichseitiges Dreieck drei Einträge in dieses Histogramm bei einem Winkel von 60° erzeugen würde. Ein ungleichseitiges Dreieck würde jedoch drei Einträge bei verschiedenen Winkeln erzeugen. Das Maximum bei 60° ist demnach überproportional dominant. Daher ist diese Darstellung nicht ideal für ein intuitives Verständnis der Struktur des Heliumtrimers.

Eine weitere, bereits in Kapitel 4.1.3 beschriebene Darstellungsform, ist das Newton Diagramm. Bei diesem werden die gemessenen Impulse so rotiert, dass das als erstes detektierte Teilchen in die positive X-Richtung zeigt. Das zweite detektierte Ion liegt in positiver Y-Richtung, das dritte in negativer Y-Richtung. Dieses Histogramm besitzt den Vorteil, dass man in ihm erkennen kann, ob es sich um einen instantanen Aufbruch handelt oder sich erst ein Ion vom Trimer abspaltet und zu einem deutlich späteren Zeitpunkt das verbleibende Dimer aufbricht. Dies würde zu einer Ringstruktur in der negativen X-Achse führen, da das Dimer nach Abspaltung des ersten Ions noch rotieren könnte.

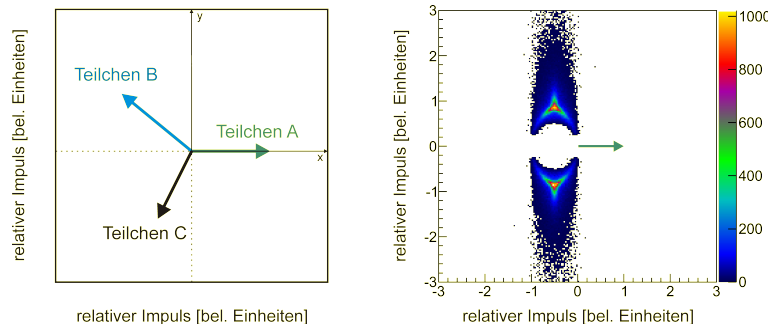


Abbildung 5.24: Normiertes Newton Diagramm des isotopenreinen Heliumtrimers.

Wie in Abbildung 5.24 zu erkennen ist, haben die Hauptmaxima einen symmetrischen Abstand zum Ursprung, der gleichgroß ist, wie der auf eins normierte Impuls des ersten Teilchens. Dies deutet darauf hin, dass es sich nicht um einen zweistufigen Prozess handelt, da bei diesem keine Korrelation zwischen dem ersten und den zwei anderen Ionen bestehen würde. In dieser Zeit wäre das abgespaltene Dimer rotiert und wäre damit nicht zum Ursprung des Koordinatensystems, sondern nur zum Schwerpunkt des Dimers, symmetrisch (siehe [Neu10] für einen zweistufigen Zerfall im Newton Diagramm). Dies kann, zumindest für den Großteil der Daten, ausgeschlossen werden.

Vergleicht man das Newton Diagramm von $^4\text{He}_3$ mit denen anderer Edelgas-trimere (siehe 5.25), ist zu erkennen, dass die Grundstruktur sich stark äh-

nelt. Die Maxima liegen an einer Position, die einem gleichen Impuls aller drei Teilchen entspricht. Dieser sollte zu einer gleichseitigen Dreiecksstruktur des Trimers gehören. Von den Maxima aus gibt es Ausläufer zum Ursprung des Koordinatensystems und zwei weitere in einem 120° Winkel zum ersten. Im Vergleich zu Argon und Neon fallen diese Ausläufer beim Helium jedoch sehr viel dominanter aus. Während sie bei Ar_3 nur zu erahnen sind, gibt es bei Helium noch Ereignisse, bei denen das zweite und dritte Teilchen mehr als doppelt so viel Impuls erhalten hat, wie das auf eins normierte erste.

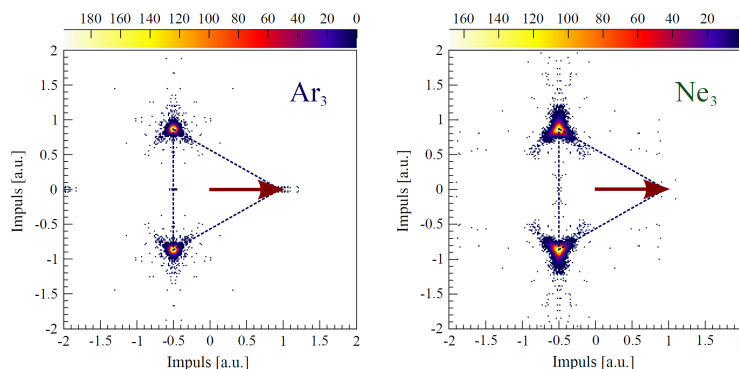


Abbildung 5.25: Normiertes Newton Diagramm des Argon- und Neontrimers (entnommen aus [Ulr11]).

Diese breite Verschmierung der normierten Impulse deutet, genau wie die Abstandsverteilung, ebenfalls auf ein sehr unstrukturiertes Molekül hin. Da in diesem Histogramm das als zweites und drittes detektierte Ion unabhängig voneinander eingezeichnet sind, kann keine Aussage über die Häufigkeit der einzelnen Strukturen getroffen werden. Jedes Ereignis in der oberen Hälfte des Diagramms gehört genau zu einem Eintrag in der unteren Hälfte. Diese klare Zuordnung geht im Newton Diagramm jedoch verloren. Es deutet nur an, dass im Gegensatz zu Ar_3 und Ne_3 es sich bei He_3 nicht um eine dominante Dreiecksstruktur handeln könnte.

Eine andere Darstellung, welche die Impulse von allen drei Fragmenten miteinander verknüpft, ist das Dalitz Diagramm. Dieses bereits in Kapitel 4.1.3 beschriebene Diagramm basiert auf einem gleichseitigen Dreieck. Der Abstand von der jeweiligen Seite gibt den Impuls eines Ions an. Ein Punkt innerhalb dieses Dreiecks beinhaltet demnach die Impulse aller drei Teilchen. Da verschieden große Trimere auch zu verschieden langen Impulsvektoren führen, würde man zu ihrer Darstellung auch verschieden große Dreiecke benötigen. Um dies zu vermeiden, normiert man jeden Impuls mit der Summe der Impulsbeträge aller drei Teilchen. Auf diese Weise geht die Information über die Größe des Systems verloren, man sieht jedoch in einem Histogramm

die relativen Impulse aller drei Teilchen und kann daher auf die Struktur des Systems schließen. Ist der Gesamtimpuls des Dreiteilchensystems erhalten, kann innerhalb des Dreiecks nur eine kreisrunde Fläche populierte werden.

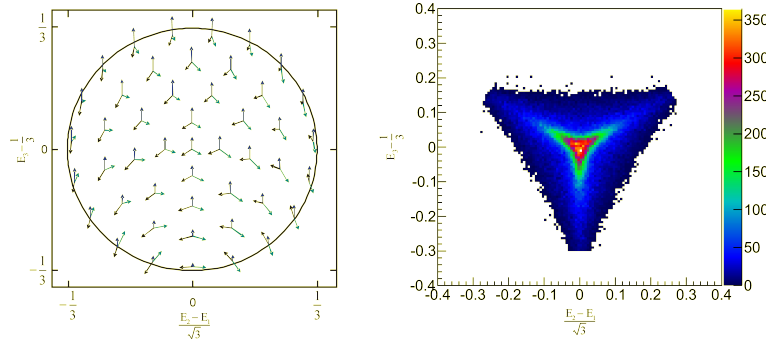


Abbildung 5.26: Links: Schematische Darstellung des Dalitz Diagramms im Impulsraum. Rechts: Gemessenes Dalitz Diagramm im Impulsraum des $^4\text{He}_3$.

Auch im Dalitz Diagramm (siehe Abb. 5.26) ist ein Maximum zu erkennen. Dieses liegt im Ursprung des Histogramms, an der Stelle, an der alle drei Fragmente den gleichen Impuls erhalten. Dieses Maximum fällt jedoch nur langsam zu den Seiten ab, so dass selbst an der äußersten Grenze des Histogramms noch Ereignisse sind. Dies entspricht dem Fall, bei dem ein Ion gar keinen Impuls aus der Coulomb-Explosion erhalten hat, die anderen zwei jedoch einen im Betrag identischen. Eine komplett lineare Konfiguration würde diese Impulsverteilung erzeugen.

Wie stark diese Verteilung ausgedehnt ist, kann wiederum im Vergleich mit Ar_3 und Ne_3 gesehen werden. Hier ist im Dalitz Diagramm nur ein schmales Maximum im Ursprung zu sehen. Dieses ist im Falle von Neon schon über einen größeren Konfigurationsbereich verteilt als bei Argon, jedoch noch sehr klar definiert, wenn man es mit Helium vergleicht.

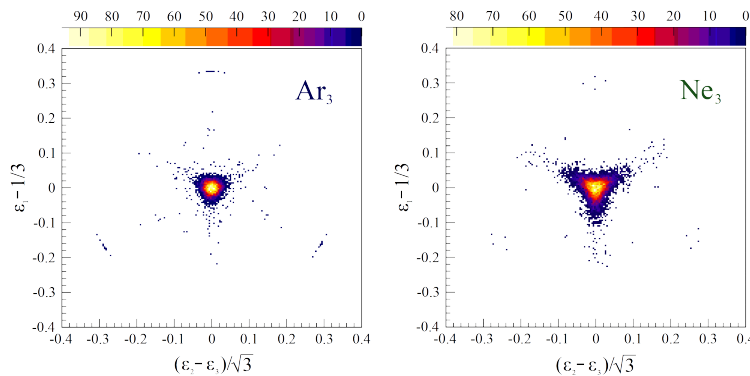


Abbildung 5.27: Gemessene Dalitz Diagramme des Argon- und Neontrimers (entnommen aus [Ulr11]).

Auch in dieser Darstellung zeigt sich wieder der sehr spezielle Charakter des He_3 . Im Vergleich zu allen anderen dreiatomigen Molekülen und Clustern besitzt das Heliumtrimer eine extrem breite Impulsverteilung der einzelnen Fragmente. Diese ist sowohl in Impulsgröße (KER und Newton Diagramm), als auch in der Richtung der Impulse (Newton Diagramm und Dalitz Diagramm) zu sehen.

Diese Darstellungen zeigen jedoch alle den Impulsraum. Die einzigen Informationen die bisher aus dem Ortsraum dargestellt wurden, sind die Zweiteilchenabstände, welche aus der Reflection Approximation gewonnen wurden. Für drei Teilchen ist die Transformation von Impulsraum in den Ortsraum unter Berücksichtigung der korrekten Struktur durch die Reflection Approximation nicht mehr möglich.

Um auch hier Informationen über die Struktur im Ortsraum zu gewinnen, wurde der Weg einer „LookUp Table“ (LU Table) gewählt [Kun14]. Hierfür wird mit zufällig gewürfelten Dreiteilchenkonfigurationen im Ortsraum gestartet. Diese werden als einfach geladene Heliumionen betrachtet, um deren Coulomb-Explosion, unter Berücksichtigung eines realistischen Startimpulses, zu simulieren. Hierfür werden die Newton'schen Bewegungsgleichungen in kleinen Zeitschritten gelöst. Erhalten die Teilchen keine weitere relevante Beschleunigung durch die Coulomb-Abstoßung, werden die resultierenden Impulsvektoren in der LU Table mit den ursprünglichen Ortsvektoren verknüpft. Durch das Erstellen einer Tabelle mit sehr vielen Ereignissen ist es nun möglich, die gemessenen Impulsvektoren über diese Tabelle in Ortsvektoren zu transformieren. Eine genauere Beschreibung dieser Methode ist Anhang A.2 zu entnehmen.

Mit den so erlangten Informationen kann ein Vergleich zwischen Impulsraum und Ortsraum durchgeführt werden. Als erste Größe wird der schon in Abbildung 5.23 dargestellte Innenwinkel im Impulsraum mit der identischen Größe im Ortsraum verglichen (siehe Abbildung 5.28).

In diesen Histogrammen ist deutlich zu erkennen, dass die Verteilung der Innenwinkel im Ortsraum eine deutlich unterschiedliche Form zu der im Impulsraum annimmt. Die vergleichsweise schmale Verteilung im Impulsraum ergibt eine extrem breite Verteilung im Ortsraum. Diese startet schon bei einem Winkel von 0° und endet erst bei 180° . Das Maximum dieser Verteilung liegt, nicht wie im Impulsraum bei knapp unter 60° , sondern bei etwa 30° . Dies widerspricht der Vorstellung, dass es sich beim Heliumtrimer um ein dominant gleichseitiges Dreieck handelt, da hier das Maximum bei einem Innenwinkel von 60° liegen würde. Vielmehr legt die Winkelverteilung im

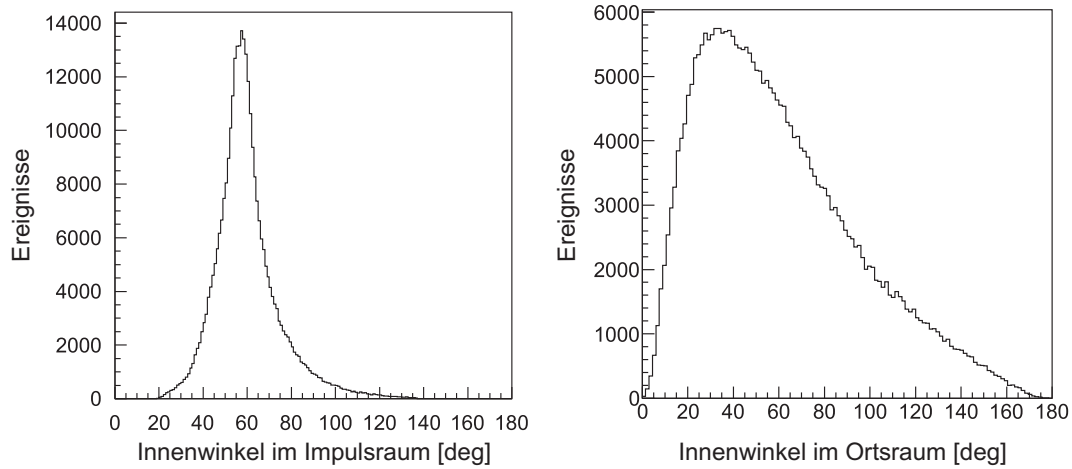


Abbildung 5.28: Vergleich des $^4\text{He}_3$ Innenwinkels im Impulsraum (links) und im Ortsraum (rechts).

Ortsraum nahe, dass es sich bei $^4\text{He}_3$ um ein sehr unstrukturiertes Molekül handelt.

Um zu kontrollieren, ob diese durch die LU Table gewonnene Verteilung Sinn ergibt, liegt es nahe, sie mit verschiedenen theoretisch berechneten Verteilungen zu vergleichen (siehe Abb. 5.29).

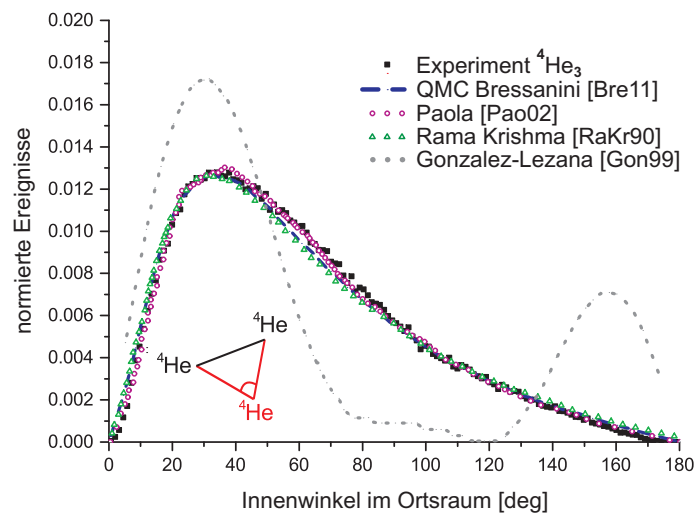


Abbildung 5.29: Vergleich des $^4\text{He}_3$ Innenwinkels im Ortsraum mit verschiedenen theoretischen Berechnungen. Zur besseren Vergleichbarkeit wurde die Verteilungen auf ein Integral von 1 normiert. Die Fehlerbalken stellen den 1σ statistischen Fehler dar [Voi14].

Auch hier ist festzustellen, dass, abgesehen von durch Gonzalez-Lezana et al. [Gon99] berechneten Verteilung, alle Verteilungen gut mit den experimentellen übereinstimmen. Verwunderlich ist jedoch, dass trotz dieser scheinbaren Übereinstimmung der theoretischen Verteilungen keine einheitliche Meinung über die Struktur des Trimers herrscht (siehe Kapitel 2.3). Krishna et al.

[RaKr90] schlossen aus dieser Verteilung z.B., dass es sich um ein bevorzugt gleichseitiges Dreieck handeln müsse.

Dies zeigt das in [Bre11] angesprochene Problem: „that the disagreement on the shape of this system arises from a misinterpretation of the data, because for this very peculiar system any conclusion on its shape based only on average values or monodimensional distributions can lead to misleading interpretations“. Es erscheint problematisch aus einer eindimensionalen Verteilung, oder gar aus einem Mittelwert, Rückschlüsse auf die Struktur des Dreikörpersystems zu ziehen. Um dieses Problem zu umgehen, werden die Daten im Ortsraum nun auch in einer zweidimensionalen Darstellung betrachtet.

Hierzu wird aus den Ortsvektoren der LU Table das bereits bekannte Dalitz Diagramm erstellt. Anders als bisher werden diesmal nicht die normierten Impulse in dieses Spektrum eingehen, sondern die Ortsvektoren im Schwerpunktsystem der drei Teilchen. Auch diese werden wiederum mit den aufsummierten Vektorlängen normiert, um eine Wahrscheinlichkeitsverteilung der einzelnen Strukturen, unabhängig von ihrer Größe, zu erzeugen. An dieser Stelle soll ebenfalls ein direkter Vergleich zwischen Impuls- und Ortsraum nebeneinander gestellt werden (siehe Abb. 5.30).

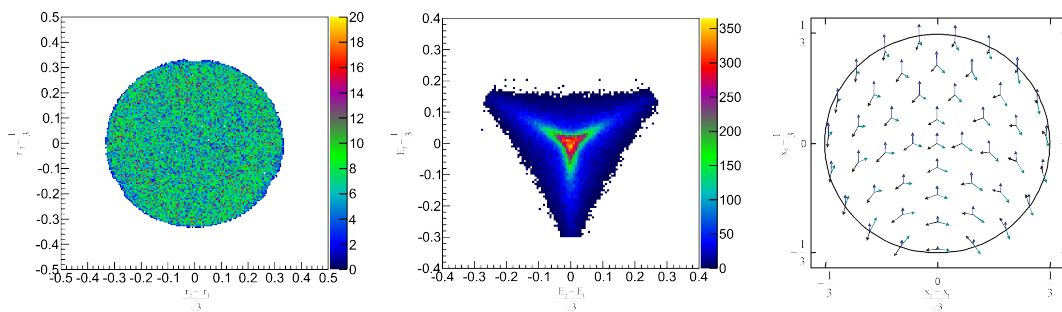


Abbildung 5.30: Vergleich des Dalitz Diagramms im Ortsraum (links) mit dem im Impulsraum (mitte). Zum leichteren Verständnis ist rechts eine allgemeine Karte zum Dalitz Diagramm dargestellt.

Genau wie im eindimensional dargestellten Innenwinkel ergibt auch das Dalitz Diagramm im Ortsraum eine vollkommen unterschiedliche Verteilung. Äquivalent zum Innenwinkel zeigt sich eine enorme Verbreiterung der belegten Konfigurationen. Das Histogramm scheint im Ortsraum nahezu homogen gefüllt. Geht man sowohl beim Dalitz Diagramm im Impulsraum, als auch im Ortsraum von der möglichen Kreisfläche aus (siehe Abbildung 5.30 rechts), ist zu erkennen, dass ein kleinerer Bereich im Impulsraum auf einen großen Bereich im Ortsraum abgebildet wird.

In diesem Histogramm ist zusätzlich sehr gut zu erkennen, dass es sich beim Heliumtrimer um ein sehr strukturloses System handelt. Innerhalb der sta-

tistisch bedingten Schwankung der Zählrate ist keine klare Tendenz zu linearem oder dreieckigem geometrischen Aufbau zu erkennen. Bei $^4\text{He}_3$ handelt es sich demnach um ein Molekül ohne feste Struktur. Dies stellte auch schon Bressanini et al. in ihrer Veröffentlichung fest: „Classifying $^4\text{He}_3$ as either equilateral or linear or any other particular shape, as was done in the past, is not sensible, because in this case the intuitive notion of equilibrium structure is ill defined” [Bre11].

Dass die experimentellen Daten mit dieser Aussage von Bressanini übereinstimmen, soll noch anhand einer von Bressanini gewählten Darstellung gezeigt werden. Um seine These zu untermauern, wählte Bressanini die Darstellung zweier Innenwinkel gegeneinander (siehe Abb. 5.31). Über diese ist die Form eines Dreiecks vollkommen definiert.

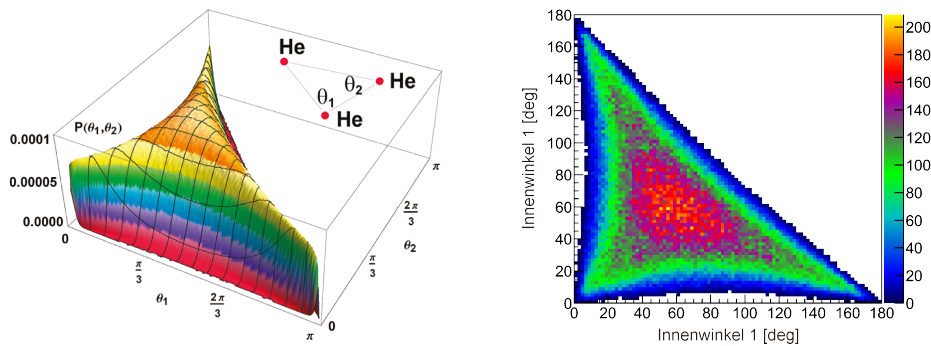


Abbildung 5.31: Darstellung zweier Innenwinkel des Heliumtrimers. Vergleich zwischen berechneter Verteilung aus [Bre11] (links) und über die LU Table rekonstruierten Winkeln aus der Messung (rechts).

Es ergibt sich eine gute Übereinstimmung zwischen QMC Simulation und Experiment. Diese legt nahe, dass, wie von Bressanini festgestellt, beim Heliumtrimer nicht von einer geometrischen Struktur gesprochen werden kann. Würde man es entweder linear oder dreieckig nennen, würde dies eine Schwingung um diesen Gleichgewichtszustand suggerieren. Da alle Konfigurationen aber nahezu mit gleicher Wahrscheinlichkeit vorkommen, gibt es diesen beim Trimer nicht. Es ist ein Molekül ohne Struktur.

Diese Aussage lässt sich noch besser verdeutlichen, indem man die Messung mit einem intuitiv verständlichen Modellsystem vergleicht. Hierzu wurde eine Kugel erzeugt, in deren Inneren bis zu einem gewissen Radius (r) eine homogene Dichte angenommen wird. Außerhalb dieses Radius fällt die Wahrscheinlichkeitsdichte exponentiell ab ($e^{-\kappa r}$). Aus der so erzeugten Dichteverteilung (ab hier auch „Random Cloud“) werden zufällig drei Punkte gewählt, die unser Modell-Trimer bilden. r und κ wurden dabei so gewählt, dass sie

möglichst gut die Winkelverteilung und den Zweiteilchenabstand wiedergeben [Dör].

Für das Modellsystem, welches aufgrund seiner Entstehung keine Tendenz zu einer bevorzugten Struktur haben kann, wurden nun die Dreiecksinnenwinkel und Zweiteilchenabstände mit denen aus der LU Table bestimmten verglichen (siehe Abb. 5.32).

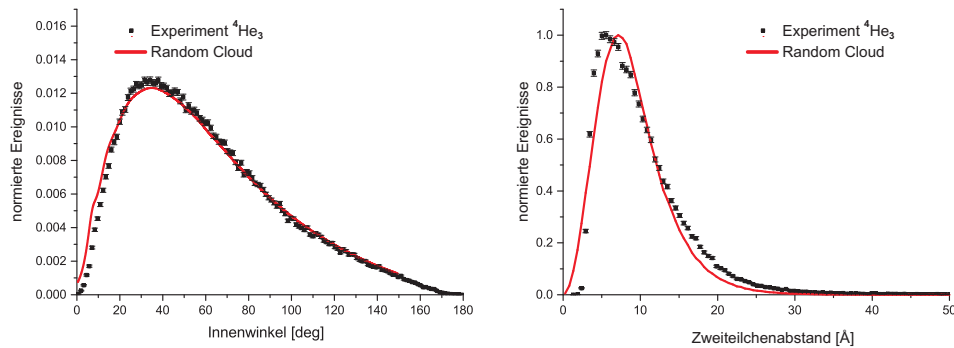


Abbildung 5.32: Links: Vergleich zwischen der gemessenen Verteilung der Dreiecksinnenwinkel im Ortsraum und einer Verteilung von zufällig gewürfelte Dreiecken („Random Cloud“). Rechts: Vergleich der gemessenen Zweiteilchenabstände und der Random Cloud. Die Fehlerbalken ergeben sich aus den 1σ statistischen Fehlern.

Wie in Abbildung 5.32 zu erkennen ist, ergibt sich durch das Modellsystem eine Verteilung, die präzise den Verlauf der experimentellen Winkelverteilung wiedergibt und auch die Zweiteilchenabstände gut annähert. Hieraus können zwei Dinge geschlossen werden: zum einen muss der geometrische Aufbau des Trimers ähnlich zufällig sein, wie der des Modellsystems und zum anderen zeigt es, wie unbedeutend der innere, repulsive Teil des He-He Potentials sein muss. Dieser wurde in das Modellsystem nicht integriert, hier können die drei Ecken eines Dreiecks beliebig nahe beieinander sein. Dies ist auch in Abbildung 5.33 zu erkennen. Hier ist die Wahrscheinlichkeitsdichte des dritten Teilchens in Abhängigkeit der Positionen der ersten beiden dargestellt.

Der unstrukturierte Charakter des Trimers und die gute Übereinstimmung zwischen Model, Theorie und Experiment ist in dieser Darstellung gut zu sehen. Der einzige Unterschied ist im Random Cloud Model im Bereich nahe der roten Punkte, die die Position der ersten zwei Teilchen angeben, zu sehen. Hier ist zu erkennen, dass im Model keine Abstoßung aufgrund des Potentialverlaufs bei kleinen Abständen berücksichtigt wurde. Obwohl diese in Realität im Heliumtrimer herrscht, verdeutlicht es, dass die geometrische Form des Heliumtrimers bereits sehr unabhängig vom inneren Bereich des Potentials ist. Dies zeigt, dass das Trimer bereits eine gute Annäherung an ein universelles Dreikörperproblem ist.

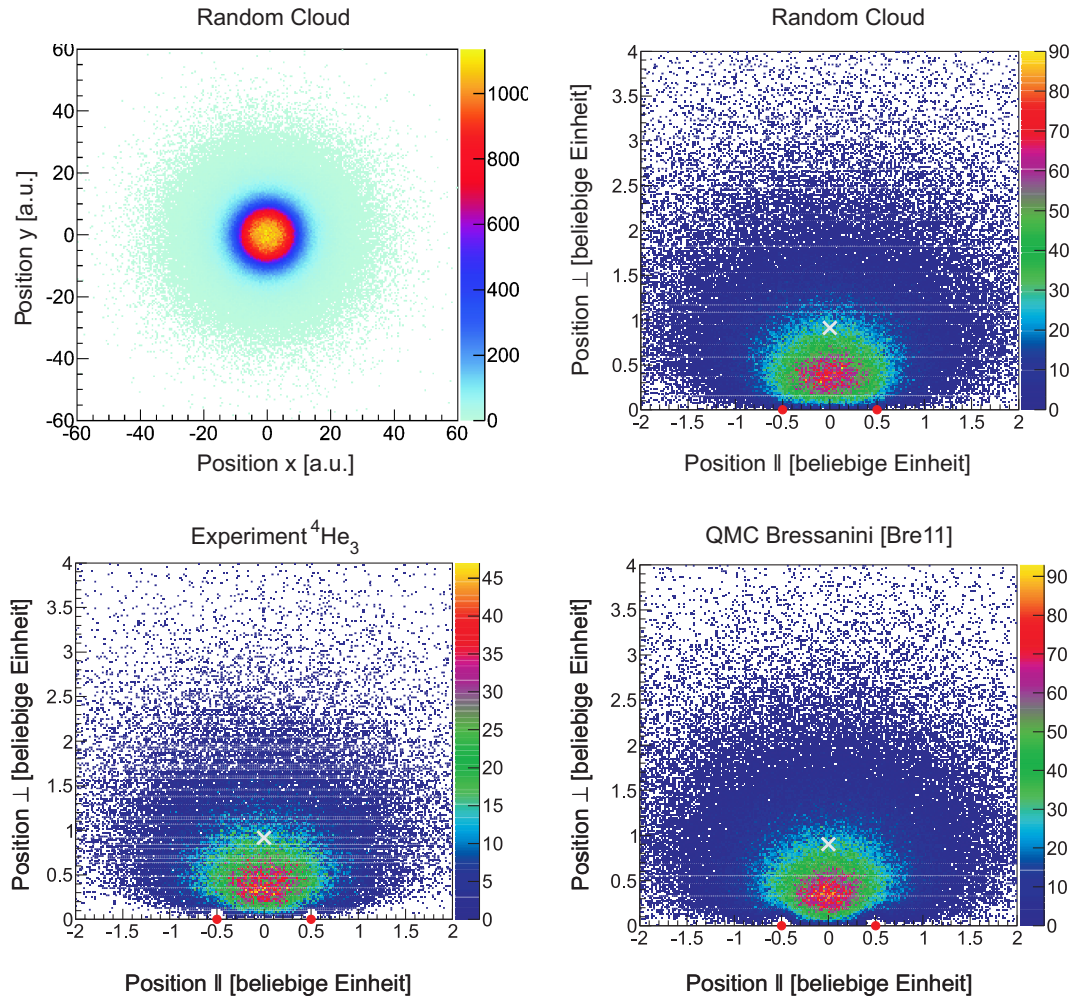


Abbildung 5.33: Links oben: Projektion der Dichteverteilung der Random Cloud in die XY-Ebene. Rechts oben und unten: zweidimensionale Darstellung der Position des dritten Teilchens, wenn die ersten beiden an den rot markierten Punkten festgehalten werden (rechts oben: Random Cloud Model, links unten: Experiment, rechts unten: QMC Theorie [Bre11]). Mit grauem Kreuz sind die Stellen markiert, an denen die Konfiguration eines gleichseitigen Dreiecks positioniert wäre.[Voi14]

Efimov-Zustand

Die nahezu perfekte Realisierung des universellen Dreikörperproblems soll jedoch der erste angeregte Zustand des $^4\text{He}_3$ sein. Dieser Zustand wurde von vielen theoretischen Berechnungen als gerade noch gebunden vorausgesagt (239 neV Bindungsenergie [Hiy12]). Da er aufgrund dieser geringen Bindungsenergie etwa einen Faktor 10 größer sein muss als der Grundzustand des Trimers, sollte er sich in den experimentellen Daten von den Verteilungen des Grundzustandes abheben. Sowohl in den Zweikörperabständen (Abbildung 5.22) als auch im KER (Abbildung 5.20), bei einem Wert zwischen 0 und 1.5 eV, sollte er als separates Maximum zu erkennen sein.

In diesen eindimensionalen Histogrammen ist aber kein separates Maximum zu erkennen. Da nicht klar ist, zu welchem Prozentsatz dieser Zustand bei den verwendeten Parametern der freien Gasexpansion vorliegt, besteht eventuell eine bessere Möglichkeit ihn in einer anderen Darstellung zu identifizieren. Diese sollte möglichst wenig störende, zufällige und falsche Koinzidenzen im Bereich des angeregten Trimers haben.

Diese Voraussetzung sollte eine alternative Darstellung des Newton Diagramms bieten. Werden hier, anders als in Abbildung 5.24, nicht die normierten Impulse eingezeichnet, sondern an deren Stelle die nicht normierten, sollten sowohl das nicht gezeigte erste Teilchen, als auch Teilchen zwei und drei einen korrelierten, jedoch sehr kleinen Impuls besitzen.

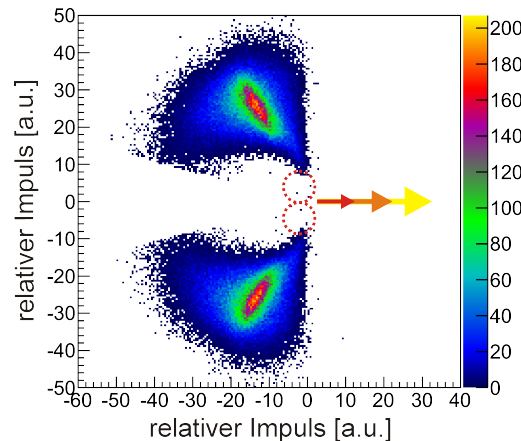


Abbildung 5.34: Nicht normiertes Newton Diagramm. Ein möglicher angeregter Zustand des $^4\text{He}_3$ wäre in den rot gestrichelten Kreisen zu erkennen.

Auch in dieser Darstellungsform sind keine statistisch relevanten Einträge, in dem durch die rot gestrichelten Kreise markierten Bereichen, zu erkennen. Demnach muss festgestellt werden, dass mit den verwendeten Parametern der freien Gasexpansion keine angeregten Trimerzustände im Gasstrahl vorhanden waren.

Eine mögliche Ursache hierfür könnte sein, dass dieser Zustand in einer freien Gasexpansion nicht bevölkert wird. Diese Vermutung wird von den Experimenten von Brühl et al. [Brü05] unterstützt. Diese nutzen für ihre Beugungsexperimente ebenfalls eine $5\text{ }\mu\text{m}$ Düse, welche auf niedrige Temperaturen gekühlt wurde. Auch bei unterschiedlichen Parametern für Temperatur und Vordruck gelang es ihnen nicht, den Efimov-Zustand des Heliumtrimers nachzuweisen.

Wäre die Vermutung korrekt, dass dieser Zustand durch eine Überschallgasexpansion nicht populiert wird, besteht noch die Möglichkeit ihn hinter der Zone-of-Silence durch Stöße mit Restgasmolekülen zu bevölkern. Um diese Hypothese zu kontrollieren, wurde im Experiment stufenweise die Saugleistung der Vakuumpumpen in der Expansionsstufe reduziert, indem die Drehzahl der Turbomolekularpumpe manuell eingestellt wurde. Hierdurch müsste sich die Wahrscheinlichkeit eines Stoßes mit dem Restgas aufgrund des schlechter werdenden Vakuums erhöhen.

Für diese Messungen wurde zusätzlich ein niedrigeres E-Feld am Spektrometer angelegt ($4,2\text{ V/cm}$). Dies hat zur Folge, dass nahezu bei keinen Trimeren im Grundzustand mehr alle drei Teilchen in Koinzidenz nachgewiesen wurden. Um eine Dreiteilchenkoinzidenz des Grundzustandes zu sehen, muss ein fast lineares Trimer in einem kleinen Winkel zur Spektrometerachse aufbrechen. Der Vorteil vom niedrigen Feld liegt jedoch in einer deutlich besseren Auflösung im niederenergetischen Bereich, in dem der angeregte Zustand zu erwarten ist.

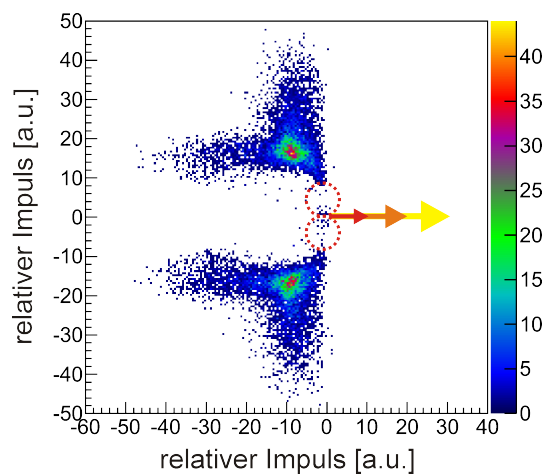


Abbildung 5.35: Nicht normiertes Newton Diagramm bei niedrigem E-Feld und reduzierter Saugleistung der Vakuumpumpe in der Expansionskammer. Ein angeregter Zustand kann in den roten Kreisen immer noch nicht mit statistischer Relevanz erkannt werden.

Obwohl bei dieser Einstellung des elektrischen Feldes kaum Dreiteilchenkoinzidenzen zu beobachten waren, liegt die Zählrate der Ereignisse im rele-

vanten Bereich des Dalitz Diagramms (Abb. 5.35) noch deutlich unter 1 %. Bei diesen vereinzeltten Ereignissen ist es nicht möglich eine Aussage zu treffen, ob es sich hierbei um echte angeregte Heliumtrimere handelt oder ob es zufällige Koinzidenzen von Hintergrundereignissen sind. Festzustellen ist nur, dass es auch bei diesem niedrigen Feld nicht möglich war ein Maximum im KER zwischen 0 und 1,5 eV zu sehen.

Eine weitere Größe, in der man den angeregten Zustand suchen kann, ist der Hyperradius. Dieser ist ein Maß für die Gesamtgröße des Systems.

$$R_{hyp} = \sqrt{R_{12}^2 + R_{13}^2 + R_{23}^2} \quad (5.4)$$

Bei seiner Berechnung stellt sich das Problem, dass die einzelnen Abstände der Teilchen (R_{ij}) nicht ohne weiteres aus dem Experiment bezogen werden können. Betrachtet man die Ereignisse bei denen nur zwei Teilchen detektiert wurden, könnte man zufällige Seitenlängen kombinieren. Man würde damit verschiedene, nicht zusammengehörige Ereignisse schaffen, eine Art „Event-Mixing“ betreiben. Wünschenswert ist es aber die drei Seiten einzelner Trimere für den Hyperradius zu kennen. Über die LU Table ist dies jedoch nicht auf direktem Weg möglich.

Verbindet man die über die LU Table erlangten Winkel mit dem KER des gleichen Ereignisses, lassen sich mit Hilfe des Sinussatzes auch die Seitenlängen bestimmen. Der Ausgangspunkt hierfür ist eine simple Formel für den KER, welche sich mit den experimentellen Daten aber nicht anwenden lässt.

$$KER = \frac{1}{R_{12}} + \frac{1}{R_{13}} + \frac{1}{R_{23}} \quad (5.5)$$

Verknüpft man diese mit dem Sinussatz für ein beliebiges Dreieck,

$$\frac{R_{12}}{\sin(3)} = \frac{R_{13}}{\sin(2)} = \frac{R_{23}}{\sin(1)} = k, \quad (5.6)$$

erhält man nach trivialen Umformungen einen Zusammenhang für den Hyperradius, welcher nur vom gemessenen KER und den über die LU Table bestimmten Winkel abhängt:

$$R_{hyp} = \sqrt{\left(\frac{\sin(1)}{k}\right)^2 + \left(\frac{\sin(2)}{k}\right)^2 + \left(\frac{\sin(3)}{k}\right)^2} \quad (5.7)$$

mit:

$$k = \frac{KER}{\frac{1}{\sin(1)} + \frac{1}{\sin(2)} + \frac{1}{\sin(3)}}. \quad (5.8)$$

Auf diese Weise ist es möglich mit Hilfe der LU Table auch die Größe des Trimers im Ortsraum zu bestimmen. Um die Genauigkeit dieser Methode zu kontrollieren, bietet es sich an, die rekonstruierten Zweiteilchenabstände mit den gemessen zu vergleichen (siehe Abb. 5.36).

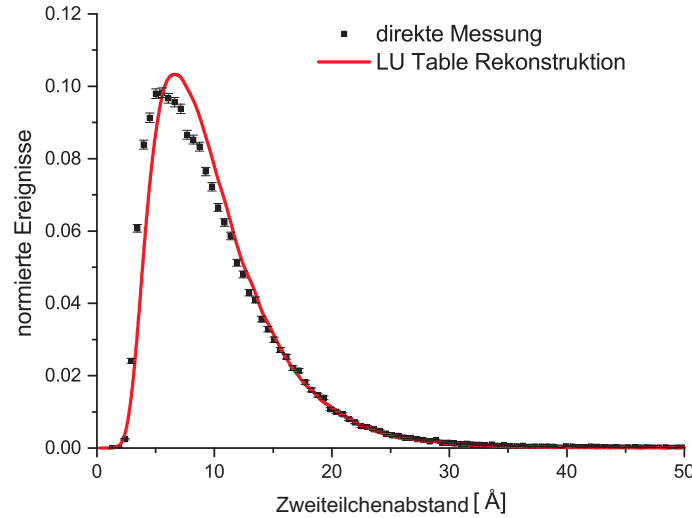


Abbildung 5.36: Vergleich des mit Hilfe der LU Table rekonstruierten Zweiteilchenabstandes und dem aus der direkten Messung (Abb. 5.22). Die Fehlerbalken stellen den 1σ statistischen Fehler dar.

Da die Übereinstimmung im Zweiteilchenabstand sehr gut ist, kann davon ausgegangen werden, dass die Rekonstruktion der Seitenlängen mit Hilfe der LU Table funktioniert. Es ist lediglich ein geringer Unterschied bei kleinen Abständen zu erkennen. Diese gehören zu Ereignissen mit einem hohen KER. Da bei der Messung nicht ganz 4π Raumwinkel detektiert wurde, haben bei der Messung des Dreifachaufbruchs eines Trimers Ereignisse mit großem KER eine geringere Detektionswahrscheinlichkeit. Die Ereignisse, die aus dem Aufbruch zweier geladener und eines neutralen Fragments bestehen werden mit einem größeren Raumwinkel detektiert. Diese Ereignisse haben einen KER, der nur durch die Abstoßung zweier Teilchen gegeben und damit geringer als, im Falle dreier geladener Fragmente ist. Als nächster Schritt kann aufgrund der guten Übereinstimmung der über Gleichung 5.7 berechnete Hyperradius betrachtet werden.

Für angeregte Zustände gäbe es analog zum Korrelationsdiagramm im Zweiteilchenbild (siehe z.B. [Hav10a]) Knoten in dieser Verteilung. Diese sind in der Verteilung des Hyperradiuses nicht zu erkennen, was als weiteres Indiz

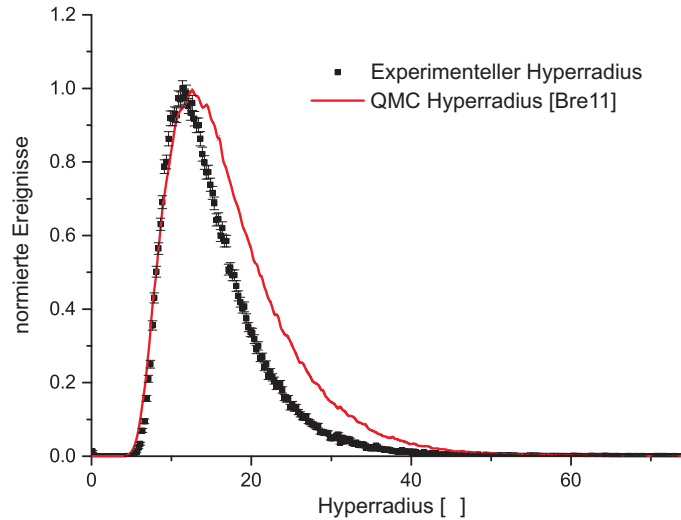


Abbildung 5.37: Über die LU Table und aus dem KER gewonnener Hyperradius, verglichen mit der QMC Rechnung Bressaninis [Bre11].

für das Fehlen eines Efimov-Zustandes in den Daten gesehen werden kann. Die Abweichung der experimentellen Daten von der Rechnung Bressaninis [Bre11] ist, genau wie in Abbildung 5.20 durch die Totzeit des Detektors zu erklären. Bei Trimeren mit großen internuklearen Abständen treffen die drei ionischen Fragmente zeitlich sehr kurz hintereinander auf, was zu einer reduzierten Nachweiswahrscheinlichkeit führt.

Hierüber hinaus ist der Hyperradius ein gutes Maß für die Gesamtgröße eines Mehrteilchensystems. In ihm kann in einer alternativen Darstellung die extreme Ausdehnung des Trimers gesehen werden. Die Verteilung beginnt bei ca. 5 Å und hat ihr Maximum bei etwa 12 Å. Bis hin zu 50 Å sind noch Ereignisse zu sehen.

5.3.2 Das gemischt isotopische $^3\text{He}^4\text{He}_2$

Das Heliumtrimer ist der kleinste Verbund von Heliumatomen bei dem es möglich ist, ein schweres ^4He durch sein leichteres Isotop ^3He zu ersetzen. Dieser Tausch sorgt für eine deutlich niedrigere Bindungsenergie von nur etwa 1 μeV und damit einer Größenordnung geringer als im reinen $^4\text{He}_3$. Sowohl der Austausch eines weiteren Atoms, als auch die Reduktion auf ein gemischtes Dimer sorgt dafür, dass die Systeme ungebunden sind.

Dieses Verhalten ist damit zu erklären, dass in diesem System nur ein attraktives Zweikörperpotential zwischen den zwei ^4He herrscht. Das Zweikörperpotential zwischen ^3He und ^4He ist nicht ausreichend attraktiv um den Zustand zu binden. Die Bindung des dritten Teilchens des Trimers ist daher nur durch Dreikörperkräfte zu erklären, man spricht von einem „Tango

State”. Anschaulich ist diese Reduktion der Bindungsenergie durch die erhöhte Nullpunktschwingung zu erklären. Aufgrund seiner leichteren Masse bei gleichem Interaktionspotential, kann das ^3He weiter in den klassisch verbotenen Bereich des Potentials tunneln und sorgt damit für eine instabilere Bindung.

Experimentell hat dies zur Folge, dass es deutlich schwieriger ist ein Trimer mit einem ^3He zu erzeugen, als das puren Trimer. Daher wurde, um das gewünschten $^3\text{He}^4\text{He}_2$ Trimer zu erhalten, eine Mischung aus 99 % ^3He und nur 1 % ^4He verwendet. Trotz dieses Überschusses am leichten Isotop entstanden in der freien Gasexpansion mehr $^4\text{He}_3$ Trimere als $^3\text{He}^4\text{He}_2$ Trimere. Auch nach Optimierung an Temperatur und Vordruck entstanden maximal 1 ‰ $^3\text{He}^4\text{He}_2$ Trimere im Jet. Genau wie bei den puren Trimeren fand die Messung letztendlich bei einer Temperatur von 12 K und einem Vordruck von 3 bar statt.

Impulse

Genau wie beim homonuklearen Trimer soll auch beim gemischten nach dem Hintergrundsabzug unter anderem durch einen Schnitt auf kleine Summenimpuls zuerst der KER betrachtet werden. Auch hier liefert der Vergleich mit einer theoretischen Berechnung [Bre14] ein Gefühl dafür, ob noch Untergrund vorhanden ist und ob die Kalibration funktioniert hat. Zusätzlich soll an dieser Stelle auch ein Vergleich mit dem KER des puren Trimers getätigt werden.

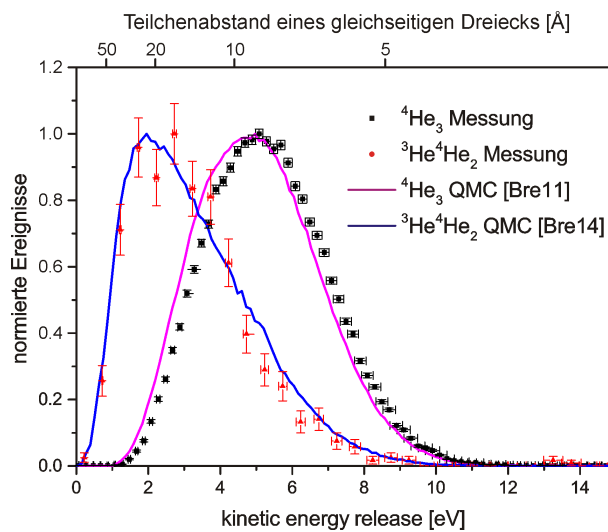


Abbildung 5.38: Vergleich der KER-Verteilungen des puren und isotopischen Heliumtrimers. Beide ergeben eine gute Übereinstimmung mit der QMC Simulation von Bressanini et al. [Bre11, Bre14]. Die Fehlerbalken ergeben sich aus den 1σ statischen Fehler.

Wie zu erkennen ist, stimmt die Messung des isotopen Trimers sehr gut mit der Theorie überein, was sowohl eine gelungene Kalibration, als auch einen geglückten Untergrundabzug bedeutet. Zudem ist in diesem Histogramm zu erkennen, dass die Aufbruchenergie des heteronuklearen Trimers deutlich geringer ist, als die des isotonen Trimers. Dies legt wie erwartet nahe, dass ${}^3\text{He}{}^4\text{He}_2$ deutlich schwächer gebunden ist, was im Umkehrschluss einen größeren Abstand der einzelnen Atome zur Folge haben muss. Genau das ist auch auf der oben dargestellten Achse zu erkennen. Diese zeigt genau wie in Abb. 5.22 den über die Reflection Approximation gewonnenen Zweiteilchenabstand. Dieser berücksichtigt jedoch nicht die geometrische Form des Moleküls, sondern geht von einem gleichseitigen Dreieck aus. Da diese Annahme schon für das pure Trimer nicht gerechtfertigt war, soll diese Achse auch hier nur als Abschätzung der Gesamtgröße des Systems dienen. Abgesehen von dieser Einschränkung zeigt diese Achse die Größenordnung der Trimere. Während das pure Trimer sein Maximum bei etwa 8 Å hat, ist das Maximum beim isotopen Trimer bereits zu ca. 21 Å verschoben.

Internukleare Abstände

Will man die Ausdehnung des gemischten Trimers besser einschätzen, bietet es sich an die Zweiteilchenabstände des Moleküls zu betrachten. Anders als bei ${}^4\text{He}_3$ besteht das ${}^3\text{He}{}^4\text{He}_2$ nicht aus drei ununterscheidbaren Atomen. Deswegen ist es möglich, sowohl den Zweiteilchenabstand zwischen den zwei Verbindungen ${}^3\text{He}{}^4\text{He}$, als auch den zwischen den ${}^4\text{He}{}^4\text{He}$ zu betrachten. Aus den experimentellen Daten lässt sich jedoch nur die Verbindung zum leichten Isotop extrahieren. Dies liegt daran, dass der Jet trotz Gitter noch aus ${}^3\text{He}{}^4\text{He}_2$, als auch aus ${}^4\text{He}_3$ Clustern besteht. Der Massenunterschied und damit die Wellenlänge unterscheidet sich nicht ausreichend, um mit gegebener Auflösung eine Trennung der Moleküle zu realisieren.

Werden aus einem Trimer nur zwei ${}^4\text{He}$ Ionen gemessen, ist es unmöglich zu sagen, ob diese aus einem reinen oder isotopen Trimer stammen. Misst man dagegen ein ${}^3\text{He}$ zusammen mit einem ${}^4\text{He}$ Ion so kann man sicher sein, dass dieses Ereignis aus der Ionisation eines gemischten Trimers stammt. Haben die zwei Ionen zusammen einen geringen Summenimpuls, kann man davon ausgehen, dass es sich um die zweifach Ionisation des Trimers handelt, bei der das dritte Atom nur als Betrachter fungiert. Für diesen Fall ist es möglich, per Reflection Approximation den Zweiteilchenabstand direkt zu erhalten.

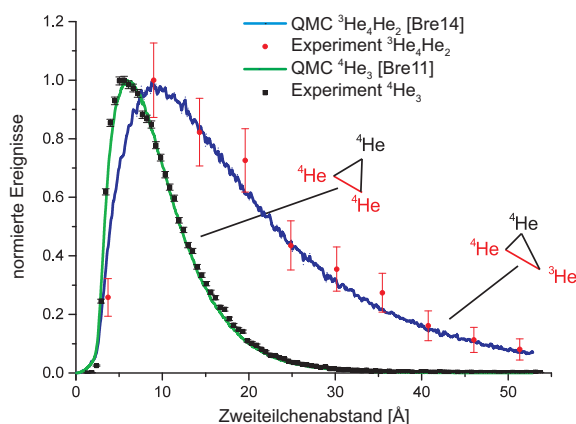


Abbildung 5.39: Vergleich der gemessenen Zweiteilchenabstände des gemischten und reinen Trimers mit der QMC Simulation von Bressanini et al. [Bre11, Bre14]. Die Fehlerbalken ergeben sich aus den 1σ statistischem Fehler.[Voi14]

Hier soll dieser Abstand auch wieder mit den bereits in Abbildung 5.22 gezeigten Zweiteilchenabstand des reinen Trimers verglichen werden (siehe Abb. 5.39). Während dieser sein Maximum bei einem Wert von etwa 5 Å hat, liegt es bei $^3\text{He}^4\text{He}_2$ ca. bei 10 Å. Viel dominanter ist der Unterschied jedoch im Abfall der Kurve. Während der ^4He - ^4He Abstand im reinen Trimer nur etwa bis 30 Å reicht, sind im isotopen Trimer auch bei Werten über 60 Å noch Ereignisse zu finden.

Der Grund, warum das ^3He einen so viel größeren Abstand zu den restlichen Atomen des Trimers hat, liegt in zwei Ursachen. Zum einen hat es aufgrund seiner um 25 % geringeren Masse ein anderes Vibrationsverhalten. Dies sorgt, wie bereits erwähnt, für eine erhöhte Nullpunktschwingung. Der zweite Grund hierfür ist jedoch zu einem viel größeren Anteil für die großen Abstände verantwortlich. Das Interaktionspotential zwischen den Atomen ist, aufgrund der gleichen Elektronenkonfiguration, in sehr guter Näherung unabhängig davon, ob es sich um ein ^4He oder ein ^3He handelt. Da das Atom jedoch einen großen Teil seiner Aufenthaltswahrscheinlichkeit im klassisch verbotenen Bereich hat, im Tunnelbereich, ist auch die Tunnelwahrscheinlichkeit des Atoms in diesen Bereich stark für die Bindungseigenschaften verantwortlich. Da diese Wahrscheinlichkeit von der Masse des Teilchens abhängt, ist es nicht verwunderlich, dass man das ^3He bei viel größeren Abständen finden kann als das ^4He .

Auch der Vergleich mit der von Bressanini et al. [Bre11, Bre14] bereitgestellten Rechnung liefert eine gute Übereinstimmung. Sowohl die für das pure Trimer, als auch die für das isotopen Trimer berechneten Verteilungen geben den Verlauf der gemessenen Daten innerhalb der experimentellen Fehler wieder.

Um an den Abstand der zwei ^4He zu kommen muss man den selben Trick anwenden, welcher genutzt wurde, um den Hyperradius beim $^4\text{He}_3$ zu erhalten. Genau wie dort wird zuerst über das Dalitz Diagramm im Orts- und Impulsraum eine LU Table erzeugt. Über diese ist es dann möglich die Struktur im Ortsraum in Form der drei Innenwinkel zu bestimmen. Verknüpft man über den Sinussatz nun diese Winkel mit dem gemessenen Dreiteilchen-KER, ist es möglich die drei Zweiteilchenabstände des Systems getrennt zu bestimmen. Aus den Gleichungen 5.5, 5.6 und 5.7 ergibt sich folgender Zusammenhang für die einzelnen Abstände:

$$R_{12} = \frac{\sin(3)}{k}, \quad (5.9)$$

$$R_{13} = \frac{\sin(2)}{k}, \quad (5.10)$$

$$R_{23} = \frac{\sin(1)}{k}, \quad (5.11)$$

In dem gemischten Trimersystem kann man nun zwischen den Seiten des Dreiecks unterscheiden, die Teilchen eins (das ^3He) enthalten und dem Abstand zwischen Teilchen zwei und drei (jeweils ein ^4He).

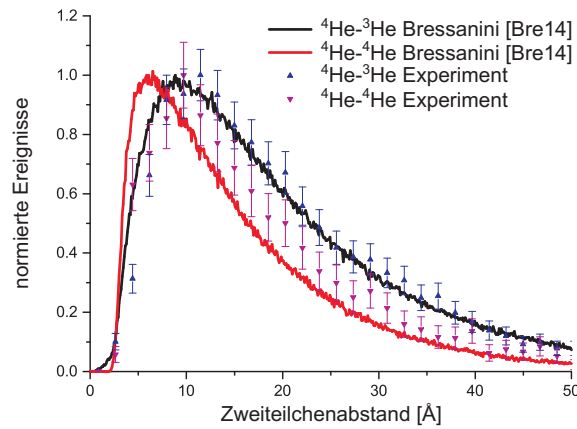


Abbildung 5.40: Vergleich der über die LU Table und den KER rekonstruierten Zweiteilchenabstände im $^3\text{He}^4\text{He}_2$ mit der Rechnung von Bressanini [Bre14]. Die Fehlerbalken resultieren aus dem 1σ statischen Fehler.

Vergleicht man die zwei Abstände, ist zu erkennen, dass es sich beim gemischten Trimer um ein System handelt, bei dem die zwei ^4He durchschnittlich näher beieinander sind, als der Abstand zum leichten ^3He . Während sich der über die LU Table rekonstruierte $^3\text{He}-^4\text{He}$ Abstand ähnlich verläuft wie der in Abbildung 5.39 gezeigte gemessene Abstand, fällt die Verteilung des $^4\text{He}-^4\text{He}$ Abstandes steiler ab. Das Maximum liegt bei beiden rekonstruierten Abständen bei etwa 10 Å, die Mittelwerte sind jedoch verschieden. Während der

^3He - ^4He Abstand einen Mittelwert von 40 Å hat, liegt dieser für den ^4He - ^4He Abstand nur bei 33 Å.

Im Vergleich zur QMC Simulation von Bressanini et al. [Bre14] ist ebenfalls eine gute Übereinstimmung zu erkennen. Die Verteilung der zwei ^4He weicht jedoch bei kleinen Werten ab. Dies ist damit zu erklären, dass aufgrund des angelegten E-Feldes je nach Orientierung des Trimers gerade für die kleinen Abstände eine gewisse Wahrscheinlichkeit besteht, dass eines der Teilchen vom Detektor nicht mehr nachgewiesen werden kann, da es das Spektrometer verlässt.

Der Unterschied in der Länge der Seiten legt bereits eine Struktur des Trimers nahe. Ist eine Seite kürzer als die zwei anderen, scheint es sich um ein gleichschenkliges Dreieck zu handeln. Bei dieser Schlussfolgerung könnte jedoch das bereits erwähnte Problem existieren. Da man nicht weiß, welche der Einträge in den Histogrammen zu einem Ereignis gehören, könnte man aus den eindimensionalen Spektren falsche Schlüsse ziehen.

Bevor die Analyse der Struktur des isotopen Trimers weitergeführt wird, soll an dieser Stelle erneut der Hyperradius betrachtet werden. Dieser wird äquivalent zum bereits beschriebenen $^4\text{He}_3$ berechnet und ergibt sich analog aus den Gleichungen 5.7.

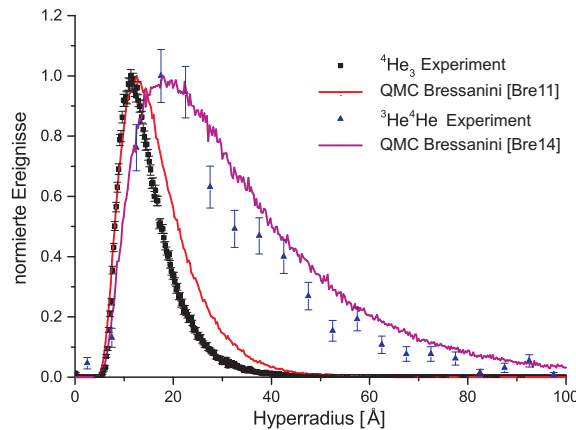


Abbildung 5.41: Vergleich der über die LU Table und den KER rekonstruierten Hyperradii von $^3\text{He}^4\text{He}_2$ und $^4\text{He}_3$. Die Fehlerbalken stellen den 1σ statistischen Fehler dar.

In Abbildung 5.41 zeigt sich erneut die enorme Auswirkung des Isotopentausches. Obwohl die Gesamtmasse des Systems nur von 12 a.u. auf 11 a.u. reduziert wurde, erreicht der Hyperradius in etwa doppelt so große Werte. Sein Maximum liegt nun bei ca. 15 Å. Es sind jedoch auch bei 80 Å noch Ereignisse zu finden. Der in Abbildung 5.37 festgestellte Unterschied zwischen Theorie und Experiment bei großen Abständen ist im gemischten Trimer nicht so dominant zu erkennen. Dies könnte daran liegen, dass hier nur zwei der drei

Teilchen mit nahezu identischer Flugzeit den Detektor erreichen. Das Totzeitproblem ist demnach hier nicht so kritisch.

Geometrische Struktur

Zusätzlich zu den Auswirkungen auf die Größe des Systems ist es interessant die Auswirkungen auf die Form zu betrachten. Genau wie bei den Zweiteilchenabständen gibt es auch bei der geometrischen Form eine ausgewiesene Orientierung des Systems anhand der Position des leichten Isotops.

Für einen ersten Vergleich der Struktur sollen nun Dalitz Diagramme im Impulsraum betrachtet werden.

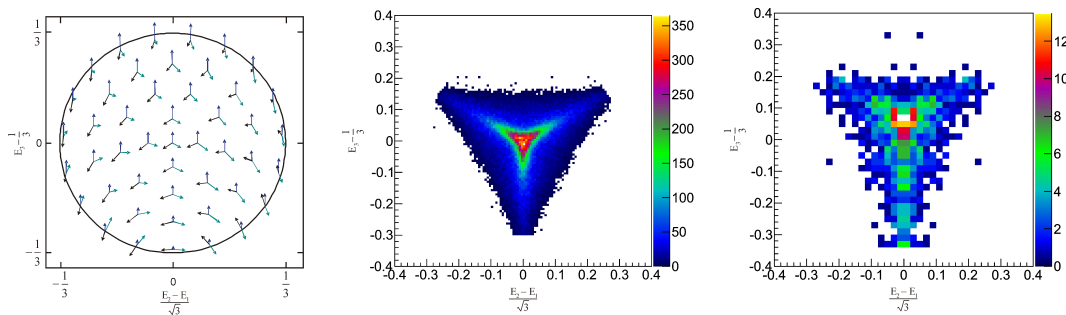


Abbildung 5.42: Vergleich der Dalitz Diagramme im Impulsraum des reinen (mitte) und isotopen (rechts) Trimers.

Im Vergleich zum reinen Trimer ist zu beobachten, dass das Maximum der Verteilung nicht mehr im Ursprung liegt, sondern eine leichte Verschiebung in positive Y-Richtung erfahren hat. Dies ist die Achse auf der das leichtere ^3He dargestellt ist. Betrachtet man die Abbildung 5.42 links, so kann man erkennen, dass dies einer Konfiguration entspricht, bei der das leichte Isotop mehr kinetische Energie als die zwei ^4He erhält.

Interessant ist es nun zu betrachten, welchen Unterschied diese leichte Verschiebung im Impulsraum auf die Konfigurationen im Ortsraum hat. Um diese zu erhalten, wurde der bereits im vorigen Abschnitt beschriebene Weg einer LU Table gewählt. Zur Simulation der Coulomb-Explosion wurde jetzt lediglich die Masse eines Teilchens um 25 % reduziert.

Von einer Betrachtung des Dalitz Diagramms im Ortsraum soll vorerst abgesehen werden. Da nicht jedes Ereignis einen passenden Eintrag in der LU Table findet, bleiben von den etwa 900 gemessenen Ereignissen im Impulsraum nur etwa 800 im Ortsraum übrig. Die erste Größe die daher hier betrachtet werden soll, ist die eindimensionale Verteilung der Innenwinkel des Trimers.

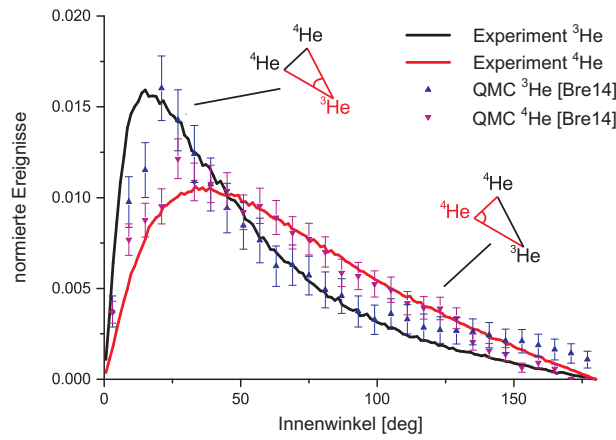


Abbildung 5.43: Vergleich der über die LU Table rekonstruierten Innenwinkel des ${}^3\text{He}{}^4\text{He}_2$ am ${}^3\text{He}$ und am ${}^4\text{He}$. Der 1σ statistische Fehler ist in den Fehlerbalken dargestellt.[Voi14]

In dieser Darstellung ist gut zu erkennen, dass der Winkel am ${}^3\text{He}$ schmäler ist, als der an den zwei ${}^4\text{He}$. Während die Verteilung beim reinen Trimer sein Maximum bei knapp unter 30° hat, liegt es am ${}^4\text{He}$ des isotopen Trimers bei knapp über 30° . Der Winkel am ${}^3\text{He}$ hingegen hat seinen Hochpunkt bei nur 15° . Beide Verteilungen sind jedoch sehr breit und haben Einträge zwischen 0° und 180° . Diese Beobachtung stimmt auch mit der QMC Rechnung von Bressanini [Bre14] überein.

Kombiniert man nun die Information aus den Zweiteilchenabständen und die der Innenwinkel, zeichnet sich eine dominante Struktur ab. Zwischen den ${}^4\text{He}$ Atomen herrscht nicht nur ein kleinerer Abstand, sondern der Winkel an den schwereren Isotopen tendiert auch zu größeren Werten. Der Abstand zum ${}^3\text{He}$ hingegen ist größer und der Winkel spitzer. Dies legt nahe, dass es sich beim isotopen Trimer um ein bevorzugt gleichschenkliges Dreieck handeln muss.

Von einer starren gleichschenkligen Struktur kann dagegen auch bei diesem System nicht geredet werden. Auch hier sprechen sowohl der Zweiteilchenabstand, als auch die Winkelverteilung für eine extreme Delokalisierung, wie sie in keinem anderen Edelgastrimer gefunden werden kann. Während beim reinen Trimer keine bevorzugte Struktur zu erkennen ist, ist im isotopisch gemischten Trimer ein präferierter Aufbau zu erkennen. Das Molekül tendiert zu einer T-Form, bei der das leichte Isotop durchschnittlich einen größeren Abstand zu den anderen zwei Atomen hat.

Um diese Folgerungen weiter zu untermauern, können zweidimensionale Histogramme betrachtet werden. Wie oben bereits erwähnt, bleiben nur etwa 800 Ereignisse im Ortsraum übrig. Diese Anzahl an Ereignissen, dargestellt in einem zweidimensionalen Histogramm, ergibt nur eine statistische Verteilung einzelner Einträge. Das Aussehen dieser Verteilung würde stark domi-

niert von der Funktionsweise der LU Table. Diese basiert darauf eine breite Verteilung im Ortsraum mit einer schmalen im Impulsraum zu verknüpfen. Dies führt dazu, dass ein Eintrag im Impulsraum häufig mit mehreren im Ortsraum verbunden ist. Die LU Table wählt in einem solchen Fall zufällig einen der Einträge aus. Werden nur wenige Ereignisse in den Ortsraum transformiert, ist die resultierende Verteilung stark von diesem Auswahlprozess abhängig. Erst durch häufiges Wiederholen kommt es zu einer gleichmäßigen Verteilung auf die verschiedenen Einträge der Tabelle.

Für die zweidimensionalen Histogramme wurde daher jedes der Ereignisse zehnmal in der LU Table transformiert, dafür jedoch jedes der Ergebnisse mit einem Faktor von 0,1 gewichtet. Auf diese Weise kann der zuvor beschriebene Fehler reduziert werden, ohne zusätzliche Ereignisse zu generieren. Bei den resultierenden Histogrammen ist jedoch auf den statistischen Fehler zu achten. Da es nun auch Pixel geben kann, die 0,1 bis 0,9 Einträge haben, ist es möglich, dass der statistische Fehler größer ist, als der Inhalt des Datenpunkts.

Mit den auf diese Weise aus der LU Table rekonstruierten Ortsinformationen wird zuerst das Dalitz Diagramm im Ortsraum mit der QMC Simulation Bressaninis [Bre14] verglichen.

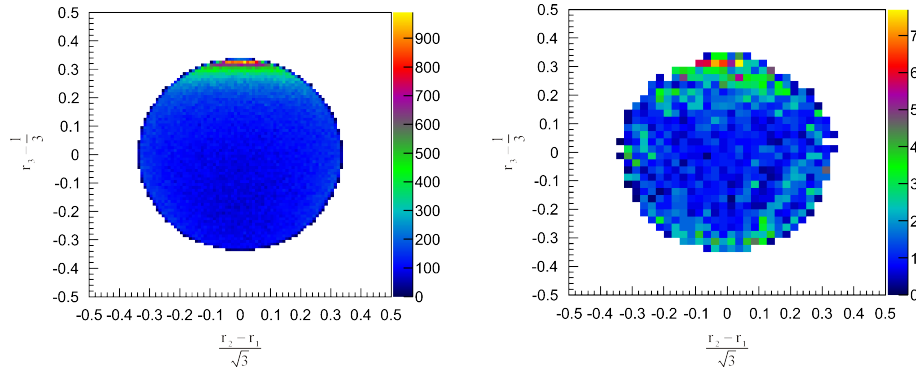


Abbildung 5.44: Vergleich der Dalitz Diagramme im Ortsraum der QMC Rechnung von Bressanini [Bre14] (links) und den über die LU Table rekonstruierten Ereignissen (rechts).

Im gemessenen Dalitz Diagramm im Ortsraum zeigt das ${}^3\text{He}{}^4\text{He}_2$ ein deutlich anderes Verhalten, als das pure Trimer. Während das ${}^4\text{He}_3$ eine nahezu komplett homogene Verteilung ergibt (siehe Abbildung 5.30), ist im gemischten Trimer eine erhöhte Zählrate im oberen Bereich des Histogramms zu erkennen. Diese Beobachtung stimmt gut mit den Berechnungen von Bressanini [Bre14] überein. Zusätzlich ist in den experimentellen Daten auch eine leicht erhöhte Zählrate im unteren Bereich des Histogramms zu erkennen, die in den Daten der QMC Simulation nicht zu sehen ist.

Um herauszufinden ob es sich bei diesen Ereignissen um eine echte Struktur handelt, wurden die gemessenen Impulse betrachtet, die über die LU Table diesen Einträgen zugeordnet sind. Hierbei stellte sich heraus, dass sowohl Ereignisse im oberen Bereich des Histogramms, als auch die im unteren Bereich aus nahezu den gleichen Impulsverteilungen der drei Teilchen stammen. Daher ist es wahrscheinlich, dass ein Trimer mit einer Konfiguration, welche im Dalitz Diagramm zu einem Eintrag in der oberen Region führen müsste, durch den experimentellen Fehler zu Impulsen führt, die über die LU Table in einen Eintrag in der unteren Region führen.

Da das Hauptmaximum der berechneten Verteilung auch in den experimentellen Daten zu erkennen ist, deutet das Dalitz Diagramm im Ortsraum ebenfalls auf eine T-förmige Konfiguration hin. Das leichte ^3He ist in dieser Darstellung auf der Y-Achse eingezeichnet. Daher besitzen, wie bereits vermutet, die zwei ^4He einen kleineren Abstand zueinander und das ^3He umgibt sie mit einem durchschnittlich größerem Abstand.

Als letztes Diagramm soll nun auch noch die in [Bre14] gewählte Darstellung zweier Innenwinkel gezeigt werden.

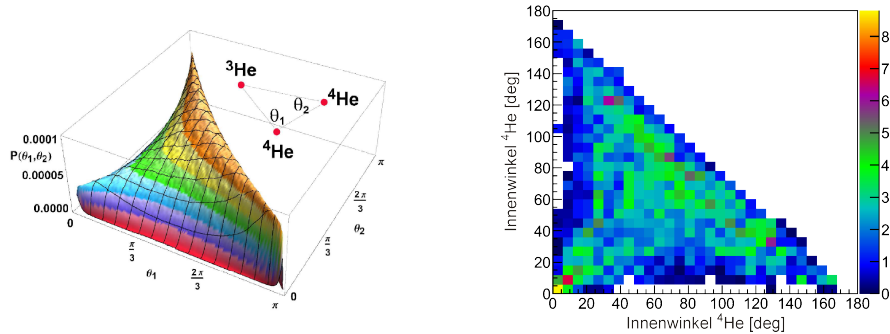


Abbildung 5.45: Vergleich des zweidimensionalen Winkeldiagramms der QMC Rechnung von Bressanini [Bre14] (links) und den über die LU Table rekonstruierten Ereignissen (rechts). Dargestellt sind die Innenwinkel an den schwereren ^4He Atomen.

Auch in dieser Darstellung ist die in den QMC Rechnungen deutlich sichtbare Erhöhung in den experimentellen Daten zu erahnen. Diese verläuft nahezu entlang der Diagonalen von 180° auf der X-Achse zu 180° auf der Y-Achse. Zusätzlich zu diesem breiten Maximum ist in den über die LU Table rekonstruierten Ereignissen wieder ein zweites Maximum zu erkennen. Dieses liegt an der Stelle, an der beide Winkel an den ^4He Atomen sehr klein sind. Es ist daher davon auszugehen, dass auch diese Ereignisse aufgrund der nahezu identischen Impulsvektoren, durch die LU Table falsch rekonstruiert wurden.

Abgesehen von dieser vermutlich falschen Rekonstruktion eines Konfigurationsbereichs, belegt auch dieses Histogramm die präferierte Form des he-

teronuklearen Trimers, als auch die gute Übereinstimmung mit den QMC Rechnungen Bressaninis [Bre14].

In den zweidimensionalen Histogrammen ist demnach, trotz der teilweise sehr großen statistischen Fehler, die bereits aus den eindimensionalen Darstellungen geschlossene Form des Trimers zu erkennen. Beim $^3\text{He}^4\text{He}_2$ handelt es sich somit, genau wie beim $^4\text{He}_3$, um ein extrem delokalisiertes Molekül. Anders als das homonukleare Trimer besitzt das $^3\text{He}^4\text{He}_2$ jedoch eine präferierte Geometrie. Die zwei ^4He Atome sind durchschnittlich näher beieinander und das ^3He weiter entfernt, was zu einer T-förmigen Struktur führt.

6. Zusammenfassung und Ausblick

6.1 Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine neue Apparatur aufgebaut. Diese basiert auf der weltweit etablierten ColTRIMS-Technik [Dör00], in der ein Überschallgasstrahl erzeugt und, in diesem Aufbau, mit einem Femtosekunden-Laser ionisiert wird. Die entstandenen ionischen Fragmente werden über ein elektrisches Feld auf einen zeit- und ortsauflösenden Detektor geleitet. Diese Methode der Impulsspektroskopie ermöglicht es über Coulomb Explosion Imaging Rückschlüsse auf das ionisierte Atom/Molekül zum Zeitpunkt der Reaktion zu schließen.

Erstmals wurde in eine ColTRIMS-Apparatur ein Transmissionsbeugungsgitter integriert. Mit Hilfe dieses Gitters kann aufgrund der Materiewellenbeugung [Gri00c] eine Massentrennung der im Gasstrahl befindlichen Moleküle/Cluster bewirkt werden [Sch94].

Durch die Kombination dieser zwei aktuellen experimentellen Techniken ist es möglich, einzelne exotische Moleküle zu untersuchen. So konnten kleine Heliumcluster in einer Überschallgasexpansion erzeugt und hinter dem Gitter anhand ihrer Masse und damit der Clustergröße, in einzelne Gasstrahlen aufgeteilt werden. Diese Aufspaltung ermöglicht es, Heliumdimere und -trimere, welche je zu nur wenigen Prozent im Jet vorliegen, vom großen Untergrund der Heliummonomere zu trennen.

Die Massentrennung wurde in der vorliegenden Arbeit über die Aufnahme von Beugungsbildern verifiziert. Es gelang eine räumliche Trennung von He-

liummonomeren, Heliumdimeren und Heliumtrimeren. Hierbei hat das Trimermaximum einen Abstand von $600\text{ }\mu\text{m}$ von dem der Monomere; das Dimermaximum liegt $900\text{ }\mu\text{m}$ von den Monomeren entfernt. Bei einer Halbwertsbreite von je etwa $200\text{ }\mu\text{m}$ ist so eine ausreichende räumliche Trennung der verschiedenen Heliummoleküle sichergestellt.

Diese räumlich getrennten Gasstrahlen konnten nun einzeln mit einem Femtosekunden-Ti:Sa-Laser ionisiert werden. Die Laserpulse besaßen eine Länge von etwa 40 fs und erzeugten eine Fokusintensität von ca. $2\cdot 10^{15}\text{ W/cm}^2$. Bei dieser Intensität ist die Ionisationsrate von Helium gesättigt und die Teilchen werden durch unabhängig voneinander auftretende Tunnelionisationen ionisiert. Aufgrund der kurzen Pulse, der Kernmassen und des flachen Verlaufs des Heliumpotentials, kann davon ausgegangen werden, dass die über Coulomb Explosion Imaging vermessenen Aufbrüche den Aufbau der Moleküle vor der Interaktion mit dem Laser wiedergeben.

Um eine solch hohe Laserintensität im Fokus zu ermöglichen, war eine Grundvoraussetzung des Experiments die Erzeugung eines Ultrahochvakuums. Unter Verwendung modernster Vakuumpumpen (Turbomolekularpumpen, einer Titan-Sublimationspumpe und einer Getterpumpe) gelang es in der Reaktionskammer ein Vakuum von $1,1\cdot 10^{-11}\text{ mbar}$ zu erzeugen.

In den Untersuchungen des Heliumdimers wurden einzelne Moleküle ionisiert, nachgewiesen und in der späteren Analyse ihre Aufbruchsenergie bestimmt. Über die Reflection Approximation konnten diese Energien in Abstände der Kerne vor der Ionisation umgewandelt werden. Die Gesamtheit der Ereignisse ergab erstmals ein experimentelles Abbild der kompletten Wahrscheinlichkeitsdichte der Vibrationswellenfunktion des Heliumdimers. Diese Verteilung ermöglichte einen Vergleich mit theoretischen Berechnungen und den bis dahin gemessenen Mittelwerten der Bindungslänge. Der Verlauf der Abstandsverteilung liefert eine gute Übereinstimmung mit theoretischen Berechnungen. Zur bis dato genauesten Bestimmung des Mittelwerts der Abstandsverteilung von $52\pm 4\text{ }\text{\AA}$ [Gri00] wurde mit einem Wert von $44,94\pm 0,19\text{ (stat) }\text{\AA}$ ein Unterschied festgestellt. Der experimentelle Wert dieser Arbeit liegt jedoch näher an der aktuellsten Berechnung die einen Wert von $47,1\pm 0,5\text{ }\text{\AA}$ vorhersagt [Prz10].

Im Vergleich der Abstandsverteilung zum $^4\text{He}-^4\text{He}$ -Potential wurde der außergewöhnliche Charakter des Heliumdimers dargelegt. Während bei einer angenommenen Bindungsenergie von 140 neV der klassische Umkehrpunkt im Potential bei etwa $13,5\text{ }\text{\AA}$ liegt, wurden Abstände von über $200\text{ }\text{\AA}$ gemessen. Dies zeigt, dass ein Großteil der Abstandsverteilung im klassisch verbotenen

Bereich des Potentials liegt. Dahin können die Atome nur über den quantenmechanischen Tunneleffekt gelangen.

Die Tatsache, dass die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Atome bei großen Abständen durch die Tunnelwahrscheinlichkeit gegeben ist, wurde ausgenutzt, um aus dem Verlauf der Verteilung für Abstände $> 30 \text{ \AA}$ die Bindungsenergie des Dimers zu extrahieren. Dies ist möglich, da die Tunnelwahrscheinlichkeit hinter einer Potentialstufe einzig von der Differenz der Energie des Zustandes und der Höhe der Potentialstufe abhängig ist. Da für große Abstände das Potential in sehr guter Näherung null ist, entspricht diese Differenz der Bindungsenergie des Dimers. Der Verlauf der Abstandsverteilung bei großen Abständen wurde daher mit einer exponentiellen Funktion angenähert, dessen einziger freier Parameter die Bindungsenergie des Dimers ist. Auf diese Weise konnte eine Bindungsenergie von $147 \pm 0,11 \text{ (stat)} \pm 0,89 \text{ (Fit)}^{+19,4}_{-13,4} \text{ (syst) neV}$ ermittelt werden. Dieser Wert stimmt innerhalb seines Fehlers mit der Theorie von Przybytek et al. [Prz10] überein ($139 \pm 2,5 \text{ neV}$), steht jedoch in klarem Widerspruch zu der aus dem Mittelwert errechneten Bindungsenergie von Grisenti et al. [Gri00] ($95^{+26}_{-17} \text{ neV}$).

Neben den besonderen Eigenschaften des Heliumdimers, zeigt auch das Trimer den außergewöhnlichen Charakter kleiner Heliumcluster. Obwohl die Bindungsenergie des $^4\text{He}_3$ mit ca. $11 \text{ } \mu\text{eV}$ etwa 100 mal stärker ist als die des Dimers, befindet sich noch ein nicht zu vernachlässigender Teil seiner Wellenfunktion im klassisch verbotenen Bereich des Potentials. Dies konnte in den Messungen durch die Abstandsverteilung zweier Teilchen des Trimers gezeigt werden.

Eine weitere Facette des einzigartigen Charakters Van-der-Waals gebundener Heliummoleküle konnte in der Struktur des Heliumtrimers aufgezeigt werden. Durch Transformation der im Impulsraum gemessenen Daten in den Ortsraum, mit Hilfe der Newton'schen Bewegungsgleichungen, konnte gezeigt werden, dass das Trimer keine präferierte Geometrie besitzt. Es kommt in allen Konfigurationen von einem gleichseitigen Dreieck, bis hin zu einer linearen Anordnung, nahezu mit gleicher Wahrscheinlichkeit vor. Man kann beim Heliumtrimer von einem Molekül ohne Struktur reden.

Dieser extrem delokalisierte geometrische Aufbau kleiner Heliumcluster hat seinen Ursprung, genau wie die Superfluidität von flüssigem Helium, in der sehr schwachen Van-der-Waals-Kraft zwischen den Atomen, der geringen Masse des Heliums und des bosonischen Charakters von ^4He .

Zusätzlich zum homonuklearen $^4\text{He}_3$ wurde auch das heteronukleare $^3\text{He}^4\text{He}_2$ untersucht. Durch den Austausch eines Atoms durch sein leichteres Isotop be-

wirkt man eine deutliche Abschwächung der Bindungsenergie (etwa um einen Faktor 10) und damit zu deutlich größeren Bindungslängen. Im gemessenen Zweiteilchenabstand des $^3\text{He}^4\text{He}_2$ konnte dies bestätigt werden.

Auf die Struktur des Trimers hat das Isotop ebenfalls starke Auswirkungen. Obwohl auch in den Messungen am isotopischen Heliumtrimer die extreme Delokalisierung der einzelnen Atome gesehen werden konnte, wurde hier eine präferierte Konfiguration erkannt. Sowohl in Winkelverteilungen, als auch in Abstandsverteilungen war klar ersichtlich, dass die zwei ^4He -Atome tendenziell näher beieinander sind, während das leichtere ^3He sie in größerem Abstand umgibt. Dieses, durch die unterschiedliche Vibrationskinematik und den, aufgrund der leichteren Masse, erhöhte Tunnelbereich, zu erklärende Verhalten, führt zu einer bevorzugten T-förmigen Struktur. Die Ergebnisse des isotonenreinen und des heteronuklearen Trimer wurden in [Voi14] veröffentlicht.

Als letzter Teil dieser Arbeit wurde in den Messungen am $^4\text{He}_3$ noch nach dem vorausgesagten, vibrationsangeregten Zustand gesucht. Dieser soll eine Realisierung eines von V. Efimov [Efi70] vorausgesagten, universellen Dreikörperzustandes sein, welcher bislang nur in starken Magnetfeldern an Cesium und Lithium nachgewiesen werden konnte. Das Heliumtrimer stellt den aussichtsreichsten Kandidaten dar, diesen Effekt in einer natürlichen Umgebung nachzuweisen.

Trotz Variation der Expansionsparameter des Überschallgasstrahls und versuchter Stoßanregung der Grundzustandstrimere gelang es nicht, diesen Zustand in den Daten zu identifizieren. Die aufgebaute Vakuumkammer bietet jedoch das Potential, diesen exotischen Zustand erstmals nachzuweisen.

6.2 Ausblick

Der errichtete experimentelle Aufbau bietet auch weiterhin die Möglichkeit kleine Heliumcluster, sowie andere Moleküle zu untersuchen.

Bezüglich der Heliumdimere muss das Ziel in einer Reduzierung des systematischen Fehlers liegen. Dies führt zu einer Reduktion des experimentellen Fehlers in der gemessenen Bindungsenergie. Hierzu muss weiter an der Kalibration des Systems gearbeitet werden. Zum einen können weitere Kalibrationssysteme gesucht werden, die eine genauere Energiekalibration ermöglichen. Zum anderen kann durch Variation der Laserparameter versucht werden die bereits bekannten Kalibrationskanäle genauer zu vermessen.

Eine weitere Verbesserung der Kalibration ist möglich, indem der Ionisationsmechanismus gewechselt wird. Hierzu wurde eine Strahlzeit am Freien Elektronen Laser (FEL) in Hamburg beantragt und bewilligt. Hier ist es nun möglich, die Kalibrationssysteme und die Heliumcluster über gezielte Ein-Photonen-Übergänge zu ionisieren. Bei diesen ist der Ionisationsprozess und damit auch der Energieübertrag während der Ionisation besser definiert als bei der Multiphoton- bzw. Feldionisation im Femtosekunden-Laser. Die Durchführung dieses Experimentes sollte die Bestimmung der Bindungsenergie des Dimers genauer ermöglichen. Hierzu wurde das Experiment so umgebaut, dass es per Lkw nach Hamburg transportiert werden kann und den Ansprüchen einer FEL-Messung genügt.

Beim Heliumtrimer muss weiterhin die Suche nach dem ersten vibrationsangeregten Zustand ein Ziel sein. Hierfür ist eine mögliche Vorgehensweise die Parameter der Überschallgasexpansion über einen deutlich weiteren Bereich zu variieren. Um dies mit einem vertretbaren Arbeitsaufwand zu realisieren, wurde bereits die Verstellmechanik von Gitter und Schlitz auf Schrittmotoren umgebaut. Dies ermöglicht eine viel schnellere und exaktere Aufnahme von Beugungsbildern.

Des Weiteren wäre es wünschenswert die Elektronen der Reaktion in Koinzidenz nachzuweisen. Hierüber könnten weitere Informationen über den Ionisationsmechanismus und die Bindungseigenschaften der kleinen Heliumcluster erlangt werden. Bislang war dies aufgrund der hohen Laserintensität nicht möglich. Diese sorgte für eine extrem hohe Elektronenrate, welche eine klare Zuordnung der gemessenen Elektronen zur Reaktion unmöglich machte. Eine weitere Verbesserung des Vakuums in der Reaktionskammer könnte dieses Problem beheben. Des Weiteren bietet die Messung am FEL das Potential Ionen und Elektronen in Koinzidenz zu detektieren.

Auch Messungen am Synchrotron oder an Ionenbeschleunigern, unter Verwendung des Transmissionsbeugungsgitters, könnten weitere Erkenntnisse über die faszinierenden Eigenschaften kleiner Heliumcluster liefern.

A. Anhang

A.1 Durchgeführte Messungen

Im Hauptteil dieser Arbeit wurden lediglich zwei der getätigten Messungen vorgestellt. Im Verlauf der Promotionszeit wurden jedoch weitere Messungen am Heliumdimer und -trimer getätigt. Diese werden hier nun vorgestellt, wobei auch auf die aufgetretenen Probleme der jeweiligen Messungen eingegangen wird.

Heliumdimere

Die in Kapitel 5.2 vorgestellte Messung ist die letzte aus einer Messreihe von insgesamt sechs Messungen am Heliumdimer. Sie ergab eine Bindungsenergie von $147 \pm 0,11$ (stat) $\pm 0,89$ (Fit) $^{+19,4}_{-13,4}$ (syst) neV, wobei jedoch ein deutlicher Unterschied der Bindungsenergie von der Aufbruchsrichtung des Moleküls beobachtet werden konnte. Unabhängig von diesem Effekt stellt diese Messung aufgrund der guten Kalibration das vertrauenswürdigste Ergebnis der sechs Messungen dar. Im Folgenden werden nun die anderen fünf Messergebnisse präsentiert und diskutiert.

Die erste Messung wurde auf der kurzen Seite des Spektrometers (39,5 mm lang) bei einem elektrischen Feld von 6,5 V/cm durchgeführt. Die Düse wurde hierfür auf eine Temperatur von 12 K gekühlt und ein Vordruck von 2,1 bar verwendet. Dies war die erste Messung, bei der das Transmissionsbeugsgitter verwendet wurde. Das über das Spektrometer angelegte E-Feld bei dieser Messung wurde so gewählt, dass die Kalibrationssysteme unabhängig von ihrer Orientierung im Raum nachgewiesen wurden. Dies wiederum hatte zur Folge, dass die experimentelle Auflösung auf den niederenergetischen

Aufbruch des Heliumdimers sehr gering war. Zudem wurde zur Kalibration Stickstoff und Kohlenstoffmonoxid verwendet. Beide Systeme ließen, wie in Kapitel 4.2.2 beschrieben, nur eine unzureichende Energiekalibration zu. Die Verteilung der internuklearen Abstände kann in Abbildung A.1 gesehen werden.

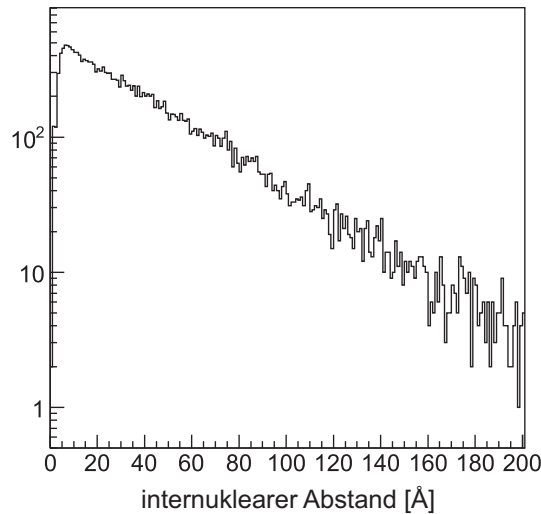


Abbildung A.1: Verteilung der internuklearen Abstände des Heliumdimers in einer Messung bei 12 K und einem E-Feld von 6,5 V/cm.

Die gemessene Verteilung der internuklearen Abstände passt optisch zu der im Hauptteil der Arbeit dargestellten (siehe Abbildung 5.12). Nähert man sie jedoch mit Gleichung 5.3 an, erhält man eine Bindungsenergie von 183,6 neV. Dieser Wert ist sowohl vom theoretisch berechneten Wert, als auch vom Messwert aus dem Hauptteil dieser Arbeit weit entfernt. Dieser Unterschied ist auf die ungenaue Kalibration der Messung und das sehr hohe elektrische Feld zurückzuführen. Betrachtet man die Bindungsenergie in Abhängigkeit zur Aufbruchrichtung, für verschiedene Bereiche von $\cos(\theta)$, so ergeben sich bei dieser Messung Werte zwischen 165 und 245 neV. Diese breite Spanne an Bindungsenergien verdeutlicht, dass der in dieser Messung erzielte systematische Fehler nicht ausreicht um ein verlässliches Ergebnis zu erlangen.

Um diesen Fehler zu verringern, wurde in einer nächsten Messung das E-Feld auf 3,85 V/cm reduziert. Die Parameter der Überschallgasexpansion wurden nicht verändert und als Kalibrationssystem wurde nur Stickstoff verwendet. Die verbesserte Energieauflösung aufgrund des niedrigen E-Feldes führte zu einer gemessenen Bindungsenergie von ,5 neV. Betrachtete man diese jedoch in Abhängigkeit des Aufbruchswinkels, waren noch Schwankungen zwischen 159 und 193 neV zu beobachten.

Um diese Ungenauigkeiten weiter zu minimieren, wurde in der nächsten Messung zusätzlich zum Stickstoff noch Argondimere und Sauerstoff als Kalibrationssysteme verwendet. Da dies die bestmögliche Kalibration darstellt, sollte diese Messung, unter Verwendung der gleichen experimentellen Parameter an Düse und Spektrometer wie zuvor, ein exakteres Ergebnis der Bindungsenergie ergeben. In dieser Messung zeichnete sich jedoch ein sehr viel ungenaueres Bild ab. Je nach Orientierung des Moleküls ergaben sich Bindungsenergien zwischen 127 und 220 neV. Der Grund dieser starken Schwankung ist bei Betrachtung des Ortsbildes sofort ersichtlich.

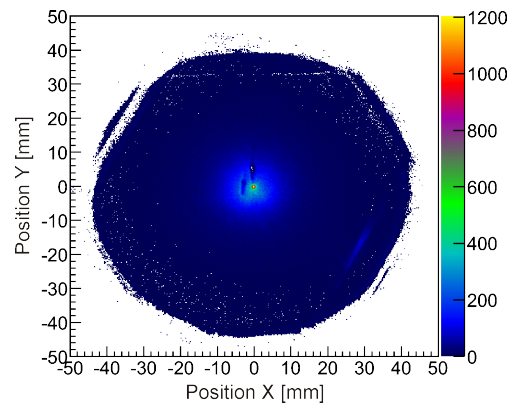


Abbildung A.2: Ortsbild des Ionendetektors in einer Messung bei 12 K, 2 bar Vordruck, 3,85 V/cm E-Feld und der 39,5 mm langen Spektrometerseite. Nahe des Maximums der Dimerverteilung sind zwei Stellen mit niedriger Nachweiseffektivität ersichtlich.

Im Ortsbild kann man deutlich zwei Regionen mit stark reduzierter Nachweiseffektivität erkennen. Da nun Ereignisse, die in diesem Bereich auftreffen würden aus der Statistik herausfallen, ergibt sich eine komplizierte Abhängigkeit zwischen Orientierung und internuklearem Abstand, die das Gesamtergebnis verfälscht. Aufgrund dieser Tatsache kann diese Messung nicht genutzt werden.

In der nächsten getätigten Messung wurde daher die lange Seite des Spektrometers (222,4 mm) und damit auch der andere Detektor verwendet. Über sie wurde eine Spannung von ca. 125 V angelegt, was zu einem E-Feld von 5,75 V/cm führte. Die Parameter der Überschallgasexpansion blieben im Vergleich zu den bisherigen Messungen unverändert. Betrachtet man bei dieser Messung den kinetic energy release gegen den Aufbruchswinkel, kann man feststellen, dass sowohl Aufbrüche direkt entlang der Spektrometerachse, als auch die parallel zum Detektor ein unterschiedliches Verhalten zu den restlichen Aufbrüchen haben (siehe Abbildung A.3).

Bestimmt man die Bindungsenergie des Dimers, so ergibt sich, abgesehen von den scheinbar problematischen Bereichen in Flugzeitrichtung und der

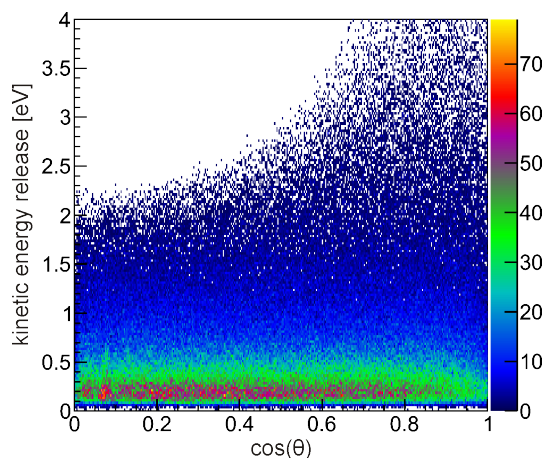


Abbildung A.3: Kinetic energy release in Abhängigkeit vom Aufbruchswinkel zur Spektrometerachse. Für Aufbrüche entlang der Spektrometerachse und welche parallel zum Detektor zeigt sich ein anderes Verhalten, als für die übrigen Ereignisse.

Detektorebene, ein mit der im Hauptteil besprochenen Messung einheitliches Bild. Die Bindungsenergie des Dimers liegt zwischen 158,1 und 167,0 neV.

Da nicht geklärt werden konnte, woher diese Abweichung bei paralleler und orthogonaler Orientierung zum Detektor stammt, wurde eine weitere Messung am Heliumdimer getätigt. Bei dieser wurde das E-Feld noch niedriger, auf einen Wert von 3,84 V/cm eingestellt. Die Düse wurde bei dieser Messung auf eine Temperatur von 16 K gekühlt, der Vordruck jedoch bei 2 bar belassen. Durch diese Parameter der Expansion ist es nun völlig ausgeschlossen, dass sich noch ein Rest an Trimeren unter den Dimerereignissen befindet (siehe Abb 5.4). Betrachtet man bei dieser Messung wieder den kinetic energy release gegen die Orientierung des Moleküls ist ein anderes Problem zu erkennen.

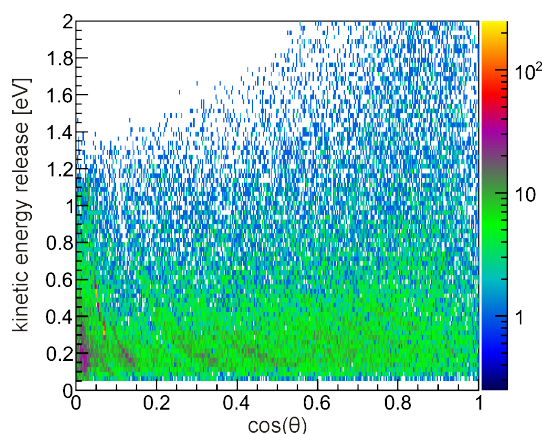


Abbildung A.4: Kinetic energy release in Abhängigkeit vom Aufbruchswinkel zur Spektrometerachse. Nahezu über den ganzen Bereich der Moleküllorientierungen ist eine Struktur zu erkennen.

Im Unterschied zu Abbildung A.3 ist in dieser Messung eine deutliche Struktur zu erkennen. Während bei der vorherigen Messungen nur bei Aufbrüchen direkt in der Detektorebene eine Struktur zu erkennen war, streckt sich diese hier nahezu bishin zu Aufbrüchen entlang der Spektrometerachse aus. Die Ursache dieser Struktur liegt, wie bereits in Kapitel 5.2 erwähnt, in der Totzeit des Detektors. Hat das zeitgebende MCP-Signal hinter dem Signalpuls noch einen oder mehrere Nachschwinger, kann in dieser Zeit kein weiteres Ereignis detektiert werden. Aufbrüche parallel bzw. nahezu parallel zur Detektorebene treffen mit einem sehr geringen zeitlichen Versatz auf das MCP auf. Aufgrund des niedrigen E-Feldes bei dieser Messung ist der durch diesen Effekt betroffene Bereich nahezu über den ganzen $\cos(\theta)$ ausgedehnt. Die Ereignisse dieser Messung sind daher nicht für eine verlässliche Bestimmung der Bindungsenergie geeignet.

Die letzte der sechs Messungen ist die im Hauptteil beschriebene. In ihr wurde die Signalentkopplung der Detektoren neu konfiguriert um die Totzeit zu minimieren. Zusätzlich wurde das elektrische Feld des Spektrometers minimal erhöht. Die Einstellungen der Überschallgasexpansion waren mit 16 K und 2 bar so gewählt, dass ein Untergrund an Trimeren ausgeschlossen werden kann. Der in dieser Messung ermittelte Wert für die Bindungsenergie von $147 \pm 0,11$ (stat) $\pm 0,89$ (Fit) $^{+19,4}_{-13,4}$ (syst) neV stellt daher den verlässlichsten Messwert dar.

Spektrometer/ E-Feld	Kalibration	Ergebnis	Probleme
39,5 mm 6,5 V/cm	N ₂ , CO	165 - 245 neV	zu hohes E-Feld zu ungenaue Kalibration
39,5 mm 3,85 V/cm	N ₂	159 - 193 neV	zu ungenaue Kalibration
39,5 mm 3,85 V/cm	N ₂ , Ar ₂ , O ₂	127 - 220 neV	Nachweisminima im Detektor
222,4 mm 5,75 V/cm	Ar ₂ , O ₂ ,	162 - 180 neV	Probleme im Bereich $\cos(\theta) < 0,2$ und $\cos(\theta) > 0,9$
222,4 mm 3,84 V/cm	Ar ₂ , O ₂ ,	nicht zu verwenden	starke Totzeitprobleme
222,4 mm 3,8 V/cm	Ar ₂ , O ₂ ,	$147 \pm 0,11$ (stat) $\pm$ $0,89$ (Fit) $^{+19,4}_{-13,4}$ (syst) neV	keine dominanten Probleme

Tabelle A.1: Tabellarische Zusammenfassung der verschiedenen Dimermessungen.

Heliumtrimere

Bei der Messung des Heliumtrimers wurden nur für den homonuklearen $^4\text{He}_3$ mehrere Messungen getätigt. Neben der in Kapitel 5.3.1 beschriebenen Messung wurde das System noch zwei weitere Male vermessen.

Bei den im Hauptteil dieser Arbeit nicht gezeigten Messungen lag die Düsentemperatur jeweils bei 12 K und der Vordruck bei 2 bar. Die in den Messungen erhaltenen Ergebnisse sollen hier als erstes anhand der kinetischen Energie der drei Teilchen (Dreiteilchen-KER) verglichen werden (siehe Abbildung A.5).

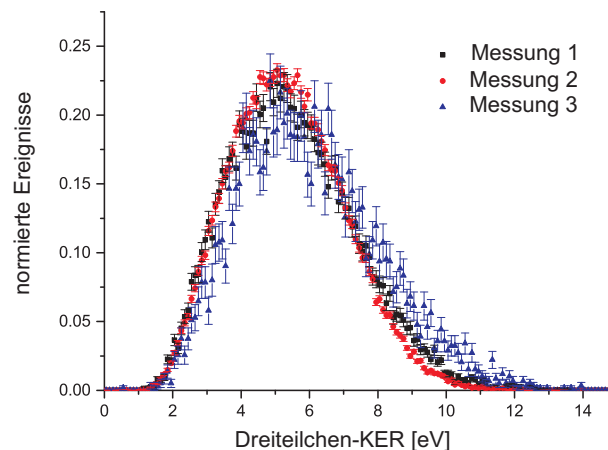


Abbildung A.5: Kinetic energy release der drei Fragmente der Coulomb-Explosion. Messung 1 wurde auf der 3,95 cm langen Spektrometerseite bei einem E-Feld von 3,85 V/cm, einer Düsentemperatur von 12 K und einem Vordruck von 2 bar durchgeführt. Messung 2 ist die im Hauptteil beschriebene Messung auf der langen Spektrometerseite (22,24 cm) bei 15,25 V/cm, 12 K und 3 bar. Messung 3 wurde auf der selben Spektrometerseite bei einem Feld von 37,4 V/cm, einer Temperatur von 12 K und einem Vordruck von 2 bar durchgeführt.

Die drei Verteilungen scheinen innerhalb ihrer Fehler gut übereinzustimmen. In der abfallenden Flanke der Verteilung sticht jedoch Messung 3 ein wenig heraus. Bei ihr kommen, verglichen zu den anderen zwei Messungen, größere KER häufiger vor. Die Erklärung hierfür ist im am Spektrometer angelegten elektrischen Feld zu sehen. Dieses ist im Verhältnis zur Länge des Spektrometers in dieser Messung am höchsten. In den zwei anderen Messungen dagegen war es so niedrig eingestellt, dass je nach räumlicher Orientierung des Moleküls hohe Aufbruchenergien nicht detektiert wurden. Hierdurch kam es, je nach Form des Trimers, zu verschiedenen großen Verlusten bei hohem KER.

Messung 3 wurde für den Hauptteil nicht ausgewählt, da sie die mit Abstand schlechteste Statistik besitzt. Mit weniger als 6000 Ereignissen ist eine Darstellung des KER zwar möglich, für zweidimensionale Histogramme reicht diese Statistik jedoch nicht für aussagekräftige Darstellungen aus.

Aus den verbleibenden zwei Messungen wurde Nummer 2 für den Hauptteil der Arbeit ausgewählt, da sie zum einen, mit ihren 105000 Ereignissen, eine etwa fünf Mal so gute Statistik wie Messung 1 hat, zum anderen aber auch, da Messung 1 relativ früh während der Promotionszeit durchgeführt wurde und daher einzig mit Stickstoff kalibriert wurde.

Nachdem die Übereinstimmung in der Aufbruchsennergie dargelegt wurde, muss nun noch gezeigt werden, dass die drei Messungen auch in der geometrischen Struktur des Trimers übereinstimmen. Hierzu wird zuerst Messung 1 und 2 verglichen. Diese haben beide eine ausreichende Statistik um die Struktur in einem zweidimensionalen Histogramm zu betrachten.

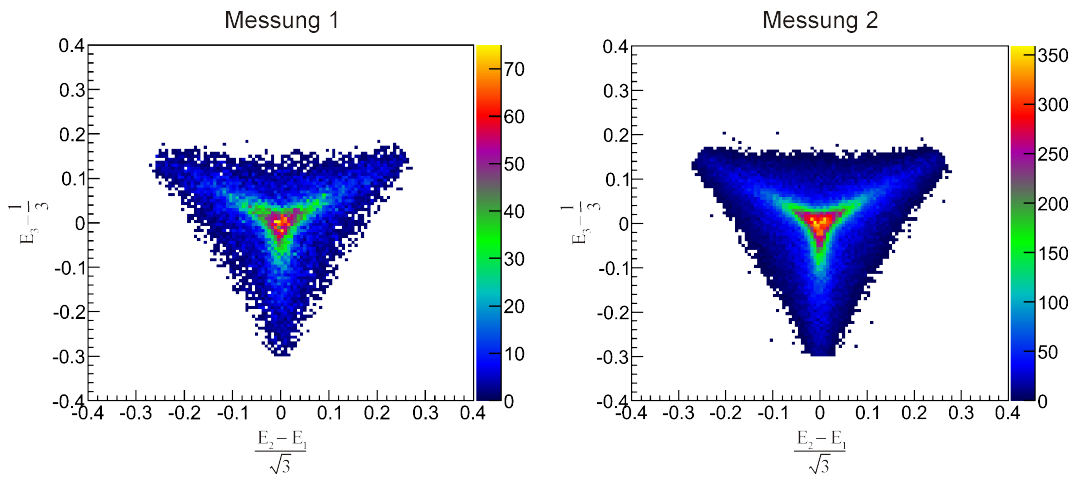


Abbildung A.6: Vergleich der Dalitz Diagramme der ersten und zweiten Messung am $^4\text{He}_3$. Die Messungen haben das Maximum an der gleichen Stelle und zeigen auch in den Außenbereichen des Histogramms ein vergleichbares Verhalten.

Der Vergleich des Dalitz Diagramms im Impulsraum (Abb. A.6) zeigt, dass sowohl Messung 1 als auch 2 eine identische Verteilung ergeben. Beide Histogramme haben ihr Maximum im Ursprung des Koordinatensystems und fallen von dort an zu den Seiten identisch ab. Aufgrund dieser guten Übereinstimmung im Impulsraum soll an dieser Stelle von einer Transformation in den Ortsraum abgesehen werden, da auch hier identische Resultate zu erwarten sind.

Die direkte Nebeneinanderstellung von Messung 2 und 3 kann aufgrund der geringen Statistik von Messung 3 nicht im zweidimensionalen Dalitz Diagramm geschehen. Stattdessen wird auf die bereits aus Abbildung 5.20 bekannte Darstellung des Innenwinkels zwischen den Relativimpulsen zurückgegriffen.

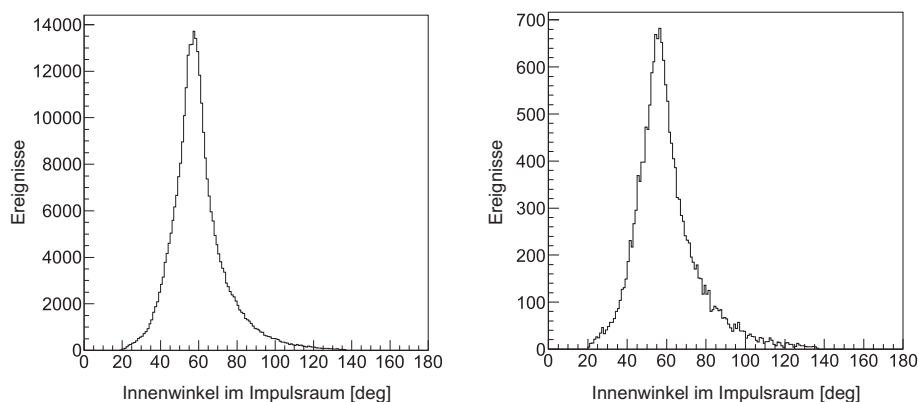


Abbildung A.7: Vergleich der Innenwinkel zwischen den Relativimpulsen des Trimers bei Messung 2 und 3. Abgesehen von der unterschiedlichen Statistik haben die Verteilungen den gleichen Verlauf.

Auch Messung 2 und 3 zeigen in Abbildung A.7 eine exzellente Übereinstimmung. Beide haben ihr Maximum bei knapp unter 60° , erstrecken sich jedoch von 20° bis hin zu etwa 120° .

Da in Kapitel 5.3.1 auch die theoretisch berechneten Verteilungen zwecks des im Experiment nicht vollständig abgedeckten Raumwinkels korrigiert wurden, gab es keinen Grund nicht Messung 2 auszuwählen. Da alle drei Messungen einen vergleichbaren KER ergaben und auch in der Struktur des Trimers kein Unterschied festgestellt werden konnte, stellte Messung 2 die beste Statistik in Kombination mit der verlässlichsten Kalibration. Ein positiver Nebeneffekt dieser Wahl lag darin, dass die Messung am heteronuklearen $^3\text{He}^4\text{He}_2$ in der selben Messzeit entstand. Aufgrund der gleichen Einstellung des elektrischen Feldes und der Verwendung der gleichen Kalibrationsmessungen müssen die zwei Systeme direkt vergleichbar sein.

A.2 Look-Up Table

Beim Heliumtrimer besteht ein großes Interesse daran den geometrischen Aufbau des Moleküls zu erfahren. Da die Messgrößen einer ColTRIMS-Messung jedoch im Impulsraum sind, ist es schwierig, ein intuitives Verständnis der Struktur zu erlangen. Der Grund hierfür liegt darin, dass Informationen eines Mehrteilchensystems im Impulsraum nicht trivial in den Ortsraum transformiert werden können. Dies kann man sich bildlich durch den Vorgang der Coulomb-Explosion erklären. Starten zwei der drei Ionen nahe beieinander und das dritte weit entfernt, z.B. in einem gleichschenkligen Dreieck, erhalten die ersten zwei Teilchen, welche nahe beieinander sind, durch

ihre Abstoßung einen großen Impuls. Der Impulsübertrag vom dritten Ion ist vergleichsweise klein und in eine andere Richtung. Das dritte, weiter entfernte Ion erhält dagegen zwei kleinere Impulsüberträge, welche jedoch nahezu in die gleiche Richtung deuten und sich daher aufsummieren. Dies sorgt dafür, dass trotz einer starken Auslenkung von einem gleichseitigen Dreieck im Ortsraum, die Impulse der einzelnen Teilchen im Betrag nahezu gleichgroß sind. Demnach führt eine breite Verteilung von Konfigurationen im Ortsraum nur zu sehr geringen Unterschieden im Impulsraum.

Diese Vorstellung einer Coulomb-Explosion hilft demnach nicht ein genaues Verständnis der geometrischen Struktur aus den Daten im Impulsraum zu gewinnen. Um dieses Problem zu lösen wurde eine Look-Up Table (LU Table) erstellt [Kun14]. Die Idee hierfür basiert darauf, dass durch eine Simulation Daten erstellt werden, die den Ortsraum mit dem Impulsraum verknüpfen. Diese Verknüpfung kann anschließend genutzt werden, um die experimentellen Daten in den Ortsraum zu transformieren.

Die einfachste Realisierung einer Look-Up Table wäre es, drei zufällige Ortskoordinaten zu würfeln, um eine Trimerkonfiguration zu erhalten. Diese Koordinaten könnten genutzt werden um, unter Annahme der Heliummasse und einfach positiver Ladung, die Newton'schen Bewegungsgleichungen zu lösen und so die resultierenden Impulsvektoren zu erlangen. Will man diese Informationen in eine Look-Up Table eintragen, würde diese mindestens sechs Einträge für Ortsraum und 6 Einträge für Impulsraum benötigen (für jedes Teilchen je eine X und eine Y Koordinate). Die LU Table würde demnach pro Ereignis aus 12 Einträgen bestehen. Will man dies für ausreichend viele Konfigurationen machen, um für jedes gemessene Ereignis mindesten einen Eintrag in der Tabelle zu finden, so würde dies eine enorme Datenmenge produzieren. Diese Datenmenge müsste nun für jedes gemessene Ereignis nach dem passenden Eintrag durchsucht werden. Da dies extrem lange dauern und der Datenspeicher im PC nicht ausreichen würde, muss eine andere Methode gefunden werden, welche die nötigen Informationen mit weniger Einträgen liefert.

Um Informationen über alle drei Teilchen in einem Histogramm darzustellen wurde in Kapitel 4.1.3 bereits das Dalitz Diagramm eingeführt. Können aus dessen Koordinaten die Ortsinformationen aller Teilchen in kartesischen Koordinaten gewonnen werden, wäre dies eine Möglichkeit mit nur je zwei Einträgen (X und Y Koordinate des jeweiligen Dalitz Diagramms) für Orts- und Impulsraum eine LU Table zu erstellen. Dies birgt jedoch zwei Schwierigkeiten: zum einen muss eine Transformation von den Dalitz Koordinaten

in kartesische Koordinaten der einzelnen Teilchen gefunden werden und als zweites haben diese Konfigurationen nur eine einheitliche Größe, da das Dalitz Diagramm normiert ist.

Um alle möglichen Konfigurationen im Ortsraum zu erhalten, wurde mit einem homogen gefüllten Dalitz Diagramm im Ortsraum begonnen. Um aus den Koordinaten des Dalitz Diagramms, welche die ersten zwei Einträge der LU Table darstellen, in kartesische Koordinaten zu wechseln, wurde folgendes Gleichungssystem [Dör] verwendet.

$$\begin{aligned}
 x_1 &= \sqrt{p_1} \\
 x_2 &= -\left(\frac{p_2 - p_3 + p_1}{2\sqrt{p_1}}\right) \\
 x_3 &= -\sqrt{p_1} - x_2 \\
 y_1 &= 0 \\
 y_2 &= -y_3 \\
 y_3 &= \sqrt{p_2 - x_2^2}
 \end{aligned} \tag{A.1}$$

mit

$$\begin{aligned}
 p_1 &= y_{Dalitz} + \frac{1}{3} \\
 p_2 &= \frac{1}{2}(\sqrt{3} \cdot x_{Dalitz} - y_{Dalitz} + \frac{2}{3}) \\
 p_3 &= 1 - p_1 - p_2
 \end{aligned} \tag{A.2}$$

Für die über diese Formeln erzeugten Trimerkonfigurationen in kartesischen Koordinaten wird nun, unter Annahme der Heliummasse und einfach positiver Ladung, eine Coulomb-Explosion klassisch simuliert. Die entsprechenden Differenzialgleichungen der Newton'schen Mechanik werden numerisch mit der Euler Methode gelöst. Dies geschieht indem in kleinen Zeitschritten jeweils die Beschleunigung, die Position und Geschwindigkeit der einzelnen Teilchen berechnet wird. Die Zeitschritte betragen anfangs 1 a.u. und werden im Verlauf der Simulation bei größeren Abständen der Teilchen und damit geringeren Kräften vergrößert. Ist keine relevante Beschleunigung mehr vorhanden, werden die Impulse als final betrachtet und aus ihnen ein Dalitz Diagramm im Impulsraum erstellt. Die Koordinaten dieses Dalitz Diagramms werden nun in einer Tabelle mit denen im Ortsraum verknüpft.

Über die so erzeugte Tabelle können nun die experimentellen Daten nachgeschaut werden. Die Koordinaten jedes gemessenen Ereignisses im Dalitz Diagramm werden mit Hilfe der LU Table in Ortskoordinaten umgewandelt.

Diese werden dann entweder direkt als Dalitz Diagramm im Ortsraum dargestellt oder man kann sie verwenden um weitere Größen im Ortsraum zu berechnen. Es ist jedoch zu beachten, dass die über die LU Table erzeugten Trimerkonfigurationen nicht die wahre Größe eines gemessenen Trimers wiedergeben können. Daher sollten mit Hilfe dieser Informationen nur die Form des Trimers betrachtet werden. Gibt es für ein experimentelles Ereignis mehrere Einträge in der Tabelle, wird per Zufall einer ausgewählt. Dies wurde so erstellt, da ein kleiner Konfigurationsbereich im Impulsraum auf einen großen Bereich im Ortsraum abgebildet wird. Um diesen Bereich homogen zu füllen wurde sich für eine Auswahl per Zufall entschieden, die bei einer ausreichenden Ereignismenge zu einer gleichmäßigen Verteilung auf alle Einträge führt.

Anders als in der LU Table, starten die einzelnen Ionen des Trimers im Experiment nicht in Ruhe, sondern erhalten jeweils einen kleinen Rückstoßimpuls durch das ionisierte Elektron. Um diesen Effekt in der LU Table zu berücksichtigen, wurde in der Simulation den Teilchen der Trimere zu Beginn der Coulomb-Explosion ein zufälliger Startimpuls gegeben. Damit dieser eine realistische Größe besitzt, wurden die experimentellen Verteilungen des Summenimpulses der einzelnen Raumrichtungen betrachtet. Nun wurde der Startimpuls der Simulation so gewählt, dass auch die resultierenden Impulse der LU Table eine vergleichbare Breite im Summenimpuls aufweisen.

Um neben der Struktur der Trimere auch den Abstand der einzelnen Teilchen voneinander zu bestimmen, wurden die rekonstruierten Ortskonfigurationen mit dem gemessenen kinetic energy release der drei Teilchen verknüpft. Hierbei wird ausgenutzt, dass der KER nicht nur über die Impulse der Teilchen bestimmt werden kann, sondern auch über deren ursprünglichen Abstand.

$$KER = \frac{1}{R_{12}} + \frac{1}{R_{13}} + \frac{1}{R_{23}} \quad (\text{A.3})$$

Verbindet man diese Formel mit dem Sinussatz eines allgemeinen Dreiecks,

$$\frac{R_{12}}{\sin(3)} = \frac{R_{13}}{\sin(2)} = \frac{R_{23}}{\sin(1)} = k, \quad (\text{A.4})$$

lassen sich die Seitenlängen des Trimers mit Hilfe der Winkel und des KER berechnen.

$$R_{12} = \frac{\sin(3)}{k}, \quad (\text{A.5})$$

$$R_{13} = \frac{\sin(2)}{k}, \quad (\text{A.6})$$

$$R_{23} = \frac{\sin(1)}{k}, \quad (\text{A.7})$$

mit

$$k = \frac{KER}{\frac{1}{\sin(1)} + \frac{1}{\sin(2)} + \frac{1}{\sin(3)}} \quad (\text{A.8})$$

Über diese Verknüpfung des gemessenen KER und der über die LU Table rekonstruierten Winkel lassen sich die gemessenen Trimerereignisse im Ortsraum darstellen.

Literatur

- [Ada94] C.S. Adams, M. Sigel, J. Mlynek,
Atom Optics,
Phys. Rep. 240, 143 (1994)
- [Ago79] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, and N. K. Rahman ,
Free-Free Transitions Following Six-Photon Ionization of Xenon Atoms,
Phys. Rev. Lett. 42, 1127 (1979)
- [Amm86] M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. P. Krainov,
Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field,
Sov. Phys. JETP 64, 1191 (1986)
- [And93] J. B. Anderson, C. A. Traynor, B. M. Boghosian,
An exact quantum Monte Carlo calculation of the helium-helium intermolecular potential
J. Chem. Phys. 99, No. 1, 345 (1993)
- [Azi91] R. A. Aziz, M. J. Slaman,
An examination of ab initio results for the helium potential energy curve,
J. Chem. Phys. 94, 8047 (1991)
- [Bac97] S. Backus, C. G. Durfee III, M. M. Murnane and, H. C. Kapteyn,
High power ultrafast lasers,
Rev. Scient. Instr. 63, 1207 (1997)
- [Bar01] P. Barletta, and A. Kievsky,
Variational description of the helium trimer using correlated hyperspherical harmonic basis functions,
Phys. Rev. A 64, 042514 (2001)
- [Bec12] Jasper Becht,
Massenselektion von Heliumclustern durch Materiewellenbeugung am

Nanogitter,

Bachelorarbeit, Institut für Kernphysik, Goethe Universität Frankfurt, 2012

- [Bie01] J. Bienlein, R. Wiesendanger,
Einführung in die Struktur der Materie,
1. Auflage, Teubner Verlag, ISBN 3-519-03247-3
- [Blu00] D. Blume, C. H. Greene, and B. D. Esry,
Comparative study of He_3 , Ne_3 , and Ar_3 using hyperspherical coordinates J.
Chem. Phys. 113, 2145 (2000)
- [BoWo6] M. Born, and E. Wolf,
Principle of Optics,
6. Auflage, A. Wheaton & Co. Ltd., ISBN 0-08-026482-4
- [Bra03] E. Braaten, H.-W. Hammer,
Universality in the three-body problem for ^4He atoms,
Phys. Rev. A, 67, 42706 (2003).
- [Bre00] D. Bressanini, M. Zavaglia, M. Mella, and G. Morosi,
Quantum Monte Carlo investigation of small ^4He clusters with a ^3He impurity,
J. Chem. Phys. 112, 717 (2000)
- [Bre04] D. Bressanini, and G. Morosi,
Stability of $^3\text{He}_2^4\text{He}_M$ and $^3\text{He}_3^4\text{He}_M$ $L=0,1$ Clusters,
Few Body Systems 34, 131 (2004)
- [Bre11] D. Bressanini, and G. Morosi,
What Is the Shape of the Helium Trimer? A Comparison with the Neon and Argon Trimers,
J. Phys. Chem. A 115, 10880 (2011)
- [Bre14] D. Bressanini,
The structure of the asymmetric helium trimer $^3\text{He}^4\text{He}_2$,
J. Phys. Chem. A 118, 6521 (2014)
- [Bro24] Louis deBroglie,
Recherches sur la théorie des Quanta,
Dissertation, Univ. de Paris, 1924
- [Bru02] L. W. Bruch, W. Schöllkopf, and J. P. Toennies,
The formation of dimers and trimers in free jet ^4He cryogenic expansions,
J. Chem. Phys. 117, 1544 (2002)

- [Brü05] R. Brühl, A. Kalinin, O. Kornilov, J. P. Toennies, G. C. Hegerfeldt, and M. Stoll,
Matter Wave Diffraction from an Inclined Transmission Grating: Searching for the Elusive ^4He Trimer Efimov State,
Phys. Rev. Lett. 95, 063002 (2005)
- [Bun60] D. L. Bunker,
Mechanics of Atomic Recombination Reactions,
J. Chem. Phys. 32, 1001 (1960)
- [Ced97] L. S. Cederbaum, J. Zobeley, and F. Tarantelli,
Giant Intermolecular Decay and Fragmentation of Clusters,
Phys. Rev. Lett. 79, 4778 (1997)
- [CFD] www.roentdek.com,
The Constant Fraction Discriminators CFD8c, CFD7x, CFD4c, CFD1c and CFD1x,
Version 11.0.1403.1 - 13.03.2014
- [Cob08] www.roentdek.com/software/software/ **CoboldPC2008Rx**,
Version 9.1.912.2
- [Cor86] T. Cornelius, and W. Glöckle,
Efimov states for three ^4He atoms?,
J. Chem. Phys. 85, 3906 (1986)
- [Cor93] P. B. Corkum,
Plasma perspective on strong field multiphoton ionization,
Phys. Rev. Lett. 71, 1994 (1993)
- [Cza99] Achim Czasch,
Fragmentierung diatomarer Moleküle durch langsamer Streuprozesse,
Dissertation, Institut für Kernphysik, Goethe Universität Frankfurt, 1999
- [Cza11] A. Czasch, T. Jahnke, M. Schoeffler,
LMF2ROOT Version 1.606,
<http://www.atom.uni-frankfurt.de/czasch/>
- [Dal53] R. H. Dalitz,
On the Analysis of τ -Meson Data and the Nature of the τ -Meson,
Phil. Mag. 44, 1068 (1953)
- [Dem3] W. Demtröder,
Experimentalphysik 3 - Atome, Moleküle und Festkörper,
3. Auflage, Springer Verlag, ISBN 3-540-21473-9

- [Dör00] R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich, R. Moshhammer, and H. Schmidt-Böcking,
Cold target recoil ion momentum spectroscopy: a „momentum microscope” to view atomic collision dynamics,
Phys. Rep. 330, 95 (2000)
- [Dör] private Kommunikation mit R. Dörner
- [Dro06] G. Drobychev, A. Barysevich, K. Delendik, A. Karneyeu, P. Nédélec, D. Sillou, and O. Voitik,
Development of micro-channel plates on a basis of aluminum oxide,
Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A 567, 290 (2006)
- [Duf79] K. Duffy, and T. K. Lim,
Mixed and fermionic helium trimers,
J. Chem. Phys. 70, 4778 (1979)
- [Eic00] U. Eichmann, M. Dörr, H. Maeda, W. Becker, and W. Sandner,
Collective Multielectron Tunneling Ionization in Strong Fields,
Phys. Rev. Lett. 84, 3550 (2000)
- [Ef70] V. Efimov,
Energy Levels arising from resonant two-body forces in a three-body system,
Phys. Lett. 33B, 563 (1970)
- [Es96] B. D. Esry, C. D. Lin, and C. H. Greene,
Adiabatic hyperspherical study of the helium trimer, Phys. Rev. A 54, 394 (1996)
- [Famp] www.roentdek.com,
The FAMP8, (D)FAMP6, PreFAMP6, FAMP3 and FAMP1+,
Version 11.0.1403.1 - 13.03.2014
- [Fel82] R. Feltgen, H. Kirst, K. A. Köhler, H. Pauly, and F. Torello,
Unique determination of the He₂ ground state potential from experiment by use of a reliable potential model,
J. Chem. Phys. 76, 2360 (1982)
- [Fes58] H. Feschbach,
Unified Theory of Nuclear Reactions,
Anals of Phys. 5, 357 (1958)
- [Fit94] D. N. Fittinghoff, P. R. Bolton, B. Chang, and K. C. Kulander,
Polarization dependence of tunneling ionization of helium and neon by 120-fs pulses at 614 nm,
Phys. Rev. A 49, 2174 (1994)

- [Gda01] R. J. Gdanitz,
Accurately solving the electronic Schrödinger equation of atoms and molecules using explicitly correlated (r_{12} -)MR-CI. VI. The helium dimer (He_2) revisited,
Mol. Phys. 99, 923 (2001)
- [Ger23] D. Meschede,
Gerthsen Physik,
23. Auflage, Springer Verlag, ISBN-10 3-540-25421-8
- [Gis73] E. A. Gislason,
Series expansions for Franck-Condon factors. I. Linear potential and the reflection approximation,
J. Chem. Phys. 58, 3702 (1973)
- [Gon99] T. González-Lezana, J. Rubayo-Soneira, S. Miret-Artés, F. A. Gianturco, G. Delgado-Barrio, and P. Villarreal,
Efimov States for ^4He Trimers?,
Phys. Rev. Lett. 82, 1648 (1999)
- [Gon99a] T. González-Lezana, J. Rubayo-Soneira, S. Miret-Artés, F. A. Gianturco, G. Delgado-Barrio, and P. Villarreal,
Comparative configurational study for He, Ne, and Ar trimers,
J. Chem. Phys. 110, 9000 (1999)
- [Gri] private Kommunikation mit R. E. Grisenti
- [Gri99] R. E. Grisenti, W. Schöllkopf, J. P. Toennies, G. C. Hegerfeldt, and T. Köhler,
Determination of Atom-Surface van der Waals Potentials from Transmission-Grating Diffraction Intensities,
Phys. Rev. Lett. 83, 1755 (1999)
- [Gri00] R. E. Grisenti, W. Schöllkopf, J. P. Toennies, G. C. Hegerfeldt, T. Köhler, and M. Stoll,
Determination of the Bond Length and Binding Energy of the Helium Dimer by Diffraction from a Transmission Grating,
Phys. Rev. Lett. 85, 2284 (2000)
- [Gri00a] R. E. Grisenti, W. Schöllkopf, J. P. Toennies, J. R. Manson, T. A. Savas, and I. Smith,
He-atom diffraction from nanostructure transmission gratings: The role of imperfections,
Phys. Rev. A 61, 033608 (2000)
- [Gri00b] Robert E. Grisenti,
Manipulation and Analysis of Atomic and Molecular Beams using

- Transmission Gratings and Fresnel Zone Plates,**
Dissertation, Max-Planck-Institut für Strömungsforschung, Göttingen, 2000
- [Gri00c] R. E. Grisenti, G. C. Hegerfeldt, T. Köhler und J. P. Toennies,
Quantentheorie der Materiewellenbeugung,
Phys. Blätter 56, 53 (2000)
- [Gua02] R. Guardiola, and J. Navarro,
Stability of Small Mixed Clusters of ^4He and ^3He Atoms,
Phys. Rev. Lett. 89, 193401 (2002)
- [Gua03] R. Guardiola, and J. Navarro,
Stability chart of small mixed ^4He - ^3He clusters,
Phys. Rev. A 68, 055201 (2003)
- [Han00] S. M. Hankin, D. M. Villeneuve, P. B. Corkum, and D. M. Rayner,
Nonlinear Ionization of Organic Molecules in High Intensity Laser Fields,
Phys. Rev. Lett. 84, 5082 (2000)
- [Hav10] Tilo Havermeier,
Photoionisation von Heliumdimeren,
Dissertation, Institut für Kernphysik, Goethe Universität Frankfurt, 2010
- [Hav10a] T. Havermeier, T. Jahnke, K. Kreidi, R. Wallauer, S. Voss, M. Schöffler, S. Schössler, L. Foucar, N. Neumann, J. Titze, H. Sann, M. Kühnel, J. Voigtsberger, J. H. Morilla, W. Schöllkopf, H. Schmidt-Böcking, R. E. Grisenti, and R. Dörner,
Interatomic Coulombic Decay following Photoionization of the Helium Dimer: Observation of Vibrational Structure,
Phys. Rev. Lett. 104, 133401 (2010)
- [Hav10b] T. Havermeier, T. Jahnke, K. Kreidi, R. Wallauer, S. Voss, M. Schöffler, S. Schössler, L. Foucar, N. Neumann, J. Titze, H. Sann, M. Kühnel, J. Voigtsberger, A. Malakzadeh, N. Sisourat, W. Schöllkopf, H. Schmidt-Böcking, R. E. Grisenti, and R. Dörner,
Single photon double ionization of the helium dimer,
Phys. Rev. Lett. 104, 153401 (2010)
- [Hav10c] T. Havermeier, K. Kreidi, R. Wallauer, S. Voss, M. Schöffler, S. Schössler, L. Foucar, N. Neumann, J. Titze, H. Sann, M. Kühnel, J. Voigtsberger, N. Sisourat, W. Schöllkopf, H. Schmidt-Böcking, R. E. Grisenti, R. Dörner, and T. Jahnke,
Angular distributions of photoelectrons and interatomic-Coulombic-decay electrons from helium dimers: Strong dependence on the inter-nuclear distance,
Phys. Rev. A 82, 063405 (2010)

- [HaWo8] H. Haken, H. C. Wolf,
Atom- und Quantenphysik,
8. Auflage, Springer Verlag, ISBN 3-540-02621-5
- [Heg98] G. C. Hegerfeldt, and T. Köhler,
Atomic versus molecular diffraction: Influence of breakups and finite size,
Phys. Rev. A 57, 2021 (1998)
- [Heg00] G. C. Hegerfeldt, and T. Köhler,
Deviations from classical optics in matter diffraction and determination of the size of weakly bound molecules,
Phys. Rev. A 61, 023606 (2000)
- [Hiy12] E. Hiyama, and M. Kamimura,
Linear correlations between ^4He trimer and tetramer energies calculated with various realistic ^4He potentials,
Phys. Rev. A 85, 062505 (2012)
- [Hoh02] Oliver Hohn,
Hochdruckmikroentladungen mit hohem Gasfluss,
Dissertation, Institut für Kernphysik, Goethe Universität Frankfurt, 2002
- [Hua14] B. Huang, L. A. Sidorenkov, and R. Grimm,
Observation of the Second Triatomic Resonance in Efimov's Scenario,
Phys. Rev. Lett. 112, 190401 (2014)
- [Jah05] Till Jahnke,
Interatomic Coulombic Decay,
Dissertation, Institut für Kernphysik, Goethe Universität Frankfurt, 2005
- [Jan95] A. R. Janzen and R. A. Aziz,
Modern He-He potentials: Another look at binding energy, effective range theory, retardation, and Efimov states,
J. Chem. Phys. 103, 9626 (1995)
- [Jan97] A. R. Janzen and R. A. Aziz,
An accurate potential energy curve for helium based on ab initio calculations,
J. Chem. Phys. 107, 914 (1997)
- [Jen04] A. S. Jensen, K. Riisager, D. V. Fedorov, and E. Garrido,
Structure and reactions of quantum halos,
Rev. of Mod. Phys. 76, 215 (2004)

- [Kal05] A. Kalinin, O. Kornilov, W. Schöllkopf, and J. P. Toennies,
Observation of Mixed Fermionic-Bosonic Helium Clusters by Transmission Grating Diffraction,
Phys. Rev. Lett. 95, 113402 (2005)
- [Kar04] R. Kariotis, L. W. Bruch, and O. Kornilov,
Kinetic temperature effects on 4 He dimers in jets,
J. Chem. Phys. 121, 3044 (2004)
- [Kel65] L. V. Keldysh,
Ionization in the field of a strong electromagnetic wave,
Sov. Phys. JETP 20, 1307 (1965)
- [Kim14] H.-K. Kim, H. Gassert, J. N. Titze, M. Waitz, J. Voigtsberger, F. Trinter, J. Becht, A. Kalinin, N. Neumann, C. Zhou, L. Ph. H. Schmidt, O. Jagutzki, A. Czasch, M. Schöffler, H. Merabet, H. Schmidt-Böcking, T. Jahnke, H. J. Lüdde, A. Cassimi, and R. Dörner,
Orientation dependence in multiple ionization of He₂ and Ne₂ induced by fast, highly charged ions: Probing the impact-parameter-dependent ionization probability in 11.37-MeV/u S¹⁴⁺ collisions with He and Ne,
Phys. Rev. A 89, 022714 (2014)
- [Knu77] E. L. Knuth,
Dimer-formation rate coefficients from measurements of terminal dimer concentrations in free-jet expansions,
J. Chem. Phys. 66, 3515 (1977)
- [Kor97] T. Korona, H. L. Williams, R. Bukowski, B. Jeziorski, and K. Szalewicz,
Helium Dimer Potential from Symmetry-Adapted Perturbation Theory Calculations using Large Gaussian and Orbital Basis Sets,
J. Chem. Phys. 106, 51509 (1997)
- [Kor07] O. Kornilov, and J. P. Toennies,
Matter-wave diffraction of quantum magical helium clusters,
Europhys. J. 38, 22 (2007)
- [Kra06] T. Kraemer, M. Mark, P. Waldburger, J. G. Danzl, C. Chin, B. Engeser, A. D. Lange, K. Pilch, A. Jaakkola, H.-C. Nägerl, and R. Grimm,
Evidence for Efimov quantum states in an ultracold gas of caesium atoms,
Nature 440, 315 (2006)
- [Kre05] M. Krems, J. Zirbel, M. Thomason, and R. D. DuBois,
Channel electron multiplier and channelplate efficiencies for detecting positive ions,
Rev. Sci. Instr. 76, 093305 (2005)

- [Kre09] Katharina Kreidi,
Untersuchung der Zerfallsmechanismen und der Lokalisierung von Vakanz in Ne_2 ,
Dissertation, Institut für Kernphysik, Goethe Universität Frankfurt, 2009
- [Kun14] M. Kunitski,
Persönliche Kommunikation,
2014
- [Kun14a] M. Kunitski, S. Zeller, J. Voigtsberger, A. Kalinin, L. Schmidt, M. Schöffler, A. Czasch, W. Schöllkopf, T. Jahnke, D. Blume and R. Dörner,
Observation of the Efimov state of the helium trimer,
eingereicht bei Science
- [RaKr90] M. V. Rama Krishna, and K. B. Whaley,
Wave functions of helium clusters,
J. Chem. Phys. 93, 6738 (1990)
- [Kuc87] M. Y. Kuchiev,
Atomic antenna,
JETP 45,404 (1987)
- [Lam76] P. Lambropoulos,
Topics on Multiphoton Processes in Atoms,
Adv. At. Mol. Phys. 12, 87 (1976)
- [Len32] J. E. Lennard-Jones,
Processes of adsorption and diffusion on solid surfaces,
Trans. Faraday Soc. 28, 333 (1932)
- [Lew97] M. Lewerenz,
Structure and energetics of small helium clusters: Quantum simulations using a recent perturbational pair potential,
J. Chem. Phys. 106, 4596 (1997)
- [Lex3] U. Kilian, and C. Weber,
Lexikon der Physik Band 3 aus 6, Spektrum Akad. Verlag, ISBN 3-86025-293-3
- [Lim77] T. K. Lim, Sister K. Duffy, and W. C. Damert,
Efimov State in ^4He Trimer,
Phys. Rev. Lett. 38, 341 (1977)
- [Lit05] I. V. Litvinyuk, F. Légaré, P. W. Dooley, D. M. Villeneuve, P. B. Corkum, J. Zanghellini, A. Pegarkov, C. Fabian, and T. Brabec,
Shakeup Excitation during Optical Tunnel Ionization,
Phys. Rev. Lett. 94, 033003 (2005)

- [Liu89] B. Liu, A. D. McLean,
The interacting correlated fragments model for weak interactions, basis set superposition error, and the helium dimer potential,
J. Chem. Phys. 91, 2348 (1989)
- [Loh07] L. L. Lohr, and S. M. Blinder,
The Weakest Link: Bonding between Helium Atoms,
J. Chem. Edu. 84, 860 (2007)
- [Lun95] M. Lundqvist, D. Edvardsson, P. Baltzer, and B. Wannberg,
Novel Time of Flight Instrument for Doppler Free Kinetic Energy Release Spectroscopy,
Phys. Rev. Lett. 75, 1058 (1995)
- [Lun96] M. Lundqvist, D. Edvardsson, P. Baltzer, and B. Wannberg,
Doppler-free kinetic energy release spectrum of N_2^{2+} ,
J. Phys. B 29, 1489 (1996)
- [Lun96a] M. Lundqvist, D. Edvardsson, P. Baltzer, M. Larsson, and B. Wannberg,
Observation of predissociation and tunnelling processes in O_2^{2+} : a study using Doppler free kinetic energy release spectroscopy and ab initio CI calculations,
J. Phys. B 29, 499 (1996)
- [Luo93] F. Luo, G. Kim, G. C. McBane, C. F. Giese, and W. R. Gentry,
Influence of retardation on the vibrational wave function and binding energy of the helium dimer,
J. Chem. Phys. 98, 9687 (1993)
- [Luo93a] F. Luo, G. C. McBane, G. Kim, C. F. Giese,
The weakest bond: Experimental observation of helium dimer,
J. Chem. Phys. 98, 3564 (1993)
- [Luo94] F. Luo, G. C. McBane, G. Kim, C. F. Giese, and W. R. Gentry,
Response to “Comment on “The weakest bond: Experimental observation of helium dimer” ”
J. Chem. Phys. 100, 4023 (1994)
- [Luo95] F. Luo, C. F. Giese, and W. R. Gentry,
Direct measurement of the size of the helium dimer,
J. Chem. Phys. 104, 1151 (1995)
- [Lym01] T. Lyman,
False Spectra from the Rowland Concave Grating,
Phys. Rev. 12, 1 (1901)

- [MaKu] T. Mayer-Kuckuk,
Atomphysik,
4. Auflage, B. G. Teubner Verlag, ISBN 3-519-33042-3
- [Mas03] M. Masili and A. Starace,
Static and dynamic dipole polarizability of the helium atom using wave functions involving logarithmic terms,
Phys. Rev. A 68, 12508 (2003)
- [Mec11] Moritz Meckel,
Laser-Induced Electron Tunneling and Diffraction,
Dissertation, Institut für Kernphysik, Goethe Universität Frankfurt, 2011
- [Met10] Daniel Metz,
Nachweis von Wirbeln in einer Ein-Teilchen-Wellenfunktion,
Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, Goethe Universität Frankfurt, 2010
- [Mey94] E. S. Meyer, J. C. Mester, and I. F. Silvera,
Comment on “The weakest bond: Experimental observation of helium dimer”,
J. Chem. Phys. 100, 4021 (1994)
- [Mot01] A.K. Motovilov, W. Sandhas, S.A. Sofianos, and E.A. Kolganova,
Binding energies and scattering observables in the $^4\text{He}_3$ atomic system,
Eur. Phys. J. D 13, 33 (2001)
- [Nak79] S. Nakaichi, T. K. Lim, Y. Akaishi, and H. Tanaka,
Fewatom $3\text{He}/4\text{He}$ mixed molecules,
J. Chem. Phys. 71, 4430 (1979)
- [Nak83] S. Nakaichi-Maeda, and T. K. Lim,
Zero-energy scattering and bound states in the ^4He trimer and tetramer,
Phys. Rev. A 28, 692 (1983)
- [Neu10] Nadine Neumann,
Fragmentationsdynamik von CO_2 ,
Dissertation, Institut für Kernphysik, Goethe Universität Frankfurt, 2010
- [Nie98] E. Nielsen, D. V. Fedorov, and A. S. Jensen,
The structure of the atomic helium trimers: halos and Efimov states,
J. Phys. B 31, 4085 (1998)
- [Pao02] C. Di Paola, F. A. Gianturco, G. Delgado-Barrio, S. Miret-Artés, and P. Villarreal,
The ^4He Trimer: Structure and energetics of a very unusual Molecule,
Collect. Czech. Chem. Commun. 68, 6936 (2003)

- [Pat03] T. Pattard, T. Schneider, and J. M. Rost,
On the role of shake-off in single-photon double ionization,
J. Phys. B 32, 189 (2003)
- [Pit13] M. Pitzer, M. Kunitski, A. S. Johnson, T. Jahnke, H. Sann, F. Sturm, L. Ph. H. Schmidt, H. Schmidt-Böcking, R. Dörner, J. Stohner, J. Kiedrowski, M. Regelin, S. Marquardt, A. Schießer, R. Berger, and M. S. Schöffler,
Direct Determination of Absolute Molecular Stereochemistry in Gas Phase by Coulomb Explosion Imaging,
Science 341, 1096 (2013)
- [Pol09] S. E. Pollack, D. Dries, R. G. Hulet,
Universality in Three- and Four-Body Bound States of Ultracold Atoms,
Science 326, 1683 (2009)
- [Prz10] M. Przybytek, W. Cencek, J. Komasa, G. Łach, B. Jeziorski, and K. Szalewicz,
Relativistic and Quantum Electrodynamics Effects in the Helium Pair Potential,
Phys. Rev. Lett. 104, 183003 (2010)
- [Rob99] F. Robicheaux,
Simple asymptotic potential model for finding weakly bound negative ions,
Phys. Rev. A 60, 1706 (1999)
- [root] <http://root.cern.ch/drupal/>
Root 5,
Version 5.28/00b, Mar. 14th 2011
- [Rou00] V. Roudnev, and S. Yakovlev,
Investigation of $^4\text{He}_3$ trimer on the base of Faddeev equations in configuration space,
Chem. Phys. Lett. 328, 97 (2000)
- [SAES] CapaciTorr Pumps, MK5 Series, SAES Getters S.p.A., E.VS.17.0
www.saesgetters.com
- [Sch93] K. J. Schafer, Baorui Yang, L. F. DiMauro, and K. C. Kulander,
Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff,
Phys. Rev. Lett. 70, 1599 (1993)
- [Sch14] L. Ph. H. Schmidt,
Persönliche Kommunikation,
2014

- [Sch06] Makus S. Schöffler,
Grundzustandskorrelationen und dynamische Prozesse untersucht in Ion-Helium-Stößen,
Dissertation, Institut für Kernphysik, Goethe Universität Frankfurt, 2006
- [Sch94] W. Schöllkopf, J. P. Toennies,
Nondestructive Mass Selection of Small van der Waals Clusters,
Science 266, 1345 (1994)
- [Sch96] W. Schöllkopf, J. P. Toennies,
The nondestructive detection of the helium dimer and trimer,
J. Chem. Phys. 104, 1155 (1996)
- [Sla28] J. C. Slater,
The Normal State of Helium,
Phys. Rev. 32, 349 (1928)
- [Spi13] V. Spirko, S. P. A. Sauer, and K. Szalewicz,
Relation between properties of long-range diatomic bound states,
Phys. Rev. A 87, 012510 (2013)
- [Sta95] H. Stapelfeldt, E. Constant, and P. B. Corkum,
Wave Packet Structure and Dynamics Measured by Coulomb Explosion,
Phys. Rev. Lett. 74, 3780 (1995)
- [Sta05] André Staudte,
Subfemtosecond Electron Dynamics of H₂ in Strong Fields or The Quest for the Molecular Clock,
Dissertation, Institut für Kernphysik, Goethe Universität Frankfurt, 2005
- [Str85] D. Strickland and G. Mourou,
Compression of amplified chirped optical pulses,
Optics Communications 56, 219 (1985)
- [Sun02] H. Suno, B. D. Esry, C. H. Greene, J. P. Burke Jr.,
Three-body recombination of cold helium atoms,
Phys. Rev. A 65, 042725 (2002)
- [Tan95] K. T. Tang, J. P. Toennies, and C. L. Yiu,
Accurate Analytical He-He van der Waals Potential Based on Perturbation Theory,
Phys. Rev. Lett. 74, 1546 (1995)
- [TDC] http://www.cronologic.de/products/time_measurement/tdc/
Time-to-Digital Converter Card,
HPTDC8-PCI

- [Tit11] Jasmin Titze,
Die Untersuchung der Ionisationsdynamik von Heliumdimeren in Stößen mit α -Teilchen
Dissertation, Institut für Kernphysik, Goethe Universität Frankfurt, 2011
- [Tit11a] J. Titze, M. S. Schöffler, H.-K. Kim, F. Trinter, M. Waitz, J. Voigtsberger, N. Neumann, B. Ulrich, K. Kreidi, R. Wallauer, M. Odenweller, T. Havermeier, S. Schössler, M. Meckel, L. Foucar, T. Jahnke, A. Czasch, L. Ph. H. Schmidt, O. Jagutzki, R. E. Grisenti, H. Schmidt-Böcking, H. J. Lüdde, and R. Dörner,
Ionization Dynamics of Helium Dimers in Fast Collisions with He^{++} ,
Phys. Rev. Lett. 106, 033201 (2011)
- [Toe77] J. P. Toennies, and K. Winkelmann,
Theoretical studies of highly expanded free jets: Influence of quantum effects and a realistic intermolecular potential,
J. Chem. Phys. 66, 3965 (1977)
- [Tri11] Florian Trinter,
Doppelter Auger-Zerfall in Kohlenstoffmonoxid,
Masterarbeit, Institut für Kernphysik, Goethe Universität Frankfurt, 2011
- [Tri13] F. Trinter, J. B. Williams, M. Weller, M. Waitz, M. Pitzer, J. Voigtsberger, C. Schober, G. Kastirke, C. Müller, C. Goihl, P. Burzynski, F. Wiegandt, T. Bauer, R. Wallauer, H. Sann, A. Kalinin, L. Ph. H. Schmidt, M. Schöffler, N. Sisourat, and T. Jahnke,
Evolution of Interatomic Coulombic Decay in the Time Domain,
Phys. Rev. Lett. 111, 093401 (2013)
- [Ulr11] Birte Ulrich,
Argon- und Neon-Dimere und Trimere in intensiven Laserfeldern,
Dissertation, Institut für Kernphysik, Goethe Universität Frankfurt, 2011
- [Vag89] Z. Vager, R. Naaman, and E.P. Kanter,
Coulomb Explosion Imaging of Small Molecules,
Science 244, 426 (1989)
- [Voi09] Jörg Voigtsberger,
Bestimmung und Optimierung der Zeitauflösung von Detektoren,
Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, Goethe Universität Frankfurt, 2009
- [Voi14] J. Voigtsberger, S. Zeller, J. Becht, N. Neumann, F. Sturm, H.-K. Kim, M. Waitz, F. Trinter, M. Kunitski, A. Kalinin, J. Wu, W. Schöllkopf, D. Bressanini, A. Czasch, J. B. Williams, K. Ullmann-Pfleger, L. Ph. H. Schmidt, M. S. Schöffler, R. E. Grisenti, T. Jahnke, and R. Dörner,
Imaging the structure of the trimer systems $^4\text{He}_3$ and $^3\text{He}^4\text{He}_2$,
Angenommen bei Nature Communications (2014)

- [Vos90] R. J. Vos, J. H. van Lenthe, and F. B. van Duijneveldt,
Convergence to the configuration-set limit in multireference configuration-interaction calculations on the He dimer,
J. Chem. Phys. 93, 643 (1990)
- [Vos04] Stefan Voss,
Orientierungseffekte bei der Doppelionisation von kleinen Molekülen,
Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, Goethe Universität Frankfurt, 2004
- [Wal94] B. Walker, B. Sheely, L. F. DiMauro, P. Agostini, K. J. Schafer, and K. C. Kulander,
Precisioin Measurement of Strong Field Double Ionization of Helium,
Phys. Rev. Lett. 73, 1227 (1994)
- [Wu11] J. Wu, A. Vredenborg, B. Ulrich, L. Ph. H. Schmidt, M. Meckel, S. Voss, H. Sann, H. Kim, T. Jahnke, and R. Dörner,
Nonadiabatic alignment of van der Waals-force-bound argon dimers by femtosecond laser pulses,
Phys. Rev. A 83, 061403 (2011)

B. Danksagung

Ich hatte das Glück, meine Doktorandenzeit in einer großen Arbeitsgruppe zu verbringen. Dies hatte den Vorteil, dass zum einen für physikalische Problemstellungen immer kompetente Hilfe zu finden war, zum anderen auch auf zwischenmenschlicher Ebene immer ein Ansprechpartner vorhanden war. Hierdurch ergab sich ein angenehmes und konstruktives Arbeitsumfeld, in dem es mir große Freude bereitete zu arbeiten. Neben der kompletten Gruppe möchte ich mich besonders bei folgenden Personen bedanken:

Reinhard, mit deiner stets positiven Art gelingt es dir immer deine Begeisterung für physikalische Fragestellungen zu zeigen und damit auch deine Studenten anzustecken. Hierdurch herrscht in deiner Arbeitsgruppe ein sehr angenehmes, motiviertes und konstruktives Klima. Für sämtliche Probleme hattest du immer ein offenes Ohr und konntest mit den richtigen Ideen zur Lösung beitragen. Danke, dass du es mir ermöglicht hast in einem solchen Umfeld zu arbeiten. Das von dir vorgeschlagene Thema der kleinen Heliumcluster erweckte sofort mein Interesse und fasziniert mich auch heute noch.

Till, auch dir ein großes Dankeschön für eine hervorragende Betreuung, die auch über die Physik hinausging. Sowohl experimentell, als auch theoretisch habe ich viel von dir gelernt. Hierüber hinaus hatte ich das Glück, dass ich in dir einen Betreuer gefunden habe, mit dem ich mich nicht nur gut verstehe, sondern der während den letzten Jahren auch zu einem Freund geworden ist.

Ein weiterer Grund, der die Zeit in der Arbeitsgruppe zu einer durchweg angenehmen machte, waren die Menschen mit denen ich mir ein Büro teilen durfte: Hong Keun, Markus, Flo, Helena und zuletzt auch Derya. Nachdem das „Mädchenbüro“ aufgelöst wurde, war relativ schnell klar, dass Raum 01.322 der neue „soziale Brennpunkt“ der Gruppe ist. Ich denke, dass nicht

nur aufgrund der Kekse unser Büro häufig von allen besucht wird, sondern auch, weil bei uns immer eine angenehme Stimmung herrscht. Ich habe mich bei euch auf jeden Fall immer wohl gefühlt und danke euch für die gute Zeit.

Als nächstes möchte ich mich bei denen bedanken, ohne die ich das Experiment nicht hätte durchführen können. Hierzu zählen ohne Frage Arno, Jian und Maksim. Nur dank eurer Hilfe gelang es den Laser unter Kontrolle zu behalten und die Experimente zu einem erfolgreichen Ende zu führen. Maksim war hierüber hinaus auch eine große Hilfe in der Auswertung der Trimerdaten. Jian war ein extrem fleißiger Kollege in Frankfurt und ein großzügiger Gastgeber in Shanghai, Jian: Xièxie. Arno hat mir geholfen das Experiment erstmals aufzubauen und den Laser über einen sehr weiten Weg in die Kammer zu leiten.

Weitere experimentelle Hilfestellungen hatte ich in großem Maß von Nadine, Jasper, Stefan und auch Jörg. Nadine hat einen beträchtlichen Teil dazu beigetragen das Gitter in die Kammer zu implementieren und zum laufen zu bringen, danke dafür. Diese Hilfe kam auch Jasper zugute, der den Einbau und die Inbetriebnahme zu seiner Bachelorarbeit machte und hierfür auch ordentlich an der Kammer mitarbeitete. Stefan, du hast den Aufbau von mir „geerbt“ und in der Übergabephase mir bei meinen letzten Messungen geholfen, danke. Hierbei wurden wir fleißig unterstützt von deinem großen Bachelor, Jörg.

Eine große Wissensquelle, die jedem in der Gruppe immer weiterhilft ist Lothar. Egal mit welcher Frage man zu ihm kommt, man bekommt sie und zehn weitere nicht gestellte oder auch nur verwandte Fragen beantwortet. Dies braucht zwar meist ein wenig Zeit, man ist danach aber auf jeden Fall schlauer als vorher. Egal ob Physik, Elektronik oder auch nur simple mechanische Probleme, kommt man zu Lothar ins Büro, werden sie gelöst.

Im gleichen Büro ist auch Sven immer eine große Hilfe. Unabhängig hiervon hat mir Sven auch geholfen in Frankfurt Fuß zu fassen, indem er mich in seine WG im schönen Sachsenhausen aufgenommen hat und zu einem verlässlichen und guten Freund geworden ist. Auch die anderen Mitarbeiter von Roentdek möchte ich an dieser Stelle erwähnen. Ottmar ist eine Bank wenn es um MCPs oder andere benötigte Hardware geht, Achim hilft einen egal welches Problem man z.B. bei lmf2root hat, Steibel ist immer fürs „Grobe“ zu haben und Klaus war mir eine große Hilfe unter anderem beim ersten Erstellen einer ersten Version der LU Table. Dank gilt natürlich nicht nur euch, sondern auch eurem Chef. Horst, du bist nicht nur ein bemerkenswerter Chef bei Roentdek (auf die Weihnachtsfeier freue ich mich jedes Jahr), auch wenn

es um Probleme bei der Physik geht, regst du in Diskussionen immer dazu an, das Problem von einer komplett anderen Seite zu betrachten, was oft sehr hilfreich ist.

Robert, dir danke ich dafür, dass du mich in dein Labor aufgenommen hast und mir auch bei jeglichen Fragen zu deinem Dissertationsthema immer ehrliche und hilfreiche Antworten gegeben hast. Im Labor war ich sehr oft froh darüber, dass Anton zu deinem Team gehört. Anton, du hast mir so oft bei Problemen geholfen, dass die Messungen ohne dich sicher nicht so gut verlaufen wären. Auch der Rest der Arbeitsgruppe Grisenti hat das ein oder andere mal helfend angepackt. Danke: Matze, Rui, Alex und Claudia.

Auch von externer Seite bekam ich während der Experimente und Auswertungen große Hilfe. Hier möchte ich mich besonders bei Wieland Schöllkopf bedanken. Dieser beschaffte uns nicht nur das Beugungsgitter, sondern stellte auch das ^3He -Gas, samt Recycling, ohne das wir keine heteronuklearen Trimere hätten messen können. Beim Schreiben der Veröffentlichung leistete er auch einen großen Beitrag, danke dafür. Ein weiterer Mensch ohne den es nicht zu dieser Veröffentlichung gekommen wäre ist sicher Dario Bressanini. Er lieferte uns seine, aus meiner Sicht unendlich komplizierten, QMC Simulationen in einer Form, die einen Vergleich mit dem Experiment sehr einfach machte. Ohne den Beweis, dass Rechnung und Experiment so gut übereinstimmen, wäre es sicher nicht zur Veröffentlichung bei Nature Communications gekommen. Dario: Mille grazie.

Auch wenn er zeitweise offiziell nicht zur Gruppe in Frankfurt gehörte, war Markus Schöffler immer eine große Hilfe für Experiment und Auswertung. Ohne seine Coltrims XXL Tabelle hätte ich in vielen Situationen deutlich länger gebraucht. Von Markus möchte ich noch die Überleitung zu seinem ehemaligen Büro und den anderen „Vergangenen“ ziehen. Jasmin, Nadine, Kathi, Birte, Tilo, Robert... Ohne euch hätte ich nicht so eine schöne Zeit in der Arbeitsgruppe gehabt.

Für ein erfolgreiches Arbeiten benötigt man aber mehr als kompetente und freundliche Kollegen. Deswegen möchte ich mich an dieser Stelle auch bei den anderen Bereichen des IKF und der Uni bedanken. Ohne die Feinmechanik, die Schlosserei, die Verwaltung, die Elektronikabteilung, die Beschleuniger-mannschaft und die Heliumverflüssigung wäre es nicht möglich gewesen das Experiment zu erbauen und zum Laufen zu bringen.

An letzter Stelle möchte ich auch noch mein Umfeld außerhalb der Uni erwähnen. Gerade in stressigen Zeiten habt ihr mir immer geholfen ein wenig

Ablenkung zu kriegen um auf andere Gedanken zu kommen. Besonders meinen Eltern und Jule möchte ich ein riesiges Dankeschön sagen. Ihr habt mich immer unterstützt und motiviert.

DANKE!!!

Lebenslauf

Jörg Voigtsberger

Geboren am 07. Oktober 1984 in Frankfurt am Main

Schulbildung

1991 - 1995	Büchertal Grundschule (Maintal)
1995 - 2004	Gymnasium, Otto-Hahn-Schule (Hanau) Abitur, Gesamtnote: 1,9

Hochschulbildung

2004 - 2009	Studium Physik, Goethe Universität Frankfurt
08. Sept. 2006	Vordiplom in Physik, Note: gut
26. Okt. 2009	Diplom in Physik, Note: sehr gut
01. Jan. 2010	Beginn der Promotion

Hochschullehrer

Ex. Physik	Prof. Dr. J. Jacoby, Dr. J. D. Meyer, Prof. Dr. A. Schempp, Prof. Dr. M. Huth, Prof. Dr. H. Roskos, Prof. Dr. R. Dörner, Prof. Dr. U. Ratzinger, Prof. Dr. T. Stöhlker, Prof. Dr. H. Appelshäuser, Prof. Dr. M. Lang, Prof. Dr. H. Ströbele
Theo. Physik	Prof. Dr. J. A. Maruhn, Prof. Dr. P. Kopietz, Prof. Dr. W. Hofstetter, Prof. Dr. M.-R. Valenti, Prof. Dr. C. Gros

Mathematik	Prof. Dr. J. Baumeister, Prof. Dr. J. Weidmann, Dr. G. Marinescu
Chemie	Prof. Dr. R. Schmidt, Prof. Dr. B. O. Kolbesen
Nukl. Medizin	P.D. Dr. med. M. Zimny, Dr. F.-J. Bormuth, Prof. Dr. F. Grünwald, Dr. W. T. Kranert

Fortbildungen

11/2010	Ausbildung zum Laserschutzbeauftragten
---------	--

Forschungsaufenthalte

11/2007	Bessy II, Berlin
12/2008	Bessy II, Berlin
03/2009	LBNL, ALS, Berkeley, CA, USA
11/2009	TU Wien, Wien, Österreich
04/2010	Bessy II, Berlin
11/2010	Bessy II, Berlin
07/2011	GANIL, Caen, Frankreich
02/2012	Bessy II, Berlin
03/2012	LBNL, ALS, Berkeley, CA, USA
07/2012	DESY, Hamburg
10/2012	Bessy II, Berlin
01/2013	DESY, Hamburg
03/2013	Bessy II, Berlin
05/2013	Bessy II, Berlin
08/2013	ECNU, Shanghai, China
01/2014	DESY, Hamburg
07/2014	Bessy II, Berlin
10/2014	DESY, Hamburg

Konferenzteilnahmen

02/2009	EAS Tagung, Riezlern, Österreich
02/2010	EAS Tagung, Riezlern, Österreich
03/2010	Frühjahrstagung der DPG, Hannover
08/2010	463-te W. E. Heraeus Konferenz, Bad Honnef
08/2011	ICPEAC, Belfast, Irland
02/2012	EAS Tagung, Riezlern, Österreich
07/2013	ISACC Wuhan-Chongqing, China
08/2013	ICPEAC Lanzhou, China
02/2014	EAS Tagung, Riezlern, Österreich
03/2014	Frühjahrstagung der DPG, Berlin

Publikationen

2014

M. Kunitski, S. Zeller, J. Voigtsberger, A. Kalinin, L. Schmidt, M. Schöffler, A. Czasch, W. Schöllkopf, T. Jahnke, D. Blume and R. Dörner, **Observation of the Efimov state of the helium trimer**, eingereicht bei Science

J. Voigtsberger, S. Zeller, J. Becht, N. Neumann, F. Sturm, H.-K. Kim, M. Waitz, F. Trinter, M. Kunitski, A. Kalinin, J. Wu, W. Schöllkopf, D. Bressanini, A. Czasch, J. B. Williams, K. Ullmann-Pflegler, L. Ph. H. Schmidt, M. S. Schöffler, R. E. Grisenti, T. Jahnke, and R. Dörner, **Imaging the structure of the trimer systems $^4\text{He}_3$ and $^3\text{He}^4\text{He}_2$** , Angenommen bei Nature Communications (2014)

P. Burzynski, F. Trinter, J. B. Williams, M. Weller, M. Waitz, M. Pitzer, J. Voigtsberger, C. Schober, G. Kastirke, C. Müller, C. Goihl, F. Wiegandt, R. Wallauer, A. Kalinin, L. Ph. H. Schmidt, M. Schöffler, G. Schiwietz, N. Sisourat, T. Jahnke, and R. Dörner, **Interatomic-Coulombic-decay-induced recapture of photoelectrons in helium dimers**, Physical Review A, Vol. 90, 022515 (2014)

B. Gaire, S. Y. Lee, D. J. Haxton, P. M. Pelz, I. Bocharova, F. P. Sturm, N. Gehrken, M. Honig, M. Pitzer, D. Metz, H.-K. Kim, M. Schöffler, R. Dörner, H. Gassert, S. Zeller, J. Voigtsberger, W. Cao, M. Zohrabi, J. Williams, A. Gatton, D. Reedy, C. Nook, Thomas Müller, A. L. Landers, C. L. Cocke, I. Ben-Itzhak, T. Jahnke, A. Belkacem, and Th. Weber, **Photo-double-ionization of ethylene and acetylene near threshold**, Physical Review A, Vol. 89, 013403 (2014)

H.-K. Kim, H. Gassert, M. S. Schöffler, J. N. Titze, M. Waitz, J. Voigtsberger, F. Trinter, J. Becht, A. Kalinin, N. Neumann, C. Zhou, L. Ph. H. Schmidt, O. Jagutzki, A. Czasch, H. Merabet, H. Schmidt-Böcking, T. Jahnke, A. Cassimi, and R. Dörner, **Orientation dependence in multiple ionization of He_2 and Ne_2 induced by fast, highly charged ions: Testing of the impact parameter dependent ionization probability in 11.37 MeV/u S^{14+} collisions with He and Ne**, Physical Review A, Vol. 89, (2014)

M. Odenweller, J. Lower, K. Pahl, M. Schütt, J. Wu, K. Cole, A. Vredenburg, L. Ph. Schmidt, N. Neumann, J. Titze, T. Jahnke, M. Meckel, M. Kunitski, T. Havermeier, S. Voss, M. Schöffler, H. Sann, J. Voigtsberger, H. Schmidt-Böcking, and R. Dörner, **Electron emission from H_2^+ in strong laser fields**, Physical Review A, Vol. 89, 013424 (2014)

2013

H.-K. Kim, H. Gassert, M. S. Schöffler, J. N. Titze, M. Waitz, J. Voigtsberger, F. Trinter, J. Becht, A. Kalinin, N. Neumann, C. Zhou, L. Ph. H. Schmidt, O. Jagutzki, A. Czasch, H. Merabet, H. Schmidt-Böcking, T. Jahnke, A. Cassimi, and R. Dörner, **Ion-impact-induced interatomic Coulombic decay in neon and argon dimers**, Physical Review A, Vol. 88, 042707 (2013)

F. Trinter, J. B. Williams, M. Weller, M. Waitz, M. Pitzer, J. Voigtsberger, C. Schober, G. Kastirke, C. Müller, C. Goihl, P. Burzynski, F. Wiegandt, T. Bauer, R. Wallauer, H. Sann, A. Kalinin, L. Ph. H. Schmidt, M. Schöffler, N. Sisourat, and T. Jahnke, **Evolution of Interatomic Coulombic Decay in the Time Domain**, Physical Review Letters 111, 093401 (2013)

F. Trinter, J. B. Williams, M. Weller, M. Waitz, M. Pitzer, J. Voigtsberger, C. Schober, G. Kastirke, C. Müller, C. Goihl, P. Burzynski, F. Wiegandt, R. Wallauer, A. Kalinin, L. Ph. H. Schmidt, M. S. Schöffler, Y.-C. Chiang, K. Gokhberg, T. Jahnke, and R. Dörner, **Vibrationally Resolved Decay Width of Interatomic Coulombic Decay in HeNe**, Physical Review Letters 111, 233004 (2013)

2011

H.-K. Kim, J. Titze, M. Schöffler, F. Trinter, M. Waitz, J. Voigtsberger, H. Sann, M. Meckel, C. Stuck, U. Lenz, M. Odenweller, N. Neumann, S. Schössler, K. Ullmann-Pfleger, B. Ulrich, R. Costa Fraga, N. Petridis, D. Metz, A. Jung, R. Grisenti, A. Czasch, O. Jagutzki, L. Schmidt, T. Jahnke, H. Schmidt-Böcking and R. Dörner, **Enhanced production of low energy electrons by alpha particle impact**, Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, Vol. 108, 11821 (2011)

J. Titze, M. S. Schöffler, H.-K. Kim, F. Trinter, M. Waitz, J. Voigtsberger, N. Neumann, B. Ulrich, K. Kreidi, R. Wallauer, M. Odenweller, T. Havermeier, S. Schössler, M. Meckel, L. Foucar, T. Jahnke, A. Czasch, L. Ph. H. Schmidt, O. Jagutzki, R. E. Grisenti, H. Schmidt-Böcking, H. J. Lüdde and R. Dörner, **Ionization Dynamics of Helium Dimers in Fast Collisions with He^{++}** , Physical Review Letters, Vol. 106, 033201 (2011)

2010

T. Havermeier, K. Kreidi, R. Wallauer, S. Voss, M. Schöffler, S. Schössler, L. Foucar, N. Neumann, J. Titze, H. Sann, M. Kühnel, J. Voigtsberger, N. Sisourat, W. Schöllkopf, H. Schmidt-Böcking, R. E. Grisenti, R. Dörner and T. Jahnke, **Angular distributions of photoelectrons and interatomic-Coulombic-decay electrons from helium dimers: Strong dependence on the internuclear distance**, Phys. Rev. A, 82, 063405 (2010)

T. Havermeier, T. Jahnke, K. Kreidi, R. Wallauer, S. Voss, M. Schöffler, S. Schössler, L. Foucar, N. Neumann, J. Titze, H. Sann, M. Kühnel, J. Voigtsberger, J. H. Morilla, W. Schöllkopf, H. Schmidt-Böcking, R. E. Grisenti, and R. Dörner, **Interatomic Coulombic Decay following Photoionization of the Helium Dimer: Observation of Vibrational Structure**, Physical Review Letters, Vol. 104, 133401 (2010)

T. Havermeier, T. Jahnke, K. Kreidi, R. Wallauer, S. Voss, M. Schöffler, S. Schössler, L. Foucar, N. Neumann, J. Titze, H. Sann, M. Kühnel, J. Voigtsberger, A. Malakzadeh, N. Sisourat, W. Schöllkopf, H. Schmidt-Böcking, R. E. Grisenti, and R. Dörner, **Single Photon Double Ionization of the Helium Dimer**, Physical Review Letters, Vol. 104, 153401 (2010)

2009

J. Voigtsberger, **Bestimmung und Optimierung der Zeitauflösung von Detektoren**, Diplomarbeit, Goethe Universität Frankfurt

Frankfurt am Main, Dezember 2014