
Das Heliumdimer

Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften

vorgelegt beim Fachbereich Physik
der Goethe Universität
in Frankfurt am Main

von

Stefan Zeller

aus Frankfurt am Main

Frankfurt am Main, 2017

(D 30)

Vom Fachbereich Physik der
Goethe-Universität Frankfurt am Main als Dissertation angenommen.

Dekan: Prof. Dr. Owe Philipsen

1. Gutachter: Prof. Dr. Reinhard Dörner
2. Gutachter: PD Dr. Till Jahnke

Datum der Disputation:

Kurzfassung

Aus der mathematischen Beschreibung quantenmechanischer Systeme folgt die Möglichkeit, dass Teilchen einen gebundenen Zustand bilden, wenn sie sich an Orten befinden an denen sie nach klassischer Beschreibung ungebunden wären. Das Heliumdimer ist ein System, das aufgrund seiner außerordentlichen Eigenschaften größtenteils in diesem klassisch verbotenen Bereich existiert. Daher liefert eine präzise Vermessung dieses Systems sensitive Vergleichswerte für quantenmechanische Rechnungen. In dieser Arbeit wird eine Messung vorgestellt, mit der die gesamte Vibrationswellenfunktion des Heliumdimers sichtbar gemacht werden konnte. Aus der Form der Wellenfunktion konnte die Bindungsenergie des Heliumdimers bestimmt werden. Der ermittelte Wert von $151,9 \pm 13,3$ eV liegt in Übereinstimmung mit aktuellen theoretischen Berechnungen.

Abstract

The mathematical description of quantummechanical systems enables particles to form a bound state while being located at places where they would be unbound according to classical physics. The helium dimer is a system known to exist mainly in that classically forbidden region, due to its extraordinary properties. A precise measurement of this system therefore provides sensitive values for comparison with quantum mechanical calculations. This work presents a measurement that allowed to image the full vibrational wave function of the helium dimer. The binding energy of the dimer could be extracted from the shape of the wave function. The extracted value of $151,9 \pm 13,3$ eV is in agreement with most recent calculations.

Inhaltsverzeichnis

1. Motivation	9
2. Stand der Forschung - Theoretische Beschreibung	13
2.1. Van-der-Waals-Bindung	14
2.2. Das Heliumdimer	16
2.3. Größenvergleich	20
3. Stand der Forschung - Experimentelle Untersuchungen	23
3.1. Clustererzeugung	26
3.2. Beugung	30
4. Impulsspektroskopie	35
4.1. Vorangegangene Experimente	36
4.1.1. Am Synchrotron	36
4.1.2. Mit leichten Ionen	37
4.1.3. Mit schweren Ionen	38
4.1.4. Mit relativistischen Ionen	39
4.2. Impulsspektroskopie mit einem massenselektierten Clusterstrahl	40
4.2.1. Vorangegangene Messungen mit Ti:Sa-Laserpulsen	41
4.3. Physikalische und technische Voraussetzungen dieser Arbeit	42
4.3.1. Photoionisation	42
4.3.2. Ionisation im starken Laserfeld	46
4.3.3. Funktionsweise eines Ti:Sa-Lasers	51
4.3.4. Funktionsweise eines Freie Elektronen Lasers	61
5. Experimenteller Aufbau	67
5.1. Das Jetsystem	67
5.2. Das Beugungsgitter	71
5.3. Anforderungen an das Vakuum	84
5.3.1. Ausheizen der Reaktionskammer	84
5.3.2. Differenzielle Pumpstufe	87

5.4. Die Reaktionskammer	89
5.4.1. Der Detektor	89
5.4.2. Das Spektrometer	92
5.5. Der Beamdump	95
6. Vorbereitungen zur Datenaufnahme und Kalibrierung	99
6.1. Maximale Auflösung	99
6.2. Signalverarbeitung und Datenaufnahme	103
6.2.1. ADC-Datenaufnahme	104
6.3. Fokusjustage	107
6.4. Kalibrierung eines Ionendetektors	109
7. Ergebnisse	113
7.1. Messungen am Ti:Sa-Laser	113
7.1.1. Kalibrierung der Messungen am Ti:Sa-Laser	113
7.1.2. He ₂ Messung am Ti:Sa-Laser	119
7.1.3. Korrekturen aufgrund des Startimpulses der Ionen	126
7.1.4. Fehlerbetrachtung	129
7.2. Messung am FEL	132
7.2.1. Kalibrierung der Messung am FEL	134
7.2.2. He ₂ -Messung am FEL	138
7.2.3. Rückstoß der Elektronen	142
7.2.4. Fehlerbetrachtung für die FEL-Messung	144
8. Diskussion	147
8.1. Einordnung der Messergebnisse	147
8.2. Möglichkeiten zur Fehlerreduktion	150
9. Ergebnisse zu größeren Clustern	153
9.1. Interatomarer Coulomb-Zerfall	153
9.2. Auswahl der Clustergröße	156
9.3. Experimentelle Ergebnisse zu ICD	158
9.4. He-He Abstandsverteilung	160
10. Zusammenfassung und Ausblick	167
10.1. Erzielte Fortschritte	167
10.2. Offene Fragen	169

10.3. Neue Möglichkeiten	172
Literaturverzeichnis	173
Abbildungsverzeichnis	188
Tabellenverzeichnis	196
A. Anhang	199
A.1. Atomare Einheiten	199
A.2. Newton-Verfahren	200
A.3. Algorithmus zur ADC-Pulsanalyse	201
A.4. Anleitung zum Ausheizen der Vakuumkammer	210
A.5. Weitere Histogramme und Spektren	214
Danksagung	214

1. Motivation

Im Sommer 1868 reisten mehrere Teams von Astronomen nach Indien, um eine Sonnenfinsternis zu beobachten. In ihrem Gepäck befand sich ein neuartiges Instrument, mit dem sie der Sonne ihre Geheimnisse entlocken wollten: Das Spektroskop. Sein zentrales Bauteil war ein Prisma, mit dessen Hilfe das Licht der Sonnenhülle¹, die während einer Sonnenfinsternis deutlich sichtbar wird, in ein Spektrum von Linien und Farben zerlegt werden konnte. Aus diesem Spektrum konnten die Astronomen bestimmen, welche chemischen Elemente an der Quelle des Lichts vorlagen. Die hellsten Linien konnten schnell mit Wasserstoff in Verbindung gebracht werden, die Sonne schien also zu einem Großteil aus Wasserstoff zu bestehen. Mit diesem Ergebnis in der Tasche packten die Astronomen ihre Ausrüstung zusammen und reisten ab.

Doch einer der Astronomen, Jules Janssen, kam auf die Idee, dass die Spektrallinien der Sonnenhülle auch ohne Sonnenfinsternis zu beobachten sein sollten. Er verbesserte sein Spektroskop, das ihm fortan erlaubte schmale Bereiche des Spektrums zu betrachten. So konnten Teile des Spektrums ausgeblendet werden, die sehr hell waren und bislang alle schwächeren Linien überstrahlt hatten, solange der Mond nicht den Großteil des Sonnenlichts blockierte. In den darauffolgenden Tagen fand er eine Spektrallinie bei einer Wellenlänge von 587,5 nm, die keinem bisher bekannten Element zugeordnet werden konnte. Er schloss daraus, dass sich auf der Sonne ein bisher unbekanntes Element befindet, und schrieb einen Brief an die Akademie der Wissenschaften in Paris, von seiner Entdeckung schildernd.

Zufällig traf sein Schreiben dort am gleichen Tag ein, wie eine Abhandlung von Norman Lockyer aus England. Dieser war ebenfalls zu dem Schluss gelangt, die Spektrallinien müssten auch bei vollem Sonnenlicht isolierbar sein, und auch er berichtete über den Fund eines neuen Elementes. Dieses Element nannte er *Helium*, nach dem griechischen Wort für Sonne – *helios*.^[1]

Helium entsteht durch Fusionsprozesse, die in Sternen wie unserer Sonne ablaufen, und auch direkt nach dem Urknall abliefen. Dies macht Helium, nach Wasserstoff, zum

¹bestehend aus Korona und Protuberanzen

zweithäufigsten Element im Universum.

Helium ist das zweite Element im Periodensystem der Elemente. Sein Atomkern besteht aus zwei Protonen und zwei Neutronen, dieser wird umgeben von zwei Elektronen. Damit ist Helium sowohl das leichteste Edelgas als auch das einfachste Mehrelektronensystem. Unter Normalbedingungen liegt Helium als einatomiges Gas vor, und kommt damit der oft verwendeten theoretischen Beschreibung des *Idealen Gases* aus punktförmigen, nicht miteinander wechselwirkenden Teilchen am nächsten.

Trotz – oder gerade wegen – dieser Einfachheit zeigt Helium mehrere ungewöhnliche Eigenschaften: Es ist die einzige Substanz, die am absoluten Temperaturnullpunkt, bei Normaldruck, flüssig bleibt. Nur bei sehr hohen Drücken wird sie fest, während sie bei sehr tiefen Temperaturen superfluid wird.

Obwohl es sich um ein Edelgas handelt, können zwei Heliumatome unter exotischen Bedingungen eine Bindung eingehen. Allerdings ist diese Bindung so schwach, dass das entstehende Molekül nur den Grundzustand aber keinen einzigen Rotations- oder Vibrationszustand besitzt. Die außerordentlichen Eigenschaften von Helium können erklärt werden, wenn die Wechselwirkung zwischen zwei Heliumatomen verstanden wird.

Dies stellt sich jedoch als komplizierter heraus, als die Bindungspartner, zwei simple Heliumatome, vermuten lassen. Noch lange nach der erstmaligen Beschreibung der Wechselwirkung von Slater[2] im Jahre 1928 konnte nicht geklärt werden, ob überhaupt ein gebundener Zustand existiert. Erst durch die vollständig quantenmechanische Beschreibung des Systems konnten Zweifel an der Existenz des Heliumdimers ausgeräumt werden. Die experimentelle Beobachtung des Dimers gelang erst in den 90er Jahren. Das lag an der Herausforderung ein so schwach gebundenes System zu erzeugen und eindeutig nachzuweisen, und führt auch bei heutigen Experimenten dazu, dass ein großer Aufwand betrieben werden muss. Neueste theoretische Berechnungen des Helium-Helium Wechselwirkungspotentials berücksichtigen relativistische und quantenelektrodynamische Korrekturen. Durch verbesserte Näherungsverfahren und Zugang zu mehr Rechenleistung konnten Przybytek et al. die Stärke der Bindung mit nur wenigen Prozent Unsicherheit angeben.

Für viele Gebiete der Physik ist es entscheidend das Wechselwirkungspotential zweier Heliumatome mit größtmöglicher Genauigkeit zu kennen. Dazu gehören Tieftemperatur-Festkörperphysik [3], Spektroskopie [4] und allen voran die Metrologie (die Wissenschaft des Messens) [5, 6].

Die Metrologen des Internationalen Komitees für Maß und Gewicht (CIMP²) planen

²Abk. für, französisch, „Comité International des Poids et Mesures“

für 2018 eine Neudefinition der sieben Basiseinheiten des SI-Systems. Die Basiseinheiten sollen hierbei von physikalischen Konstanten mit festgelegten Zahlenwerten abhängig gemacht werden³. Eine dieser Konstanten ist die Boltzmann-Konstante k_B . Sie soll zur Neudefinition des Kelvins in die Basiseinheit für die Temperatur eingehen.

Gemessen wird die Boltzmann-Konstante, indem das Verhältnis der Viskosität von Argon und Helium präzise bestimmt wird[8, 9]. Dabei wird ausgenutzt, dass die Viskosität von Helium aus theoretischen *ab initio* Berechnungen so genau bekannt ist, dass sie sich zur Kalibrierung der Messapparatur eignet.

Auch weitere metrologische Anwendungen, wie die Entwicklung eines neuen heliumbasierten Druckstandards, hängen kritisch von der Genauigkeit der berechneten Eigenschaften von Helium ab[10, 11]. Die verwendeten *ab initio* Rechnungen stützen sich dabei auf die genaue Kenntnis des He-He-Potentials, das auch die Basis zur Vorhersage der Eigenschaften des Heliumdimers bildet. Die vorhergesagte Bindungsenergie liegt jedoch $1,7 \sigma$ über dem bisherigen experimentellen Wert[12]. Es wird also eine neue und möglichst präzisere Messung der Bindungsenergie des Heliumdimers benötigt.

In dieser Arbeit wird die Vermessung der Vibrationswellenfunktion und eine Präzisionsmessung der Bindungsenergie des Heliumdimers vorgestellt. Dazu wurde ein reiner Heliumdimergasstrahl mit Hilfe von Materiewellenbeugung präpariert. Die Dimere wurden durch Laserstrahlung ionisiert und konnten anschließend vermessen werden.

Darüber hinaus konnten die Eigenschaften größerer Cluster untersucht, und der interatomare Coulomb-Zerfall für Heliumclustern unterschiedlicher Größe verglichen werden.

³„Es wird die selben sieben Basiseinheiten geben (Sekunde, Meter, Kilogramm, Ampere, Kelvin, Mol und Candela). Von diesen wird das Kilogramm, das Ampere, das Kelvin und das Mol neudefiniert indem die exakten Zahlenwerte für das Plancksche Wirkungsquantum, die Elementarladung, die Boltzmann-Konstante und die Avogadrokonstante gewählt werden. Die Sekunde, der Meter und das Candela sind bereits durch physikalische Konstanten definiert, und es ist nur nötig ihre derzeitige Definition umzuschreiben. Die neuen Definitionen werden das SI-System verbessern ohne die bisherigen Größen der Einheiten zu verändern, womit die Kontinuität bisherigen Messungen sichergestellt ist.“ (Übersetzt aus [7])

2. Stand der Forschung - Theoretische Beschreibung

Helium ist das einfachste Edelgas. Sein Atomkern besteht aus zwei Protonen und zwei Neutronen. Seine beiden Elektronen bilden ein abgeschlossenes Atomorbital, das 1s-Orbital. Diese Elektronenkonfiguration ist energetisch sehr günstig, was zu einem Ionisationspotential I_P von 24,59 eV führt, dem höchsten Wert aller neutralen Elemente im Periodensystem. Gleichzeitig ist Helium das kleinste aller Atome. Aufgrund dieser Eigenschaften ist Helium chemisch inert.

Dennoch besteht eine geringe attraktive Wechselwirkung zwischen zwei Heliumatomen. Der nachfolgende Abschnitt stellt die theoretischen Grundlagen zur Beschreibung dieser Wechselwirkung dar. Anschließend wird auf die Entwicklung der theoretischen Modelle zur Beschreibung des Heliumdimers eingegangen.

Molekulare Systeme werden meist durch kovalente Wechselwirkung gebunden. Sie entsteht, indem sich zwei Bindungspartner ihre Valenzelektronen teilen, wodurch die Gesamtenergie des Systems abgesenkt wird. Edelgase haben voll besetzte Valenzelektronenschalen. Bei dieser Elektronenkonfiguration sind keine kovalenten Bindungen möglich. Grund dafür ist die Art und Weise, nach der sich die atomaren Orbitale zu Molekülorbitalen überlagern. Hierbei können bindende und antibindende Molekülorbitale besetzt werden. Während sich die beiden Elektronen eines Wasserstoffmoleküls im bindenden Molekülorbital befinden, besetzen die vier Elektronen eines Heliummoleküls sowohl das bindende als auch das antibindende Orbital (siehe Abb. 2.1). Dabei entsteht kein effektiver Energiegewinn und damit keine kovalente Bindung. Auch für Verbindungen aller weiteren Edelgase hebt sich die Anzahl der bindenden und antibindenden Molekülorbitale gerade auf.

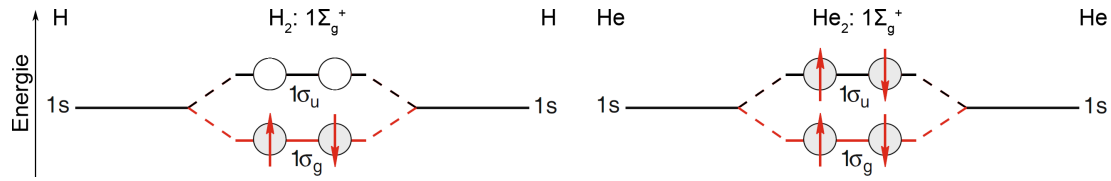


Abb. 2.1.: Schematische Darstellung der Linearkombination zweier Atomorbitale zu einem Molekülorbital für den Grundzustand von H_2 (links) und He_2 (rechts). Während die beiden Elektronen von H_2 das bindende $1\sigma_g$ -Orbital besetzen, wird im He_2 auch das antibindende $1\sigma_g$ -Orbital gefüllt (verändert nach [13]).

2.1. Van-der-Waals-Bindung

Es gibt jedoch eine weitere Wechselwirkung zwischen zwei Atomen, die eine attraktive Kraft und damit eine Bindung vermitteln kann. Sie ist verhältnismäßig schwach und tritt in der Regel gegenüber anderen Bindungsarten in den Hintergrund. Diese Van-der-Waals-Wechselwirkung basiert auf der Wechselwirkung zwischen den Dipolmomenten zweier benachbarter Atome oder Moleküle. Ein prominentes Beispiel ist die Wasserstoffbrückenbindung zwischen zwei H_2O -Molekülen. H_2O besitzt ein permanentes Dipolmoment und kann bei entsprechender Ausrichtung eine attraktive Kraft auf ein benachbartes Wassermolekül ausüben.

Doch auch ohne permanentes Dipolmoment kann ein attraktives Potential zwischen zwei benachbarten Atomen oder Molekülen entstehen. Der Grund dafür ist, dass bei einer Momentaufnahme eines Atoms ein temporäres Dipolmoment durch Fluktuation der Elektronenhülle gegen den Atomkern entsteht. Für eine kugelsymmetrische $1s$ Elektronenverteilung ist dieses momentane elektrische Dipolmoment $\vec{p}(t) = e \cdot \vec{r}(t)$, während der im zeitlichen Mittel betrachtete Erwartungswert $\langle \vec{p} \rangle$ null ist. Hierbei ist $\vec{r}(t)$ der Vektor von Kern zu Elektron. Das momentane Dipolmoment erzeugt ein momentanes elektrisches Feld, das ein Dipolmoment im Nachbaratom induziert. Dieser zweite Dipol erzeugt ebenfalls ein Feld, das wiederum das erste Atom beeinflusst. Die wechselseitige Beeinflussung stört die anfängliche Ladungsverteilung dauerhaft und führt dazu, dass das Dipolmoment auch im zeitlichen Mittel nicht mehr null ist. Für eine quantenmechanische Behandlung der Wechselwirkung zwischen zwei induzierten Dipolen ist eine Störungsrechnung zweiter Ordnung notwendig. [13]

Das Dipolmoment $\vec{p}_A$ eines Atoms ist abhängig von dessen Polarisierbarkeit α und dem äußeren elektrischen Feld $\vec{E}$, das durch das momentane Dipolmoment des Nachbaratoms erzeugt wird.

$$\vec{p}_A = \alpha_A \vec{E} \quad (2.1)$$

Das Feld, das dieses Dipolmoment p_A wiederum am Ort seines Nachbarn B erzeugt, wird beschrieben durch

$$\vec{E}_A = \frac{2p_A}{4\pi\epsilon_0 R^3} \vec{R}_0, \quad (2.2)$$

wobei $\vec{R}_0$ der Einheitsvektor in Richtung der Verbindungsline zwischen Atom A und B ist. Die potentielle Wechselwirkungsenergie zwischen zwei gegenseitig induzierten Dipolen ist $E_{pot}(R) = -\vec{p}_B^{induziert} \cdot \vec{E}_A$. Mit 2.1 und 2.2 folgt für das Van-der-Waals-Wechselwirkungspotential:

$$E_{pot} = -\alpha_A \cdot \alpha_B \cdot |E|^2 = -C_1 \frac{\alpha_A \cdot \alpha_B}{R^6} = -\frac{C_2}{R^6} \quad (2.3)$$

Das Potential ist also attraktiv und langreichweitig, da es mit $1/R^6$ abfällt. Die Multipolbetrachtung der Van-der-Waals-Bindung gilt allerdings nur im Bereich großer Abstände. Für kleine Abstände muss zusätzlich die Überlagerung der abgeschlossenen Elektronenhüllen und die Abstoßung der positiv geladenen Kerne berücksichtigt werden. Für die Beschreibung des gesamten Potentials eignet sich ein empirischer Ansatz durch Verwenden des Lennard-Jones Potentials:

$$E_{pot} = \epsilon \left(\frac{r_m}{R} \right)^{12} - \left(\frac{r_m}{R} \right)^6 \quad (2.4)$$

Die Koeffizienten sind von den jeweiligen Bindungspartnern abhängig, wobei r_m der Abstand ist, bei dem das Potential sein Minimum $-\epsilon$ annimmt. Sie werden so angepasst, dass das Potential dem experimentell gefundenen Verlauf möglichst gut entspricht, oder sie werden quantentheoretisch berechnet.

Wie eingangs erwähnt, sind typische Van-der-Waals-Bindungen um mehrere Größenordnungen schwächer als kovalente Bindungen. Die geringen Potentialtiefen von wenigen meV werden leicht durch thermische Anregungen aus der Umgebung überwunden (Raumtemperatur entspricht etwa 40 meV). Diese Bindungen haben also nur in kalter Umgebung bestand. Abbildung 2.2 zeigt den Verlauf der Lennard-Jones Potentiale für Edelgas-Dimere. Je leichter das Edelgas ist, desto flacher wird das Potential. Für das Heliumdimer ist das Potential so flach, dass die Näherung durch ein Lennard-Jones Potential nicht mehr genau genug ist, um dessen Eigenschaften korrekt zu beschreiben. Hierzu sind aufwendigere quantenmechanische Rechnungen notwendig.

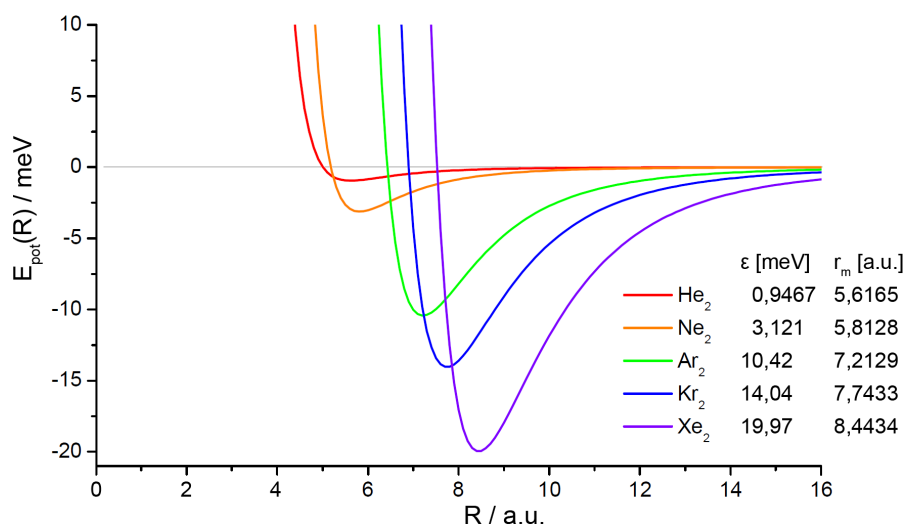


Abb. 2.2.: Lennard-Jones Potentiale für homonukleare Edelgas-Dimere. Die Legende führt zusätzlich die Potentialtiefe ϵ und die Position des Minimums r_m aus [14] auf.

2.2. Das Heliumdimer

Wie flach das Potential zwischen zwei Heliumatomen wirklich ist, wird am besten durch den Vergleich von Potentialtiefe und Bindungsenergie verdeutlicht: Jedes gebundene System besitzt einen Grundzustand. Dessen Bindungsenergie entspricht nicht exakt der Potentialtiefe, sondern ist minimal geringer. Grund dafür ist die Energie der Nullpunktschwingung, die jeder Grundzustand ausführt. Sie ist Folge der Heisenbergschen Unschärferelation. Eine endliche Ortsunschärfe im Potential eines gebundenen Zustandes verlangt wegen $\delta x \delta p \geq \hbar$ nach einer gewissen Impulsunschärfe, und damit einer kinetischen Energie größer null. Diese Energie ist für gewöhnlich sehr klein im Vergleich zur gesamten Potentialtiefe¹. Nicht so für das Heliumdimer. Hier ist das Potential so flach, dass Jahrzehnte lang unklar war, ob es durch die Nullpunktsenergie übertroffen wird, oder nicht. Dies ist gleichbedeutend mit der Frage: Existiert das Heliumdimer überhaupt?

Im Jahr 1928 wurde erstmals eine theoretische Berechnung veröffentlicht, die eine Potentialkurve für die Interaktion zweier Heliumatome bestimmte[2]. John Slater schätzte in seinen damaligen Berechnungen die attraktive Kraft auf Basis von Ergebnissen zu Wasserstoff von Wang[15] ab. Zur Bestimmung der genauen Parameter der $1/R^6$ -Abhängigkeit wurde die abweichende Größe und Polarisierbarkeit von Helium berücksichtigt, die aus Experimenten bekannt war. Die repulsive Kraft wurde ähnlich dem

¹Im Wasserstoffmolekül beispielsweise ist die Potentialtiefe 4,75 eV, während die Bindungsenergie des Grundzustandes $1\Sigma_g^+$ 4,48 eV beträgt, also 94% der Potentialtiefe[13].

LCAO-Verfahren aus einer Linearkombination der atomaren Wellenfunktionen berechnet und resultiert in einer exponentiell abfallenden Funktion. Die Summe beider Kräfte ergab ein Potentialminimum von $755 \mu\text{eV}$ bei einem Abstand von $5,6 \text{ a.u.}$. Den repulsiven Term gab Slater jedoch mit einer Unsicherheit von Faktor 2 in beide Richtungen an. In den nachfolgenden Jahrzehnten erschien eine Vielzahl von theoretischen Berechnungen, die Potentialtiefen zwischen null und $1020 \mu\text{eV}$ präsentierten[16]. Die Frage nach einem gebundenen He_2 -Grundzustand hängt nun sehr sensitiv von der genauen Form der Potentialkurve ab. In den 70er Jahren unterstützte ein Großteil der Berechnungen die Existenz eines gebundenen Zustandes, mit vorhergesagten Bindungsenergien zwischen 19 und 71 neV . Zugang zu aufwändigeren Rechenmethoden und Näherungsverfahren führte Anfang der 80er Jahre schließlich zum Konsens, das Heliumdimer habe genau einen gebundenen Grundzustand, während sämtliche Rotations- und Vibrationsanregungen zu einem Aufbruch der Bindung führen.

Nun war zwar die Existenz des Heliumdimers unter theoretischer Betrachtung geklärt, doch dessen Bindungsenergie genau zu berechnen blieb eine Herausforderung. Nachfolgend werden die entscheidenden Schritte auf dem Weg zu einer akkuraten Berechnung der Bindungsenergie geschildert.

Anfang der 90er Jahre existierten *ab initio* Rechnungen, die das Dimer-Potential ohne Zuhilfenahme von experimentellen Parametern bestimmten[17, 18]. Sie waren jedoch inkonsistent zu experimentellen Ergebnissen zur Viskosität oder den Virialkoeffizienten in realen Gasen. So wurde ein neues semiempirisches Potential so gut wie möglich an eine der bestehenden *ab initio* Rechnungen angepasst, ohne eine hinreichende Übereinstimmung mit den Messungen zu verlieren[19]. Der Kompromiss, den dieses LM2M2²-Potential bildet, sagt eine maximale Potentialtiefe von $0,941 \text{ meV}$ ($10,92 \text{ K}$) bei $5,6128 \text{ a.u.}$ ($2,9702 \text{ \AA}$) voraus. Daraus resultiert eine Bindungsenergie E_{bind} von $112,9 \text{ neV}$ [20].

Aus dieser Bindungsenergie folgt, dass der Grundzustand des Heliumdimers energetisch nur durch eine äußerst flache Potentialstufe vom Kontinuum getrennt ist. Die He_2 -Wellenfunktion fällt, wie jede Wellenfunktion, exponentiell in der sie begrenzenden Potentialbarriere ab, dringt also in den klassisch verbotenen Bereich ein. Der Ansatz für die Schrödingergleichung innerhalb einer Barriere ist

$$\Psi(R) = t \cdot e^{ik_t R} \quad \text{mit } k_t = \frac{i}{\hbar} \sqrt{2m|E - V|}. \quad (2.5)$$

²Der Name LM2M2 besagt, dass das Liu-McLean 2 Potential nachgeahmt wurde, daher mimic 2

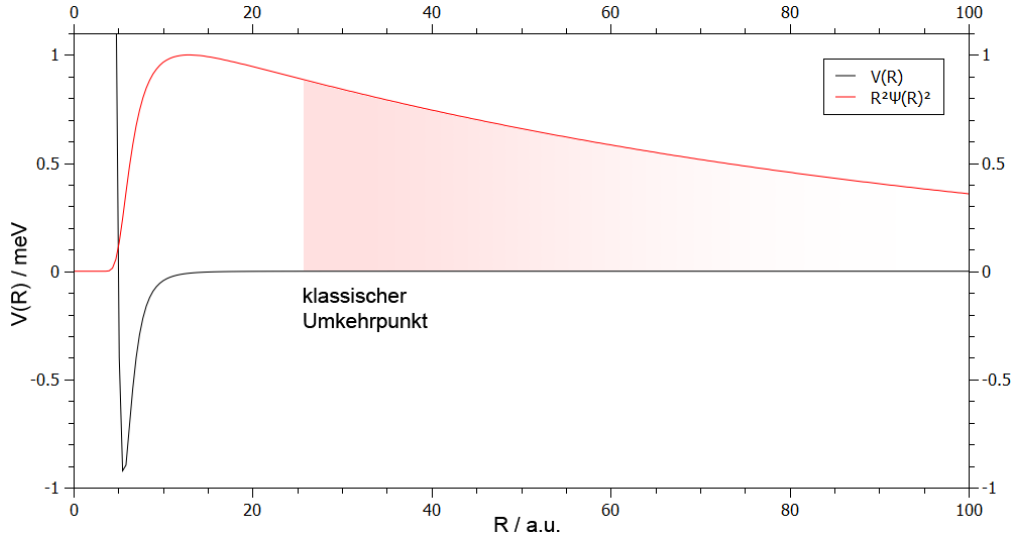


Abb. 2.3.: Potential und Wahrscheinlichkeitsdichte der Grundzustandswellenfunktion von He_2 nach [22]. 79,4% der Wahrscheinlichkeitsdichte befindet sich im klassisch verbotenen Bereich, jenseits des äußeren Umkehrpunktes bei 26 a.u..

Der Exponent ist also abhängig von der Höhe des Potentials V in Bezug auf die Energie des Zustandes E . Für das Heliumdimer, mit $E = E_{\text{bind}}$ und $V = 0$, ist die Potentialstufe und damit der Exponent winzig. Entsprechend wird die Eindringtiefe $R_{1/e} = 1/2k_t$ enorm und führt zur Vorhersage riesiger intermolekularer Abstände, wie in Abb. 2.3 zu sehen ist.

Auf solchen Abständen sind Retardierungseffekte aufgrund der endlichen Ausbreitungsgeschwindigkeit c des elektrischen Feldes nicht mehr vernachlässigbar. Es entsteht ein geringer Zeitversatz, bis das momentane Dipolmoment von Atom A einen Einfluss auf Atom B hat. Die Auswirkungen auf das LM2M2-Potential wurde 1993 von Luo et al. bestimmt [21]. Hier konnte gezeigt werden, dass die $1/R^6$ -Abhängigkeit des Van-der-Waals-Potential für große Abstände zu einer $1/R^7$ -Abhängigkeit wird. Die Bindung wird dadurch etwas schwächer (101,3 neV).

Einen weiteren Fortschritt bildet das 1995 veröffentlichte Potential von Tang, Toennies und Yiu[23]. Im Gegensatz zum LM2M2-Potential kommt es ohne anpassbare Parameter aus und stützt sich nur auf bekannte Dispersionskoeffizienten, die Amplitude der asymptotischen Wellenfunktion und die Ionisationsenergie von Helium. Hierzu wurde ein störungstheoretischer Ansatz gewählt, bei dem die Austauschwechselwirkung zweier Multielektronensysteme genähert wurde, indem zu jedem Zeitpunkt nur ein Elektronenpaar betrachtet wurde. So gelang es die Rechnung stark zu vereinfachen und damit ein analytisches Potential zu bestimmen, das mit vorherigen experimentellen Ergebnissen

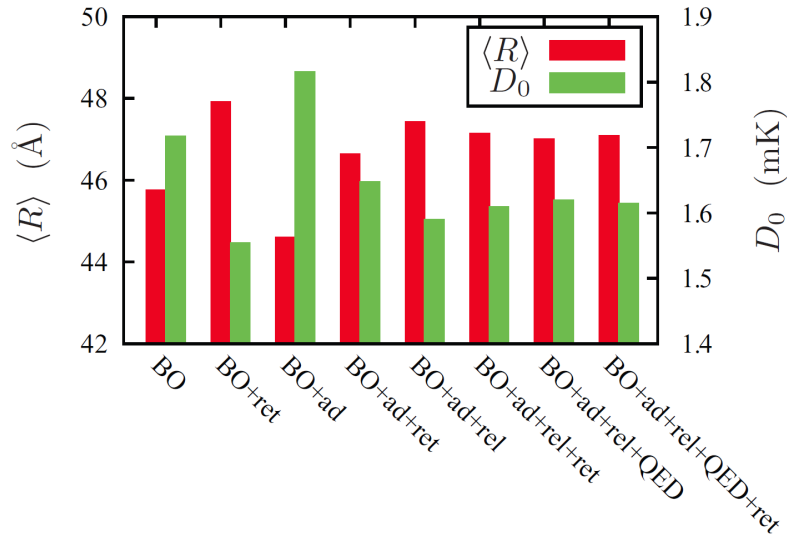


Abb. 2.4.: Berechnete Bindungsenergie D_0 und mittlerer Bindungsabstand $\langle R \rangle$ für $^4\text{He}_2$ unter Einbeziehung unterschiedlich vieler, über die Born-Oppenheimer-Näherung (BO) hinausgehender Effekte: Retardierungseffekte (ret), adiabatische (ad) und relativistische (rel) Korrektur und Quantenelektrodynamik (QED) (aus [24]).

und komplizierteren Rechnungen übereinstimmte.

Den aktuellen Stand theoretischer Berechnungen bildet die Arbeit von Szalewicz et al.. Ihre Ergebnisse zeigen, dass *ab initio* Berechnungen des He_2 -Potentials bereits für nichtrelativistische Berechnungen in Born-Oppenheimer Näherung eine Genauigkeit im Nanoelektronenvolt-Bereich (mK) erreichen. Physikalische Effekte, die in Berechnungen der elektronischen Struktur typischerweise vernachlässigt werden, müssen hier also berücksichtigt werden. Dazu wurde das numerische Verfahren der Variationsmethode verwendet, für das in diesem Fall Test-Wellenfunktionen in der Form von explizit korrelierten Funktionen (ECG³) eingesetzt wurden. Die Berücksichtigung der Elektron-Kern-Korrelation, die in der Born-Oppenheimer-Näherung eigentlich vernachlässigt wird, führt zur adiabatischen Korrektur des Potentials. Dies resultiert in einer um 8,4 neV stärkeren Bindung [25, 22]. Die Auswirkungen relativistischer Korrekturen der Schrödingergleichung wurden erstmals 2005 bestimmt. Sie verringern die Bindungsenergie nach neuesten Rechnungen um 19,5 neV [10, 22]. In nachfolgenden Veröffentlichungen der gleichen Arbeitsgruppe konnte die Retardierung der elektromagnetischen Wechselwirkung über die große Ausdehnung des Dimers durch Bestimmung des Casimir-Polder Potentials berechnet werden. Zusätzlich zur relativistischen Korrektur wurde der Beitrag quan-

³ECG für engl. explicit correlated Gaussian. Diese Funktionen hängen von den Abständen zwischen den Elektronen in der molekularen Wellenfunktion ab.

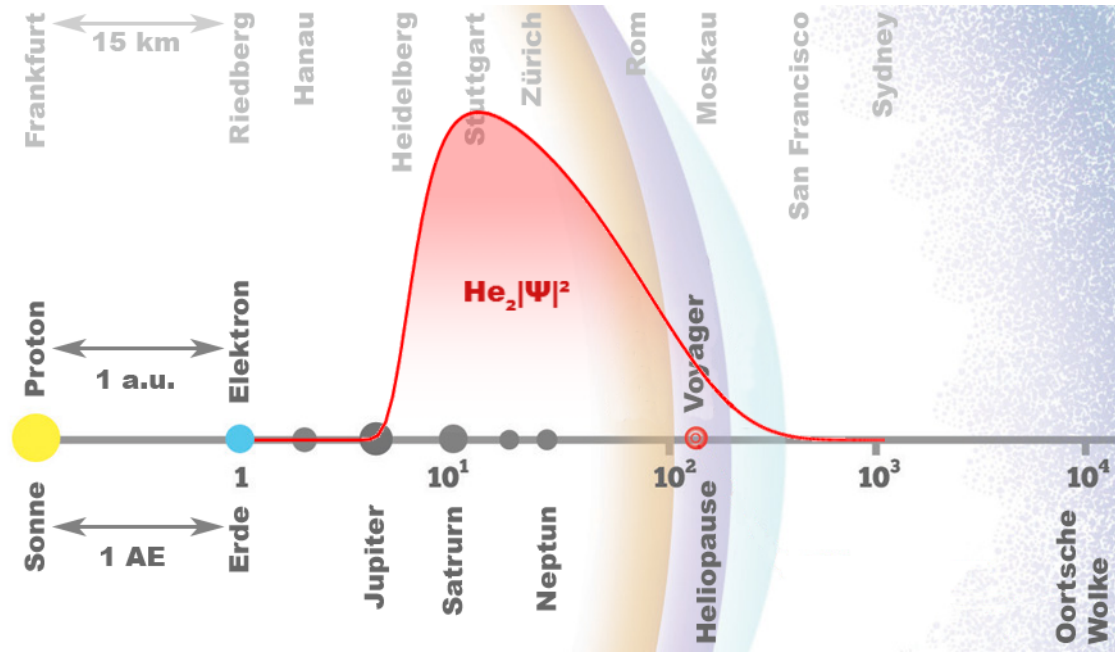


Abb. 2.5.: Ausdehnung des Heliumdimers (rot) unter der Annahme 1 a.u. sei so groß wie ein durchschnittlicher Arbeitsweg (15 km) oder der Abstand zwischen Sonne und Erde (1 AE) auf logarithmischer Skala.

tenelektrodynamischer Effekte zum Potential mit hoher Genauigkeit ermittelt [22, 24]. Die Einbeziehung aller Effekte führt schließlich zu einer Potentialtiefe von $-0,9475 \pm 0,0003$ meV ($-10,996 \pm 0,004$ K) bei einem Minimumsabstand von $5,6080 \pm 0,0001$ a.u.. Daraus resultiert eine He_2 -Bindungsenergie von $139,6 \pm 2,9$ neV und ein mittlerer intermolekularer Abstand von $89,0 \pm 0,9$ a.u. [22, 24]. Die Auswirkungen der zusätzlichen Korrekturen auf die Bindungsenergie und den mittleren Abstand sind in Abb. 2.4 dargestellt. Die hohe Genauigkeit wurde erreicht, indem ein Basissatz mit bis zu 2400 explizit korrelierten Normalverteilungen verwendet wurde.

2.3. Größenvergleich

Es ist schwierig eine Vorstellung von der Größe des Heliumdimers zu bekommen. Sämtliche Molekülsysteme sind für den üblichen menschlichen Erfahrungsraum vor allem eines: Klein. Der Maßstab für diese winzigen Größen ist die atomare Einheit (a.u.). Sie beschreibt den Abstand des Elektrons vom Kern in einem Wasserstoffatom. Das einfachste diatomare System, das Wasserstoffmolekül H_2 , ist ebenfalls rund 1 a.u. groß (Gleichgewichtsabstand der Kerne ist 0,742 a.u.).

Um ein Gefühl für diese Größen zu bekommen, könnten wir sie mit der Länge unseres Arbeitsweges vergleichen, den wir täglich zurücklegen. Der ist in Deutschland durchschnittlich 15 km lang[26, 27]. Wir stellen uns vor das ~ 1 a.u. große H_2 -Molekül sei 15 km groß. Ein Elektron, das zwischen beiden Atomkernen im H_2 -Molekül hin und her pendelt, legt also einen durchschnittlichen Arbeitsweg zurück, z.B. von der Wohnung in Frankfurt zur Arbeit auf den Riedberg. Im Heliumdimer dagegen müsste das Elektron von Frankfurt mindestens bis Heidelberg, nicht selten aber auch bis Moskau pendeln ($> 15\%$). Das Dimer würde sich also über ganz Europa erstrecken.

Wären die beiden Atome im H_2 -Molekül voneinander so weit entfernt wie die Erde von der Sonne ($1 \text{ a.u.} = 1 \text{ AE}$), dann erstreckte sich das Heliumdimer weiter als der Kuipergürtel. Selbst die beiden Voyager-Sonden⁴, die bald in den interstellaren Raum eintreten, hätten erst 80 % der Wellenfunktion passiert (siehe Abb. 2.5).

⁴Voyager 2 ist derzeit etwa 112 AE von der Sonne entfernt, Voyager 1 sogar 136 AE (Stand: August 2016).

3. Stand der Forschung - Experimentelle Untersuchungen

Über die Existenz des Heliumdimers wurde lange Zeit auf der Grundlage theoretischer Beschreibungen debattiert. Nach über 30 Jahren war es an der Zeit den zweiten Weg zu beschreiten, den die Physik zu unserem Erkenntnisgewinn bereithält: die Beobachtung in der Natur. Erst zu dieser Zeit kamen experimentelle Methoden auf, die die Suche nach dem Heliumdimer ermöglichten [28]. Im Jahre 1961 wurde der erste Molekularstrahl erzeugt, der Heliumcluster¹ enthielt. Einige Jahre später wurde diese Technik genutzt, um das Helium-Helium Potential in Streuexperimenten zu untersuchen. In kalten Gasstrahlen² wurden Heliumcluster erzeugt und anschließend mit Elektronen beschossen. Hier konnte ein Blick auf die Form des Potentials geworfen werden, indem dessen Einfluss auf den Wirkungsquerschnitt gemessen wurde. Die kinetische Energie der Elektronen musste dazu im Bereich der erwarteten Potentialtiefe des Dimers von 1 meV liegen. Die Auflösung des Experimentes reichte jedoch nicht aus, um die Frage nach einem gebundenen Zustand, dem gesuchten Grundzustand des Heliumdimers, aus dem Potential abzuleiten [29].

In einer alternativen Herangehensweise wurden Hinweise auf die Existenz des Dimers gesucht, indem die Massen ionisierter Clusterfragmente analysiert wurden [30]. Hierzu wurde ein gekühlter Heliumgasstrahl³ (auch: Gasjet) an Argongas gestreut. Das Verhältnis geladener Fragmente zueinander sollte Aufschluss über die Größe der Ursprungscluster geben. Der Anteil von He_2^+ -Ionen war jedoch viel höher als der größtmögliche Anteil an neutralen He_2 im Gasstrahl. Der Großteil der He_2^+ -Ionen musste also einen anderen Ursprung haben. Naheliegender war, dass sie aus dem Zerfall schwererer Cluster in ein neutrales Fragment und ein He_2^+ -Ion stammten, denn verglichen mit neutralem He_2 ist

¹Ein Cluster ist ein Verbund von $N \geq 2$ gleichen Teilchen.

²Der Gasstrahl wurde hier erzeugt, indem Heliumgas durch eine Anordnung vieler Kanäle von 25 μm Durchmesser und 2 mm Länge ausströmte. Der umgebende Kupferblock wurde von einem Kryostaten wahlweise auf 5 K oder 77 K gekühlt.

³Diesmal wurde eine Düse mit einer Öffnung von 6 μm auf 7 K gekühlt. Heliumgas strömt durch die Düse in eine Vakuumkammer. Durch Variation des Druckes vor der Düse sollte die Größe der erzeugten Cluster verändert werden.

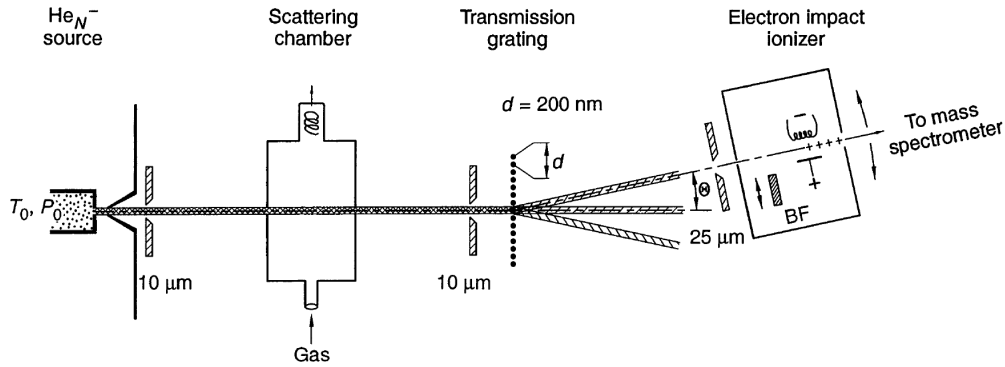


Abb. 3.1.: Schematischer Aufbau zur Beugung eines Gasstrahls aus Heliumatomen und -clustern aus [35]. Die Quelle (links) erzeugt den Gasstrahl, der am Transmissionsgitter (mitte) gebeugt wird und schließlich in einem verfahrbaren Massenspektrometer (rechts) nachgewiesen wird.

das He_2^+ -Ion verhältnismäßig stabil [31]. Messungen zeigten, dass bei der Ionisation von He_3 nahezu immer ein He_2^+ Ion und kein He_3^+ Ion entsteht [32]. Das Gleiche gilt auch für größere Ursprungscluster. Zudem wurde daraus geschlossen, dass es keinen gebundenen Zustand für He_2 gibt, was im Einklang mit der damals verbreiteten theoretischen Vorhersage stand⁴ war.

In einem erneuten Versuch Heliumdimere durch Massenspektroskopie an ionisierten Gasstrahlfragmenten nachzuweisen, nutzten Luo et al. 1993 einen gepulsten Gasstrahl bei hohen Drücken⁵ mit dem Ziel die interne Temperatur im Gasstrahl zu minimieren [33]. Doch auch hier blieb der Zweifel bestehen, es könne sich bei den nachgewiesenen He_2^+ Ionen um Fragmente größerer Cluster handeln [34].

Den unangefochtenen Beweis für die Existenz des Heliumdimers konnte 1994 schließlich mit einer neuen Messmethode erbracht werden [35]. Dazu wurde ein kalter Heliumgasstrahl durch ein Nanogitter geleitet und an ihm gebeugt, wie in Abb. 3.1 dargestellt⁶. Analog zur Beugung von Lichtwellen an einem Gitter kann die Beugung von Materiewellen an einem Gitter beschrieben werden. Die De-Broglie-Wellenlänge eines Teilchens $\lambda =$

⁴An Beispielen wie diesem wird klar, dass sich Experiment und Theorie stets beeinflussen. Dies ist einerseits wichtig, da die gegenseitige Rücksprache die aktuelle Forschung in die richtige Richtung lenken und damit beschleunigen kann, sollte andererseits jedoch stets kritisch betrachtet werden, wenn neue Ergebnisse im Licht vorheriger Resultate interpretiert werden.

⁵Der Heliumgasstrahl wurde hier bei Raumtemperatur und einem Vordruck von bis zu 125 bar durch eine Düse mit 150 μm Durchmesser expandiert.

⁶Die Gitterperiode war hier $d = 200 \text{ nm}$. Erzeugt wurde der Heliumgasstrahl durch Expansion von Heliumgas durch eine Düse mit Durchmesser $d_0 = 5 \mu\text{m}$ bei einer Temperatur T_0 von 30 K und einem Vordruck p_0 von 15 bar.

$h/(N \cdot m \cdot v)$ ist bei einer gegebenen Geschwindigkeit v abhängig von dessen Masse m beziehungsweise der Clustergröße N . So ist der Beugungswinkel $\vartheta \approx \sin\vartheta = \pm n \cdot \lambda/d$ für Heliumdimere ($N = 2$) und Heliummonomere (atomares Helium $N = 1$) verschieden. Dadurch konnten die Spezies voneinander separiert und nachgewiesen werden (für eine detaillierte Beschreibung der Materiewellenbeugung siehe Abschnitt 3.2).

Im Jahr 1996 lieferten Luo et al. erste experimentelle Ergebnisse zur Bindungsenergie und dem mittleren Abstand $\langle R \rangle$ der beiden Heliumkerne im Dimer. Dem bereits drei Jahre zuvor verwendeten experimentellen Aufbau fügten sie ein Nano-Sieb hinzu, das der Gasstrahl passieren musste. Der Anteil an Teilchen, die in diesem Sieb hängen bleiben, ist abhängig von der Größe der Löcher im Sieb und dem Durchmesser der Teilchen. Der Anteil an sperrigen Teilchen, die das Sieb passieren können, ist also geringer als der Anteil von punktförmigen Teilchen (beziehungsweise der Anteil der offenen Fläche an der Gesamtfläche⁷). Durch mehrere Messungen mit unterschiedlichen Sieblochgrößen konnte auf die mittlere Größe des Heliumdimers $\langle R \rangle$ von $62 \pm 10 \text{ \AA}$ geschlossen werden.

Im Jahr 2000 konnte auch mit der Methode der Materiewellenbeugung ein unabhängiges Ergebnis zum mittleren Abstand des Heliumdimers gewonnen werden. Der Winkel ϑ zwischen den Beugungsordnungen im Beugungsbild ist in erster Näherung nur abhängig von der De-Broglie-Wellenlänge der gebeugten Teilchen λ und der Gitterkonstanten d . Allerdings wird ähnlich dem Experiment von Luo et al. die tatsächliche offene Schlitzgröße durch die Größe der Heliumdimere verringert. Durch eine theoretische Betrachtung der Daten, bei der die Van-der-Waals-Wechselwirkung mit den Stäben des Beugungsgitter berücksichtigt wurde, konnte hier der mittlere internukleare Abstand $\langle R \rangle$ zu $52 \pm 4 \text{ \AA}$ bestimmt werden. Die Bindungsenergie E_{bind} ist nach einem vereinfachten Modell aus dem mittleren Abstand $\langle R \rangle$ ermittelbar. Mit $E_{bind} = \hbar^2/4m\langle R \rangle^2$ folgt eine Bindungsenergie von $95 +26/-17 \text{ neV}$ [12].

In den nächsten beiden Abschnitten 3.1 und 3.2 wird detaillierter beschrieben unter welchen Bedingungen Heliumcluster erzeugt werden können, und welche physikalischen Gesetzmäßigkeiten der Materiewellenbeugung zugrunde liegen. Wer diese methodischen Hintergründe überspringen, und direkt die weitere experimentelle Entwicklung verfolgen möchte, gehe zu Kapitel 4.

⁷Um eine messbare Abweichung der Anteile zu erhalten, müssen die Löcher zwar größer, aber nicht viel größer als Heliumdimere sein. Aufgrund ihrer geringen Bindungsenergie werden sie sofort zerstört, wenn sie die Sieboberfläche berühren.

3.1. Clustererzeugung

Die Kraft, die ein Van-der-Waals-System bindet, ist sehr gering. Dies trifft vor allem auf kleine Heliumcluster zu. Doch wie entstehen solche Cluster unter diesen Umständen überhaupt? Damit zwei Heliumatome ein Heliumdimer bilden, müssen sich die Atome einander annähern. Allerdings sind Heliumatome in gasförmigem Helium typischerweise so schnell, dass die wirkende Bindungskraft nicht genügt, um die kinetische Energie zu überwinden. Es hilft also das Gas zu kühlen, da so die Geschwindigkeit der Teilchen im Gas entsprechend der Maxwell-Boltzmann-Verteilung geringer wird. Doch selbst bei einer Temperatur von 5 K, also kurz bevor Helium flüssig wird⁸, ist die kinetische Energie noch Größenordnungen größer als die Bindungsenergie von etwa 1 mK.

Um das Gas noch weiter bis auf interne Temperaturen in der Größenordnung der Bindungsenergie zu kühlen, helfen die besonderen Eigenschaften einer Überschallgasexpansion. Ohnehin muss das Heliumgas in eine Vakuumkammer geleitet werden, um es nachfolgend zu untersuchen. Geschieht dies durch eine kleine Öffnung von einem Bereich hohen Druckes p_0 in einen Bereich niedrigen Druckes p_b , so kommt es zu einer Überschallgasexpansion⁹. Der hohe Druckgradient bewirkt, dass ein gerichteter Gasstrahl entsteht. Dabei wird die gesamte Enthalpie des Gases, zusammengesetzt aus thermischer Energie und Kompressionsenergie, in gerichtete kinetische Energie umgewandelt:

$$\frac{3}{2}k_B T_0 + k_B T_0 \Rightarrow \frac{1}{2}mv^2. \quad (3.1)$$

Mikroskopisch betrachtet strömen die Gasteilchen durch die Düsenöffnung mit Geschwindigkeiten die vorerst der Maxwellverteilung im Gas entsprechen. Die anfänglich hohe Dichte und die unterschiedlichen Geschwindigkeiten führen zu vielen Kollisionen. Die Kollisionen führen zu einer Angleichung der Teilchengeschwindigkeiten, wobei die Vorzugsrichtung von der Düse weg bestehen bleibt. Im mitbewegten Bezugssystem ist also ein kühlender Effekt zu beobachten, die Relativgeschwindigkeit der Teilchen zueinander sinkt. Das Angleichen der Geschwindigkeiten aller Teilchen hat zur Folge, dass die Kollisionsrate drastisch abnimmt. Mit zunehmendem Abstand von der Düse sinkt zudem die Teilchendichte, was die Kollisionswahrscheinlichkeit weiter senkt (siehe Abb. 3.2). So entsteht ein gerichteter Teilchenstrahl mit einer internen Temperatur von wenigen

⁸Helium verflüssigt sich unter Normaldruck bei Unterschreitung einer Temperatur von 4,15 K.

⁹Genauer muss das Verhältnis der Drücke p_0/p_b den kritischen Wert von $G \equiv ((\gamma+1)/2)^{\gamma/(\gamma-1)}$ überschreiten, der für alle Gase unter 2,1 liegt.

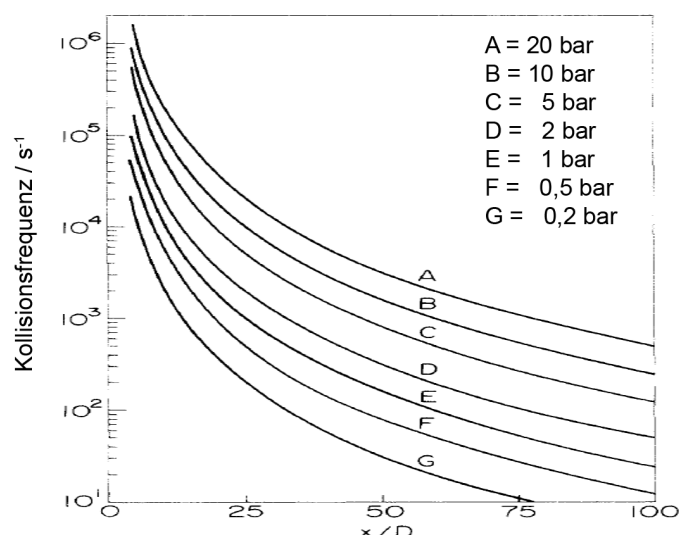


Abb. 3.2.: Kollisionsfrequenz in Abhängigkeit vom Abstand zur Düse x/D in Einheiten des Düsendurchmessers D . Die Berechnung betrachtet ein monoatomares Gas für verschiedene Drücke p_0 an der Düse (A-G) unter Annahme von *continuum flow* und einem *hard sphere* Kollisions Querschnitt von $1 \text{ \AA}^2$ (aus [36]).

Millikelvin¹⁰.

Die Überschallgasexpansion bietet also gute Voraussetzungen für die Clusterentstehung. Zu Beginn der Expansion kollidieren die Teilchen oft miteinander. Typisch sind hunderte Zweikörper- und zehn Dreikörper-Stöße innerhalb einer Strecke von zwei Düsendurchmessern, wobei die Zahl der Kollisionen mit $p_0 d_0 / T_0$ skaliert[37]. Relevant sind hierbei die Dreikörper-Stöße: Denn dabei können zwei Atome eine Bindung eingehen, während das Dritte die überschüssige kinetische Energie und die freiwerdende Bindungsenergie aufnimmt[38].

Größere Cluster können durch Kollision zweier kleinerer Cluster entstehen, ein Trimer beispielsweise durch die Kollision zweier Dimere. Dabei verbinden sich drei Atome zu einem Trimer, während das vierte Atom Bindungsenergie und kinetische Energie aufnimmt. Auch die Dreiteilchen-Kollision von einem Cluster mit zwei Heliumatomen ist denkbar, mit analoger energetischer Umverteilung. Die Chance solcher Stöße wird erhöht, wenn die Gesamtzahl von Kollisionen größer wird. Da die Gesamtzahl proportional zu

¹⁰Das es nicht zu einer perfekten Angleichung aller Teilchengeschwindigkeiten und damit einer internen Temperatur von 0 K kommt, ist dem Umstand geschuldet, dass es sich nicht um ein ideales sondern ein reales Gas handelt. Die Wechselwirkung der Teilchen ist keine reine elastische Kollision, sondern eine Streuung von Potentialen mit Wirkungsquerschnitten, die von der Relativgeschwindigkeit abhängen[36].

Eines Heliumgastrahls, der bei Raumtemperatur expandiert wurde, kann eine interne Temperatur von 10 mK erreichen. Wird das Gas zuvor gekühlt kann sogar 1 mK erreicht werden[37].

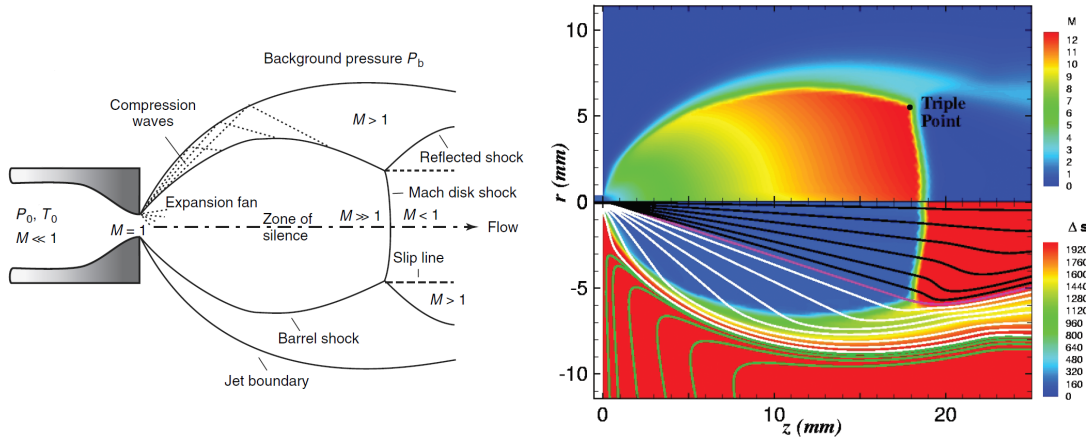


Abb. 3.3.: (links) Schematische Darstellung einer *Freien Jet-Expansion* (aus [39] nach [40]). Gas expandiert bei einem Vordruck p_0 und einer Temperatur T_0 durch eine Düse. Die erreichte Geschwindigkeit wird in Relation zur Mach'schen Zahl M gekennzeichnet. (rechts) Stromlinien und Verteilungen der Mach Zahl M und der Entropieänderung Δs berechnet für einen achsensymmetrischen unter-expandierten freien Gasjet bei einem Düsendurchmesser d_0 von 750 μm und ein Druckverhältnis p_0/p_b von 1520 (aus [41]).

$p_0 d_0 / T_0$ ist, kann durch Erhöhen des Vordruckes an der Düse oder stärkeres Kühlen die mittlere Clustergröße erhöht werden¹¹.

Die so entstandenen fragilen Heliumcluster, insbesondere Dimere und Trimere, können bei weiteren Kollisionen leicht wieder zerfallen. Deshalb ist es von Vorteil, dass die Kollisionsrate mit zunehmendem Abstand von der Düse stark abnimmt. Bereits nach einer Flugstrecke von wenigen Düsendurchmessern d_0 hat sich die Geschwindigkeit aller Teilchen angeglichen. Der Bereich dieser freien Expansion wird *Zone of Silence* genannt. Der Druck des isentropisch expandierenden Gases ist zunächst unabhängig vom umgebenden Restgasdruck¹². Seine Geschwindigkeit ist größer als die Schallgeschwindigkeit, mit der sich Informationen im Fluid ausbreiten, und somit haben die Randbedingungen stromabwärts keinen Einfluss auf das Fluid. Da aber dennoch eine Anpassung stattfinden muss, bildet sich ein System aus Schockwellen aus, dem *barrel shock* und dem *Mach disk shock* (siehe Abb. 3.3 links). Diese Regionen weisen einen hohen Druck-, Temperatur-, Dichte- und Geschwindigkeits-Gradienten auf und bieten einen Mechanismus, um durch einen Richtungswechsel oder eine Verlangsamung auf Unterschallgeschwindigkeit die Randbedingungen zu erfüllen[40].

In diesen Schockregionen würden erzeugte Cluster mit hoher Wahrscheinlichkeit wieder

¹¹Zu bemerken ist: Wenn starke Clusterbildung einsetzt, so heizt die freiwerdende Bindungsenergie das expandierende Gas auf, wodurch die Geschwindigkeitsverteilung wieder breiter wird.

¹²Der Druck am Düsenausgang beträgt p_0/G und ist damit etwa halb so groß wie p_0 .

zerfallen. Die Expansion des Gasstrahls muss also so angelegt werden, dass die erzeugten Cluster mit denen experimentiert werden soll nicht in eine Schockregion eintreten. In Messungen¹³ konnte der Ort des *Mach disk shock* x_M in Abhängigkeit des Düsendurchmessers d_0 bestimmt werden:

$$\frac{x_M}{d_0} = \frac{2}{3} \sqrt{\frac{p_0}{p_b}} \quad [42]. \quad (3.2)$$

Der Abstand des *Mach disk shock* von der Düse kann also vergrößert werden, indem der Restgasdruck p_b abgesenkt wird. Zu diesem Zweck wird die Expansionskammer von einer Pumpe mit hoher Saugleistung evakuiert. Um den Abstand des *Mach disk shock* für den Teil des Gasstrahls, mit dem später experimentiert werden soll, jenseits der Reaktionszone zu verlagern, kann speziell für diesen Teilstrahl ein besonders geringer Druck p_b erzeugt werden. Dazu wird eine scharfkantige Lochblende (Skimmer) in die *Zone of Silence* getaucht, der den gewünschten Teilstrahl mit einem Bereich sehr niedrigen Druckes p_b verbindet, während der Großteil des Gasstrahls diesseits der Blende seitlich abgelenkt wird¹⁴.

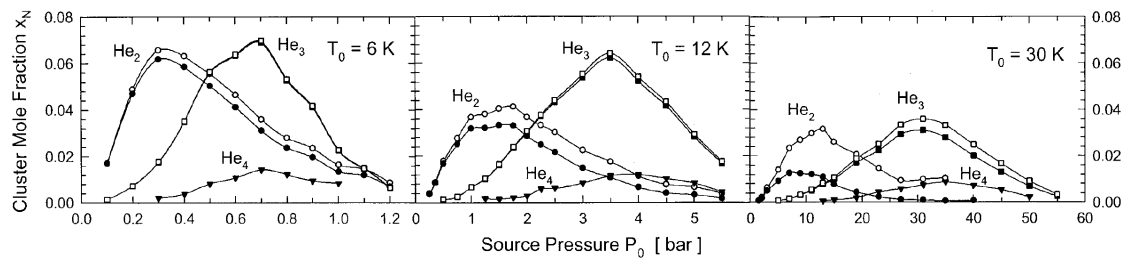


Abb. 3.4.: Gemessene Anteile verschiedener Clustergrößen (gefüllte Symbole) in Abhängigkeit vom Vordruck p_0 an der Düse bei Temperaturen von 6, 12 und 30 K aus [37]. Die offenen Symbole geben den geschätzten ursprünglichen Anteil von Dimeren und Trimeren an, der messbar wäre, wenn nicht ein Teil durch Streuung am Restgas zerstört worden wäre.

Die Abhängigkeit der vorhandenen Clustergrößen im Gasstrahl von den gewählten Düsenparametern wurden von Bruch et al. [37], Kariotis et al. [44] sowie Kunitski et al. [43] systematisch untersucht. Diese Untersuchungen unter Realbedingungen bilden die zuverlässigsten Anhaltspunkte zur Wahl geeigneter Parameter für die Clustererzeugung im Rahmen dieser Arbeit. Im Vergleich zu rein theoretischen Vorhersagen werden hier auch die Einflüsse von Dichteschwankungen am Skimmer und innerhalb der Expansionskam-

¹³Aufgrund der hohen Dichtegradienten können die Schock-Zonen durch Lichtstreuungs-Techniken sichtbar gemacht werden [40].

¹⁴Soll x_M wie in unserem Fall jenseits der Reaktionszone, und damit etwa 1 m hinter der 5 μm großen Düse liegen, ist bei einem Vordruck p_0 von 1 bar nach Formel 3.2 ein Restgasdruck in der Größenordnung von $p_b = p_0 (0,67d_0/x_M)^2 = 1 \cdot 10^{-8}$ mbar notwendig.

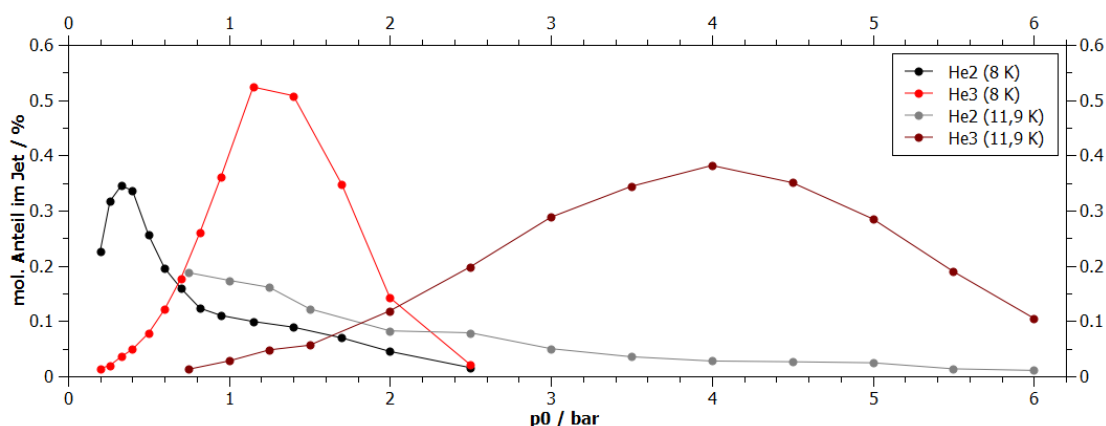


Abb. 3.5.: Gemessene Anteile verschiedener Clustergrößen in Abhängigkeit vom Vordruck p_0 an der Düse bei Temperaturen von 8 und 11,9 K. Daten aus [43].

mer berücksichtigt. In Abhängigkeit von Vordruck p_0 und Temperatur T_0 verändert sich die Dichte und damit die Menge des ausströmenden Gases. Das verändert den Druck in der Expansionskammer (bei limitierter konstanter Pumpleistung), und damit die Wahrscheinlichkeit, dass ein erzeugter Cluster mit einem Restgasteilchen wechselwirkt und zerstört wird. In allen Messungen wurde eine Düse mit einer 5 μm großen Öffnung verwendet.

Wichtigstes Ergebnis hierbei ist, dass keine Kombination von Druck p_0 und Temperatur T_0 gefunden werden kann, bei der nur eine Clustergröße vorliegt. Es liegt stets eine Mischung verschiedener Größen vor. Den größten Anteil des Molekularstrahls bilden stets Heliummonomere, also atomares Helium. In Abb. 3.4 und 3.5 sind die Ergebnisse dieser Messungen zusammengestellt.

3.2. Beugung

Das Phänomen der Beugung ist am besten aus der Optik bekannt. Im klassischen Lehrbuch- oder Schulunterrichtsversuch wird ein Laserstrahl auf ein optisches Gitter geleitet und spaltet sich in die charakteristischen Teilstrahlen auf, die in Abb. 3.6 (links) dargestellt sind. Ursache dieses zunächst verblüffenden Phänomens ist die Wellennatur des Laserlichts.

Ein kontinuierlicher Laserstrahl kann als ebene Wellenfront beschrieben werden. Nach dem huygensschen Prinzip ist jeder Punkt einer Wellenfront Ausgangspunkt für eine kugelförmige Elementarwelle. Wird nur ein einziger Punkt einer Wellenfront durch ein

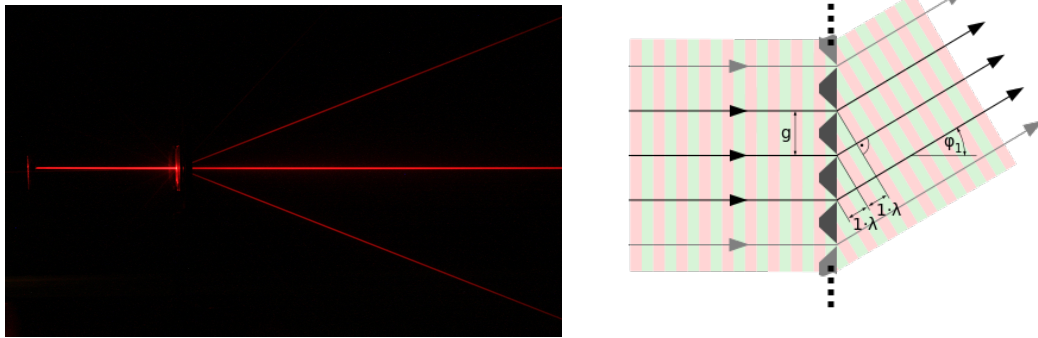


Abb. 3.6.: (links) Beugung eines Laserstrahls an einem optischen Gitter (von D-Kuru unter CC BY-SA 3.0). (rechts) Schematische Darstellung der Beugung an einem Transmissionsgitter.

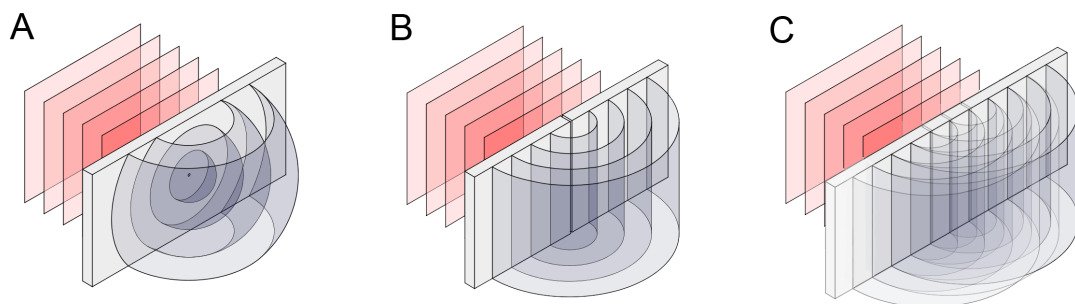


Abb. 3.7.: Schematische Darstellung der Ausbreitung ebener Wellen hinter unterschiedlichen Blenden. Trifft eine ebene Welle auf ein Loch entsteht eine Kugelwelle (A). Erweitert sich das Loch zu einem Schlitz entsteht eine Zylinderwelle (B). Ein Transmissionsgitter erzeugt eine Überlagerung mehrerer solcher Schlitze (C).

Loch durch eine Wand gelassen, so tritt der Kugelwellencharakter zum Vorschein (schematisch dargestellt in Abb. 3.7 A). Bleiben mehrere Löcher oder Streifen in einer Wand offen, so entsteht an jeder Öffnung eine Kugelwelle. Die Kugelwellen überlagern sich in ihrer Ausbreitung. So auch an einem Transmissionsgitter, das für die einlaufende Welle eine Wand mit streifenförmigen Öffnungen darstellt. An jedem Punkt des Streifens entstehen Kugelwellen, die sich in ihrer Überlagerung zu einer Zylinderwelle aufaddieren (Abb. 3.7 B). Da sich beim Gitter viele solcher Streifen in regelmäßiger Anordnung nebeneinander befinden, entstehen mehrere Zylinderwellen, die sich wiederum überlagern (Abb. 3.7 C). Die regelmäßige Anordnung führt dazu, dass sich die Wellen unter einigen Winkeln stets gegenseitig auslöschen (die Summe der Amplituden aller Zylinderwellen ist null, oder vereinfacht, Wellenberge treffen auf Wellentäler), während sie sich unter anderen Winkeln stets konstruktiv überlagern (Berge treffen auf Berge und Täler auf Täler, die Wellen sind im Gleichtakt). Das lässt sich am besten durch Betrachtung von

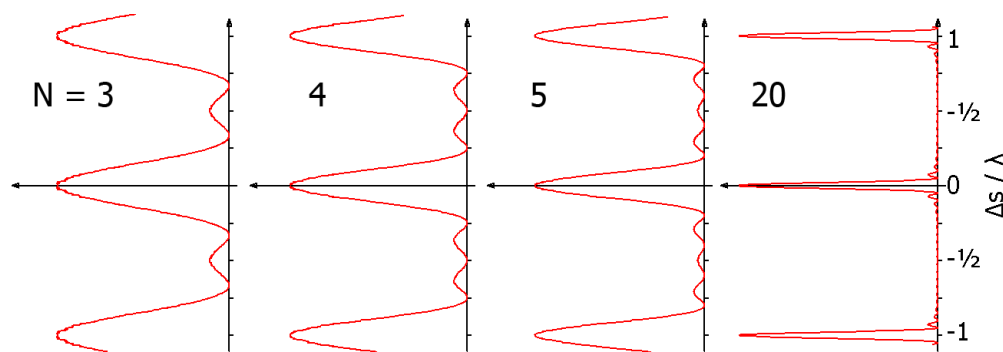


Abb. 3.8.: Intensitäten von Haupt- und Nebenmaxima (idealisiert) nach Beugung an einem Gitter aufgetragen gegen den Gangunterschied δs . Bei steigender Spaltanzahl N steigt die Anzahl der Nebenmaxima während die Breite der Hauptmaxima sinkt.

Abb. 3.6 (rechts) nachvollziehen, die eine Projektion der Anordnung aus Abb. 3.7 C darstellt. Der Teil der Zylinderwelle, der sich in die gleiche Richtung ausbreitet wie der des benachbarten Spaltes, hat gegenüber diesem eine kleine zusätzliche Strecke Δs zurückgelegt. Unter bestimmten Winkeln beträgt dieser Gangunterschied Δs gerade ein n -faches der Wellenlänge λ , so dass sich benachbarte Zylinderwellen konstruktiv überlagern. Die Winkel können anhand der Wellenlänge λ und dem Streifenabstand g des Gitters (Gitterkonstante) berechnet werden:

$$\sin(\varphi_n) = \frac{n \cdot \lambda}{g} \quad (= \varphi_n \text{ für } \varphi_n \ll 1). \quad (3.3)$$

Demnach wird mit n die Ordnung der Beugung beschrieben, φ_n ist der zugehörige Winkel. Für sehr kleine Winkel kann $\sin(\varphi_n)$ mit φ_n genähert werden.

Besteht das Gitter nur aus zwei Spalten, dann gibt es zwischen zwei Hauptmaxima genau einen Winkel unter dem sich beide Wellen auslöschen. Dieser Winkel gehört zu einem Gangunterschied Δs von $(2i+1)\lambda/2$. Hier ist die Amplitude der zwei benachbarten Wellen stets gleich groß, jedoch mit entgegengesetztem Vorzeichen. Kommt noch ein dritter Spalt hinzu, so gibt es zwei mögliche Gangunterschiede Δs benachbarter Wellen, bei denen die Amplitudensumme aller dreier Wellen gerade null ist, also ein Minimum entsteht. Sie liegen bei $(3i+1)\lambda/3$ und $(3i+2)\lambda/3$. Für jeden weiteren Spalt der hinzu kommt, entsteht eine zusätzliche Kombinationsmöglichkeit bei der sich die Amplitudensumme aufhebt. Bei einem Gitter aus N Spalten gibt es also $N-1$ Minima (vgl. Abb. 3.8). Sie liegen bei Gangunterschieden Δs von $Ni+n/N\lambda$ (mit $n = 1 \dots N-1$).

Zwischen den Minima entstehen Nebenmaxima, da hier Gangunterschiede vorliegen bei denen sich die Amplituden zwar größtenteils aufheben, aber eben nicht vollständig. Es

gibt also $N-2$ Nebenmaxima. Bei einem Gitter aus drei Spalten ist dies am einfachsten nachzuvollziehen. Das Nebenmaximum entsteht zwischen den beiden Minima bei einem Gangunterschied Δs von $\lambda/2$. Hier löschen sich zwei der drei Wellenamplituden gerade aus und die Amplitude der dritten bleibt bestehen. Die Intensitäten der Nebenmaxima sind jedoch vernachlässigbar gegenüber der der Hauptmaxima, vor allem für große N . Je größer die Anzahl von Spalten N eines Gitters ist, desto dichter liegt das erste Minimum bei $\Delta s = \pm \frac{1}{N}\lambda$ am Maximum bei $\Delta s = 0$, wodurch die Maxima schmaler werden. Wie sich das Beugungsbild mit zunehmender Spaltanzahl verändert ist in Abb. 3.8 illustriert.

Analog zu Licht können auch Teilchen wie Elektronen, Atome oder sogar Molekülsysteme als Welle beschrieben werden. Dies wird durch den von Louis de Broglie aufgestellten Zusammenhang

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{m \cdot v} \quad (3.4)$$

beschrieben. Demnach ist die Wellenlänge λ eines Teilchens von dessen Impuls p , und damit dessen Masse m und Geschwindigkeit v abhängig. Wie immer ist h das Planck'sche Wirkungsquantum. Dieser zunächst unintuitive Wellencharakter von Materie führt dazu, dass auch dann ein Beugungsbild entstehen kann, wenn der Laserstrahl im zuvor beschriebenen Experiment durch einen Materiestrahl ersetzt wird. Ein einzelnes Teilchen kann in seiner Beschreibung als Welle an einem Gitter mit sich selbst interferieren. Diese Interferenz bestimmt die Wahrscheinlichkeit ein Teilchen unter einem bestimmten Winkel hinter dem Gitter nachzuweisen. Wird eine große Zahl an Teilchen nachgewiesen, so kann die Wahrscheinlichkeitsverteilung und damit das Beugungsbild rekonstruiert werden. Voraussetzung dafür ist, dass alle Teilchen die gleiche De-Broglie-Wellenlänge haben, also gleiche Masse und Geschwindigkeit. Dies ist bei der gewählten Erzeugung des Materiestrahls in einer Überschallgasexpansion näherungsweise gegeben (siehe Abschnitt 3.1). Die geringe Geschwindigkeitsverteilung, die nach dem Expansionsprozess verbleibt, entsteht durch Stöße des Gasstrahls mit dem Restgas und inelastische Wechselwirkungen der Gasteilchen untereinander. Die leicht unterschiedlichen Geschwindigkeiten führen zu leicht unterschiedlichen Beugungswinkel und damit zur Verbreiterung der Beugungsmaxima. Bei zu breiter Geschwindigkeitsverteilung würde das Beugungsbild schließlich gänzlich verschwimmen.

Die Adaption der kirchhoffschen Theorie zur optischen Beugung auf Materiewellen erklärt das experimentelle Ergebnis qualitativ bereits sehr gut. Auf den zweiten Blick gibt es jedoch Abweichungen zu der rein aus der Optik adaptierten Beschreibung. Bei der

Materiewellenbeugung spielen die exakten geometrischen Eigenschaften des Gitters, das langreichweitige Potential zwischen Gasteilchen und Gitterstäben sowie die mikroskopische Oberflächenbeschaffenheit der Stäbe eine Rolle [45]. Werden diese Abweichungen berücksichtigt sind auch die relativen Intensitäten der Beugungsordnungen zu erklären. Ebenso hat die Ausdehnung der gestreuten Teilchen und damit die effektive Schlitzbreite einen Einfluss auf die relativen Intensitäten, der zum Tragen kommt, wenn die Größe der Teilchen in der Größenordnung der Spaltbreite liegt. Unter Einbeziehung der zuvor beschriebenen Korrekturen konnte diese Abweichung von Grisenti et al. [12] genutzt werden, um Aufschluß über die Größe des Heliumdimers zu erlangen.

Im hier beschriebenen Experiment soll aber nicht die exakte Form des Beugungsbildes untersucht, sondern viel mehr die bloße Tatsache ausgenutzt werden, dass der Beugungswinkel von der Teilchenmasse abhängt. Durch Einsetzen von Gleichung 3.3 in Gleichung 3.4 folgt ein reziproker Zusammenhang zwischen Ablenkwinkel φ_n und Masse m .

$$\varphi_n = n \cdot \frac{h}{mv \cdot g} \quad (3.5)$$

Das Heliumdimer hat die doppelte Masse von atomarem Helium. So folgt, dass die Beugungswinkel der Maxima des Dimers φ_{nHe_2} nur halb so groß sind wie die atomaren Heliums φ_{nHe} . Das Heliumtrimer hat die dreifache Masse, somit sind dessen Beugungswinkel φ_{nHe_3} nur ein drittel so groß. Mit dieser Methode können also unterschiedliche Clustergrößen, die als Gemisch im Gasstrahl vorliegen, getrennt werden. Details zum hier verwendeten Aufbau und den Bedingungen, die zu erfüllen sind, um die Maxima klar voneinander zu trennen, werden in Abschnitt 5.2 beschrieben.

4. Impulsspektroskopie

Mit den Ergebnissen der 90er und frühen 2000er Jahre waren die durch reine Massenspektrometrie erzielbaren Erkenntnisse zur Natur des Heliumdimers erschöpft. Nach wie vor bestand jedoch großes Interesse mehr über die Eigenschaften dieses außerordentlichen Quantensystems zu erfahren. Drei Fragen standen und stehen im Vordergrund: Die Dynamik von Ionisationsprozessen des Heliumdimers bei Wechselwirkung mit Licht [46] und geladenen Teilchen [47, 48], der Ablauf des interatomaren Coulomb-Zerfalls in angeregten Dimerionen [49] und schließlich die Bestimmung der Bindungsenergie und der Form der Wellenfunktion.

Um Antworten auf diese Fragen zu erhalten, wurde ein komplett neuer Ansatz zur Untersuchung von Heliumclustern verfolgt: Die Impulsspektroskopie. Kern dieser Methode ist es die Fragmentation eines Atoms oder Moleküls zu betrachten, indem die entstehenden geladenen Bruchstücke detektiert werden. Dazu wird das Atom oder Molekül (allg.: das Target¹) ionisiert. Anschließend werden sämtliche elektrisch geladenen Bruchstücke durch ein elektrisches Feld auf orts- und zeitsensitive Detektoren geleitet. Dies erlaubt die Rekonstruktion der Impulsvektoren aller geladenen Teilchen zu Beginn der Fragmentation und ermöglicht damit einen Einblick in die Dynamik in der Quantenwelt.

Um einen unverfälschten Blick auf die Impulse zu erlangen, die durch die Ionisation und etwaige nachfolgende Zerfallsprozesse entstehen, soll das Target einen möglichst genau definierten Startimpuls besitzen. Die ungerichtete thermische Bewegung muss dazu minimiert werden, sie ist sonst limitierender Faktor in der Impulsauflösung². Durch den Einsatz eines Überschallgasstrahls können gut lokalisierte Targets erzeugt werden, deren interne Temperatur Auflösungen von weit unter 1 a.u. erlaubt [50](siehe auch 3.1).

Um nicht nur Ionen sondern auch Elektronen nachzuweisen, kann ein zweiter Detektor eingesetzt werden. Das gleiche Feld, das die positiv geladenen Ionen zum ersten Detektor bewegt, beschleunigt die negativ geladenen Elektronen in Richtung des gegenüberliegend zum ersten Detektor platzierten Elektronendetektors. Dabei ist die Feldstärke meist so

¹Das Zielobjekt einer Untersuchung wird meist *Target* genannt, von engl.: das Ziel

²Gasförmiges Helium hat bei Raumtemperatur z.B. eine Impulsverteilung die etwa 3,7 a.u. breit ist.

ausgelegt, dass die schnellsten Ionen noch auf den Detektor gelenkt werden. Die typischerweise wesentlich schnelleren Elektronen werden davon jedoch nicht stark genug abgelenkt. Damit auch sie den Detektor erreichen, wird ein Magnetfeld eingesetzt, das die Elektronen auf Spiralbahnen zwingt.

4.1. Vorangegangene Experimente

Die Methode kalte Gasstrahlen mit impulsspektroskopischen Mitteln zu untersuchen (COLTRIMS, für COLd Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy) wurde im Jahr 2009 erstmals angewandt, um Heliumcluster zu untersuchen [51]. Anfänglich wurde Synchrotronstrahlung genutzt, um aus dem Ionisationsprozess Rückschlüsse auf die Gestalt des Dimers zu gewinnen. Weitere Messungen untersuchten die Wechselwirkung der Heliumcluster mit leichten[47], schweren[52] und relativistischen Ionen[48]. Diese Experimente werden nachfolgend kurz umrissen.

4.1.1. Am Synchrotron

Photonen mit einer Energie weit über der Ionisationsschwelle von Helium wurden von einem Synchrotron³ bereitgestellt. Havermeier et al. [53][54] beobachteten das ein einzelnes solches Photon in der Lage ist einen Heliumcluster zweifach zu ionisieren. Je nach gewählter Photonenenergie E_γ sind hierbei verschiedene Mechanismen vorstellbar. Im ersten Schritt löst das Photon ein Elektron eines Heliumatoms im Cluster aus. Dafür wird eine Energie von 24,59 eV benötigt. Überschüssige Energie des Photons wird in kinetische Energie des Elektrons umgesetzt. Erhält das freiwerdende Elektron dabei eine kinetische Energie von mehr als 24,59 eV so kann es ähnlich einem Billiardstoß ein Elektron eines zweiten Atoms im Cluster auslösen. Dieser „Knock-Off“ genannte Prozess hinterlässt zwei einfach geladene Heliumionen. Aufgrund der Coulomb-Kräfte stoßen sich die beiden Ionen voneinander ab und werden dann durch das E-Feld des COLTRIMS-Spektrometers auf die Detektoren geleitet und nachgewiesen. Je näher sich die Ionen zu Beginn sind, desto stärker stoßen sie sich voneinander ab und desto größer ist der resultierende Relativimpuls, der schließlich gemessen wird. Aus dem Relativimpuls, beziehungsweise der freiwerdenden kinetischen Energie (KER⁴), kann also auf den anfänglichen internuklearen Abstand zurückgeschlossen werden. Details hierzu werden in Kapitel 6 beschrieben. Da die Wahrscheinlichkeit für den Knock-Off Prozess jedoch mit dem Quadrat des Abstandes der Heliumkerne voneinander abnimmt, konnte die

³BESSY II, Berlin lieferte Photonen mit einer Energie von $E_\gamma = 63,86$ eV und $68,86$ eV

⁴für engl.: kinetic energy release

Abstandsverteilung nur im Bereich kleiner Abstände untersucht werden, der für die unterschiedlichen Heliumclustergrößen nahezu identisch ist.

Wird die Photonenenergie noch weiter erhöht, so reicht die Energie eines einzelnen Photons aus, um ein Heliumatom einfach zu ionisieren und gleichzeitig sein zweites Elektron in einen angeregten Zustand zu heben. Das angeregte Heliumatom kann nun durch Aussenden eines Photons in seinen Grundzustand übergehen. Oder aber es kann, ähnlich einem Auger-Zerfall, die freiwerdende Energie in Form eines virtuellen Photons an seinen Cluster-Nachbarn abgeben, wo sie ausreicht ein Elektron auszulösen. Dieser Prozess wird interatomarer Coulomb-Zerfall (ICD⁵) genannt. Die gemessene KER-Verteilung gibt auch hier Aufschluss über die Abstandsverteilung zum Zeitpunkt des ICD und die Struktur der Vibrationswellenfunktion des He_2^{*+} Zwischenzustandes.

Die Heliumcluster wurden auch in diesen Experimenten durch die Überschallexpansion von Heliumgas erzeugt, hier durch eine Düse mit einem Durchmesser d_0 von 5 μm bei einer Temperatur T_0 von 18 K und einem Vordruck p_0 von 1,8 bar.

4.1.2. Mit leichten Ionen

Wenig später konnte ICD auch bei der Wechselwirkung von Heliumclustern mit α -Teilchen beobachtet werden [47]. Die α -Teilchen (He^{2+}) wurden von einem Van-de-Graaff-Beschleuniger mit einer Energie von $E_\alpha = 150$ keV bereitgestellt und mit einem Heliumgasstrahl gekreuzt⁶. Das COLTRIMS-System wurde nun genutzt, um die Ereignisse zu analysieren bei denen zwei geladene He^+ Ionen entstehen. Die Energieverteilung und die anschließende Projektilladung geben Rückschlüsse auf die Prozesse die hierbei ablaufen können. Dabei wurde entdeckt, dass Heliumcluster auch durch Wechselwirkung mit α -Teilchen den Anregungszustand erreichen können, auf den ICD folgt. Nachdem ein Atom des Clusters ionisiert und gleichzeitig elektronisch angeregt wurde, wird die Energie auf ein Nachbaratom übertragen, wo sie genügt es ebenfalls zu ionisieren.

Darüber hinaus wurden noch zwei weitere Prozesse beobachtet: Zum Einen kann ein α -Teilchen ein Atom des Clusters zweifach ionisieren. Darauf folgt eine Annäherung benachbarter Atome im Cluster aufgrund des entstandenen Dipolmoments. Bei ausreichender Annäherung wechselt ein Elektron vom Nachbaratom zum Ion. Dies hinterlässt zwei einfach geladene Ionen die Coulomb-explodieren, wobei der charakteristische Abstand zum Zeitpunkt des Ladungstransfers zu der typischen Aufbruchenergie führt, die diesen sogenannten Einstufenprozess identifizierbar macht.

⁵für engl.: Interatomic Coulombic Decay

⁶Zur Clustererzeugung wurde Heliumgas hier auf 25-30 K gekühlt und mit einem Vordruck von 8 bar durch eine 5 μm große Düse expandiert.

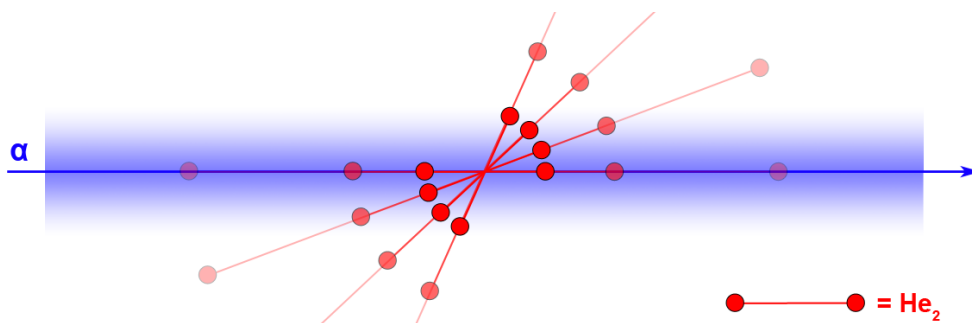


Abb. 4.1.: Vereinfachte Darstellung der Ionisationswahrscheinlichkeit $P(b)$ um die Trajektorie eines α -Teilchens. Heliumatome, die einen geringen Stoßparameter zur α -Trajektorie haben (blauer Bereich), werden ionisiert. Damit beide Atome ionisiert werden, muss das Dimer (rot) entlang der Trajektorie ausgerichtet sein. Je größer es ist (helleres rot), desto stärker die benötigte Ausrichtung.

Zum Anderen kann das α -Teilchen beim Passieren zwei unterschiedliche Atome des Clusters einfach ionisieren. Eine Ionisation ist prinzipiell nur möglich, wenn ein α -Teilchen ein Atom sehr dicht passiert, der Stoßparameter⁷ also klein ist. Zwei Heliumatome eines Clusters können also nur dann ionisiert werden, wenn die Stoßparameter zu beiden Atomen klein sind. Die Verbindungslinie der Atome muss somit annähernd parallel zur Projektiltrajektorie liegen. Dies gilt vor allem für lange Verbindungslinien beziehungsweise internukleare Abstände. Für kurze Abstände liegen die Kerne auch bei größerem Winkel zwischen Projektiltrajektorie und Verbindungslinie noch nah genug an der Trajektorie (siehe Abb. 4.1). Daraus resultiert eine charakteristische abstandsabhängige Winkelabhängigkeit des Ionisationsprozesses. Durch diese Abhängigkeit und die resultierenden niedrigen Aufbruchsenergien ist dieser Zweistufenprozess identifizierbar.

Findet ein Zweistufenprozess statt, so kann anhand der gemessenen Aufbruchsenergie prinzipiell auf den Anfangsabstand und damit die Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte der Wellenfunktion geschlossen werden. Allerdings ist die Ionisation von Clustern mit größeren internuklearen Abständen aufgrund der beschriebenen Geometrie so stark unterdrückt, dass auch hier der Zugang zur Abbildung der Wellenfunktion verwehrt blieb.

4.1.3. Mit schweren Ionen

Der Einstufenprozess und der Zweistufenprozess findet nicht nur bei der Wechselwirkung mit leichten α -Teilchen, sondern auch bei der Wechselwirkung mit langsamen hochgeladenen Ionen statt. Dies konnte 2011 in Experimenten an einer Elektron-Zyklotron-

⁷Der Stoßparameter ist der kleinste Abstand auf den das Projektil an das Target während des Passierens herankommt.

Resonanz Ionenquelle gezeigt werden [52]. Aufgrund der geringeren Projektilgeschwindigkeit und des höheren Ladungszustandes wird der Elektroneneinfang zur dominanten Ionisationsursache. Zudem vergrößert sich der Stoßparameter innerhalb dessen eine Ionisation des Targets sehr wahrscheinlich ist. Im Vergleich zur enormen Ausdehnung der Wellenfunktion des Helium Dimers bleibt er jedoch klein. Wie in den Experimenten mit leichten Ionen [47] besteht auch hier eine starke Abhängigkeit zwischen der relativen Lage von Molekül- und Projektilachse und der Ionisationswahrscheinlichkeit. Je größer der intermolekulare Abstand im Heliumdimer ist, desto kleiner wird der Raumwinkelanteil, für den beide Kerne einen kleinen Abstand zur Projektilachse haben. Daher sinkt die Wahrscheinlichkeit der zweifachen Ionisation eines Heliumdimers mit steigendem intermolekularem Abstand. So konnte auch hier keine Abbildung der Wellenfunktion erzeugt werden.

Darüber hinaus entsteht bei den verwendeten Expansionsbedingungen (Düsentemperatur $T_0 = 12$ K, Vordruck $p_0 = 3,8$ bar, Düsendurchmesser $d_0 = 5$ μm) eine Mischung aus verschiedenen Clustergrößen, vorherrschend Dimere und Trimere, aber auch geringe Anteile an größeren Clustern. Das wird durch den Nachweis von Dreiteilchenaufbrüchen bestätigt und legt den Schluss nahe, dass auch bei vorherigen Experimenten das Target nicht ausschließlich aus Monomeren und Dimeren bestand. Dreiteilchenaufbrüche konnten dort aus prinzipiellen Gründen nicht entstehen, oder waren äußerst unwahrscheinlich.

4.1.4. Mit relativistischen Ionen

Aus den beschriebenen Experimenten ging hervor, dass die Form der Vibrationswellenfunktion des Heliumdimers weder mithilfe von ionischer Strahlung noch mithilfe von Synchrotronstrahlung bei den verwendeten Intensitäten vermessen werden kann. Jedoch wurde daraus gelernt, dass das Heliumdimer aufgrund seiner enorm ausgedehnten Wellenfunktion als Werkzeug genutzt werden kann, um die Wechselwirkung mit ionischer Strahlung zu vermessen. Sie bietet einen Zugang zur Wahrscheinlichkeit mit der ein Ion ein Atom in Abhängigkeit des Stoßparameters zu ionisieren vermag, eine Größe die im Allgemeinen schwer zugänglich ist. Die zweifache Ionisation eines Moleküls bietet jedoch eine zusätzliche Messgröße: Den Winkel zwischen Molekül und Projektilstrahl. Und daraus kann auf die stoßparameterabhängige Ionisationswahrscheinlichkeit $P(b)$ zurückgeschlossen werden. Als Projektil verwendeten Kim et al. S^{14+} -Ionen mit einer Geschwindigkeit von 11,37 MeV/u (21,2 a.u.). Bei dieser Geschwindigkeit dominiert eine reine Targetionisation ohne Umladung des Projektils gegenüber des Elektroneneinfangs [48]. Damit liegt für beide Ionisationsschritte die gleiche Ionisationswahrscheinlichkeit $P(b)$ vor. Bei den verwendeten Expansionsbedingungen von $T_0 = 13$ K, $p_0 = 1.5$ bar

und einer Düsenöffnung d_0 von 5 μm ist neben Dimeren auch ein Anteil von Trimeren zu erwarten. Da die Ionisationswahrscheinlichkeit $P(b)$ von S^{14+} bei einem Stoßparameter b von 12 a.u. bereits auf unter 1 % abgefallen ist, trägt nur der innere Bereich der Target-Wellenfunktion zum Messergebnis bei, und der ist bei Dimer und Trimer nahezu identisch.

4.2. Impulsspektroskopie mit einem massenselektierten Clusterstrahl

Ähnlich wie bei den Experimenten von Luo et al. [33] konnte bei den bisher beschriebenen COLTRIMS-Experimenten ein Vorhandensein von Trimeren und größeren Clustern im Targetstrahl nicht ausgeschlossen werden. Um nun zweifelsfrei nur Dimere zu untersuchen bot die Historie der experimentellen Heliumdimeruntersuchung eine offensichtliche Lösung: Materiewellenbeugung. Der nächste Schritt war es also, das Jetsystem um ein Nanogitter zu erweitern. Das Jetsystem ähnelte nun dem Aufbau von Schöllkopf et al. [35] und war in der Lage räumlich getrennte Teilstrahlen unterschiedlicher Clustergrößen zu erzeugen. Doch statt dem damals verwendeten Massenspektrometer kam nun das Impulsspektrometer zum Einsatz, das viel umfassendere Untersuchungsmöglichkeiten in Aussicht stellte.

Durch das Aufteilen des Targetstrahles mit Hilfe der Materiewellenbeugung sank die Targetdichte stark ab. Weitere Reduktionen der Targetdichte entstanden dadurch, dass die Transmission des Beugungsgitters nur etwa 34 % betrug, und ein großer Abstand zwischen Düse und Spektrometer bestand. Der große Abstand wurde benötigt, um die Beugungsordnungen, und damit die Clustergrößen, räumlich voneinander zu trennen. Die Trennung ist abhängig vom Beugungswinkel, der bei fixer Geschwindigkeit der Teilchen im Gasjet durch die Masse der unterschiedlichen Clustergrößen festgelegt ist (siehe Gleichung 3.5). Bei definiertem Winkel kann eine größere Separation also nur durch Verlängerung der Teilchenflugbahn erreicht werden. Dazu wurde eine Länge von etwa einem halben Meter zwischen Reaktionszone und Gitter, und einem weiteren halben Meter zwischen Gitter und Düse vorgesehen. Die geringe Targetdichte muss durch eine hohe Doppelsondierungswahrscheinlichkeit kompensiert werden, um auch weiterhin eine Reaktionsrate zu erreichen, bei der in vertretbarer Zeit die angestrebte Statistik erzielt werden kann.

Um das Heliumdimer zu untersuchen, sind an das Projektil nun also zwei Anforderungen gestellt: Zum Einen soll die Wahrscheinlichkeit Helium zu ionisieren nahe 1 sein, so dass möglichst alle Kerne im Cluster mindestens einfach ionisiert werden. Zum Anderen soll

der Ionisationsprozess, im Gegensatz zur Ionisation mit ionischer Strahlung, unabhängig von der Geometrie des Targets und dessen Lage im Raum sein. In dieser Arbeit werden zwei Projektilquellen eingesetzt, die diese Anforderungen erfüllen: Ein Titan-Saphir Laser (Ti:Sa-Laser) und ein Freier Elektronen Laser (FEL). Der nächste Abschnitt gibt zunächst einen Überblick über die Ergebnisse, die vor Beginn dieser Arbeit in Messungen mit einem Ti:Sa-Laser gewonnen wurden.

4.2.1. Vorangegangene Messungen mit Ti:Sa-Laserpulsen

Im Jahr 2012 und den Folgejahren nutzten Voigtsberger et al. einen Ti:Sa-Laser, um Heliumcluster zu untersuchen [55]. Ein solcher Laser stellt intensive Laserpulse von Photonen mit einer Wellenlänge von 780 nm bereit, also infrarotes Licht nahe dem sichtbaren Bereich. Bei der verwendeten Laserintensität von $2 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ wurde jedes Heliumatom mit einer Wahrscheinlichkeit von nahezu 100 % ionisiert. Die Funktionsweise des Lasers und der Prozess nach dem das Helium-Ionisationspotential von 24,59 eV überwunden werden kann, obwohl jedes Photon nur eine Energie von 1,55 eV besitzt, wird in den Abschnitten 4.3.2 und 4.3.3 ausführlich beschrieben.

Der experimentelle Aufbau bestand aus einem COLTRIMS-System dessen Gasjet durch ein Transmissionsgitter gebeugt werden konnte, und ist der direkte Vorgänger der in dieser Arbeit verwendeten Apparatur. Per Beugung konnte der Gasstrahl in Teilstrahlen aufgeteilt werden, die nur aus Dimeren oder Trimeren bestanden. Der Aufbau ermöglichte eine detaillierte Untersuchung des homonuklearen Trimers ${}^4\text{He}_3$ und des heteronuklearen Trimers ${}^3\text{He}{}^4\text{He}_2$. Die Bindungsenergie von ${}^4\text{He}_3$ beträgt nur etwa 11 μeV . Die durchgeführten Messungen konnten zeigen, dass diese Energie zu gering ist, um dem Trimer eine starre Form zu geben. Stattdessen kommt es in allen möglichen Dreiecks-konfigurationen mit nahezu gleicher Wahrscheinlichkeit vor, ihm fehlt sozusagen jegliche Struktur [56].

Das heteronukleare Trimer ${}^3\text{He}{}^4\text{He}_2$ hat eine noch geringere Bindungsenergie. Auch hier besteht eine extreme Delokalisierung der einzelnen Atome. Hier konnte jedoch gezeigt werden, dass durch die ungleichen Konstituenten bevorzugt eine T-förmige Struktur entsteht, bei der sich die beiden ${}^4\text{He}$ -Atome näher stehen, und das leichtere ${}^3\text{He}$ -Atom einen größeren Abstand zu ihnen einnimmt.

Für das Heliumdimer konnte eine Bindungsenergie von 147 (+20,4/-14,4) neV ermittelt werden. Dieser Wert widerspricht dem experimentellen Ergebnis von Grisenti et al.[12] von 95 (+26/-17) neV, ist aber mit dem Theoriewert von Przybytek et al.[22] vereinbar ($139 \pm 2,5 \text{ neV}$).

Diese Untersuchungen verdeutlichten die umfassenden Möglichkeiten, die die Integration

eines Beugungsgitters in ein COLTRIMS-System eröffnet. Es wurden hohe Ionisationswahrscheinlichkeiten erreicht und das Betragsquadrat der Vibrationswellenfunktion des Dimers konnte rekonstruiert werden. Der angegebene Messfehler resultierte aus Schwierigkeiten beim Erreichen der hohen Anforderung an die Kalibrierung. Dies wird einer der Anknüpfungspunkte sein, um die Bindungsenergie mit noch geringerer Unsicherheit zu bestimmen. Im Rahmen dieser Arbeit werden also präzisere Messungen am Ti:Sa-Laser angestrebt. Darüber hinaus soll die Ionisation per Photoeffekt untersucht werden.

4.3. Physikalische und technische Voraussetzungen dieser Arbeit

Auf dem Fundament all der gesammelten Erfahrungen der bisherigen Experimente stehen die in dieser Arbeit präsentierten Untersuchungen und Ergebnisse, die die erneute Ionisation des Dimers am Femtosekunden-Laser und schließlich am Freien Elektronen Laser umfassen.

In den nächsten zwei Abschnitten folgt eine Beschreibung des atomaren Photoeffekts und der Tunnelionisation. Dies sind die beiden relevanten Prozesse für die in dieser Arbeit durchgeführten Messungen. Darauf folgen zwei Abschnitte in denen die Funktionsweisen der verwendeten Lichtquellen erklärt werden.

4.3.1. Photoionisation

Ein Atom kann durch Absorption eines einzelnen Photons ionisiert werden. Dazu muss die Energie des Photos $\hbar\omega$ die Bindungsenergie eines Elektrons I_P im Atom übersteigen. Die überschüssige Energie wird in kinetische Energie von Elektron und Ion umgewandelt, wobei das Elektron nahezu den gesamten Anteil erhält. Dies folgt aus der Impulserhaltung, nach der die Impulse beider Teilchen identisch sind ($p_e = -p_{ion}$), sofern der vergleichsweise kleine Photonenimpuls vernachlässigt wird. Durch die tausendfach größere Masse des Ions ist seine kinetische Energie gegenüber der des Elektrons unterdrückt. Es gilt

$$\hbar\omega = I_P + \frac{p_e^2}{2m_e} + \frac{p_{ion}^2}{2m_{ion}}. \quad (4.1)$$

Quantenmechanisch kann die Wechselwirkung von Licht mit einem Atom durch die zeitabhängige Schrödingergleichung beschrieben werden:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(r, t) = H(t) \Psi(r, t) \quad (4.2)$$

Für den einfachen Fall eines Ein-Elektronensystems in einem elektromagnetischen Feld hat der Hamiltonoperator die Form

$$H(t) = \frac{1}{2m} (-i\hbar\nabla + e\mathbf{A})^2 - \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon r}. \quad (4.3)$$

Sofern das Feld in Coulomb-Eichung beschrieben wird gilt $\nabla \cdot (\mathbf{A}\Psi) = \mathbf{A} \cdot (\nabla\Psi) + \underbrace{(\nabla \cdot \mathbf{A})\Psi}_{=0} = \mathbf{A} \cdot (\nabla\Psi)$, und damit

$$H(t) = -\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 - \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon r} - i\hbar\frac{e}{m}\mathbf{A} \cdot \nabla + \frac{e^2}{2m}\mathbf{A}^2. \quad (4.4)$$

Damit kann die Schrödingergleichung in einen zeitabhängigen und einen zeitunabhängigen Teil zerlegt werden, denn der Hamiltonoperator hat den zeitunabhängigen Teil

$$H_0 = -\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 - \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon r}, \quad (4.5)$$

und den zeitabhängigen Teil

$$H(t) = -i\hbar\frac{e}{m}\mathbf{A} \cdot \nabla + \frac{e^2}{2m}\mathbf{A}^2. \quad (4.6)$$

In einem schwachen Feld, wie etwa bei der Interaktion mit einem einzelnen Photon, kann der quadratische Term $\mathbf{A}^2$ vernachlässigt werden. Der verbleibende lineare Term kann als kleine Störung des zeitunabhängigen Terms H_0 betrachtet werden. Somit kann die Interaktion mit Hilfe der zeitabhängigen Störungstheorie behandelt werden. Sie liefert schließlich die Übergangswahrscheinlichkeiten W_{ab} zwischen den Zuständen $|a\rangle$ und $|b\rangle$, vor und nach der Wechselwirkung mit dem Photon, beziehungsweise einen absoluten Wirkungsquerschnitt σ_{ab} , der unabhängig von der Intensität $I(\omega)$ des Feldes ist:

$$\sigma_{ab} = \hbar\omega \frac{W_{ab}}{I(\omega)} = \frac{4\pi^2\alpha\hbar^2}{m^2\omega} |M_{ab}|^2 \quad (4.7)$$

Hierbei ist α die Feinstrukturkonstante und ω ergibt sich aus der Energiedifferenz zwischen den beiden Zuständen $|E_a - E_b|/\hbar$. [57]

Das Übergangsmatrixelement M_{ab} ist abhängig vom betrachteten Prozess, wobei gilt

$$M_{ab} = \langle\Psi_b|\mathbf{A} \cdot \nabla|\Psi_a\rangle \quad (4.8)$$

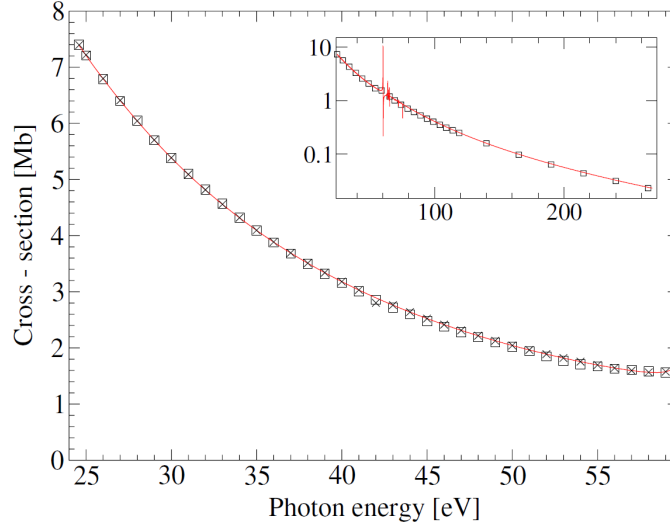


Abb. 4.2.: Totaler Wirkungsquerschnitt der Photoionisation von Helium (1S Grundzustand). Gezeigt sind sowohl theoretische Berechnungen (rote Linie)[58] als auch experimentelle Ergebnisse (Kästen)[59]. (Aus [58])

Für die Absorption kann das Vektorpotential des Strahlungsfeldes, das auf das Atom bei $r = 0$ trifft, als ebene Welle beschrieben werden, mit

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{A}_0 \hat{e}_{pol} \cdot e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)}, \quad (4.9)$$

wobei $\hat{e}_{pol}$ der Einheitsvektor in Polarisationsrichtung und $\mathbf{k}$ der Wellenvektor mit $|\vec{k}| = 2\pi/\lambda$ ist. Die Exponentialfunktion aus 4.9 kann als Reihe entwickelt werden, mit

$$e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})} = 1 + (i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) + \frac{1}{2!}(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})^2 + \dots \quad (4.10)$$

Wenn die Wellenlänge der elektromagnetischen Wellen λ groß gegenüber den Abmessungen des Atoms ist, so wird $\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} \ll 1$. Damit kann $e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})}$ mit 1 genähert werden, was als Dipolnäherung bekannt ist. Diese Annahme ist für Photonenenergien bis zu etwa 1 keV gerechtfertigt, und damit auch im XUV-Regime eines FEL gültig[60]. Das Übergangsmatrixelement vereinfacht sich zum Dipolmatrixelement

$$M_{ab} = \hat{e}_{pol} \cdot \langle \Psi_b | \nabla | \Psi_a \rangle = \hat{e}_{pol} \cdot \int \Psi_b^* \nabla \Psi_a \quad (4.11)$$

Der absolute Wirkungsquerschnitt 4.7 für die Absorption eines Photons wird damit zu

$$\sigma \propto \frac{Z^5}{n^3 (2\hbar\omega)^{7/2}}, \quad (4.12)$$

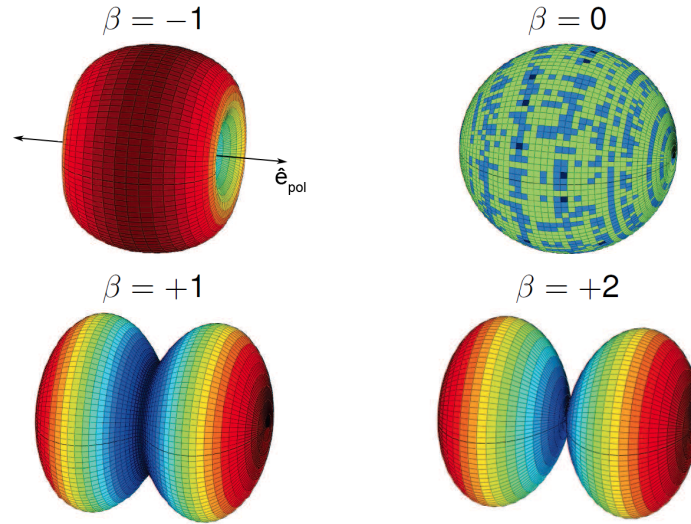


Abb. 4.3.: Winkelverteilungen des Wirkungsquerschnittes linear polarisierter Photonen für β -Parameter von -1, 0, 1 und 2. Die Verteilungen sind rotationssymmetrisch um die Polarisationsachse $\hat{e}_{pol}$ (aus [62]).

wobei Z die Kernladungszahl und n die Hauptquantenzahl ist[61]. In Abb. 4.2 ist die charakteristische Form dieses Wirkungsquerschnittes am Beispiel von Helium gezeigt. Der Ionisationsprozess wird möglich, sobald die Photonenenergie das Ionisationspotential übersteigt, und fällt dann mit zunehmender Energie entsprechend $(\hbar\omega)^{-7/2}$ ab. Mit der Dipolnäherung und Fermis Goldener Regel⁸ kann auch der differentielle Wirkungsquerschnitt bestimmt werden. Für linear polarisierte Photonen ist

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = 4\pi^2 \alpha \omega k |\hat{e}_{pol} \cdot D_{ba}|^2 = \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} \left[1 + \beta \underbrace{\left(\frac{3}{2} \cos^2(\Theta) - \frac{1}{2} \right)}_{\text{2. Legendre Polynom } P_2} \right]. \quad (4.13)$$

Der Asymmetrieparameter β bestimmt die Form der Winkelverteilung. Wird gefordert, dass der Wirkungsquerschnitt nicht negativ werden kann, so folgt ein Wertebereich für β von $[-1, 2]$. Die zugehörigen Winkelverteilungen sind rotationssymmetrisch um die Polarisationsrichtung $\hat{e}_{pol}$. Befindet sich das absorbierende Atom im s-Zustand (Drehimpuls $l = 0$), so ist β stets 2, und es ergibt sich die typische Dipolverteilung (siehe Abb. 4.3).

Bei gegebenem Wirkungsquerschnitt σ kann die Wahrscheinlichkeit P_σ für die Ionisation eines im Fokus befindlichen Heliumatoms bestimmt werden. Die Ionisationswahrschein-

⁸Fermis Goldene Regel gibt die Übergangsrate W_{ba} zwischen zwei Zuständen an. Die Rate ist proportional zum differentiellen Wirkungsquerschnitt.

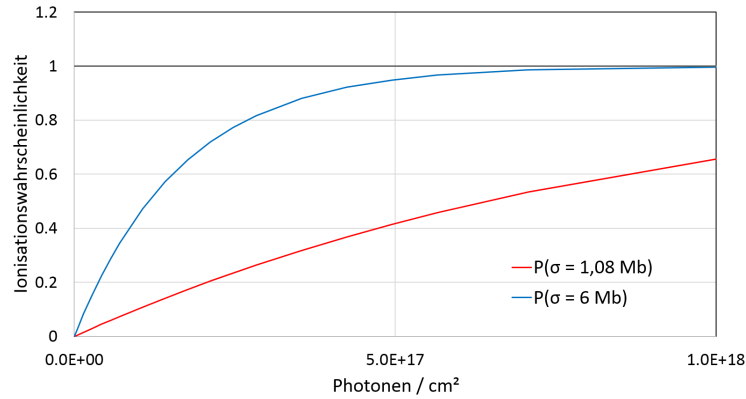


Abb. 4.4.: Ionisationswahrscheinlichkeiten in Abhängigkeit der Photonendichte für die Ionisation von Helium für Photonenenergien von 28 eV (blau, $\sigma = 6$ Mb) und 67 eV (rot, $\sigma = 1,08$ Mb) und eine Fokusgröße ω_0 von 15 μm .

lichkeit steigt in Abhängigkeit der Photonen N_γ im Fokus. Für jedes zusätzliche Photon muss entsprechend der Poisson-Statistik berücksichtigt werden, ob das Atom bereits durch ein anderes Photon ionisiert wurde. Bei einem Fokus mit Tailenradius ω_0 ist die Ionisationswahrscheinlichkeit gegeben durch

$$P_\sigma = 1 - \left(1 - \frac{\sigma}{2\pi\omega_0^2}\right)^{N_\gamma}. \quad (4.14)$$

Die Ionisationswahrscheinlichkeit kann nun gegen die Photonendichte aufgetragen werden, die sich bei entsprechender Photonenzahl im Fokus ergibt. Abbildung 4.4 zeigt diese Abhängigkeit exemplarisch für die Fokusgröße von FLASH ($\omega_0 = 15 \mu\text{m}$) und für Wirkungsquerschnitte σ von 6 Mb und 1,08 Mb, die bei Helium für Photonenenergien von 28 eV und 67 eV erreicht werden.

4.3.2. Ionisation im starken Laserfeld

Ti:Sa-Laser können gepulste Photonenstrahlen bei einer Wellenlänge von 800 nm erzeugen. Ein einzelnes Photon hat hierbei eine Energie von 1,55 eV. Viel weniger also als die Energie I_P von 24,59 eV[63], die benötigt wird, um Helium via Photoeffekt zu ionisieren. Bei ausreichend hoher Photonendichte können jedoch alternative Ionisationsmechanismen ablaufen. Für deren Beschreibung wird der Laserpuls als elektrisches Wechselfeld dargestellt.

Ein Atom ist in einem Laserfeld einem harmonisch schwingenden elektromagnetischen Feld $F = F_0 \cos(\omega t)$ ausgesetzt. Dieses Feld beeinflusst hauptsächlich die Elektronen, während der weitaus schwerere Kern als ruhend betrachtet werden kann. Die oszillieren-

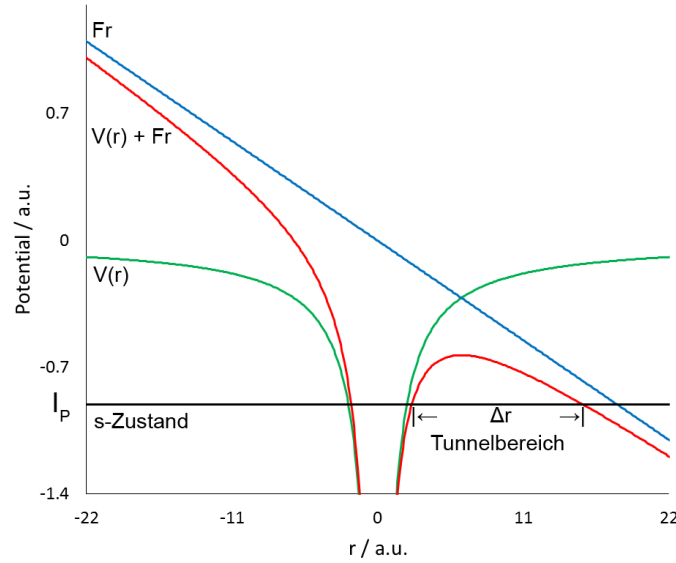


Abb. 4.5.: Überlagerung des atomaren He-Potentials $V(r)$ (grün) und des starken Laserfeldes F (blau). Im resultierenden Potential (rot) entsteht eine Barriere der Breite Δr , durch die das Elektron tunneln kann.

de Bewegung eines Elektrons im Laserfeld kann klassisch durch

$$m_e \frac{dv}{dt} = eF_0 \cos(\omega t) \quad (4.15)$$

beschrieben werden, wobei das Coulomb-Potential nicht berücksichtigt wird. Die Geschwindigkeit des Elektrons, das zur Zeit $t = 0$ mit Geschwindigkeit null in das Feld gesetzt wurde, ist dann

$$v(t) = \frac{eF_0}{m_e\omega} \sin(\omega t), \quad (4.16)$$

und seine kinetische Energie

$$E_{kin_e} = \frac{1}{2} m_e v^2 = \frac{e^2 F_0^2}{2m_e\omega^2} \sin^2(\omega t). \quad (4.17)$$

Die mittlere Energie, die in dieser oszillierenden Bewegung steckt, wird ponderomotorisches Potential U_P genannt, und ist gegeben durch

$$U_P = \frac{1}{2} m_e \langle v^2 \rangle = \frac{e^2 F_0^2}{4m_e\omega^2} = \frac{e^2}{8\pi^2 \epsilon_0 c^3 m_e} I_0 \lambda^2. \quad (4.18)$$

Die Stärke des ponderomotorischen Potentials U_P wird von der Laserintensität I_0 und der Wellenlänge λ bestimmt. Wie stark U_P den Ionisationsprozess beeinflusst, wird durch

seine Relation zur Bindungsenergie des Elektrons im Atom I_P bestimmt. Bei kurzen Wellenlängen des XUV-Bereichs ist U_P vernachlässigbar klein, und kann als kleine Störung behandelt werden (siehe Abschnitt 4.3.1). So ergibt sich bei einer Wellenlänge von 18,5 nm und einer Intensität von 10^{15} W/cm² beispielsweise ein U_P von 0,03 eV. Laserpulse mit Wellenlängen im IR-Bereich, wie etwa von einem 800 nm Ti:Sa-Laser, erreichen bei einer Intensität von 10^{14} W/cm² jedoch ein ponderomotorisches Potential U_P , das mit typischen Bindungsenergien vergleichbar ist. Es ist damit stark genug, um das atomare Potential zu deformieren. Im extremen Fall wird das Potential so stark verbogen, dass die Elektronen das Atom ungehindert verlassen können (*Over Barrier Ionization*). Doch auch schon bevor dieser Fall eintritt besteht die Möglichkeit der Ionisation: Im verzerrten Potential entsteht ein Zustand in dem eine Potentialbarriere begrenzter Breite das Elektron vom ungebundenen Zustand im Kontinuum trennt. In der quantenmechanischen Beschreibung eines solchen Elektrons besteht eine gewisse Wahrscheinlichkeit die Barriere zu durchtunneln. Die Tunnelwahrscheinlichkeit hängt dabei von Höhe und Breite, beziehungsweise der Form der Potentialbarriere ab.[61]

Um verschiedene Bereiche der Ionisation im Laserfeld zu unterscheiden, führte Keldysh den nach ihm benannten Parameter ein, der U_P und I_P miteinander vergleicht[64]:

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_P}{2U_P}} \quad (4.19)$$

Ein Keldysh-Parameter⁹ von $\gamma \gg 1$, also $I_P \gg U_P$, indiziert den Bereich der Photo- oder Multiphotonenionisation. Die Multiphotonenionisation kann im Rahmen einer Störungsrechnung n-ter Ordnung behandelt werden. Die Rate der n-Photonen Absorption ist hier proportional zu I^n ¹⁰.

Für $\gamma < 1$ verzerrt das Laserfeld das Potential des Atoms oder Moleküls maßgeblich. Die Verzerrung ist so stark, dass gebundene Elektronen durch eine zeitlich oszillierende Potentialbarriere von einem ungebundenen Zustand getrennt sind. Durch diese Barriere kann das Elektron tunneln, $\gamma < 1$ markiert also den Bereich der Tunnelionisation. Die Wellenlänge des Lasers ist dabei typischerweise weitaus größer als das Atom. Zu jedem

⁹Dies kann umformuliert werden zu einem Vergleich zwischen der Periode des Laserfeldes τ_L und der klassischen Zeit τ_T , die das Elektron benötigen würde, um den Tunnelpfad zurückzulegen: $\gamma = \tau_T / \tau_L$. Anschaulich beantwortet sich die Frage ob das Elektron tunnelt also, indem getestet wird ob die Zeit, für die die begrenzte Potentialbarriere besteht, ausreicht damit das Elektron den Tunnelpfad zurücklegen kann. Experimente haben ergeben, dass die genauere Grenze für Tunnelionisation bei $\gamma < 0,5$ liegt [65].

¹⁰Zur Ionisation von Helium mit einem 800 nm Laser werden beispielsweise $I_P/(\hbar\omega) = 24,59$ eV / 1,55 eV = 16 Photonen benötigt. Dies ist nur bei ausreichend hohem Photonenfluss möglich.

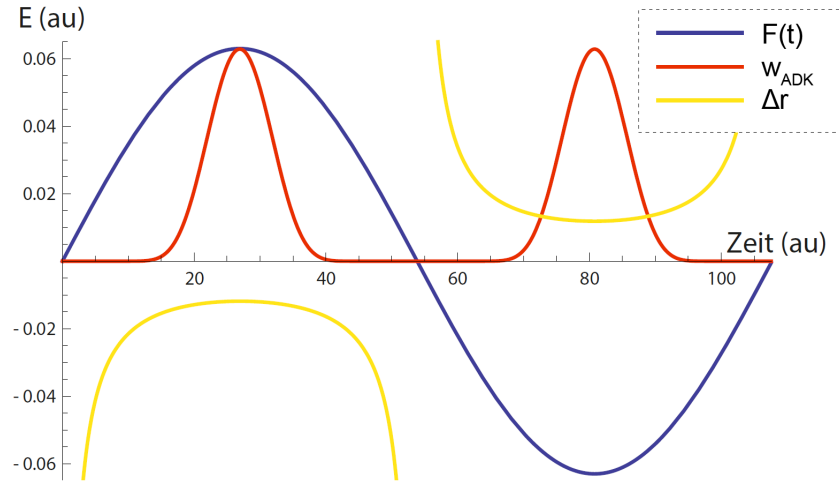


Abb. 4.6.: Elektrische Feldstärke eines Laserpulses $F(t)$ während einer Laserperiode. Mit der zeitlichen Veränderung des Laserfeldes $F(t)$ (blau) ändern sich die Breite der Potentialbarriere Δr (gelb, normiert) und die Ionisationswahrscheinlichkeit ω_{ADK} (rot, normiert). (aus [66])

Zeitpunkt wird das atomare Potential also von einem simplen Potential mit monotoner Steigung überlagert. Abbildung 4.5 illustriert die sich überlagernden Potentiale. Während einer Periode ändert sich die Breite der Potentialbarriere Δr in Abhängigkeit des Ionisationspotentials I_P und dem elektrischen Feld des Lasers F mit

$$\Delta r = 2\sqrt{\left(\frac{I_P}{F}\right)^2 - \frac{1}{F}}. \quad (4.20)$$

Die schmalste Potentialbarriere Δr_{min} wird für den höchsten Wert der elektrischen Feldstärke F_{max} innerhalb der Laserperiode erreicht. Hier besteht die höchste Tunnelwahrscheinlichkeit.

Für linear polarisiertes Licht ergibt sich eine Ionisationsrate ω_{ADK} von

$$\omega_{ADK} = \sqrt{\frac{3Fn^{*3}}{\pi Z^3} \frac{FD^2}{8\pi Z}} e^{-\frac{2Z^3}{3n^{*3}F}}. \quad (4.21)$$

Bei dieser sogenannten ADK-Formel[67] steht Z für die Kernladungszahl, n^* für die effektive Hauptquantenzahl ($Z/\sqrt{2I_P}$) und D für $(4eZ^3/Fn^{*4})^{n^*}$ (e ist hier die Eulersche Zahl). Die sinusförmig schwankende Feldstärke in einem Laserpuls führt also zu einer veränderlichen Potentialbarriere und folglich einer veränderlichen Tunnelwahrscheinlichkeit. Die Abhängigkeit während einer Laserperiode ist qualitativ in Abb. 4.6 dargestellt. Hier ist zu erkennen, dass die Tunnelwahrscheinlichkeit über weite Teile des Pulses nahezu null ist und nur während des Feldmaximums stark ansteigt. Zu beachten ist, dass die

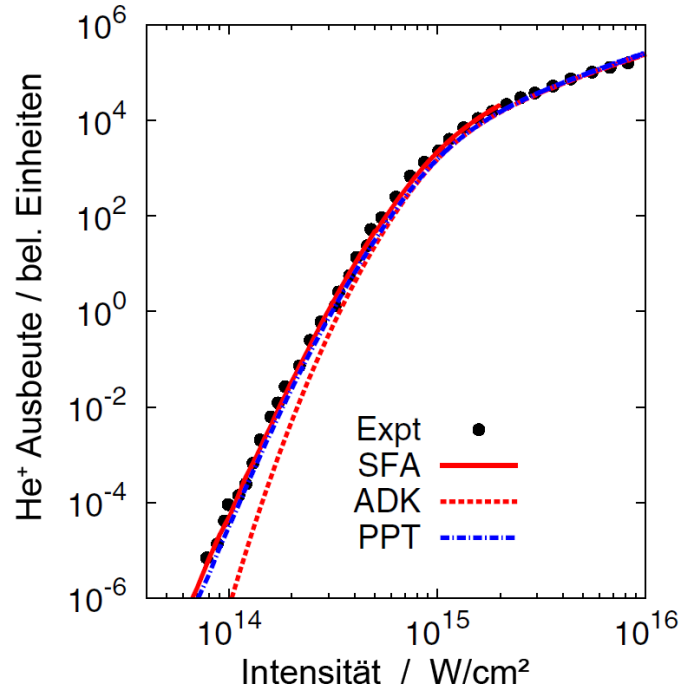


Abb. 4.7.: Vergleich der Ionisationswahrscheinlichkeit nach theoretischen Modellen (ADK, PPT und SFA) mit Messdaten von Walker et al.[68] zur Einfachionisation von Helium mit linear polarisierten 160-fs Laserpulsen bei 780 nm. (aus [70])

vorgestellte Tunnelrate ω_{ADK} nur für die Ionisation eines s-Zustandes gültig ist, also nur für die Ionisation von Atomen ohne Drehimpuls.

Die Ionisationswahrscheinlichkeit wird durch Integration der Ionisationsraten über einen gesamten Laserpuls ermittelt. Sie kann in Abhängigkeit des Feldmaximums F_0 beziehungsweise der maximalen Laserintensität I_0 angegeben werden, die während des Pulses erreicht werden. Abbildung 4.7 zeigt diese Abhängigkeit für einen 160 fs Puls bei 780 nm. Für Laserintensitäten oberhalb von $4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ besteht eine gute Übereinstimmung zwischen dem ADK-Modell und Messwerten von Walker et al.[68] sowie dem PPT-Modell¹¹ und dem SFA-Modell¹². Bei $1 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ wird die Ionisation von Helium gesättigt, oberhalb davon steigt die Helium-Ausbeute nur noch aufgrund des wachsenden Fokusvolumens.

Die ADK-Theorie beschreibt zudem die Abhängigkeit der Ionisationsrate von den Impulsen der Photoelektronen nach deren Beschleunigung im Laserfeld $\omega(p)$. Dabei wird angenommen, dass der Startimpuls eines Elektrons parallel zur Polarisationsrichtung $p_{\parallel}$

¹¹PPT steht für die Namensgeber Perelomov, Popov und Terent'ev[69]

¹²SFA steht für strong field approximation

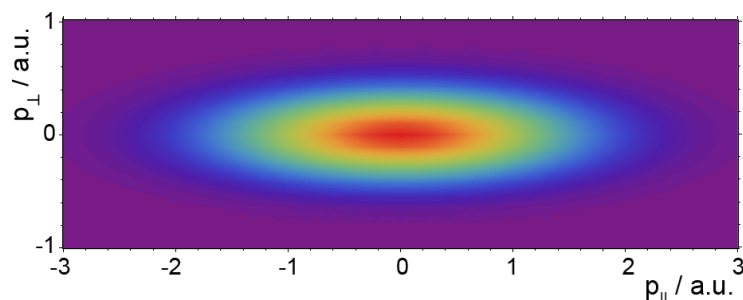


Abb. 4.8.: Ionisationsrate in Abhängigkeit der Impulse $p_{\parallel}$ und $p_{\perp}$ für linear polarisiertes Licht mit einer Wellenlänge λ von 780 nm, einer Intensität I_0 von $1 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ und dem Ionisationspotential von Helium $I_P = 24,59 \text{ eV}$. Maximal kann das Elektron einen Impuls von $2\sqrt{U_P} = 3,42 \text{ a.u.}$ aufnehmen.

direkt nach dem Tunneln durch die Barriere null ist. Die Ionisationsrate ist

$$\omega(p_{\parallel}, p_{\perp}) = \omega_{ADK} \cdot e^{-\frac{\omega^2 \sqrt{2I_P}^3}{3F^3} p_{\parallel}^2 - \frac{\sqrt{2I_P}}{F} p_{\perp}^2}. \quad (4.22)$$

Durch Einsetzen unterschiedlicher Endimpulse $p_{\parallel}$ und $p_{\perp}$ kann hiermit die Wahrscheinlichkeit für ihr Auftreten berechnet werden. Abbildung 4.8 zeigt die Ionisationsrate in Abhängigkeit der Impulse exemplarisch für die im Experiment verwendeten Laserparameter und Atomeigenschaften.

4.3.3. Funktionsweise eines Ti:Sa-Lasers

Ein Titan-Saphir-Laser ist eine Quelle kohärenten monochromatischen Lichts. Die Bezeichnung „Laser“ ist ein Akronym, das auf die Funktionsweise der Quelle hinweist, Licht durch die stimulierte Emission von Strahlung zu verstärken (Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation). Bei der Strahlung, die emittiert wird, handelt es sich um Photonen, die durch den Übergang angeregter Atome in einen energetisch günstigeren Zustand erzeugt werden. Damit diese Atome Photonen emittieren können, müssen sie also zuerst in einen angeregten Zustand versetzt werden. Diese Anregung wird meist durch Einstrahlung von Licht (z.B. durch einen Pump laser) realisiert, kann aber auch elektrisch (z.B. durch Gasentladung) erzeugt werden. Damit ein Laser funktioniert, muss ein Großteil der Atome in den angeregten Zustand gebracht und damit eine sogenannte Besetzungsinversion erreicht werden. Sie ist Voraussetzung dafür, dass ein spontan emittiertes Photon eine Photonenlawine auslösen kann.

Gibt es im Lasermedium nur zwei Zustände (Zweiniveausystem) ist eine Besetzungsinversion jedoch unerreichbar. Der Grund dafür ist, dass die Wahrscheinlichkeit eines

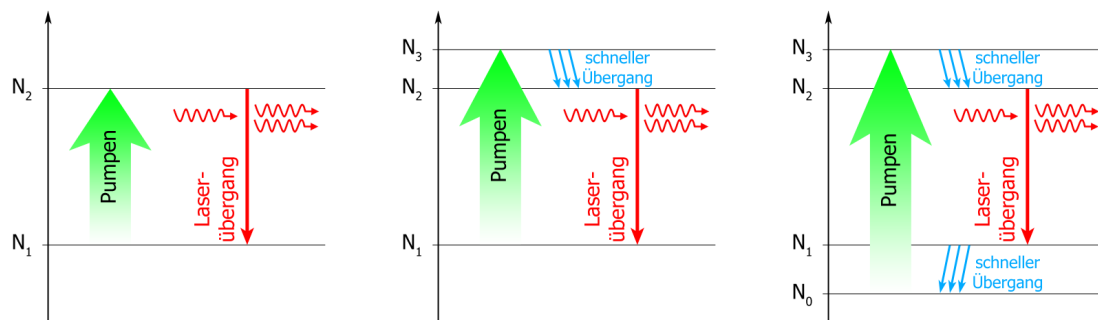


Abb. 4.9.: Schemata von Zwei-, Drei- und Vierniveausystemen. In einem Zweiniveausystem ist keine Besetzungsinversion möglich, denn im Gleichgewicht zwischen nur zwei Zuständen wird der niederenergetischere häufiger besetzt. Erst ein Dreiniveausystem mit kurzlebigen Pumpzustand N_3 ermöglicht die Inversion. Noch einfacher zu erreichen ist sie in einem Vierniveausystem, in dem der untere Laserzustand N_1 ebenfalls kurzlebig ist.

Atome im energetisch niedrigeren Zustand N_1 ein Photon zu absorbieren¹³ genauso groß ist wie die Wahrscheinlichkeit, dass ein Atom im angeregten Zustand N_2 ein Photon durch stimulierte Emission abgibt. Nach einer gewissen Zeit des Anregens (Pumpens) stellt sich ein Gleichgewicht in den Besetzungen der Zustände ein. Gäbe es nur Absorption und stimulierte Emission läge das Gleichgewicht der Zustände N_1 und N_2 bei einem Verhältnis von 1:1. Doch auch durch spontane Emission gelangen Atome vom angeregten Zustand N_2 zurück in den unteren Zustand N_1 , und somit befinden sich in einem Zweiniveausystem stets mehr Teilchen im unteren Zustand als im oberen.

Dies ändert sich, wenn ein kurzlebiger dritter Zustand N_3 oberhalb der beiden bisher beschriebenen existiert. Das Pumpen erfolgt nun von Zustand N_1 nach N_3 . Durch spontane Emission oder strahlungslosen Übergang gehen alle angeregten Atome schnell in Zustand N_2 über (siehe Abb. 4.9). Im Gegensatz zum Zweiniveausystem stimuliert der Pumpvorgang hier keine Emission aus Zustand N_2 . Bei ausreichender Pumpleistung wird Zustand N_2 schneller populiert als er zerfällt und eine Besetzungsinversion wird erreicht. Noch leichter wird die Besetzungsinversion zwischen N_2 und N_1 mit Hilfe eines vierten, energetisch niedrigsten Zustands N_0 erreicht. In diesem Vierniveausystem wird Energie von Zustand N_0 nach N_3 gepumpt. Hat Zustand N_1 eine sehr geringe Lebenszeit, so ist er praktisch nie besetzt. Damit führt das Besetzen von Zustand N_2 stets zum Erreichen einer Besetzungsinversion. Moderne Laser besitzen zum Teil noch weitere Zustände, ihre Funktionsweise basiert jedoch auf dem Vorhandensein dieser vier beschriebenen Zustände.

Das System, in dem die besprochenen Zustände vorkommen, wird aktives Medium ge-

¹³bei gleicher Entartung beider Zustände

nannt und ist meist namensgebend für den speziellen Lasertyp. In unserem Fall besteht das aktive Medium aus kristallförmigem Aluminiumoxid Al_2O_3 , das durch die Dotierung durch Titan zum Saphir wird, kurz Ti:Sa. Das Ti^{3+} -Ion besitzt eine geschlossene Schale und ein einzelnes 3d Elektron. Das fünffach entartete d-Elektronen Niveau wird im Feld des Al_2O_3 -Kristallgitters in einen dreifach entarteten Grundzustand $^2\text{T}_2$ und einen zweifach entarteten angeregten Zustand ^2E aufgespalten. Die Anregung von $^2\text{T}_2$ nach ^2E ist in einem breiten Wellenlängenbereich möglich. Die Absorptionsbanden können durch zwei gaußförmige Banden bei 488 nm und 556 nm mit einer Breite von je rund 100 nm beschrieben werden. Die Abregung von $^2\text{T}_2$ nach ^2E führt zu einem breiten Fluoreszenzspektrum um 780 nm [71].

Das Lasing wird durch ein spontan emittiertes Photon initiiert, das beim Übergang von N_2 nach N_1 entsteht. Herrscht Besetzungsinversion, so ist die Wahrscheinlichkeit hoch, dass das Photon ein weiteres Teilchen im angeregten Zustand N_2 trifft und dort die Emission eines weiteren Photons stimuliert. Ein Photon, das durch stimulierte Emission erzeugt wird, hat die gleiche Energie, eine identische Phasenlage und die gleiche Bewegungsrichtung wie das ursprüngliche Photon. Beide Photonen können nun weitere Emissionen stimulieren, es entsteht eine Kettenreaktion.

Um die Kettenreaktion zu verstärken, wird ein möglichst langer Weg der Photonen durch das Lasermedium angestrebt. Eine Methode diesen Weg künstlich zu verlängern ist es, die Photonen mit Hilfe von zwei sich gegenüberstehenden Spiegeln mehrfach durch das gleiche Medium zu leiten. Ein solcher Resonator ist nicht frei von Verlusten. Sie entstehen durch Absorption im Medium, aber auch durch Streuung und Auskopplung der Strahlung. Die Verstärkung durch eingepumpte Energie in das Medium muss diese Verluste übersteigen, die Laserschwelle also überschritten werden. Wird diese Voraussetzung erfüllt, kann einer der beiden Spiegel teildurchlässig sein und es entsteht ein kontinuierlicher Laserstrahl (siehe Abb. 4.10).

In einem Resonator können nur Wellenlängen λ verstärkt werden, deren ganzzahlige Vielfache der doppelten Resonatorlänge L entsprechen ($2L = n \cdot \lambda$), denn dann Überlagern sich die hin und her laufenden Photonen konstruktiv und es entstehen stehende Wellen der Mode n . Andere Wellenlängen werden durch destruktive Interferenz ausgelöscht. Da die Resonatorlänge L in der Praxis sehr viel größer ist als die Wellenlänge λ ist die Modenzahl n hoch (etwa 10^5 bis 10^6). Die verstärkten Wellenlängen λ_n liegen deshalb sehr dicht beieinander, mit einem Wellenlängeunterschied von $\Delta\lambda = 2L/n^2 + n$. Die Bandbreite des Lichts, das Lasermedien zu emittieren vermögen, ist typischerweise viel größer als $\Delta\lambda$, und so werden zumindest einige, wenn nicht einige Tausend Moden

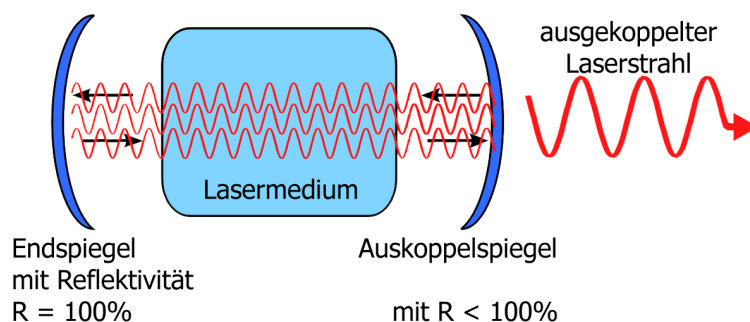


Abb. 4.10.: Schematische Darstellung eines Laserresonators. Im Resonator werden erzeugte Photonen mehrfach durch das Lasermedium gelenkt, um weitere Photoemissionen zu stimulieren. (verändert nach Sgbeer, CC BY-SA 3.0).

angeregt.

Statt kontinuierlich wenig Licht aus dem Resonator auszukoppeln, kann auch kurzzeitig sehr viel Licht ausgekoppelt werden. So können bei gleicher Pumpleistung kurze Laserpulse von hoher Intensität erreicht werden. Dazu wird entweder das Auskoppeln kurzzeitig verstärkt¹⁴ oder der Pumpvorgang selbst wird moduliert¹⁵. Noch effizienter ist die sogenannte Güteschaltung (Q-Switching) bei der die Resonatorverluste künstlich hoch gehalten werden, damit die Verstärkung zunächst nicht genügt, um die Laserschwelle zu übersteigen. So kann mehr Energie in das Medium gepumpt und ein höherer Grad der Besetzungsinversion erreicht werden. Dann wird die Resonatorgüte schlagartig erhöht, die Verluste entsprechend minimiert und die Kettenreaktion der stimulierten Emission setzt ein. Aufgrund des hohen Inversionsgrades verläuft sie beschleunigt und führt zu einem scharfen Maximum an Laserintensität, das rasch ausklingt. So können Pulse von wenigen Nanosekunden Länge und hohen Energien von etwa 1 J erzeugt werden.

Noch kürzere Laserpulse lassen sich nur durch Modenkopplung (mode locking) erzeugen. Bei Lasern mit breitem Emissionsspektrum¹⁶ erfüllt eine sehr große Anzahl an Wellenlängen die Resonatorbedingung ($2L = n \cdot \lambda$) und wird verstärkt. Sobald die Besetzungsinversion erreicht ist, beginnen alle Moden unabhängig voneinander mit zueinander variierenden Phasen zu oszillieren. Ihre Überlagerung führt zu einer zeitlich fluktuierenden Intensität. Bei hoher Modenanzahl neigen die Interferenzeffekte dazu sich herauszumitteln und eine gleichmäßige Intensität entsteht.

Ein ganz anderes Resultat ergibt sich, wenn stattdessen eine feste Phasenbeziehung zwischen allen Moden besteht: In periodischen Zeitabständen überlagern sich alle Moden

¹⁴z.B. durch eine rotierende Lochblende

¹⁵z.B. indem die Besetzungsinversion durch eine Blitzlampe erzeugt wird

¹⁶hoher Bandbreite

konstruktiv und es entsteht ein intensiver Laserpuls. Die entstehende Interferenz gleicht der in Abb. 3.8 gezeigten, stünde Zeit auf der y-Achse und N für die Modenanzahl. Mit steigender Modenzahl N werden die erzeugten Laserpulse also zeitlich kürzer und intensiver¹⁷.

Die Phasen der Moden können entweder aktiv oder passiv gekoppelt werden. Bei der aktiven Kopplung werden die Resonatorverluste durch ein externes Signal moduliert. Ein akusto-optischer Schalter kann eine sinusförmige Modulation der Amplitude im Resonator erzeugen. Wird die Amplitude einer optischen Frequenz ν mit einer Frequenz f moduliert, entstehen Seitenbänder bei Frequenzen von $\nu - f$ und $\nu + f$. Ist nun die Frequenz der Amplitudenmodulation f gerade so groß wie der Abstand zwischen den Moden $\Delta\nu$, so modulieren die Seitenbänder gerade die benachbarten Moden. Da die Modulation und ihre Seitenbänder in Phase sind, werden auch die zentrale Mode und die benachbarten Moden phasengekoppelt. Nach gleichem Schema werden weitere Seitenbänder erzeugt und die nächsten Nachbarn phasengekoppelt, bis schließlich Moden der gesamte Bandbreite gekoppelt sind.

Alternativ kann ein elektro-optischer Modulator genutzt werden, um die Frequenz im Resonator zu modulieren. Er erzeugt eine sinusförmig variierende Frequenzverschiebung. Entspricht die Periode gerade der Umlaufzeit im Resonator, so werden manche Frequenzen bei jedem Umlauf frequenzverschoben bis sie nicht mehr im Verstärkungsbereich des Resonators liegen. Nur Licht das den Modulator immer dann passiert, wenn die induzierte Frequenzverschiebung null ist, bleibt über und formt einen scharfen Puls. Durch aktive Modenkopplung können Lichtpulse von wenigen Picosekunden Länge erzeugt werden.

Bei der passiven Modenkopplung werden optische Elemente im Resonator genutzt, die ohne externes Signal auskommen. Häufig werden dazu sättigbare Absorber genutzt, die Licht in Abhängigkeit der Intensität abschwächen. Im ungekoppelten Resonator besteht eine zufällige Intensitätsfluktuation, deren Spitzen vom Absorber transmittiert werden, während Lichtwellen niedriger Intensität abgeschwächt werden. Nach mehreren Umläufen im Resonator führt dies zu einer selektiven Verstärkung einzelner Frequenzen. Die Periodizität der Verstärkung erzeugt ähnlich der aktiven Modenkopplung Seitenbänder, die schließlich zur Modenkopplung und Erzeugung kurzer Pulse führt.

¹⁷Die Zeitdauer eines Pulses ist limitiert durch die Heisenbergsche Unschärferelation mit $\Delta t \geq 0,441/N\Delta\nu$, wobei $\Delta\nu = c/2L$ der Frequenzabstand zwischen den Moden, und die Zahl 0,441 das sogenannte Zeit-Bandbreite-Produkt für einen gaußförmigen Puls ist. Damit kann die Untergrenze der Pulsdauer bestimmt werden. Für einen Ti:Sa-Laser mit 128 THz Bandbreite resultiert eine Mindestpulsdauer von 3,4 fs. In einem realen modengekoppelten Lasersystem wird die Pulsdauer durch die tatsächliche Pulsform und die Dispersion des Resonators vergrößert.

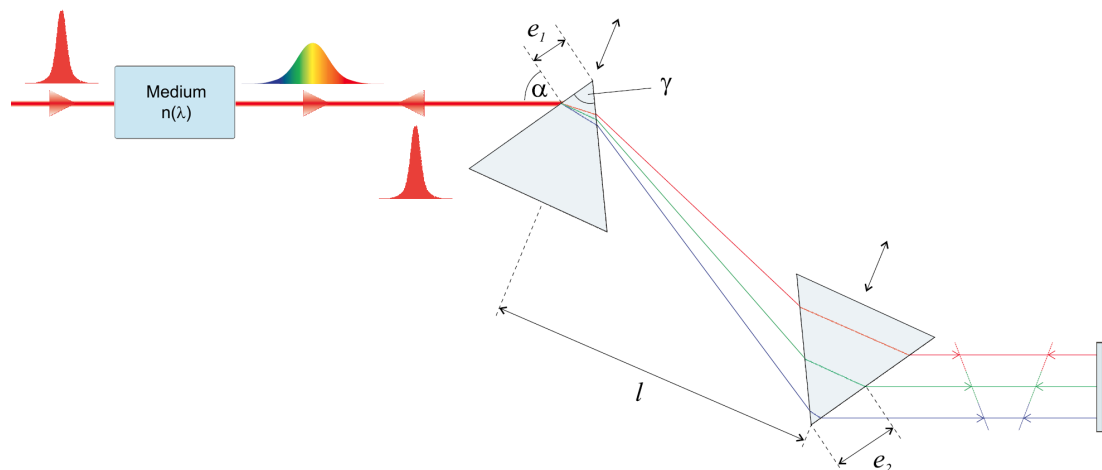


Abb. 4.11.: Vereinfachte Darstellung des Aufbaus zum Kompensation der Dispersion eines Laserstrahls. Durchläuft ein Laserstrahl ein optisches Medium erfährt er eine positive Dispersion (links). Diese kann durch ein Prismenpaar kompensiert werden (rechts). (modifiziert nach [72])

Für Ti:Sa-Laser ist es jedoch üblicher den Kerr-Linsen Effekt auszunutzen, um passive Modenkopplung zu erreichen. Dieser Effekt basiert darauf, dass der Brechungsindex eines optischen Mediums von der elektrischen Feldstärke abhängt. Auch das elektrische Feld eines Pulses selbst verändert den Brechungsindex, wodurch ein Puls entsprechend seines Intensitätsprofils unterschiedlich stark gebrochen wird. Das führt zu einer räumlichen Fokussierung des Pulses und einer Amplitudenmodulation der stehenden Welle. Der Effekt entsteht im Ti:Sa-Kristall selbst, es muss also kein zusätzliches Medium in den Resonator eingebracht werden.

Der unfokussierte und damit unverstärkte Teil des Laserfeldes kann nun durch eine Blende herausgefiltert werden. Oder der Bereich, in dem durch Pumpen eine Besetzungsinversion erzeugt wird, wird reduziert, um nur noch den fokussierten Teil weiter zu verstärken.

Die Amplitudenmodulation entspricht einer zeitlichen Veränderung der Intensität und so wird ein Puls auch zeitlich unterschiedlich stark im Medium gebrochen, die Phasengeschwindigkeit also unterschiedlich stark verlangsamt. Das bewirkt eine Verbreiterung des Frequenzspektrums im Puls, wodurch eine niedrigere minimale Pulsdauer erlaubt wird. Gleichzeitig entsteht aber auch eine positive Dispersion, der Puls läuft also auseinander. Dies wird durch ein Prismenpaar kompensiert, das eine negative Dispersion erzeugt (siehe Abb. 4.11). Durch Ausnutzung dieser Effekte können bei passiver Modenkopplung Pulsdauern im Femtosekundenbereich ermöglicht werden.

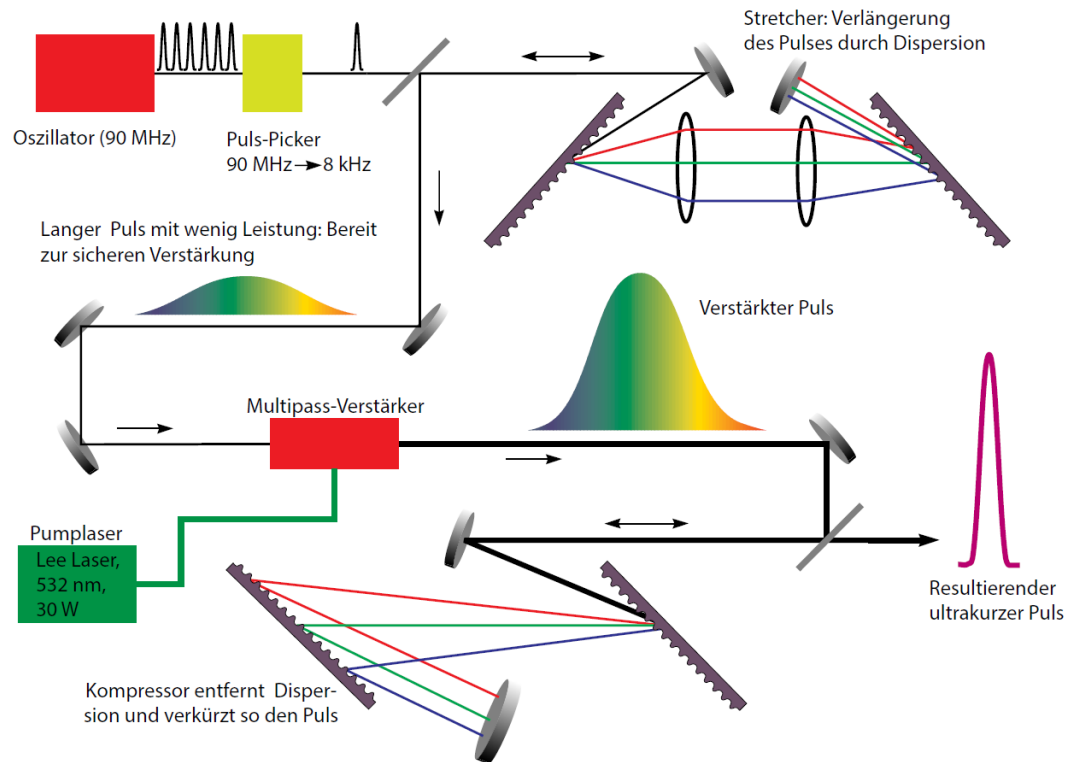


Abb. 4.12.: Schematische Darstellung des verwendeten Lasersystems. Vor der Verstärkung werden die Pulse durch Dispersion gestreckt. Ein 532 nm Pumplaser erzeugt die Besetzungsinversion im Titan-Saphir Kristall des Multipass-Verstärkers. Der verstärkte Puls wird anschließend im Kompressor komprimiert, wodurch ein ultrakurzer Puls entsteht. (aus [66])

Details zu KMLabs Dragon

Der in dieser Arbeit eingesetzte Laser ist ein handelsüblicher Ti:Sa-Laser der Firma KMLabs vom Typ Dragon. Er arbeitet mit einer Zentralwellenlänge von 780 nm und hat eine spektrale Breite von 40 nm. Mit einer Wiederholrate von 8 kHz erzeugt er etwa 40 fs lange Pulse. Sein Aufbau ist in Abb. 4.12 schematisch dargestellt.

Die Besetzungsinversion im Ti:Sa-Kristall des Oszillators wird durch einen ungepulsten, fokussierten Nd:YVO₄-Laser mit einer Wellenlänge von 532 nm und einer Leistung von 5 W erzeugt¹⁸. Der Oszillator liefert 10-15 fs kurze Laserpulse mit einer Wellenlänge von etwa 780 nm bei einer Repetitionsrate von 90 MHz.

Um die Ionisation von Atomen zu ermöglichen, müssen die Pulse aus dem Oszillator verstärkt werden. Eine direkte Verstärkung würde aufgrund der in Abschnitt 4.3.3 beschriebenen Selbstfokussierung zur Beschädigung der optischen Komponenten führen.

¹⁸Der cw-Pumplaser von Coherent, Verdi, wird selbst wiederum von einem Diodenlaser gepumpt.

Deshalb wird der Puls zunächst gestreckt, indem er eine Anordnung aus optischen Gittern und Spiegeln passiert¹⁹.

Zur Verstärkung wird nun ein zweiter Ti:Sa-Kristall eingesetzt, der von einem Nd:YAG-Laser gepumpt wird. Auch dieser Pumplaser arbeitet bei einer Wellenlänge von 532 nm, besitzt aber eine höhere Leistung von 30 W. Dies genügt nicht, um alle Pulse aus dem Oszillator ausreichend zu verstärken. Deshalb wird die Repetitionsrate bereits vor der Streckung von einem Puls-Picker auf 8 kHz herabgesenkt. Dazu wird die Polarisation jedes x-ten Pulses geändert²⁰, wobei ein nachgeschalteter Polarisator nur die geänderten Pulse hindurch lässt.

Diese Pulse erreichen nun den Ti:Sa-Verstärkerkristall, der sich im Vakuum befindet und auf -153°C gekühlt wird. Mit Hilfe von Spiegeln wird der Puls insgesamt 13 mal durch den Verstärkerkristall geleitet und gewinnt bei jedem Durchlauf an Intensität. Die so verstärkten Pulse werden anschließend wieder zeitlich komprimiert. Der dazu eingesetzte Kompressor funktioniert umgekehrt zur Streckung des Pulses und erzeugt Pulslängen von etwa 40 fs.

Nachfolgend werden die Laserpulse mit Hilfe von Spiegeln vom Lasertisch zum Experiment transportiert. Im speziellen Fall des vorgestellten Experimentes legen sie dazu eine Strecke von etwa 12 m in Luft zurück und passieren 8 Spiegel. Sie durchlaufen das Eintrittsfenster in die Vakuumkammer, das eine spezielle Beschichtung für hohe Transmission für Wellenlängen im 800 nm Bereich besitzt, sowie gegebenenfalls ein $\lambda/2$ -Plättchen zur Drehung der Polarisation.

Laserfokus am Ti:Sa-Laser

Um schließlich eine hohe Energiedichte und eine scharf definierte Reaktionszone zu erhalten, werden die Pulse durch einen sphärisch konkaven Hohlspiegel fokussiert. Dieser Hohlspiegel befindet sich in der Vakuumkammer und hat eine Brennweite f von 7,5 cm. Die Laserpulse durchqueren das Spektrometer zunächst unfokussiert, treffen dann auf den Spiegel und werden in das Target rückfokussiert. Um einen optimalen Überlapp zwischen Fokus und Gasstrahl zu erhalten, kann der Rückfokussierspiegel mit einem 5-Achsen-Manipulator feinjustiert werden.

Ein Femtosekunden-Laserpuls kann in guter Näherung durch die Grundmode TEM_{00}

¹⁹Am Gitter wird das Licht gebeugt und dadurch in seine spektralen Bestandteile zerlegt. Durch geschickte Anordnung von Hohlspiegel, Faltspiegel und Reflektor legen die verschiedenen Wellenlängen unterschiedlich lange Wege zurück, der Puls erfährt also eine positive Dispersion.

²⁰Durch Anlegen einer Spannung wird der Brechungsindex eines elektrooptischen Kristalls geändert, was zur Rotation der Polarisation des transmittierten Lichtes um 90° führt (Pockels-Effekt).

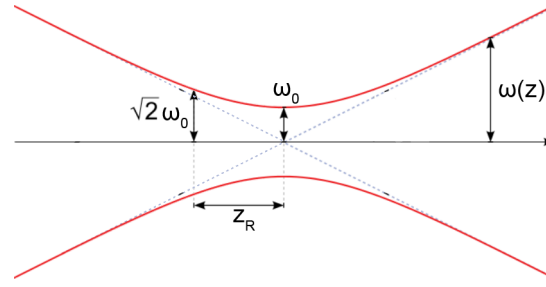


Abb. 4.13.: Breite eines Gauß-Strahls $\omega(z)$ als Funktion des Abstandes zum Fokus z . An der Taille hat der Strahl einen Radius von ω_0 . Der Abstand, bei dem sich der Radius auf $\sqrt{2}\omega_0$ vergrößert hat, wird Raileigh-Länge z_R genannt.

beschrieben werden. Sie besitzt eine gaußförmige Intensitätsverteilung

$$I(r, z) = \frac{2E}{\tau \pi \omega(z)^2} \cdot e^{\frac{-2r^2}{\omega(z)^2}}. \quad (4.23)$$

Hierbei beschreibt E die Pulsenergie, τ die Pulsdauer und $\omega(z)$ der Strahlradius bei einer Entfernung z zum Fokus, an der die Intensität im Vergleich zum Fokus um $1/e^2$ abgefallen ist. Der radiale Abstand zur Strahlachse ist mit r notiert. Der Strahlradius $\omega(z)$ ergibt sich aus der Geometrie des Gauß-Strahls und ist damit von zwei charakteristischen Größen des Laserfokus bestimmt: Dem minimalen Strahlradius ω_0 an der Taille des Fokus $z_0 = 0$, und der *Rayleigh-Länge* z_r , die den Abstand zur Taille beschreibt, bei dem sich die Strahlfläche verdoppelt hat (siehe Abb. 4.13). Diese Größen sind von der Wellenlänge λ , der Fokusslänge des Spiegels f und dem Radius des unfokussierten Strahls ω abhängig:

$$\omega_0 = \frac{\lambda f}{\pi \omega}, \quad z_r = \frac{\pi \omega_0^2}{\lambda} \quad (4.24)$$

Mit diesen beiden Charakteristika kann $\omega(z)$ bestimmt werden zu

$$\omega(z) = \omega_0 \sqrt{1 + M^4 \left(\frac{z}{z_r} \right)^2}, \quad (4.25)$$

wobei M die Reinheit der TEM_{00} -Mode beschreibt. Bei reiner TEM_{00} -Mode ist M gleich eins, und wird größer, wenn weitere Moden vorhanden sind. Die Laserintensität I entspricht einer Leistung P pro Fläche A . Sie wird maximal wenn die Fläche minimal wird, also genau an der Taille des Fokus. Für die Maximalintensität gilt

$$I_{max} = \frac{2P}{\pi \omega_0^2} = \frac{2E}{\pi \omega_0^2 \tau} = \frac{2E \pi \omega^2}{\tau \lambda^2 f^2}. \quad (4.26)$$

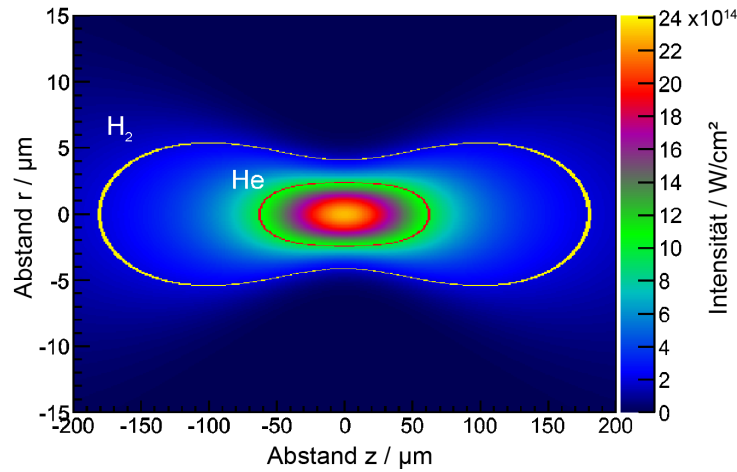


Abb. 4.14.: Intensitätsverteilung des Laserfokus bei einer Maximalintensität von $2 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$. Die Bereiche, innerhalb derer die Ionisation von Wasserstoff (H_2 , gelb) und Helium (He, rot) gesättigt ist, sind markiert. (aus [55])

Für die in dieser Arbeit verwendete experimentelle Anordnung kann damit die maximal erreichbare Laserintensität bestimmt werden. Dazu wird eine Wellenlänge λ von 780 nm und eine Fokusslänge f von 75 mm eingesetzt, sowie eine Pulsdauer τ von 40 fs, eine Pulsenergie E von 40 μJ und ein Strahlradius ω von 4,4 mm angenommen. Die resultierende Intensität $I_{\max}$ beträgt $1 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$, bei einer zugehörigen Rayleigh-Länge z_r von 25 μm und einem Tailenradius des Fokus ω_0 von 2,5 μm .

Tatsächlich besteht der Laserstrahl nicht nur aus einer Grundmode mit Reinheit M gleich eins, sondern hat auch Beiträge höherer Moden, wobei das Lasersystem mit einer Reinheit M^2 von 1,3 spezifiziert ist. Die Strahlqualität wird durch den Strahltransport an Luft und den Einsatz mehrerer Spiegel zusätzlich reduziert. Wird eine Reinheit M^2 von 1,5 angenommen, senkt sich die maximale Intensität $I_{\max}$ auf $2 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ ab. Die Rayleigh-Länge z_r steigt damit auf 127 μm und der Tailenradius ω_0 auf 5,6 μm an.

Die Ionisation von Helium wird bei einer Intensität oberhalb von $1 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ gesättigt [68]. Für Wasserstoff genügt bereits eine Intensität von $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ [73]. Dies resultiert in unterschiedlich große Bereiche, in denen die verschiedenen Stoffe mit hoher Wahrscheinlichkeit ionisiert werden. Abbildung 4.14 zeigt die Intensitätsverteilung im Fokus und die Bereiche, in denen die Ionisationswahrscheinlichkeiten von Wasserstoff und Helium gesättigt sind. Die Ionisation von anderen Elementen, die Untergrund erzeugen können, wird stets in einem größeren Bereich gesättigt als die von Helium, da ihr Ionisationspotential geringer ist.

4.3.4. Funktionsweise eines Freie Elektronen Lasers

Freie Elektronen Laser (FEL) sind beschleunigergestützte Lichtquellen, die Licht mit laserartigen Eigenschaften erzeugen. Im Unterschied zu herkömmlichen Lasern, bei denen die Wellenlänge des erzeugten Photonenstrahls von diskreten Energieniveaus eines Elementes bestimmt wird, kann ein FEL prinzipiell einen Photonenstrahl jeder Wellenlänge erzeugen. Er arbeitet vollständig ohne aktives Medium, das sonst genutzt wird, um eine Besetzungsinversion und dann eine stimulierte Emission zu erzeugen (vgl. Abschnitt 4.3.3). Stattdessen wird die elektromagnetische Strahlung hier in Form von Bremsstrahlung erzeugt, die bei Umlenkung von elektrischer Ladung entsteht.

Ein FEL besteht im Wesentlichen aus zwei Abschnitten. Im ersten Abschnitt werden Elektronen auf sehr hohe Geschwindigkeiten beschleunigt. Dazu werden zunächst kurze Elektronenpakete von einer Elektronenquelle emittiert und vorbeschleunigt. In einem Linearbeschleuniger²¹ werden starke elektrische Felder verwendet, um die Elektronen auf relativistische Geschwindigkeiten zu beschleunigen.

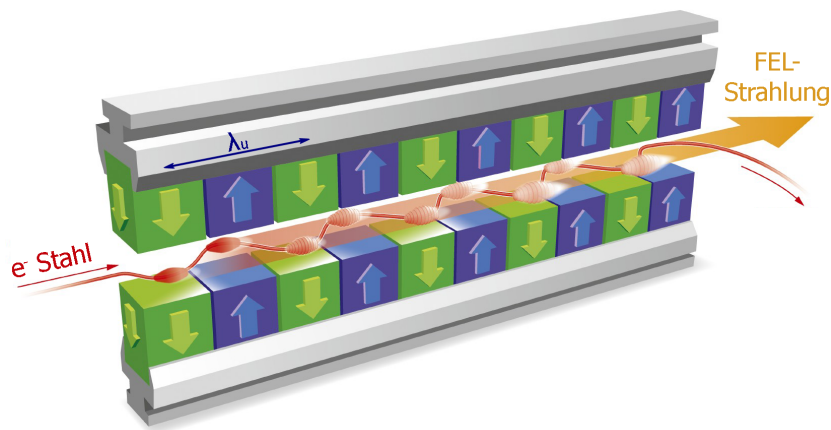


Abb. 4.15.: Schematische Darstellung eines Undulators. Periodisch abwechselnde Magnetfelder zwingen den Elektronenstrahl auf eine oszillierende Trajektorie. Daraufhin emittieren die Elektronen Bremsstrahlung in einem schmalen spektralen Bereich. (verändert nach [74])

Im zweiten Abschnitt findet die Erzeugung des Laserlichtes statt. Dazu werden die vom ersten Abschnitt bereitgestellten Elektronenpakete durch eine Anordnung abwechselnd ausgerichteter Magnetfelder geführt. Die Lorentzkraft²² lenkt bewegte Ladung in einem Magnetfeld senkrecht zur Bewegungsrichtung ab. Die alternierende Magnetfeldan-

²¹Am FEL FLASH in Hamburg wird hierzu ein supraleitender Hohlraumresonator (TESLA) eingesetzt.

²²Die Lorentzkraft ist definiert durch $F_L = q\vec{v} \times \vec{B}$, mit Ladung q , Geschwindigkeit $\vec{v}$ und Magnetfeld $\vec{B}$.

ordnung, der sogenannte Undulator, führt zu einer sinusförmigen Trajektorie der Elektronen (Abb. 4.15). Beschleunigte Ladung emittiert Bremsstrahlung, und so führt die Ablenkung der Elektronen dazu, dass sie Brems- oder Synchrotronstrahlung aussenden. Die Strahlung wird durch die Undulatorgeometrie und die Eigenschaften des relativistischen Elektronenstrahls charakterisiert.

Die Periode der Magnetfeldanordnung λ_u wird im Koordinatensystem des bewegten Elektrons zu $\lambda_u^* = \lambda_u/\gamma$ reduziert. Dies geschieht aufgrund der relativistischen Längenkontraktion, beschrieben durch den Lorentzfaktor $\gamma = 1/\sqrt{1-v^2/c^2}$. Im mitbewegten System oszillieren die Elektronen mit einer Frequenz von $\nu_u^* = c/\lambda_u^*$ und erzeugen Synchrotronstrahlung. Aus dem Laborsystem betrachtet ist die Frequenz der emittierten Photonen dopplerverschoben zu $\nu_u = \gamma(1 + \beta)\nu_u^*$ mit $\beta = v/c$. Die zugehörige Wellenlänge ist

$$\lambda = \frac{\lambda_u}{\gamma^2} \frac{1}{1 + \beta} \approx \frac{\lambda_u}{2\gamma^2} \quad \text{mit} \quad \beta \approx 1. \quad (4.27)$$

Wird auch die harmonische Trajektorie des Elektrons in einer exakteren Behandlung einbezogen [75], kann diese Gleichung verallgemeinert werden zu

$$\lambda = \frac{\lambda_u}{2\gamma^2} \left(1 + \frac{K^2}{2} \right) \quad \text{mit} \quad K = \frac{eB_0\lambda_u}{2\pi m_e c}. \quad (4.28)$$

Der Undulatorparameter K ist abhängig von der Magnetfeldstärke in der Undulatorebene B_0 und der Undulatorperiode λ_u . Um die Wellenlänge eines FEL zu regeln, wird die Magnetfeldstärke B_0 und die Elektronenenergie variiert, während die Undulatorperiode typischerweise ein fester Parameter ist.

Die relativistischen Geschwindigkeiten der Elektronen führen dazu, dass die Synchrotronstrahlung in Vorwärtsrichtung emittiert wird. Die Emission ist begrenzt auf einen schmalen Konus mit Öffnungswinkel $\theta_{max} \approx K/\gamma$.

Wir betrachten nun unter welchen Bedingungen die Elektronen Energie auf das elektromagnetische Feld der Synchrotronstrahlung übertragen. Das Feld wird vereinfacht als eine ebene Welle beschrieben, die parallel zur mittleren Richtung der Elektronen y propagiert und in x -Richtung polarisiert ist. Die Elektronen tauschen Energie mit dieser Welle aus, wobei der Übertrag dW/dt proportional zum Produkt aus transversaler Geschwindigkeitskomponente der Elektronen v_x und der dazu parallelen Feldkomponente E_x der Welle ist:

$$\frac{dW}{dt} = v_x(t)F_x(t) = -ev_x(t)E_x(t). \quad (4.29)$$

Für $dW/dt < 0$ wird Energie von den Elektronen auf die Welle übertragen, für $dW/dt > 0$

von der Welle auf die Elektronen. Um Energie auf die Welle zu übertragen, müssen v_x und E_x also parallel stehen. Und um einen kontinuierlichen Energieübertrag zu gewährleisten, muss diese Bedingung nicht nur an zufälligen Stellen, sondern entlang des gesamten Undulators erfüllt sein. Da sich die elektromagnetische Welle mit einer Geschwindigkeit von c , das Elektronenpaket sich aber mit einer leicht geringeren Geschwindigkeit $v_y \lesssim c$ bewegt, verändern sich die beiden Phasen von Undulatormagnet zu Undulatormagnet relativ zueinander. Da das Elektronen eine Masse besitzt, ist seine Geschwindigkeit prinzipiell geringer als c . Die mittlere Geschwindigkeit in y -Richtung wird zudem durch die Oszillatorbewegung in x -Richtung verringert und ist gegeben durch

$$\bar{v}_y = \left(1 - \frac{1}{2\gamma} \left(1 + \frac{K^2}{2} \right) \right). \quad (4.30)$$

Die Resonanzbedingung für maximalen Energieübertrag ist erfüllt, wenn sich die elektromagnetische Welle während einer Undulatorperiode gerade um eine ganze Wellenlänge nach vorn verschiebt (siehe Abb. 4.16). Um eine Undulatorperiode zu überwinden, benötigt die elektromagnetische Welle eine Zeit t_{em} von λ_u/c . Die Elektronen benötigen etwas länger mit $t_e = \lambda_u/v_y$. Es entsteht eine Zeitdifferenz Δt von $t_e - t_{em}$, in der die elektromagnetische Welle eine Strecke von λ_{em} zurücklegt, wenn die Resonanzbedingung

$$\frac{\lambda_{em}}{c} \stackrel{!}{=} \Delta t = t_e - t_{em} = \left(\frac{\lambda_u}{v_y} - \frac{\lambda_u}{c} \right) \quad (4.31)$$

gilt. Durch Einsetzen der Geschwindigkeit $\bar{v}_y$ aus Gleichung 4.30, erhalten wir die Wellenlänge, die bei gegebener Undulatorgeometrie und Elektronengeschwindigkeit resonant verstärkt wird:

$$\lambda_{em} = \frac{\lambda_u}{2\gamma^2} \left(1 + \frac{K^2}{2} \right). \quad (4.32)$$

Diese Wellenlänge entspricht gerade der Wellenlänge der spontan emittierten Synchrotronstrahlung nach Gleichung 4.28. Es muss also keine elektromagnetische Welle mit passender Wellenlänge eingekoppelt werden, sondern die spontan emittierte Strahlung selbst kann verstärkt werden. Dies ist das sogenannte SASE Prinzip²³.

Bis hierhin ist das Funktionsprinzip ähnlich der Strahlerzeugung in einem Synchrotron. Warum wird ein FEL nun aber als Laser bezeichnet?

Dies liegt an den besonderen Lichteigenschaften, die erzeugt werden, wenn ein Elektronenpaket und eine elektromagnetische Welle ko-propagieren. Befindet sich ein Elektron nicht genau im Knoten der elektromagnetischen Welle, dann erzeugt das B-Feld der Wel-

²³SASE steht für (engl.) Self-amplified spontaneous emission, also selbstverstärkte spontane Emission.

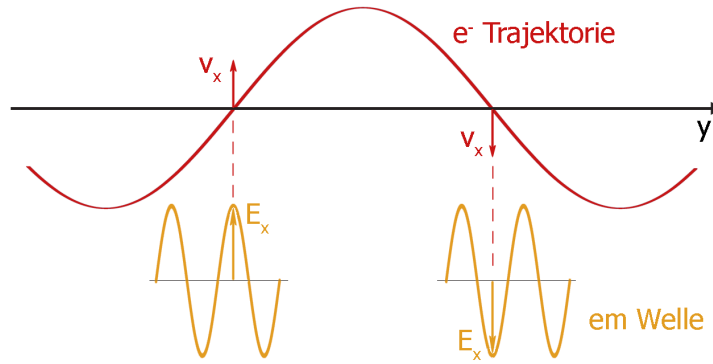


Abb. 4.16.: Phasenbeziehung zwischen Undulatorperiode und elektromagnetischer Welle für den Fall, dass die Resonanzbedingung erfüllt ist. Dazu muss der elektrische Feldvektor E_x der Welle stets in die gleiche Richtung zeigen, wie die transversale Komponente der Elektronentrajektorie v_x (adaptiert von [75]).

le und die transversale Geschwindigkeit des Elektrons v_x eine Lorentzkraft F_L , die das Elektron in Richtung der Node drückt [76] (siehe Abb. 4.17). Ist die Resonanzbedingung (4.31) erfüllt, dann ist der Gangunterschied zwischen Elektronenpaket und elektromagnetischer Welle nach einer halben Undulatorperiode gerade so groß, dass sich Transversalgeschwindigkeit des Elektrons und B-Feld umkehren. Die Lorentzkraft wirkt also weiterhin in Richtung der Node. Dadurch wird ein Elektronenpaket aufgeteilt in Unterpakete (sog. Mikrobunches), die an den Noden der elektromagnetischen Welle entstehen und kleiner als deren Wellenlänge sind²⁴. Innerhalb eines Mikrobunches oszillieren die Elektronen kollektiv, womit ein Mikrobunch sich wie ein punktförmiges Teilchen mit Ladung $N \cdot e$ verhält. Dies führt zur Emission korrelierter Strahlung, die vollständig kohärent ist. Mit wachsender Photonenintensität wird das Mikrobunching noch weiter verstärkt. Dadurch entsteht die Besonderheit von „high gain FELs“: Ihre Intensität skaliert mit dem Quadrat der Anzahl von Elektronen in den Mikrobunchen $I \propto N^2$. Im Gegensatz dazu ist die Intensität von anderen undulatorbasierten Strahlungsquellen (z.B. Synchrotrons), bei denen die Elektronen unkorreliert Strahlung emittieren, linear proportional zur Elektronenzahl N .

Details zu FLASH

Der Freie Elektronen Laser in Hamburg (FLASH) liefert Pulse von ultravioletter Strahlung (XUV) bei einer Pulslänge von einigen Dutzend fs und Intensitäten von bis zu 10^{16} W/cm^2 . Die Anlage, schematisch dargestellt in Abb. 4.18, hat eine Länge von 315 m

²⁴Die Noden sind wiederum die Stellen, an denen der maximale Energieübertrag von den Elektronen auf die Welle stattfindet.

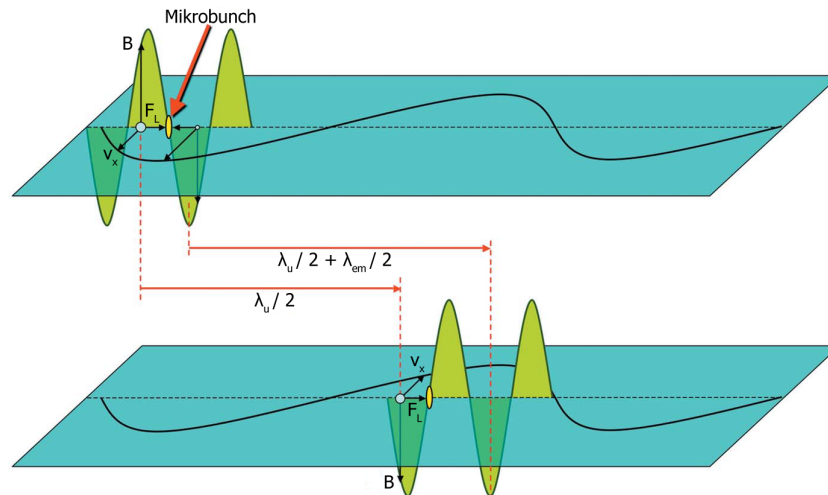


Abb. 4.17.: Erzeugung von Mikrobunchen aufgrund der Geschwindigkeitsdifferenz zwischen elektromagnetischer Welle und Elektronen ($c-v_y$). Nach einer halben Undulatorperiode (verleiche oben und unten) wechseln sowohl B-Feld als auch Transversalgeschwindigkeit des Elektrons v_x das Vorzeichen, so das die resultierende Lorentzkraft F_L stets in Richtung der Node zeigt (aus [76]).

und liefert das erzeugte Licht an einen von fünf verschiedenen Messplätzen für Nutzer [77].

Die Elektronenquelle besteht aus einer Cs_2Te Photokathode, die von einem 262 nm Laser beschossen wird, und Elektronenpakete von 4,6 ps ($\cong 2$ mm) Länge erzeugt. Anschließend werden die Elektronenpakete beschleunigt und komprimiert. Dazu stehen ein Hochfrequenz-Hohlraumresonator und im Anschluss sieben TESLA-Module zur Verfügung. Die Module bestehen jeweils aus acht Niob Kavitäten, die auf 2 K gekühlt werden und damit supraleitend sind. Zusätzliche Komprimierung wird erreicht, indem der Strahl durch magnetische Schikanen geleitet wird. Die Gesamtlänge der Beschleunigungsstruktur beträgt 120 m.

Der Betriebszyklus der Beschleunigeranlage gibt eine Hauptrepetitionsrate von 10 Hz vor. Pro Sekunde können zehn Züge von Elektronenpaketen mit einer Maximallänge von je 800 ps beschleunigt werden. Jeder Zug kann zwischen 1 und 400 Einzelpakete enthalten. Innerhalb eines Zuges besteht also ein Paketabstand von mindestens 2 ps beziehungsweise eine Repetitionsrate von maximal 500 kHz.

Die beschleunigten Elektronen treten dann in die Undulatorsektion ein. Sie besteht aus sechs Undulator Modulen von jeweils 4,5 m Länge. Die verwendeten NdFeB Permanentmagnete haben einen festen Abstand von 12 mm, die Undulatorperiode λ_u beträgt 27,3 mm. Die Spitzenmagnetfeldstärke von 0,47 T führt zu einem Undulatorparameter K

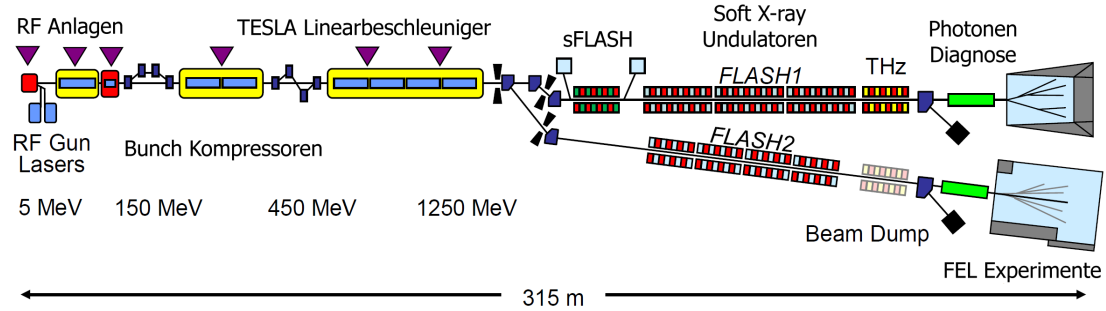


Abb. 4.18.: Schematisches Layout der FLASH Anlage. Eine Quelle (links) erzeugt Elektronen, die durch Hohlraumresonatoren beschleunigt werden. In Undulatoren wird Röntgenstrahlung erzeugt und in die Experimentierhalle (rechts) geleitet. Ein zweiter Undulator FLASH II (unterer Zweig) befindet sich derzeit im Bau (von [62]).

Parameter	Wert
Wellenlänge λ_{em}	4,2 - 52 nm
Mittlere Energie pro Puls	10 - 500 μ J
Pulsdauer (FWHM)	<50 - 200 fs
Spektralbreite (FWHM)	0,3 - 2 %
Photonen pro Puls	10^{11} - 10^{13}

Tabelle 4.1.: Parameter von FLASH (aus [78, 62])

von 1,23. Dies ermöglicht Elektronenstrahlenergien von 0,37 bis 1,25 GeV und entsprechend Wellenlängen von 120 bis 4 nm. Hinter dem Undulator wird der Elektronenstrahl umgelenkt und blockiert, während die FEL Strahlung mehrere Geräte zur Strahldiagnose passiert und in die Experimentierhalle geleitet wird [78]. Die Geräte zur Strahldiagnose charakterisieren verschiedene Eigenschaften wie Intensität, Form und Position des Strahls. Die Strahlgröße kann durch Aperturen verringert werden und die Intensität kann durch Gasabschwächer nachgeregelt werden. Einige Kennzahlen sind in Tabelle 4.1 zusammengefasst. Weitere Informationen sind in [77], [62] und [78] zu finden.

5. Experimenteller Aufbau

In den vorangegangenen Kapiteln wurde bereits gezeigt, welche Funktionen ein Experimentalaufbau erfüllen muss, um die angestrebte Messung durchzuführen: Heliumcluster sollen in einer Überschallgasexpansion erzeugt und dann an einem Transmissionsgitter gebeugt werden. Dies teilt den Gasstrahl in Teilstrahlen nach Clustergröße auf. Dann kann der Teilstrahl der gewünschten Clustergröße von einem Laser ionisiert werden. Die ionisierten Fragmente werden im COLTRIMS-Spektrometer von elektrischen Feldern auf einen Detektor geleitet. Dort erzeugen sie Signale, die die Rekonstruktion der Startimpulse der Fragmente ermöglichen. Aus den gemessenen Startimpulsen werden alle weiteren physikalischen Größen von Interesse abgeleitet.

Abbildung 5.1 gibt einen Überblick über den Aufbau und zeigt die benötigten Komponenten, die in den folgenden Abschnitten beschrieben werden. Außerdem wird darauf eingegangen, welche Voraussetzungen in Bezug auf die Güte des Vakuums und den externen Einsatz zu erfüllen sind, um die Messung zu ermöglichen.

5.1. Das Jetsystem

Heliumcluster entstehen, wenn Heliumgas unter günstigen Bedingungen durch eine kleine Düse in die Vakuumkammer strömt (siehe Abschnitt 3.2). Im Experiment wird hierzu wahlweise eine von zwei Düsen mit einem Durchmesser von 5 μm verwendet. Die Düsen und ein Teil der Zuleitung sind in einen Kupferblock integriert, der mit einem Durchflusskryostaten verbunden ist und so von flüssigem Helium auf eine Temperatur von bis zu 6 K abgekühlt werden kann. Die gewünschte Temperatur wird erreicht, indem der Heliumfluss durch Wahl von Überdruck im Helium-Dewargefäß und Öffnung eines Nadelventils manuell auf eine leicht höhere Kühlleistung als nötig eingestellt wird. Ein automatischer Temperaturcontroller (Cryo-con 32B) kann die am Ende des Kryostaten angebrachte elektrische Heizung so einstellen, dass die Temperatur mit einer Genauigkeit von $\pm 0,02$ K erreicht und gehalten wird. Zur Regelung erhält der Temperaturcontroller das Signal zweier Temperatursensoren, von denen wahlweise einer die Zieltemperatur erreichen soll. Dazu wird Sensor A genutzt, der 20 mm von den Düsen entfernt sitzt.

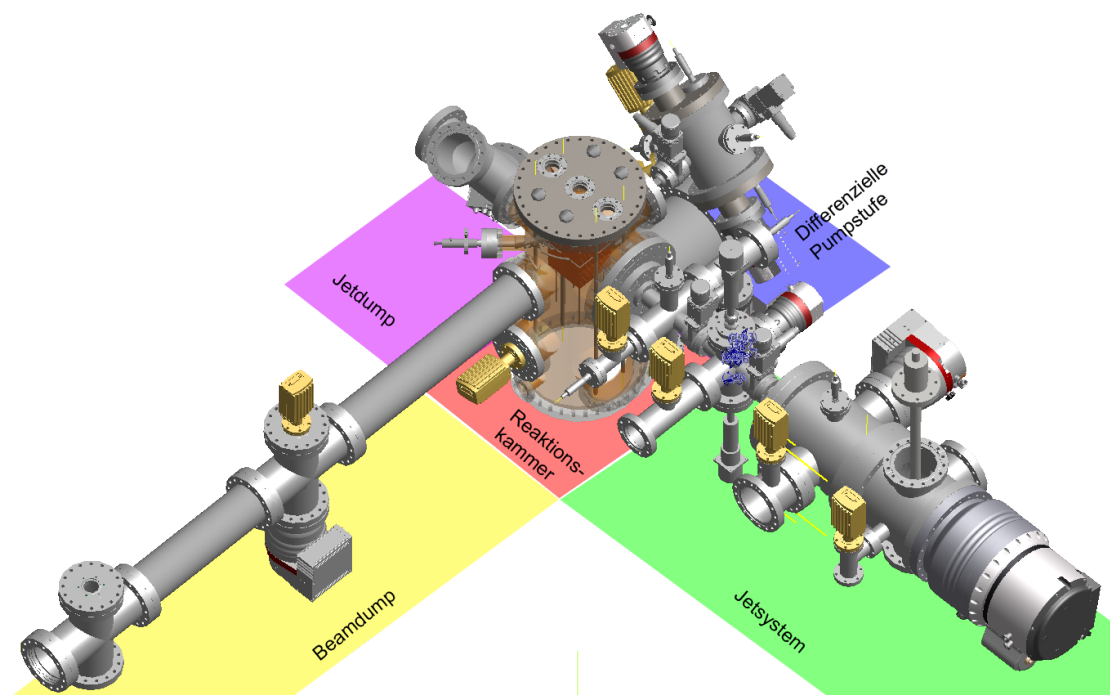


Abb. 5.1.: CAD-Modell des experimentellen Aufbaus. Der Aufbau besteht aus dem Jetsystem (grün), der Reaktionskammer (rot), einem Jetdump (lila) sowie einem Beamdump (gelb) und der differentiellen Pumpstufe (blau). In der Reaktionskammer befinden sich das Spektrometer und der Detektor.

Sensor B sitzt an der Verbindung vom Kryostaten mit dem Kupferblock und dient als Kontrollwert.

Bei der im Experiment verwendeten Temperatur von 8 - 13 K gefrieren die meisten Elemente und Verbindungen. Durch Verunreinigungen oder Fremdelemente im Gas besteht daher die Gefahr, dass die Düse zugesetzt wird. Um die Wahrscheinlichkeit dafür zu verringern, wird Heliumgas hoher Reinheit (99,9999 %) eingesetzt. Zusätzlich wird es vor dem Erreichen der Düse durch einen Filter geleitet. Der Filter besteht aus einem porösen Metall und wird durch flüssigen Stickstoff so weit abgekühlt, dass die meisten Stoffe an dessen Innenwand fest frieren. Bevor Heliumgas zur Düse geleitet wird muss das in der Gaszuleitung befindliche Gas (zumeist Luft) entfernt werden, da es mit hoher Wahrscheinlichkeit an der Düse ausfrieren und sie zusetzen würde. Zur Evakuierung der Zuleitung wird eine Membranpumpe eingesetzt. Die Leitung wird mehrfach mit Helium gefüllt und erneut evakuiert, um Rückstände in der Leitung zu lösen und zu entfernen. Friert die Düse trotz all dieser Maßnahmen dennoch zu, muss sie über die Temperatur des festgefrorenen Stoffes (meist Wasser, und damit 0°C) erwärmt werden. Der Vorgang

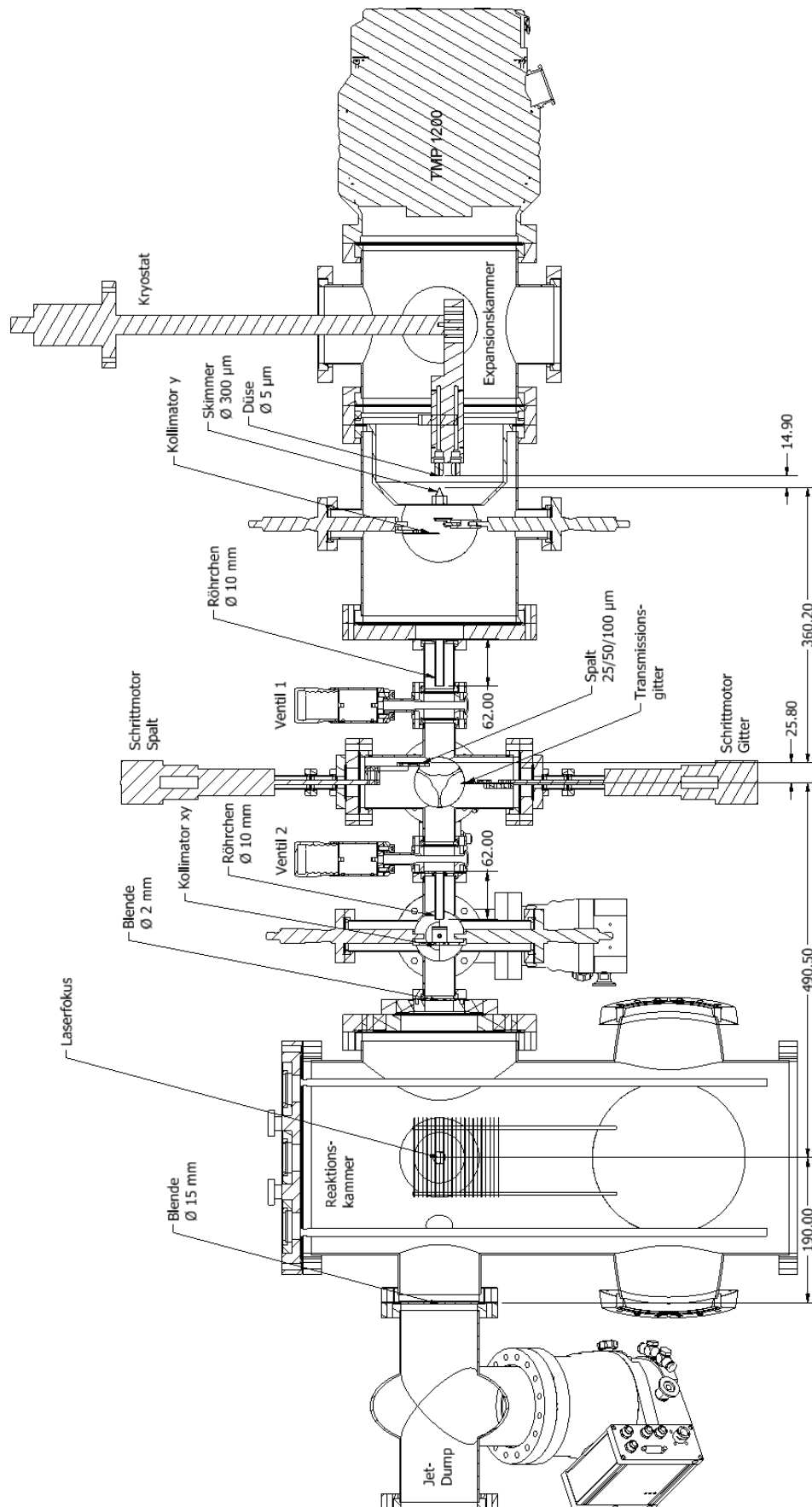


Abb. 5.2.: CAD-Zeichnung des experimentellen Aufbaus, geschnitten in der Ebene senkrecht zur Laserpropagationsrichtung auf Höhe des Laserfokus. Das Targetgas tritt aus einer gekühlten Düse aus, und gelangt durch den Skimmer zum Beugungsgitter. Nach der Beugung gelangt der massenselektierte Teilstrahl in die Reaktionszone. Nicht wechselwirkende Teilchen erreichen den Jetdump.

des Auftauens und anschließend wieder Abkühlens nimmt mehrere Stunden in Anspruch. Um die Notwendigkeit Aufzutauen aufschieben zu können (vor allem bei begrenzter Zeit, z.B. auf Messkampagnen), wurden zwei identische 5 μm -Düsen mit getrennten Gaszuleitungen verbaut. Bei Bedarf kann über einen Drei-Achsen-Manipulator die zweite Düse vor dem Skimmer positioniert werden.

Die Expansionskammer wird von einer Turbomolekularpumpe mit einem Saugvermögen von 1250 l/s evakuiert. Bei typischen Expansionsbedingungen von 8 K und 1 bar wird ein Vakuum von $1 \cdot 10^{-5}$ mbar erreicht. Dagegen herrscht hinter dem 300 μm durchmessenden Skimmer ein Druck von maximal $1 \cdot 10^{-8}$ mbar. Der Gasjet passiert nun drei Kammerabschnitte, bevor er durch eine 2 mm große Lochblende in die Reaktionskammer eintritt. Die Abschnitte sind durch Röhrchen von 10 mm Durchmesser und 62 mm Länge verbunden. Der geringe Leitwert dieser Röhrchen reduziert die gegenseitige Beeinflussung der Vakua in den Kammerabschnitten. Zudem kann der mittlere Abschnitt durch Schieberventile abgetrennt werden. So können Reparaturen oder Justierungen an dem in diesem Teil befindlichen Spalt und Beugungsgitter sowie den Schrittmotoren vorgenommen werden, ohne die Vakua der anderen Bereiche zu brechen. (Details zum Aufbau der Materiewellenbeugung finden sich im nächsten Abschnitt 5.2). Nach einer Strecke von 891 mm erreichen die Teilchen im Gasjet die Reaktionszone (siehe Abb. 5.2).

Alle Gasteilchen, die nicht in der Reaktionszone ionisiert werden, erreichen den letzten Kammerabschnitt. In diesem sogenannten Jetdump treffen die Teilchen auf die Kammerwand und werden dort gestreut. Damit die hier auflaufenden Teilchen nicht zurück in die Reaktionskammer gelangen, besteht der Eingang zum Jetdump aus einem 100 mm langen Röhrchen ($\varnothing = 10$ mm), durch das die Teilchen zwar stoßfrei eintreten, aber aufgrund ihrer statistischen Bewegung nur sehr unwahrscheinlich wieder austreten können. Der Jetdump wird von einer Turbomolekularpumpe mit einer Saugleistung (N_2) von 210 l/s gepumpt (Pfeiffer TMU 261).

Im Jetdump befindet sich außerdem ein Massenspektrometer (MKS Microvision Plus). Dessen Messkopf befindet sich auf der von Skimmer und Blenden definierten Achse des Gasjets. Um die Düse zentriert hinter dem Skimmer zu positionieren, kann das Massenspektrometersignal der Masse des eingesetzten Gases betrachtet und maximiert werden. Hierbei ist zu bemerken, dass Heliumcluster aufgrund des Messprinzips des Massenspektrometers¹ als atomares Helium nachgewiesen werden.

¹Restgasteilchen werden am Messkopf des Massenspektrometers ionisiert, um anschließend ihr Massenzu-Ladungs-Verhältnis in einem Quadrupolfeld zu bestimmen. Bei der Ionisation werden die äußerst schwach gebundenen Heliumcluster mit hoher Wahrscheinlichkeit fragmentiert.

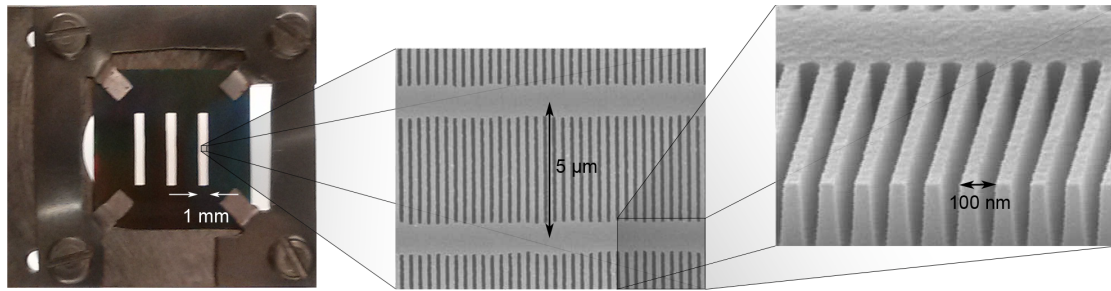


Abb. 5.3.: Optische und elektronenmikroskopische Aufnahmen des Transmissionsgitters. (links) Drei Transmissionsgitter mit einer Breite von 1 mm sind in die SiN_x -Platte Transmissionsgitter eingeprägt. In der elektronenmikroskopischen Aufnahme (aus [79]) sind die Querstreben im Abstand von 5 μm (mittig) und die Trapezform der Gitterstäbe (rechts) erkennbar. Die Gitterkonstante g beträgt 100 nm.

5.2. Das Beugungsgitter

Das Beugungsgitter ermöglicht den Gasstrahl in seine verschiedenen Bestandteile aufzuspalten. Es besteht aus einer Silizium-Nitrat Platte, aus der mit einem laserinterferometrischen Verfahren 50 nm breite Gitterstege herausgestellt wurden. Die leicht trapezförmigen Stege sind durch ebenso breite Spalte voneinander getrennt (siehe Abb. 5.3). In die Silizium-Nitrat Platte sind drei gleiche Gitter eingeprägt, jeweils 6,5 mm lang, 1 mm breit und 2 mm voneinander entfernt. Die längs ausgerichteten Stege sind über die Länge von 6,5 mm nicht stabil und müssen deshalb alle 5 μm durch eine Querstrebe verstärkt werden.

Unterschiedliche schwere Teilchen werden hinter einem Transmissionsgitter entsprechend Formel 3.5 unterschiedlich stark abgelenkt. Ziel hierbei ist verschiedene Massen, und damit verschiedene Clusterspezies soweit voneinander zu separieren, dass nur eine Spezies in den Laserfokus gelangt, während alle anderen Spezies diesen nicht erreichen. Der Fokus hat eine Ausdehnung von 10-20 μm in der Richtung in der das Gitters die Massen separiert (je nachdem ob der Ti:Sa-Laser oder der FEL eingesetzt wird). Dies ist das Mindestmaß an notwendiger Separation.

Zunächst kann die Separation verbessert werden, indem alle Beugungswinkel vergrößert werden, das Beugungsbild also gestreckt wird. Nach Gleichung 3.5 ($\varphi_n = nh/mv \cdot g$) muss dazu ein Gitter mit möglichst kleiner Gitterkonstante g verwendet werden. Das eingesetzte Gitter hat eine Gitterkonstante von 100 nm. Zudem wird der Winkel größer je geringer die Teilchengeschwindigkeit v ist, die nach Gleichung 3.1 von der Expansionstemperatur T_0 abhängt. Jedoch steht die Temperatur nicht mehr als freier Parameter zur Verfügung, ihr Wert wird so festgelegt, dass die Ausbeute der gewünschten Clus-

tergröße möglichst hoch ist. Die gewählte Temperatur von 8 - 13 K liegt günstigerweise nahe an dem hier zu wählenden Optimum.

Die Beugungswinkel für Ordnungen $n \neq 0$ führen dazu, dass sich mit steigendem Abstand l vom Transmissionsgitter der Abstand zu den benachbarten Teilstrahlen vergrößert. Die Auslenkung der n -ten Beugungsordnung x_n im Vergleich zum einfallenden Gasstrahl beträgt für Teilchen der Masse m

$$x_n = l \cdot \sin \vartheta = l \cdot \sin \frac{nh}{mv \cdot g}. \quad (5.1)$$

Die nullten Beugungsordnungen unterschiedlicher Clustergrößen sind nicht voneinander separiert. So werden im Experiment die ersten Beugungsordnungen verwendet, sie besitzen die nächsthöchste Intensität. Der Abstand zwischen den ersten Beugungsordnungen benachbarter Clustergrößen i und $i+1$ ist

$$\begin{aligned} x_{i,i+1} &= l \cdot (\sin \vartheta_i - \sin \vartheta_{i+1}) \quad \text{für kleine } \vartheta_n \\ &= l \cdot \left(\frac{h}{imv \cdot g} - \frac{h}{(i+1)mv \cdot g} \right). \end{aligned} \quad (5.2)$$

Gemessen in der Auslenkung der ersten Ordnung Monomere x_1 ist das

$$x_{i,i+1} = \frac{x_1}{i} - \frac{x_1}{i+1} = \frac{x_1}{i(i+1)}. \quad (5.3)$$

Sollen nur Cluster der Größe i in den Fokus gelangen, während auch Cluster der Größe $i+1$ im Gasstrahl vorliegen, muss $x_{i,i+1}$ größer sein als die Breite der Beugungsordnungen, gefaltet mit dem Fokusprofil. Die Breite der Beugungsordnungen wird bestimmt durch die Größe des Quellpunktes des Gasjets und den transmittierten Bereich des Gitters. Durch Betrachtung der Randstrahlen wird die größtmögliche Ausdehnung der Beugungsordnung abgeschätzt. Um den transmittierbaren Bereich anzupassen, werden vor dem Gitter Schlitzblenden in drei unterschiedlichen Breiten (25, 50 und 100 μm) installiert.

Der Abstand l wird nun so gewählt, dass der Abstand zwischen den ersten Beugungsordnungen von Heliumdimeren und -trimeren $x_{2,3}$ von $x_1/6$ so groß ist, wie die Summe aus abgeschätzter größtmöglicher Ausdehnung und Fokusgröße. Hierfür wird von einer Expansionstemperatur T_0 von 12 K und dem Einsatz einer 25 μm großen Schlitzblende ausgegangen. Da die Targetdichte im Fokus mit zunehmender Entfernung zur Düse quadratisch abnimmt, wird der Abstand l nicht größer gewählt als nötig, um gerade eben Dimere und Trimere auflösen zu können. Dies ist bei einem Abstand von einem halben

Aufbruch	Rate	T_0	p_0	Laser	Polarisation
$\text{He}_2 \rightarrow \text{He}^+ + \text{He}^+$	3,1/s	13 K	1,5 bar	Ti:Sa	in TOF-Richtung
$\text{He}_2 \rightarrow \text{He}^+ + \text{He}^+$	16,2/s	12 K	1,0 bar	Ti:Sa	in Jet-Richtung
$\text{He}_2 \rightarrow \text{He}^+ + \text{He}^+$	12,1/s	12 K	1,0 bar	Ti:Sa	in TOF-Richtung

Tabelle 5.1.: Raten von detektierten Aufbrüchen nach Ionisation der ersten Beugungsordnung im Laser-Fokus bei unterschiedlichen Expansionstemperaturen T_0 und -drücken p_0 .

Meter (491 mm) der Fall.

Das Beugungsbild wird nach ausreichender Statistik vieler Einzelteilcheninterferenzen nur sichtbar, wenn der Teilchenstrahl transversal und longitudinal hinreichend kohärent ist. Dazu gehört, dass alle Teilchen den gleichen Impulsvektor besitzen. Der Betrag der Geschwindigkeit ist scharf definiert (siehe Abschnitt 3.1). Der größtmögliche Richtungsunterschied besteht zwischen der Trajektorie vom unteren Rand des Quellpunktes zum oberen Blendenrand und der Trajektorie vom oberen Rand des Quellpunktes zum unteren Blendenrand. Dieser Unterschied wird kleiner, je größer der Abstand zwischen Quellpunkt und Blende ist. Der gewählte Abstand von 375 mm limitiert den Richtungsunterschied auf maximal 0,0006 rad (ein Zehntausendstel eines Kreises).

Für die gewählten Abstände zwischen Düse und Reaktionsort wird im Reaktionsort eine Targetdichte von etwa $5 \cdot 10^9$ Teilchen/cm³ erwartet², wenn ein Heliumgasstrahl bei einer Temperatur T_0 von 12 K und einem Druck um 1 bar betrieben wird. Diese Dichte wird durch folgende Umstände weiter reduziert: Zunächst besteht der Gasstrahl nur zu einem geringen Anteil aus der gewünschten Clustergröße, Abb. 3.4 und 3.5 zeigen Anteile zwischen 0,35 % und 6 %. Die Transmission des Gitters beträgt nur 34 % [80], zwei Drittel des Gasjets werden an den Stegen des Gitters geblockt. Zuletzt wird der transmittierte Anteil der gewünschten Clustergröße in die verschiedenen Beugungsmaxima aufgeteilt, wobei nur ein Maximum zum Experimentieren gewählt werden kann. Wird ein Anteil von 20 % im gewählten ersten Beugungsmaximum angenommen, und ein Clusteranteil von 1 %, so reduziert sich die Targetdichte weiter auf $3 \cdot 10^6$ Teilchen/cm³ (p_{He_2} von $1 \cdot 10^{-10}$ mbar). Tabelle 5.1 stellt die erreichten Raten von detektierten Dimeraufbrüchen nach Ionisation im Laserfokus bei unterschiedlichen Expansionsbedingungen gegenüber. Die Detektionsrate hängt neben der Targetdichte auch von der Ionisationswahrscheinlichkeit (Abschnitt 4.3.2) und der Detektoreffizienz (Abschnitt 5.4.2) ab.

Im Experiment liegt die Fokusposition fest im Raum. Welche Beugungsordnung ionisiert wird, kann somit nicht gewählt werden, indem der Fokus über das Beugungsbild verschoben

²Durch Vergleich mit Kim et al. [48]. Entspricht einem Helium-Targetdruck p_{He} von $2 \cdot 10^{-7}$ mbar.

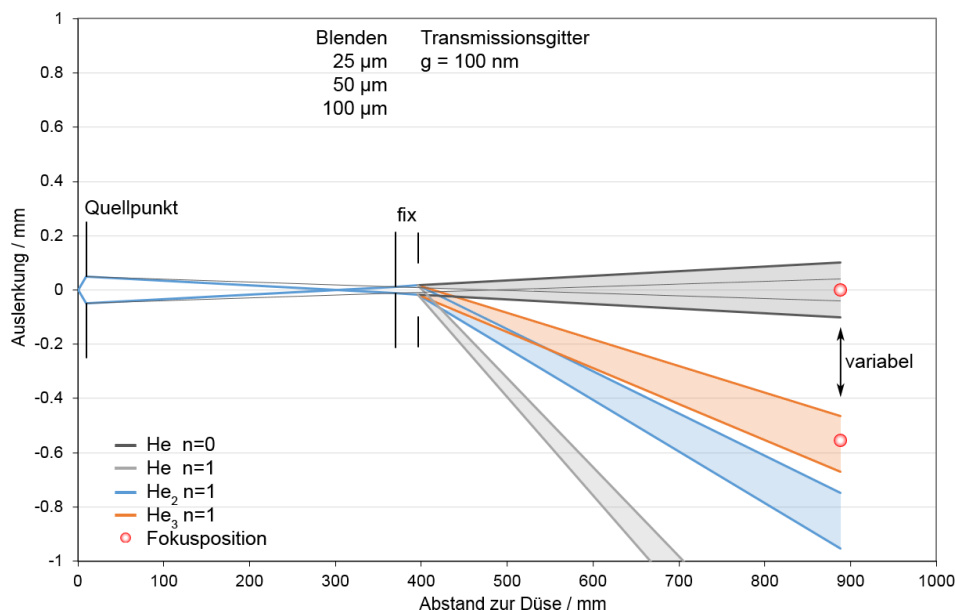


Abb. 5.4.: Pfad des Gasstrahls zwischen Düse und Laserfokus für den Fall eines unbeweglichen Transmissionsgitters für eine Düsentemperatur von 8 K und eine Blende von 25 µm. Unterschiedlich schwere Teilchen im Gasstrahl werden unterschiedlich stark am Gitter gebeugt. Bei fixem Gitter müsste der Fokus variabel sein, um die zu ionisierende Beugungsordnung zu wählen.

ben wird. Also wird das Gitter beweglich aufgehängt. So kann das Beugungsbild über den raumfesten Fokus geschoben werden (vergleiche Abb. 5.4 und 5.5). Dies ermöglicht eine präzise Wahl der Beugungsordnung durch den Experimentator, ohne Abhängigkeit von der projektilbereitstellenden Anlage (dem Laser)³.

Um eine Messung an einer bestimmten Clustergröße durchzuführen, muss das Transmissionsgitter und die vorangestellte Schlitzblende so positioniert werden, dass die Beugungsordnung der gewünschten Größe in den Fokus gelangt⁴. Das Gitter und die Blenden sind an Lineardurchführungen montiert, deren Bewegungsachse senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Gasstrahls und senkrecht zur Laserpropagationsrichtung steht. Die Durchführungen können unabhängig voneinander positioniert werden. So ist wählbar welche Schlitzblendengröße vor welchem der drei Gitter positioniert wird. Die Abstände der Blenden zueinander sind so gewählt, dass der Gasstrahl nie zwei Gitter gleichzeitig erreichen kann.

³Dabei ist erforderlich, dass der Fokus während der gesamten Messzeit stabil im Raum liegt und die Dichte des Gasstrahls im Bereich des Verfahrensweges von Blende und Gitter näherungsweise homogen ist.

⁴Dazu wird stets die erste Beugungsordnung gewählt. Sie hat eine hohe Intensität relativ zu den anderen Beugungsordnungen, ohne wie die nullte Ordnung identische Ablenkungswinkel für mehrere Clustergrößen zu haben.

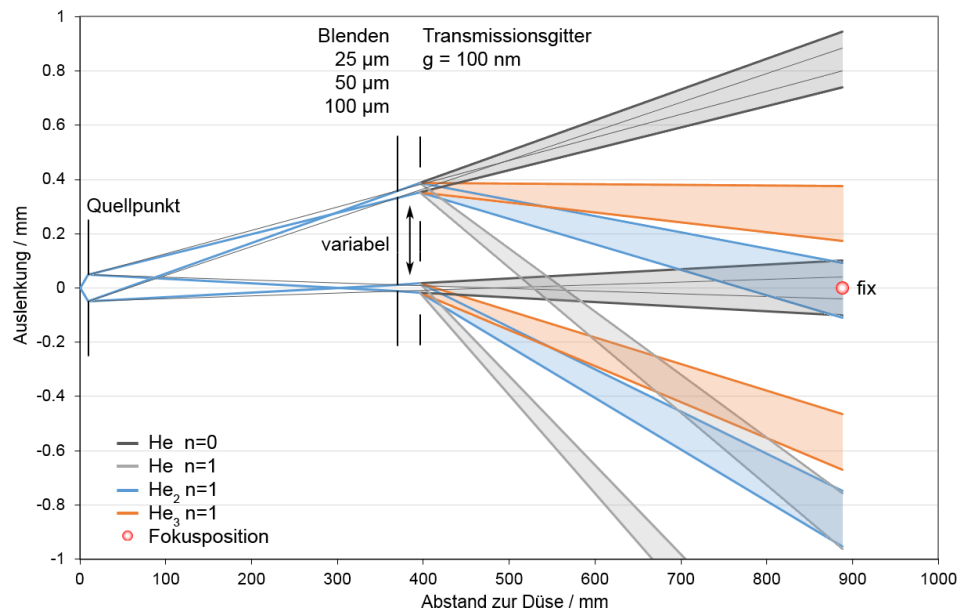


Abb. 5.5.: Pfad des Gasstrahls zwischen Düse und Laserfokus für den Fall eines beweglichen Transmissionsgitters für eine Düsentemperatur von 8 K und eine Blende von 25 μm . Unterschiedlich schwere Teilchen im Gasstrahl werden unterschiedlich stark am Gitter gebeugt. Die justierbare Position von Blende und Gitter erlaubt die zu ionisierende Beugungsordnung in den Fokus zu lenken.

Um die benötigten Positionen von Gitter und Blende zu ermitteln, werden zunächst sämtliche Positionen abgetastet und so eine Aufnahme des gesamten Beugungsbildes erstellt. Ein solches Beugungsbild ist in Abb. 5.6 gezeigt. Mithilfe des Beugungsbildes kann die Position auf zwei Wegen bestimmt werden: Entweder wird die Positionen von nullter und ersten Beugungsordnung ausgemessen, und anschließend die Position der ersten Ordnung der gewünschten Clustergröße berechnet. Oder der Peak der ersten Ordnung der gewünschten Clustergröße ist direkt im Beugungsbild sichtbar. Die sichtbare Position sollte natürlich mit der errechneten Position übereinstimmen⁵.

Um die Aufnahme des Beugungsbildes und die anschließende Positionierung von Gitter und Blende exakt, reproduzierbar und zügig durchführen zu können, wurden diese Arbeitsschritte im Rahmen dieser Arbeit automatisiert. Dazu wird die Positionierung der beiden Lineardurchführungen, an denen Gitter und Blenden montiert sind, durch jeweils einen Schrittmotor mit Verfahrensgenauigkeit im Mikrometerbereich betrieben. Die

⁵Dieser Prozess muss vor jeder Messung erneut durchgeführt werden, da je nach Wahl von Beugungsgitter, Schlitzblende und Düsenposition leichte Abweichungen oder Verschiebungen auftreten können. Zudem muss nach großen Temperaturänderungen an der Düse die thermische Angleichung des gesamten Düsenhalters und dessen damit einhergehenden Ausdehnung abgewartet werden, um nachträgliche Dejustierungen zu vermeiden.

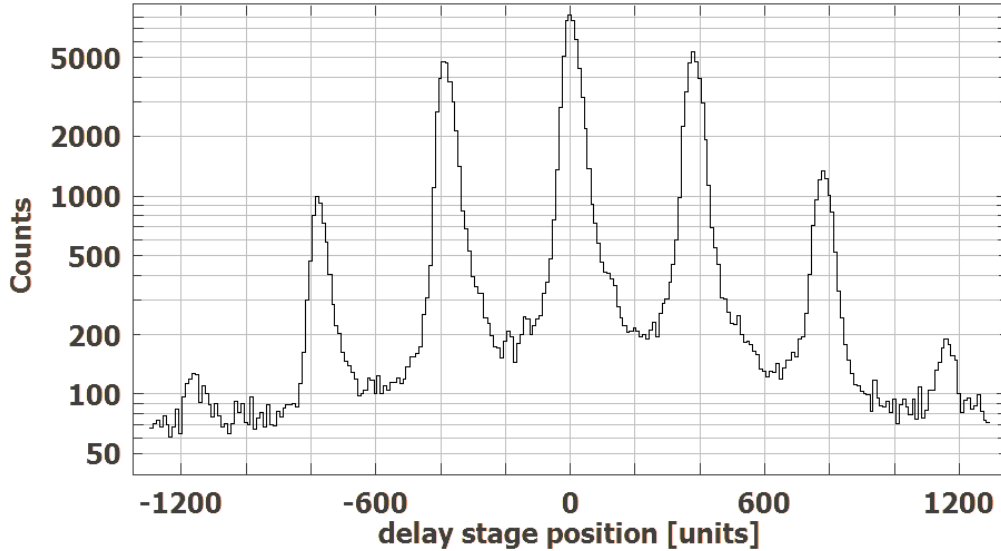


Abb. 5.6.: Beugungsbildaufnahme mit CoboldPC bei Einsatz eines Heliumgasstrahls bei T_0 von 12 K und p_0 von 1,5 bar. Sichtbar sind die Beugungsmaxima von Heliummonomeren bis hin zu Ordnung $n = \pm 3$. (Aufnahmezeit 33 min, Ti:Sa-Repetitionsrate 8 kHz, Schlitzblende 50 μm , Bedingung: He^+ -Flugzeit ± 550 ns)

Steuerung der Schrittmotoren geschieht direkt aus dem Aufnahmeprogramm CoboldPC. Die Kontroll-Einheit (Net Controls, LLC 9x) der Schrittmotoren ist über eine RS232-Schnittstelle (COM-Port) mit dem PC verbunden. So können ASCII-Befehle an den Controller gesendet und vom ihm empfangen werden. Die Steuerung über das Programm CoboldPC bietet zwei Modi: Das Anfahren einer bestimmten Position und das Abtasten (Scannen) über einen definierten Bereich. Die Zielposition, bzw. die Startposition des Abtastvorgangs (Scans), wird in Anzahl an Schrittmotorschritten zu einem Referenzpunkt angegeben. Der Referenzpunkt wird zu Beginn durch Anfahren der Anschlagpunkte gefunden. Für einen Scan kann zusätzlich die Schrittweite, die Verweildauer pro Schritt sowie die Anzahl an Durchläufen definiert werden.

Die Schrittmotoren sind mit Encodern ausgestattet, die ermöglichen die aktuelle Position zu überprüfen und den Wert über die Kontrolleinheit an den PC zurück zu geben. Ein Encoderschritt entspricht 16 Schrittmotorschritten und damit einem Verfahrweg von 1,56 μm . Die Verfahrgenauigkeit beträgt ± 1 Encoderschritt, und kann als Abweichung zwischen Soll- und Ist-Position zurückgegeben werden⁶. Die Rückgabewerte stehen in Datenaufnahmeprogramm CoboldPC zur Verfügung. Um das Beugungsbild aufzuzeichnen, wird die aktuelle Position während eines Scans gegen die Zahl der ankommenden Ionen (counts) aufgetragen. Zum Scannen des Beugungsbild wurden typischerweise Schritt-

⁶Dieser Wert erhöhte sich nach Heißlaufen eines Motors dauerhaft auf ± 2 Encoderschritte

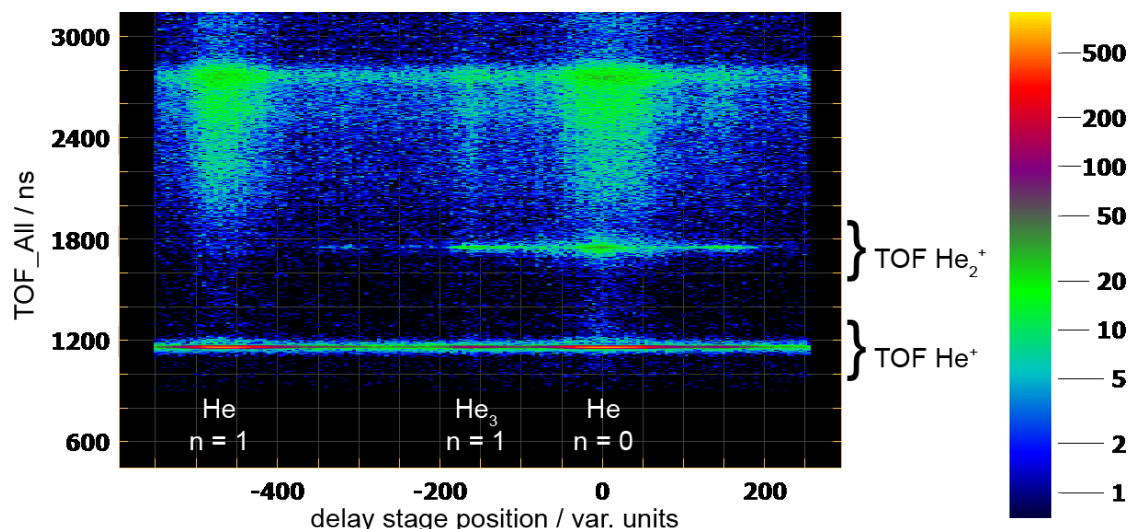


Abb. 5.7.: Beugungsbildaufnahme mit CoboldPC bei Einsatz eines Heliumgasstrahls bei T_0 von 8 K und p_0 von 1,2 bar. Aufgetragen ist die Schrittmotorposition gegen die Flugzeit der Ionen. Die Zahl der Ionen ist farblich kodiert. Das Beugungsbild zeigt für verschiedene Flugzeiten eine unterschiedliche Struktur. Bei der Flugzeit von He_2^+ -Ionen entsteht ein Beugungsbild frei vom Anteil der Monomere. (Aufnahmezeit 18 min, FEL-Repetitionsrate 800 Hz, Schlitzblende 50 μm)

weiten von 5 Encoderschritten und Verweildauern von 10 s gewählt (je nach aktueller Ionenrate). So kann innerhalb von 15-30 min eine automatisierte Aufnahme des Beugungsbildes erstellt werden.

Die direkte Verfügung über die Schrittmotorpositionen im Datenaufnahmeprogramm CoboldPC erweitert die Analysemöglichkeiten des Beugungsbildes. Die Position kann nun auf einfache Weise mit anderen während einer Messung aufgenommenen Variablen verknüpft werden. Das Beugungsbild kann gegen andere Variablen aufgetragen werden oder unter der Bedingung angezeigt werden, dass eine weitere Variable in einen bestimmten Wertebereich fällt. Abbildung 5.7 zeigt exemplarisch den Nutzen solcher Verknüpfungen. Hier wurde die Schrittmotorposition gegen die Flugzeit der nachgewiesenen Ionen aufgetragen. Die Beugungsmaxima sind hier über die Anzahl der Ionen farblich kodiert zu erkennen. Für die Flugzeit von He^+ -Ionen zeigt das Beugungsbild eine deutlich andere Struktur als für die Flugzeit von He_2^+ -Ionen. Die Projektionen dieser zeitlichen Bereiche sind in Abb. 5.8 dargestellt. Durch Forderung von Bedingungen auf die Flugzeit von Heliumionen kann das Beugungsbild vom Großteil des Untergrundes befreit werden.

Im Rahmen der vom Autor mitbetreuten Bachelorarbeit von J. Hahnenbruch[81] wurden die drei zur Verfügung stehenden Transmissionsgitter in Kombination mit den drei unterschiedlichen Spaltbreiten von 25, 50 und 100 μm charakterisiert. Hier konnte der

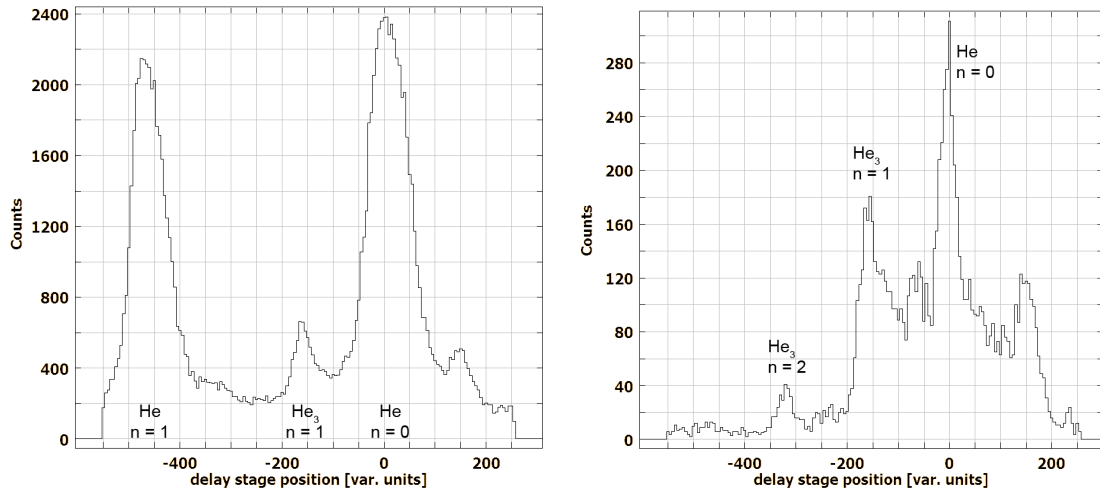


Abb. 5.8.: Beugungsbildaufnahme mit CoboldPC bei Einsatz eines Heliumgasstrahls bei T_0 von 8 K und p_0 von 1,2 bar unter zwei verschiedenen Bedingungen auf die Ionenflugzeit. Für die Flugzeit von He^+ -Ionen (links) sind Maxima nullter und erster Ordnung von Monomeren und Trimeren sichtbar. Für die Flugzeit von He_2^+ -Ionen (rechts) ist auch die zweite Beugungsordnung der Heliumtrimere zu sehen.

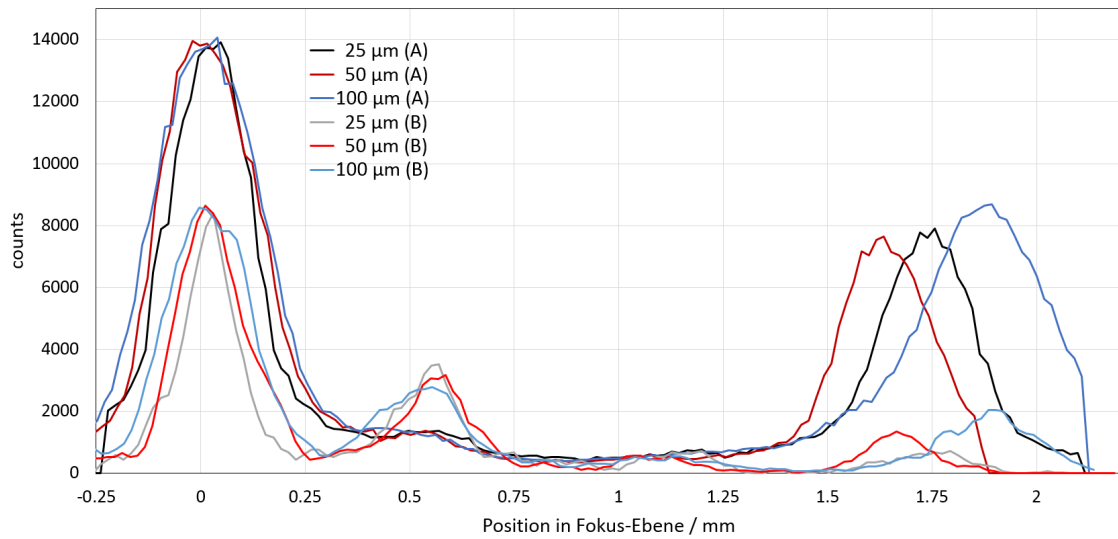


Abb. 5.9.: Aufnahmeserie von Beugungsbildern bei Einsatz unterschiedlicher Schlitzblenden vor dem Transmissionsgitter. Aufgetragen ist die Schrittmotorposition gegen die Rate von Heliumionen (A) und aufbrechenden Heliumclustern (B), normiert auf die Höhe der nullten Beugungsordnung. Die Breite der nullten Beugungsordnung steigt mit zunehmender Spaltbreite. (Heliumgasstrahl, Temperatur $T_0 = 10$ K, Vordruck $p_0 = 1,8$ bar, Aufnahmezeit je Bild 17 min, Ti:Sa-Repetitionsrate 8 kHz)

S	Rate (A)	Rate (B)	FWHM (A)	FWHM (B)
25 μm	$1,35 \cdot 10^5$	1180	248 μm	176 μm
50 μm	$2,39 \cdot 10^5$	2227	281 μm	201 μm
100 μm	$4,98 \cdot 10^5$	5391	324 μm	248 μm

Tabelle 5.2.: Zusammenhang zwischen der Spaltbreite S und der Halbwertsbreite der Beugungsmaxima (FWHM) sowie der Ionenrate für Beugungsbilder (A) und (B).

Zusammenhang zwischen der Spaltbreite und der Targetdichte sowie der Breite der entstehenden Beugungsmaxima untersucht werden. Dazu wurden drei Beugungsbilder eines Heliumgasstrahls mit jeweils unterschiedlicher Spaltbreite und sonst gleichbleibenden Bedingungen aufgenommen ($T_0 = 12 \text{ K}$, $p_0 = 1,8 \text{ bar}$). Erstellt werden die Beugungsbilder auf zwei Arten (A und B): (A) indem die Schrittmotor-Position gegen die Rate von Ionen mit der Flugzeit von Helium $\pm 550 \text{ ns}$ aufgetragen wird. Und (B) indem die Position gegen die Rate von aufbrechenden Heliumclustern aufgetragen wird⁷. Bei Verdopplung der Spaltbreite steigt die Rate detektierter Ionen etwa um das Zweifache (sowohl bei A als auch bei B). Als Maß für die Rate wird in Tab. 5.2 das Integral über das gesamte Beugungsbild angegeben, wobei alle drei Aufnahmen mit gleicher Abtastdauer und Schrittweite erfolgten. Als Maß für die Breite der Beugungsmaxima dient die Halbwertsbreite der nullten Ordnung. Bei dem Wechsel von einem 25 μm zu einem 50 μm breiten Spalt ist eine Verbreiterung der nullten Ordnung von 13-14 % zu verzeichnen. Der Einsatz eines 100 μm statt eines 25 μm breiten Spaltes bewirkt eine Verbreiterung von 30 % (A) bis 40 % (B). Die Halbwertsbreiten sind ebenfalls in Tab. 5.2 aufgelistet. Messungen an Clustern einer bestimmten Größe werden unter Einsatz eines möglichst breiten Spaltes durchgeführt, um eine möglichst hohe Rate zu erhalten. Abgewogen werden muss die Größe der Spaltbreite gegen die Möglichkeit unterschiedliche Beugungsordnungen voneinander zu trennen. Die Separation der ersten Beugungsordnungen unterschiedlicher im Gasstrahl vorliegender Clustergrößen (etwa He_2 und He_3) nach Gleichung 5.2 muss größer sein als die doppelte Halbwertsbreite der Beugungsmaxima.

Die Breite der entstandenen Beugungsordnungen liefert einen Anhaltspunkt, um auf die Größe des Quellpunktes zu schließen, an dem die Heliumatome und -cluster ihren Weg in Richtung Transmissionsgitter beginnen. Die Randbedingungen für die Größe des Quellpunktes sind durch die Düsengröße von 5 μm und die Skimmergröße von 300 μm gegeben. Ein genauerer Wert ergibt sich durch die Betrachtung des geometrischen Strah-

⁷Aufbrechende Heliumcluster können herausgefiltert werden, indem überprüft wird ob die Flugzeiten zweier detektierter Ionen den Zusammenhang erfüllen, der aufgrund der Impulserhaltung bei einer Coulomb-Explosion vorgegeben ist.

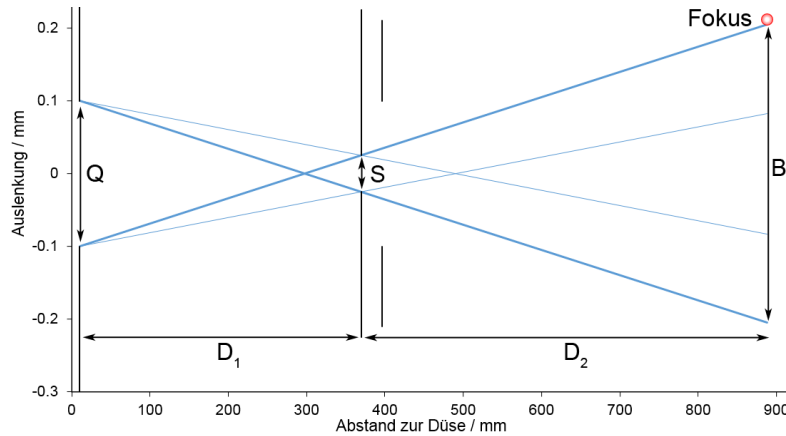


Abb. 5.10.: Schema des Gasstrahls zur Darstellung des Zusammenhangs zwischen der Breite der Quelle Q , der Schlitzblende S und der Beugungsordnungen B .

lenganges vom Quellpunkt durch die Schlitzblende zum Fokus. Die beiden divergentesten Strahlen sind in Abb. 5.10 schematisch dargestellt. Sie definieren die Fußbreite der gemessenen Beugungsordnungen, wobei zusätzlich die Fokusgröße $\varnothing_{Fokus}$ berücksichtigt werden muss. Bei bekannter Schlitzbreite S und gemessener Breite der Beugungsordnung B kann die Quellbreite Q bestimmt werden mit

$$Q = \frac{D_1}{D_2}(B - \varnothing_{Fokus} - S), \quad (5.4)$$

wobei D_1 der Abstand von Quellpunkt zu Schlitzblende und D_2 der Abstand von Schlitzblende zu Fokus ist. Die Fußbreite der Beugungsordnung B wird als das Doppelte der gemessenen Halbwertsbreite genähert. Dazu wird das Beugungsbild unter zwei verschiedenen Bedingungen betrachtet: Zum Einen unter der Forderung, dass die Einzelteilchen-Flugzeit der eines He^+ -Ions entspricht. Zum Anderen unter der Forderung, dass zwei detektierte Heliumionen aus einem Aufbruch stammen. Unter der ersten Bedingung wird eine durchschnittliche Quellgröße von $223 \mu\text{m}$ ermittelt. Unter der zweiten Bedingung wird ein Wert von $127 \mu\text{m}$ berechnet. Der geringere Wert ist auf die schmäleren Beugungsmaxima zurückzuführen, die sich unter der zweiten Bedingung zeigen, bei der der Großteil der Monomere herausgefiltert wurde. In Abb. 5.11 wird der Zusammenhang von berechneter Quellgröße zu Düsentemperatur T_0 und Vordruck p_0 untersucht. Trotz großer Streuung der Werte ist ein Anstieg der Quellgröße für zunehmenden Druck p_0 erkennbar.

Die Aufspaltung unterschiedlicher Beugungsordnungen wird bestimmt von der De-Broglie-Wellenlänge und damit der Geschwindigkeit der Gasteilchen, die wiederum von der

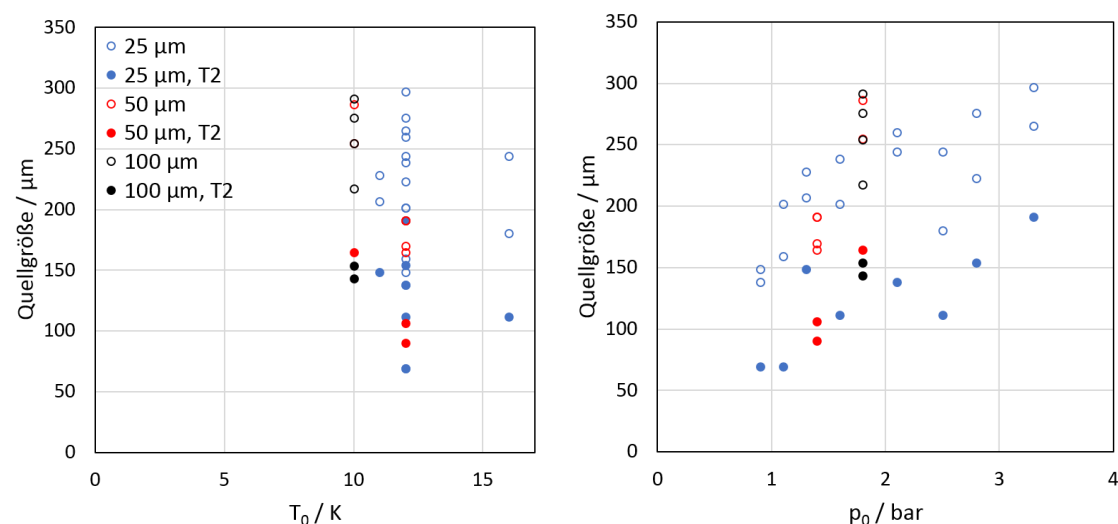


Abb. 5.11.: Berechnete Quellgröße in Abhängigkeit der Düsentemperatur T_0 (links) und des Vordrucks p_0 (rechts) aus Messungen mit unterschiedlichen Breiten des Spaltes vor dem Beugungsgitter 25 μm , 50 μm und 100 μm .

Düsentemperatur abhängt (siehe Gleichung 3.3 und 3.1). Die Abhängigkeit der Aufspaltung von der Temperatur wurde in einer Messreihe demonstriert (siehe Abb. 5.12). Abbildung 5.12 zeigt zudem den berechneten Zusammenhang zwischen der Temperatur und dem Abstand zwischen nullter und erster Beugungsordnung der Heliummonomere. Die blauen Kreuze geben den Messwert von Temperatursensor B an, der sich in einem Abstand von 30 mm zur Düse befindet. Die Diskrepanz zwischen berechneten und gemessenen Werten sind auf eine mögliche Abweichung des Temperatursensors für sehr kleine Temperaturen zurückzuführen.

Die im Gasstrahl vorliegende Mischung unterschiedlicher Clustergrößen wird durch die Wahl von Druck und Temperatur an der Düse bestimmt (siehe Abschnitt 3.1). Die relativen Erzeugungsraten kleiner Cluster können aus dem Beugungsbild bestimmt werden. Dazu werden die Integrale über die Beugungsmaxima erster Ordnung verglichen. Abbildung 5.13 zeigt eine Serie von Beugungsbildern bei unterschiedlichen Drücken p_0 und einer festen Temperatur T_0 von 12 K. Zwischen einem Druck von 0,9 bar und 3,3 bar wandelt sich die Zusammensetzung des Gasstrahls von einem vorwiegend Dimere zu einem vorwiegend Trimere enthaltenen (quantitative Ergebnisse in Abb. 3.5).

In einer weiteren vom Autor mitbetreuten Bachelorarbeit von D. Aslitürk[82] wurde die automatisierte Beugungsbildaufnahme verwendet, um die Tauglichkeit des konzipierten

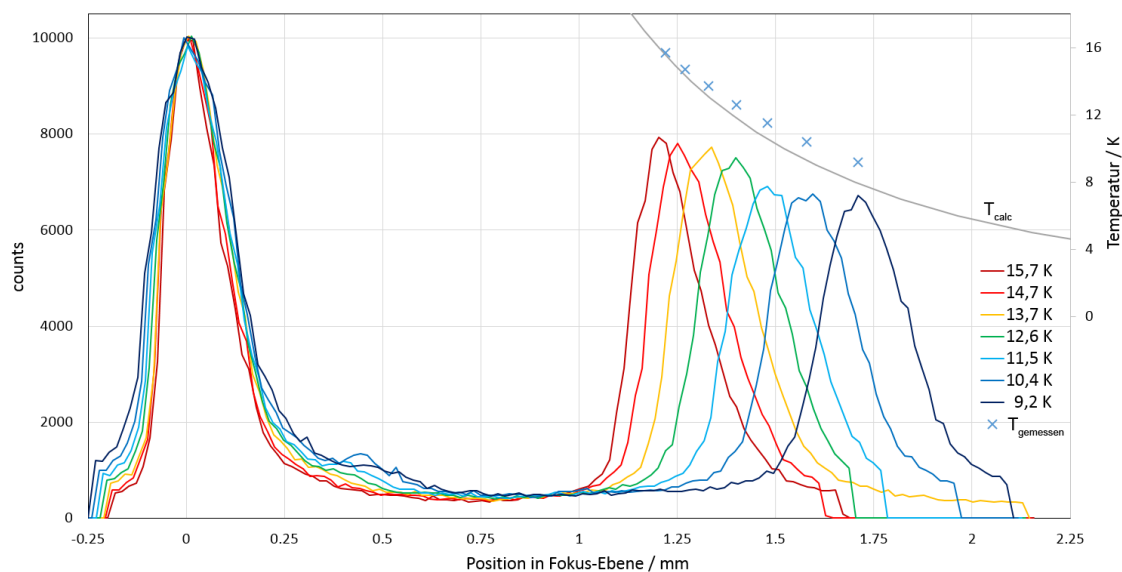


Abb. 5.12.: Aufnahmeserie von Beugungsbildern bei unterschiedlichen Düsentemperaturen T_0 . Aufgetragen ist die Schrittmotorposition gegen die Ionenrate. Der Abstand zwischen den Maxima der Monomere steigt mit sinkender Temperatur. Der Ausschnitt oben rechts zeigt die gemessenen (Kreuze) und berechneten (T_{calc}) Temperaturen für die jeweiligen Abstände. (Heliumgasstrahl, Vordruck $p_0 = 2,4$ bar, Aufnahmezeit je Bild 20 min, Ti:Sa-Repetitionsrate 8 kHz, Schlitzblende 25 μm)

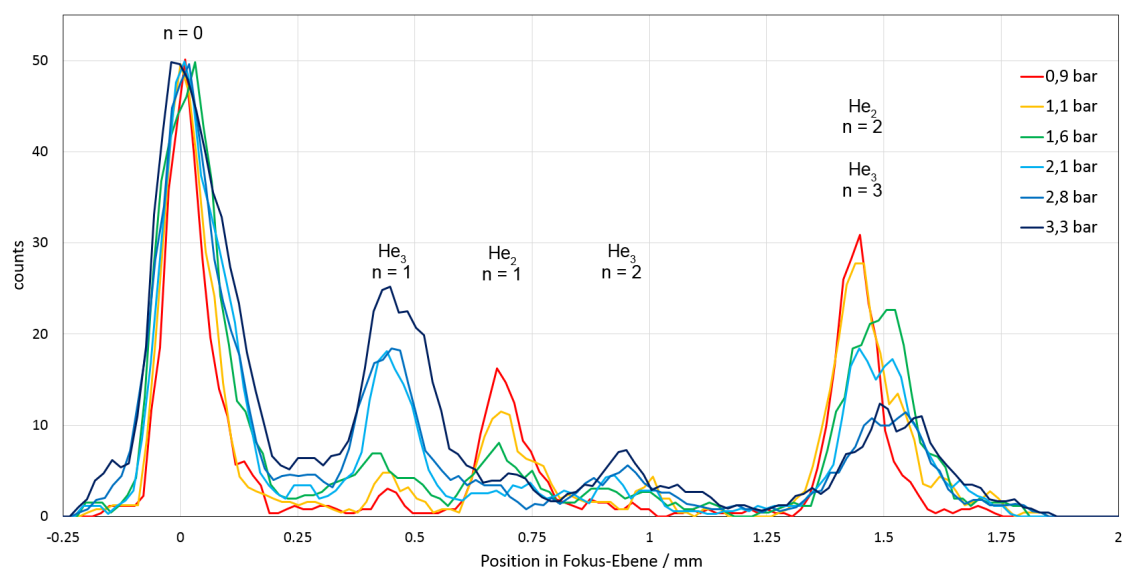


Abb. 5.13.: Aufnahmeserie von Beugungsbildern bei unterschiedlichen Vordrücken an der Düse p_0 . Aufgetragen ist die Schrittmotorposition gegen die Rate von aufbrechenden Heliumclustern, normiert auf die Höhe der nullten Beugungsordnung. Bei einem Druck von 0,9 bar (rot) ist die erste Ordnung von He_2 sichtbar. Bei steigendem Druck verschwindet dieses Maximum. Gleichzeitig steigt die Rate an der Position der ersten Ordnung von He_3 . (Heliumgasstrahl, Temperatur $T_0 = 12$ K, Aufnahmezeit je Bild 17 min, Ti:Sa-Repetitionsrate 8 kHz, 25 μm Schlitzblende)

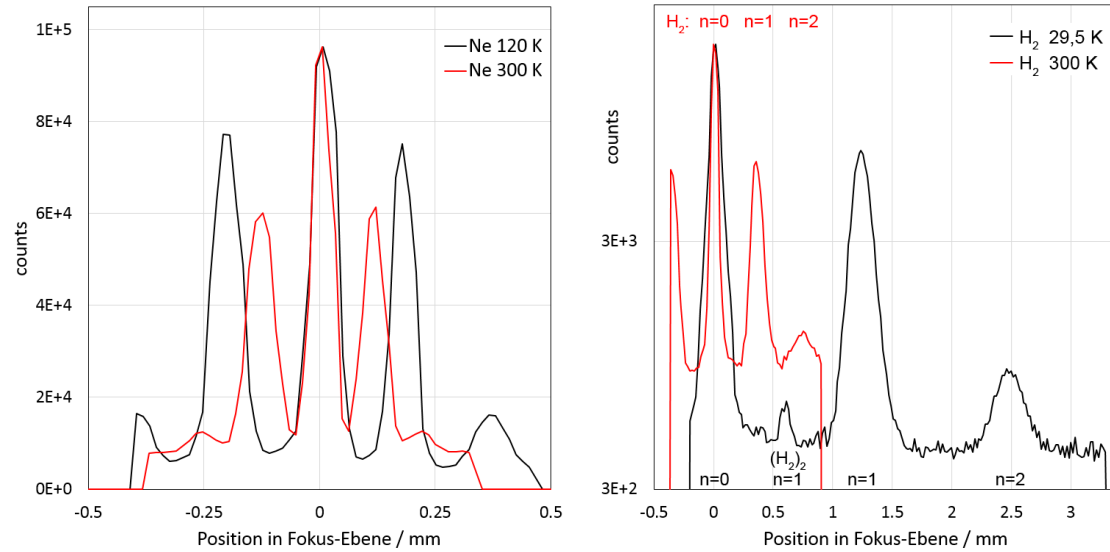


Abb. 5.14.: Beugungsbilder bei Einsatz eines Neongasstrahls (links) und eines Wasserstoffgasstrahls (rechts, log. Darstellung). Es wird jeweils eine Aufnahme bei Raumtemperatur (rot) mit einer Aufnahme mit gekühltem Gasstrahl (blau) verglichen. Das H₂-Beugungsbild bei 29,5 K zeigt das Maximum erster Ordnung von H₂-Dimeren. (Aufnahmezeit je Bild 18-30 min, Ti:Sa-Repetitionsrate 8 kHz, Schlitzblende 25 μ m)

Systems zur Massenselektion durch Materiewellenbeugung für clusterhaltige Strahlen anderer Gase zu prüfen. Dazu wurden Messungen mit Wasserstoffmolekülen und Neon durchgeführt. Die De-Broglie-Wellenlänge ist nach Gleichung 3.4 abhängig von der Masse und der Geschwindigkeit der Teilchen im Gasstrahl. Die Geschwindigkeit hängt nach Gleichung 3.1 von der Düsentemperatur ab, womit für die De-Broglie-Wellenlänge gilt:

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{m \cdot v} = \frac{h}{\sqrt{5k_B T_0 \cdot m}}. \quad (5.5)$$

Bei gleicher Temperatur ist also für einen Gasstrahl aus Wasserstoffmolekülen ($m = 2u$) eine größere Auslenkung der Beugungsordnungen zu erwarten als für Helium ($m = 4u$), während für alle schwereren Elemente ein gestauchtes Beugungsbild entsteht.

Eine Variation der Temperatur bewirkt analog zur Variation der Masse eine Streckung oder Stauchung des Beugungsbildes. Abbildung 5.14 zeigt Beugungsbildaufnahmen von Neon bei 120 K (Siedepunkt 27,15 K) und Wasserstoffmolekülen bei 29,5 K (Siedepunkt 21,15 K) jeweils im Vergleich zu einer Aufnahme bei Raumtemperatur. Bei sämtlichen Temperaturen sind die Maxima der Monomere (Ne, H₂) klar voneinander getrennt. Um etwaige Beugungsordnungen von Dimeren oder größeren Clustern im Beugungsbild von

den Monomermaxima zu trennen, ist jedoch eine Kühlung des Gasstrahls zur zusätzlichen Aufspaltung der Beugungsordnungen notwendig. Dies konnte für Wasserstoffmoleküle bei 29,5 K demonstriert werden. Die erste Ordnung von Wasserstoffmolekül-Dimeren $(\text{H}_2)_2$ ist im Beugungsbild sichtbar.

5.3. Anforderungen an das Vakuum

Die geringe Targetdichte (siehe Abschnitt 5.2) muss mit einem Vakuum von noch geringerer Restgasdichte kombiniert werden, um die Zahl der Untergrundereignisse auf ein Maß zu begrenzen, das Datenaufnahme und Auswertung nicht beeinträchtigt. Die Restgasdichte ist entscheidend, da die eingesetzten Laser neben Helium auch sämtliche anderen Elemente ionisieren können⁸. Der Ti:Sa-Laser ionisiert Target- und Restgasteilchen im Fokus. Allerdings ist das Volumen, in dem eine Ionisation ermöglicht wird, für andere Elemente größer ist als für Helium. Das Problem der Ionisation anderer Elemente wird bei Einsatz des FEL noch ausgeweitet, da er nicht nur im Fokus, sondern entlang des gesamten Strahlpfades zu ionisieren vermag. Es entsteht also ein Untergrund an Ionisationsereignissen der proportional zur Dichte der Restgasteilchen und damit dem Enddruck des Vakuums ist. Wie ein Enddruck erreicht wird, der die geringe Targetdichte maßgeblich unterschreitet, erläutern die nächsten Abschnitte.

5.3.1. Ausheizen der Reaktionskammer

Die Reaktionskammer wird mit Hilfe von Turbomolekularpumpen evakuiert. Die Teilchendichte wird hierdurch problemlos so gering, dass die durchschnittliche Strecke, die ein Teilchen zurücklegt bis es mit einem zweiten wechselwirkt, größer ist als der Weg bis zur Kammerwand⁹. Die Teilchen interagieren also nur noch mit den Oberflächen im Kammerinneren. An einer Oberfläche haftet ein Teilchen eine gewisse Zeit, bis es durch äußere Anregung desorbiert. Vor allem für Wasser ist diese Zeit sehr hoch [83]¹⁰.

Sobald ein Teilchen eine Pumpe trifft wird es aus dem Kammervolumen entfernt. Das Vakuum in einer Kammer wird also solange besser, bis sich ein Gleichgewicht zwischen

⁸Helium hat von allen Elementen das höchste Ionisationspotential.

⁹Die Knudsenzahl, die eben dieses Verhältnis von *mittlerer-freier-Weglänge* zum Kammerdurchmesser angibt, ist $\gg 1$. Die Weglänge ist im erreichbaren UHV-Bereich ($< 10^{-7}$ mbar) bereits größer als 1 km. Es liegt also molekulare Strömung vor.

¹⁰Das liegt an der benötigten Desorptionsenergie für Wasser auf Edelstahl. Bei Raumtemperatur desorbieren Stoffe mit kleinen Desorptionsenergien ≤ 71 kJ/mol sehr schnell. Oberhalb von 105 kJ/mol ist die Desorption so unwahrscheinlich, dass das Vakuum kaum beeinträchtigt wird. Wasser liegt mit 96 kJ/mol leider genau dazwischen und führt so längerfristig zu erheblicher Druckerhöhung im Rezipienten.

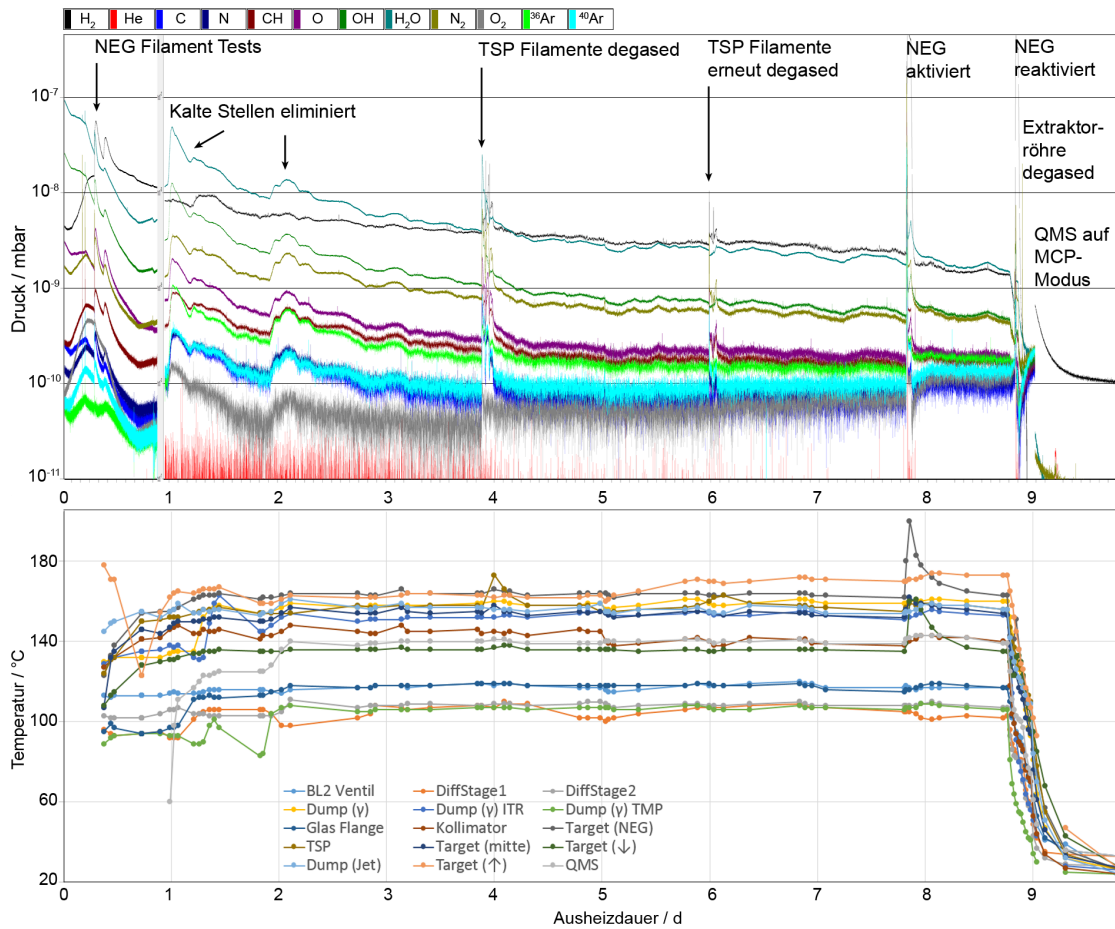


Abb. 5.15.: Zeitliche Veränderung der Partialdrücke in der Reaktionskammer während des Ausheizvorganges (oben) und der zugehörige Temperaturverlauf, gemessen an mehreren Punkten verteilt über den geheizten Bereich (unten). Eine detailliertere Darstellung der Partialdrücke befindet sich in Anhang A.5.

abgepumpten Teilchen und der unvermeidbaren Rückströmung durch Pumpen und Lecks in das Kammervolumen einstellt. Das Vakuum strebt asymptotisch diesem Gleichgewicht entgegen. Der asymptotische Verlauf kann nun durch zwei Methoden steiler gemacht, der Abpumpvorgang also beschleunigt werden:

Zum Einen kann das asymptotische Limit auf einen möglichst niedrigen Wert gebracht werden. Der erreichbare Enddruck p_e ist umso niedriger, je höher das Kompressionsvermögen¹¹ der eingesetzten Pumpen K und je niedriger der Vorvakuum-Druck p_v ist. Es gilt $p_e = p_v/K$. Die in der Reaktionskammer eingesetzten Turbomolekularpumpen (2x

¹¹Vermögen ein hohes Verhältnis zwischen dem Druck auf der Hochvakuumseite und dem auf der Vorvakuumseite zu erzeugen

Pfeiffer TMU 521) erreichen ein Kompressionsverhältnis K von $>10^{12}$ für N_2 ¹² [84]. Eine Kombination aus Turbomolekular- und Membranpumpe (Pfeiffer HiCube Eco) erzeugt ein Vorvakuum von $2 \cdot 10^{-4}$ mbar. Zudem werden selbstverständlich alle auffindbaren Lecks im Rezipienten geschlossen.

Zum Anderen kann die Wahrscheinlichkeit für Teilchen sich von den Oberflächen im Kammerinneren zu lösen (Desorption) erhöht werden. Bewegt sich ein Teilchen öfter von Oberfläche zu Oberfläche, so erhöht sich auch die Chance dabei einen Pumpstutzen zu treffen und das Kammervolumen zu verlassen. Das kann sehr effizient durch Erhitzen der gesamten Vakuumkammer, und mit ihr allen inneren Oberflächen, erreicht werden. Dieser Vorgang wird *Ausheizen* genannt. Durch Heizschlangen wird die Kammer auf eine Temperatur von 150°C erhitzt. Je höher erhitzt werden kann, desto stärker wird der Pumpvorgang verkürzt, allerdings ist die Temperatur lokal durch die maximale Belastbarkeit einzelner Kammerelemente limitiert¹³. Dabei ist es wichtig alle Oberflächen möglichst auf die gleiche Temperatur zu erhitzen, da sich die Teilchen in Folge ihrer statistischen Bewegung am kältesten Punkt der Kammer ansammeln. Dies wird durch mehrere Temperatursensoren überwacht, die auf der Kammeroberfläche verteilt sind (siehe Abb. 5.15 unten). Um sicherzustellen, dass nicht die Filamente der vorhandenen Messzellen, TSP oder Getterpumpe den kältesten Punkt darstellen, und um Ablagerungen auf den Filamenten freizusetzen, werden alle Filamente erhitzt. Dazu besitzt jedes Steuergerät typischerweise eine Degas-Funktion, die hier eingesetzt wird. Zusätzlich werden alle im Volumen befindlichen zu bewegenden Teile während des Ausheizens bewegt, um mögliche in der Bewegungsmechanik vorhandenen Totvolumen¹⁴ zu öffnen.

Nach vier Tagen des Ausheizens ist der Großteil des Wassers und des Stickstoffes abgepumpt worden. Die Wasserstoffkonzentration in der Kammer nimmt jedoch weniger stark ab und bildet schließlich den größten verbleibenden Partialdruck. Das hat zwei Gründe: Das Kompressionsvermögen der eingesetzten Turbomolekularpumpen ist abhängig von der Teilchengeschwindigkeit und damit besonders gering für Wasserstoff. Zudem wird durch das Ausheizen die Diffusion von Wasserstoff aus dem Metall der Kammerwände beschleunigt. Um gezielt Wasserstoff zu entfernen, wird eine Getterpumpe (NEG¹⁵) eingesetzt. Sie besitzt eine sehr große Oberfläche bestehend aus einer Metalllegierung (häufig Zr/V/Fe), die eine stabile Verbindung zu reaktiven Gasen eingeht und in die

¹²Für Helium und Wasserstoff ist das Verhältnis mit $K_{He} = 5 \cdot 10^7$ und $K_{H_2} = 6,5 \cdot 10^5$ weitaus geringer.

¹³Anodendrähte 150°C [85], VAT-Mini-UHV-Schieberventil 250°C , Beamlineventil 150°C , Turbomolekularpumpen 120°C , Massenspektrometer (MKS 250°C , ohne Elektronik), Vakuummesszellen (ITR90 150°C , ohne Elektronik), Sichtflansch (Quarzglas 200°C)

¹⁴Volumen mit keinem oder nur sehr kleinem Zugang zum Hauptvolumen der Kammer

¹⁵NEG steht für non evaporable Getter. Hier vom Typ SAES CapaciTorr MK5.

Wasserstoff eindiffundieren und damit gebunden werden kann. Die Oberfläche ist nach einiger Zeit, und spätestens nachdem sie Luft bei Normalbedingungen ausgesetzt war, von den entstandenen Verbindungen belegt und die Pumpleistung nimmt ab. Um wieder die maximale Pumpleistung zu erreichen, kann die Getterpumpe reaktiviert werden. Dazu wird die Metallegierung erhitzt (hier für 45 min auf 450°C), wodurch die gebundenen Stoffe von der Oberfläche tiefer in das Gettermaterial eindringen. Die Reaktivierung wird am Ende des Ausheizvorganges vorgenommen, damit die Pumpe eine möglichst kurze Zeit die erhöhte Diffusionsrate von Wasserstoffes aus dem Metall erfährt.

Am Ende des Ausheizvorganges sinkt die Wahrscheinlichkeit eines Teilchens eine Oberfläche zu verlassen wieder, und die noch vorhandenen Teilchen im Kammervolumen werden an den Oberflächen gebunden. Dieser Vorgang kann verstärkt werden, indem innere Oberflächen gekühlt werden. So konnte in der Reaktionskammer ein Ultrahochvakuum von $1,2 \cdot 10^{-11}$ mbar, und mit zusätzlicher Kühlung eines Kammerelementes durch flüssigen Stickstoff sogar $8 \cdot 10^{-12}$ mbar erreicht werden (Abb. A.1). Abbildung 5.15 zeigt die Partialdrücke der häufigsten im Restgas vorliegenden Elemente während des Ausheizvorganges und den Temperaturverlauf. Hier sind auch die Vorgänge während des Ausheizvorganges vermerkt und ihr Einfluss auf das Vakuum erkennbar.

5.3.2. Differenzielle Pumpstufe

Der Laserstrahl des verwendeten Ti:Sa-Lasers besitzt Wellenlängen nahe dem sichtbaren Bereich und kann durch ein Glasfenster aus amorphem Quarz in die Kammer eintreten. Für höherenergetisches Licht mit kürzeren Wellenlängen steigt jedoch die Absorptionswahrscheinlichkeit in Materie. Deshalb ist Glas undurchsichtig für Licht mit Wellenlängen wie sie von einem FEL erzeugt werden. Die Reaktionskammer musste also direkt mit dem Vakuum, in dem der Photonenstrahl geführt wird, der sogenannten Beamline, verbunden werden. In der Beamline BL2 an FLASH herrschte ein Vakuum von $5,2 \cdot 10^{-8}$ mbar. Um das Vakuum in der Reaktionskammer nicht, oder nur marginal, zu beeinträchtigen, musste das Vakuum der Beamline durch eine differenzielle Pumpstufe abgeschirmt werden. Hierbei wird ausgenutzt, dass sich der Druck zweier Volumina nur begrenzt schnell angleichen kann, wenn nur eine kleine Öffnung zwischen beiden besteht. Der Teilchenfluss q_T ist abhängig vom Leitwert der Öffnung L und der Druckdifferenz Δp zwischen den beiden Volumina mit

$$q_T = L \cdot \Delta p. \quad (5.6)$$

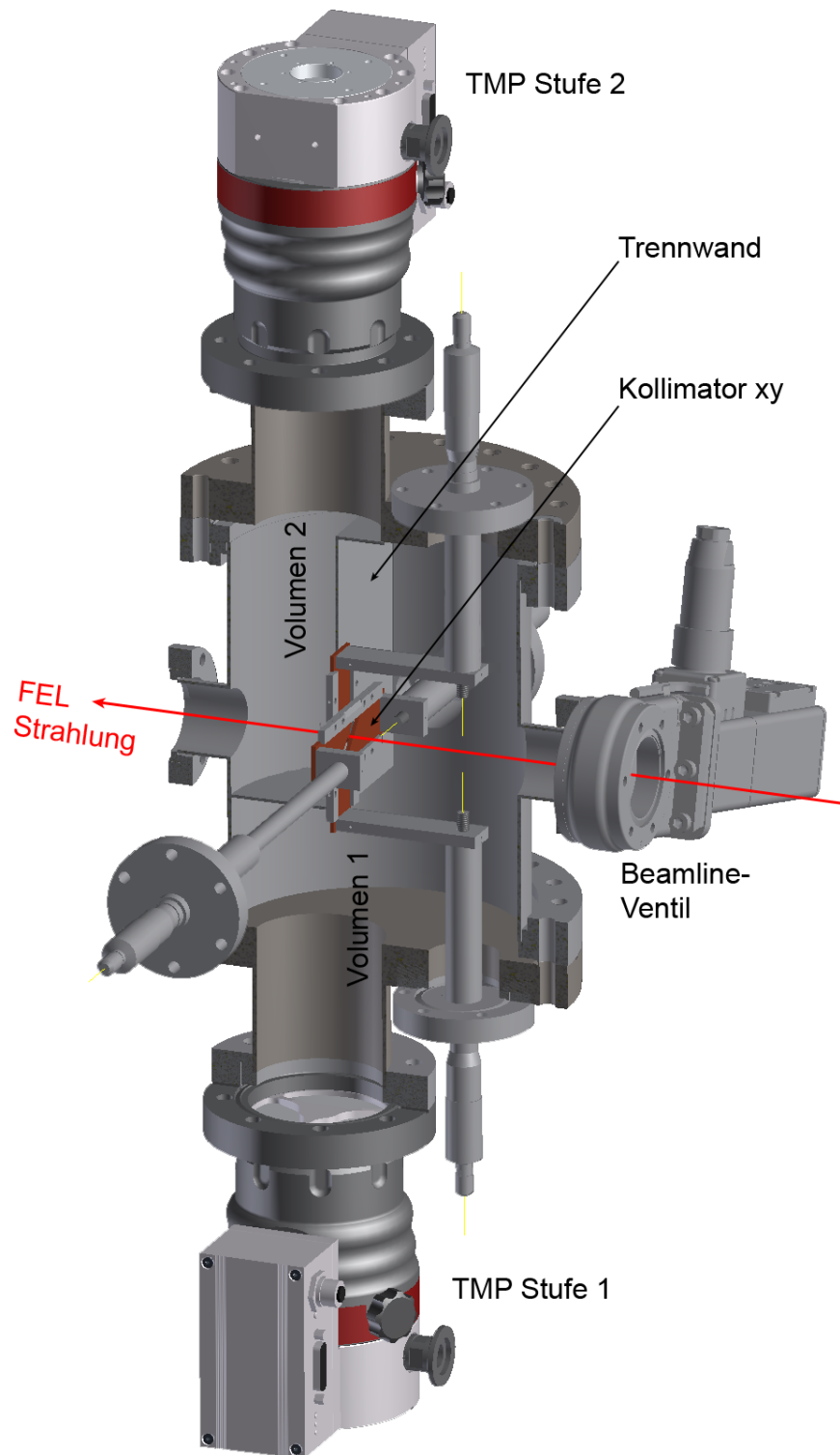


Abb. 5.16.: CAD-Modell der differentiellen Pumpstufe. Sie besteht aus einem Rohr ($\varnothing=150$ mm), das durch eine Trennwand in zwei Volumina unterteilt wird, die jeweils von einer Turbomolekularpumpe evakuiert werden. Auf der Laserachse ist ein durch Kollimatoren reduzierbares Loch in der Trennwand. So wird ein hoher Druckgradient entlang der Laserachse erreicht.

Bei molekularer Strömung ist der Leitwert einer Blende mit $L_B = \frac{1}{4}\bar{c}A$ abhängig von der Fläche der Öffnung A und der mittleren Molekülgeschwindigkeit $\bar{c}$. Wird die Blende verlängert zu einem Rohr der Länge l verringert sich der Leitwert auf $L_R = \bar{c}\pi d^3/12l$, wobei d der Rohrdurchmesser ist. Lange Röhrchen mit kleinem Durchmesser reduzieren den Teilchenfluss also am stärksten.

Die eingesetzte differenzielle Pumpstufe besteht aus zwei Volumina, die jeweils von einer Turbomolekularpumpe mit einer Saugleistung von 80 L/s (für N₂, Pfeiffer HiPace80) gepumpt werden. Die Beamline, bestehend aus einem Rohr mit einem Durchmesser von 35 mm, mündet in das erste Volumen. Auf der Laserachse ist das erste mit dem zweiten Volumen durch eine 20 mm durchmessende Öffnung verbunden, die durch Metallblenden verkleinert werden kann (siehe Abb. 5.16). Die Metallblenden sind mit Phosphor beschichtet, um die Strahlposition sichtbar machen zu können. Das zweite Volumen ist durch einen etwa 55 mm langen Wellbalg mit 16 mm Innendurchmesser mit der Reaktionskammer verbunden und kann durch ein Schieberventil abgetrennt werden.

An der entsprechenden Beamline wird der Fokus durch einen ellipsoiden Spiegel erzeugt. Der Fokus liegt fest im Raum in einem Abstand von 527,5 mm zum Verbindungsflansch der Beamline und limitiert so die maximale Länge der differenziellen Pumpstufe.

5.4. Die Reaktionskammer

In diesem zentralen Teil des Aufbaus kreuzt der Gasjet den Laserfokus. Im Fokus werden einzelne Gasteilchen ionisiert und die zu beobachtende Reaktion findet statt. Die geladenen Teilchen werden von elektrischen Feldern auf orts- und zeitauflösende Detektoren geleitet.

5.4.1. Der Detektor

Die Aufgabe sowohl den Auftreffort als auch die Ankunftszeit ankommender geladener Teilchen zu messen, erfüllt der verwendete Detektor durch die Kombination zweier Komponenten: Einer Mikrokanalplatte (Microchannelplate, MCP) und einer Delayline-Anode.

Das MCP erzeugt aus einzelnen auftreffenden Elementarteilchen messbare Signale. Es besteht aus einer Bleiglasscheibe mit einer Stärke von etwa 1 mm. Diese Scheibe ist von einem Raster von Kanälen durchsetzt, die einen Durchmesser von 25 µm besitzen (siehe Abb. 5.17). Die Oberfläche des MCP ist mit einem Material beschichtet, das eine geringe Austrittsarbeit für Elektronen besitzt¹⁶. Trifft ein Teilchen in einen Kanal so genügt sei-

¹⁶beispielsweise Cäsiumjodid, Magnesiumfluoride oder -oxide, Kupferjodid und Gold [86]

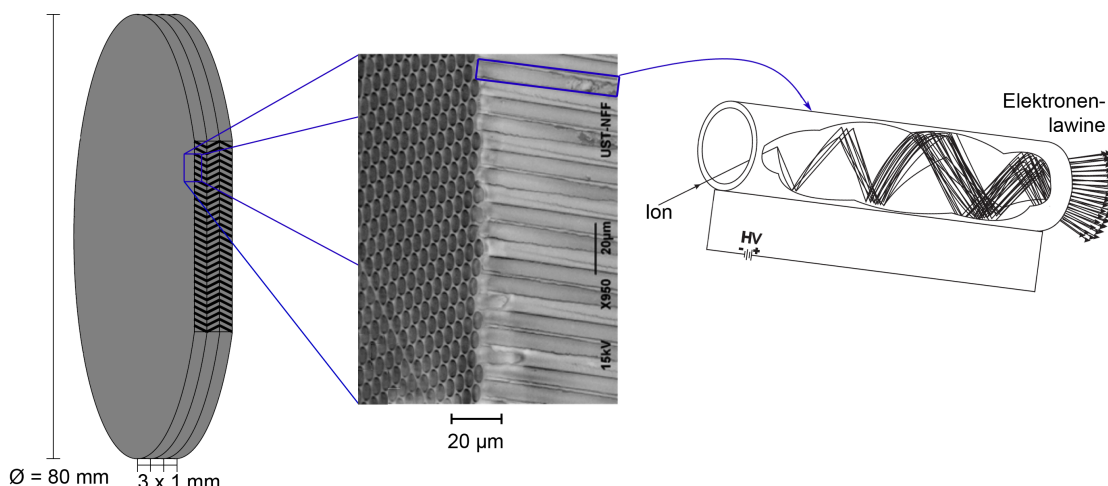


Abb. 5.17.: Aufbau und Funktion des MCPs. Zur Signalerzeugung wird ein Stapel aus drei MCPs mit einem Durchmesser von 80 mm eingesetzt (links, schematisch). Eine Elektronenmikroskop-Aufnahme zeigt die Mikrokanäle im Detail (mittig, aus [87]), in denen die Elektronenlawinen erzeugt werden (rechts).

ne Energie bereits, um mehrere Elektronen auszulösen. Durch Anlegen einer Spannung zwischen Vorder- und Rückseite des MCP wird ein Feld erzeugt, das die Elektronen zur Rückseite des MCP hin beschleunigt. Dabei stoßen die Elektronen erneut gegen die Kanalwände und lösen weitere Elektronen aus. Bis zum Kanalausgang auf der Rückseite des MCP hat sich die Zahl der anfänglichen Elektronen vertausendfacht. Um noch größere Verstärkungsfaktoren zu erreichen, können mehrere MCPs hintereinander gelegt werden¹⁷. Die Elektronenlawine der ersten Platte trifft dann einen oder mehrere Kanäle der nächsten Platte. Hier wird ein Stapel aus drei MCPs verwendet, mit dem ein Verstärkungsfaktor von über einer Millionen erreicht wird. Die austretende Elektronenlawine erzeugt eine Spannungsschwankung im MCP, die als Signal für den Ankunftszeitpunkt des Teilchens genutzt werden kann.

Die Elektronenlawine trifft dann auf die Delayline-Anode, die sich hinter dem MCP-Stapel befindet. Sie besteht aus drei Drähten, die zu drei koplanaren Drahtebenen aufgespannt sind (siehe Abb. 5.18). Jede Ebene ermöglicht den Ort der auftreffenden Elektronenlawine in einer Dimension zu bestimmen. Die Elektronenlawine induziert einen

¹⁷Ein Stapel aus zwei MCP wird *Chevron-Stack*, einer aus drei *Z-Stack* genannt. Die Namen beziehen sich hierbei auf die Form des Weges, den die Kanäle mehrerer Platten bilden. Die Kanäle einer Platte stehen nicht senkrecht auf deren Oberfläche, sondern unter einem leichten Winkel, um die Zahl der Stöße des Elektronen mit der Wand zu erhöhen. Mehrere Platten werden derart aufeinandergelegt, dass die Richtung der Kanäle alterniert (Chevron: $\setminus/$, Z: $/\setminus$)

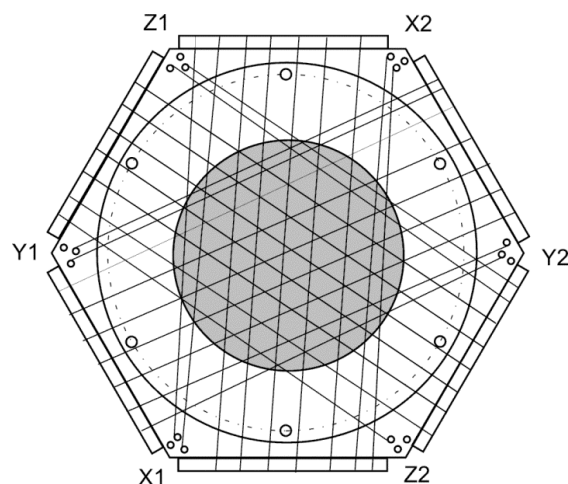


Abb. 5.18.: Schematische Darstellung der hexagonalen Anode. Sie besteht aus drei Drahtebenen die 1 mm voneinander entfernt liegen. Der dargestellte Draht ist tatsächlich ein Drahtpaar von mit Abständen von je 0,5 mm zwischeneinander und zum nächsten Paar. (aus [88])

Puls auf dem Draht, der sich in beide Richtungen ausbreitet¹⁸, wobei die Zeit bis zum Erreichen des Drahtendes von der zurückzulegenden Strecke abhängt. Aus der Differenz beider Ankunftszeiten kann der Auftreffort in einer Dimension berechnet werden¹⁹. Entsteht das Signal genau in der Mitte der Anode ist die Differenz null. Die maximale Differenz gehört zu einem Signal, das sehr dicht am einen Ende, und damit sehr weit vom anderen Ende entfernt, erzeugt wird. Der Ort in den drei Dimensionen u , v und w ist

$$\begin{aligned} u &= f_1(t_{u1} - t_{u2}) \\ v &= f_2(t_{v1} - t_{v2}) \\ w &= f_3(t_{w1} - t_{w2}). \end{aligned} \tag{5.7}$$

¹⁸Ein Puls, der sich entlang eines Drahtes ausbreitet, verbreitert sich aufgrund von Dispersion schnell so stark, dass er nicht mehr als Zeitsignal verwendet werden kann. Um dem entgegenzuwirken, wird kein Einzeldraht sondern ein Drahtpaar verwendet. Diese einfache Form der Lecher-Leitung reduziert die Dispersion wesentlich. Zudem kann das Drahtpaar genutzt werden, um externe Störungen zu unterdrücken. Dazu wird ein Draht auf ein um etwa 30 V höheres Potential gelegt als der andere. So wird das Signal bevorzugt auf dem positiveren Draht induziert. Im Gegensatz dazu werden die meisten Störsignale von beiden Drähten gleichermaßen aufgenommen. Durch bilden der Differenz beider Signale werden die Störungen entfernt während das echte Signal bestehen bleibt.

¹⁹Die Elektronenlawine weitet sich auf dem Weg zur Anode auf und trifft nicht nur einen, sondern mehrere benachbarte Wicklungen einer Drahtlage. Dies könnte zur Annahme führen, die Ortsinformation ginge verloren. Glücklicherweise ist das nicht der Fall, denn die Einzelsignale überlagern sich zu einem Gesamtsignal. Das liegt daran, dass die Einzelsignale aufgrund der Ausdehnung der Elektronenlawine 10 ns lang sind, nach etwa 2 ns jedoch bereits entlang des Drahtes bis zur Auftreffstelle an der benachbarten Drahtwicklung gelaufen sind. Der Schwerpunkt des entstehenden Gesamtpulses entspricht auch nach dieser Umwandlung noch dem Schwerpunkt der Elektronenverteilung in der Lawine.

Die Drahtebenen u , v und w besitzen Zwischenwinkel von 60° zueinander. Bereits zwei der drei Ebenen genügen, um den Auftreffort in x und y zu bestimmen:

$$\begin{aligned} x &= u \\ y &= \frac{1}{\sqrt{3}}(u - 2v) \end{aligned} \quad (5.8)$$

Für die Berechnung des Ortes aus den Ebenen u und w oder v und w gilt

$$\begin{aligned} x &= u & x &= v + w \\ y &= \frac{1}{\sqrt{3}}(2w - u) & y &= \frac{1}{\sqrt{3}}(w - v). \end{aligned} \quad (5.9)$$

Damit die drei Berechnungsmethoden für ein detektiertes Teilchen stets gleiche Orte liefern, müssen die Signalausbreitungsgeschwindigkeiten f_i kalibriert werden (ausführliche Beschreibung in [85]). Der Vorteil der redundanten Ortsbestimmung durch den Einsatz dreier Drahtebenen zeigt sich, wenn einzelne Pulse eines auftreffenden Teilchens fehlen. Fehlen ein oder zwei Pulse der gleichen Ebene, wird der Ort aus den anderen beiden Ebenen berechnet. Und auch wenn einzelne Pulse mehrerer Ebenen fehlen, können Auftreffort und -zeit noch ermittelt werden. Diese Rekonstruktion wird von einer Software-Routine durchgeführt (RESORT64, beschrieben in [89]). Darüber hinaus führt die Rekonstruktionsmöglichkeit zu einer signifikanten Reduzierung der Totzeit des Detektors[88].

5.4.2. Das Spektrometer

Das Spektrometer stellt die Ionenoptik dar, die mit Hilfe von elektrischen Feldern die in der untersuchten Reaktion entstandenen Ionen zu den Detektoren leitet. Aus den Auftrefforten und -zeiten werden die anfänglichen Impulse aller Ionen rekonstruiert. Dazu ist die genaue Kenntnis der eingesetzten Felder notwendig. Entsprechend erleichtert eine einfache Spektrometerfeldgeometrie die Rekonstruktion. Das hier verwendete Spektrometer besteht aus einem homogenen elektrischen Feld, dessen Feldlinien senkrecht zum Detektor stehen²⁰.

Um das Feld zu erzeugen, werden rechts und links von der Reaktionszone zwei parallele Kupferplatten auf unterschiedliche Potentiale gelegt, ähnlich einem Plattenkondensator. Um Feldeingriffe zu verhindern, wird eine Reihe weiterer paralleler Platten zwischen den

²⁰Natürlich bestimmt die zu betrachtende Reaktion die möglichen Feldgeometrien. Beispielsweise bietet sich bei großen Reaktionsvolumina eine Geometrie an, die Flugzeitunterschiede aufgrund der Ausdehnung des Reaktionsvolumens wegfokussiert, die sogenannte 2:1-McLaren-Geometrie (siehe z.B. [90]). In anderen Fällen wird ein abbremsender Feldbereich eingesetzt, um eine erhöhte Auflösung zu erreichen (siehe z.B. [91]).

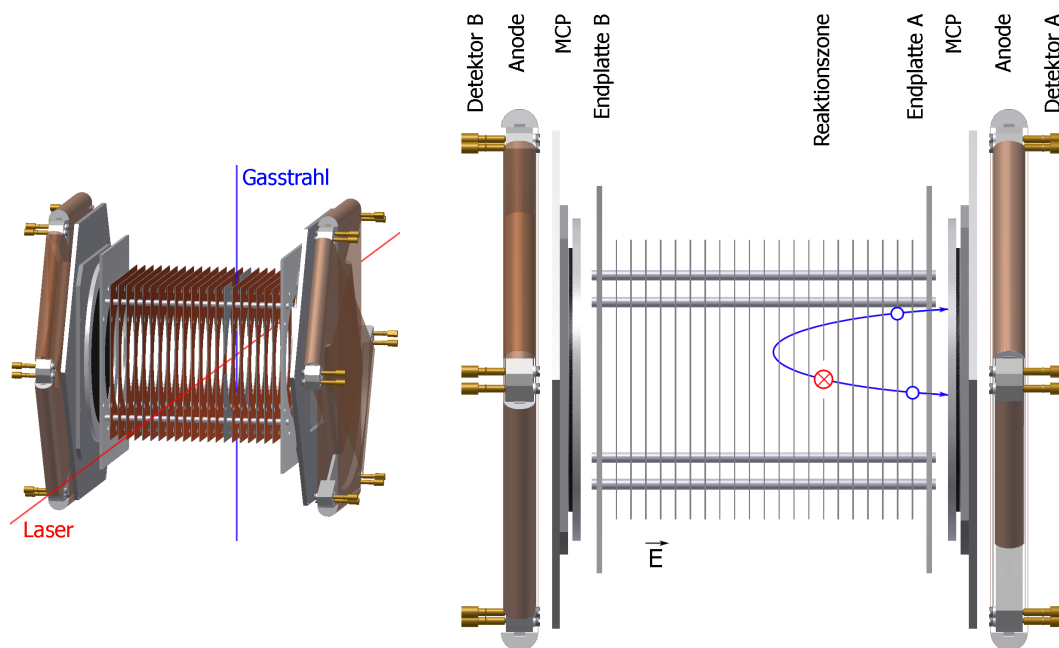


Abb. 5.19.: CAD-Modell des Spektrometers. Laser und Gasstrahl kreuzen sich im Spektrometer (links), wo durch Ionisation geladene Teilchen entstehen. Im Spektrometer besteht ein homogenes elektrisches Feld, das die geladenen Teilchen zu Detektoren an den Spektrometerenden lenkt (rechts).

Endplatten angeordnet (siehe Abb. 5.19). Damit geladene Teilchen ungehindert zum Detektor gelangen können, besitzen die Platten eine kreisförmige Aussparung ($\varnothing$ 85 mm). Die 0,5 mm starken Platten sind 5 mm voneinander entfernt und jeweils über einen Widerstand von 100 k Ω miteinander verbunden. Gemäß der Widerstandskette nehmen die Platten Werte zwischen den Potentialen der Endplatten an. Da alle Widerstände und Abstände gleich groß sind entsteht ein homogenes Feld. Welche Felder durch Einstellen der Endplattenpotentiale gewählt wurden, wird in Abschnitt 6.1 erklärt.

Zur Berechnung der Trajektorien geladener Teilchen im Spektrometer betrachten wir zunächst die Richtung entlang des homogenen Feldes $\vec{E}$. Die Beschleunigung, die hier auf ein Ion mit Ladung q und Masse m wirkt, ist

$$\vec{a} = \frac{q \cdot \vec{E}}{m}. \quad (5.10)$$

Mit dieser Beschleunigung und einer eventuellen Anfangsgeschwindigkeit senkrecht zum Detektor v_z wird in einer Zeit t die Länge des Spektrometers s von

$$s = \frac{1}{2}at^2 + v_z t \quad (5.11)$$

durchlaufen. Umgekehrt ist die Dauer, die ein Teilchen benötigt, um bei gegebener Beschleunigung eine gegebene Spektrometerlänge zu durchlaufen,

$$t = -\frac{v_z}{a} + \sqrt{\frac{v_z^2 + 2sa}{a^2}}. \quad (5.12)$$

Parallel zum Detektor wirkt keine Kraft auf das Ion. In dieser Ebene bewegt es sich während der Zeit t gleichförmig. Bis zur Ankunft am Detektor erreicht das Ion bei gegebener Anfangsgeschwindigkeit von v_x und v_y einen Abstand von $x = v_x t$ und $y = v_y t$ vom Reaktionsort.

Die Abstände x und y sowie die Zeit t sind Messgrößen. Sie entsprechen den Auftrefforten und der Ankunftszeit auf dem Detektor. Aus ihnen kann der Startimpuls des Ions bestimmt werden:

$$\vec{p} = \begin{pmatrix} p_x \\ p_y \\ p_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} mv_x \\ mv_y \\ mv_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} m \frac{x}{t} \\ m \frac{y}{t} \\ m \left(\frac{s}{t} - \frac{1}{2}at \right) \end{pmatrix} \quad (5.13)$$

Um einen möglichen dezentralen Startort zu berücksichtigen, wird in Formel 5.13 der Auftreffort x als Differenz zwischen zurückgelegter Strecke und Startort ($x_i - x_0$) notiert (analog für y). Zudem wird der Impuls $\vec{p}$ um den Anteil, der durch die Jetgeschwindigkeit v_{Jet} entsteht, korrigiert:

$$\vec{p} = \begin{pmatrix} p_x \\ p_y \\ p_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} m \frac{x_i - x_0}{t} \\ m \left(\frac{y_i - y_0}{t} - v_{Jet} \right) \\ m \left(\frac{s}{t} - \frac{1}{2}at \right) \end{pmatrix}. \quad (5.14)$$

In dieser Arbeit wird der Aufbruch eines Systems in zwei Fragmente beschrieben ($\text{He}_2 \rightarrow \text{He}^+ + \text{He}^+$). Die Aufbruchenergie (KER) kann aus den Einzelteilchenimpulsen der Ionen berechnet werden. Es ergeben sich jedoch Vorteile, wenn dazu stattdessen der Relativimpuls p_{rel} verwendet wird. Im Schwerpunkt des aufbrechenden Systems gilt $p_{rel} = c_1 \vec{p}_1 - c_2 \vec{p}_2$. Dabei ist die Bedingung $c_1 + c_2 = 1$ zu erfüllen. Durch geschickte Wahl von c_1 und c_2 kann bei der Berechnung des Relativimpulses nun entweder der Einfluss des Reaktionsortes (x_0, y_0) 5.15 oder der Schwerpunktsimpuls des Systems 5.16 eliminiert werden [92].

$$c_1 = \frac{m_2 t_1}{m_1 t_2 + m_2 t_1} \quad c_2 = \frac{m_1 t_2}{m_1 t_2 + m_2 t_1} \quad (5.15)$$

$$c_1 = \frac{m_2}{m_1 + m_2} \quad c_2 = \frac{m_1}{m_1 + m_2} \quad (5.16)$$

Für die Berechnung der Aufbruchenergie gilt

$$KER = \frac{p_1^2}{2m_1} + \frac{p_2^2}{2m_2} = \frac{p_{rel}^2}{2\mu}. \quad (5.17)$$

Hierbei ist μ die reduzierte Masse der beiden Ionen.

Zwischen der 40 mm langen Beschleunigungsstrecke und dem Detektor liegt eine 8 mm lange Nachbeschleunigungszone. Sie ist notwendig, um den Ionen eine kinetische Energie zu verleihen, die ausreicht, um die Elektronenlawine am MCP auszulösen. Um dies zu erreichen, wird ein Potential von 2000 V zwischen Spektrometerende und MCP angelegt. Damit sich die beiden stark unterschiedlichen Feldbereiche in Spektrometer und Nachbeschleunigungszone möglichst wenig beeinflussen, befindet sich ein feinmaschiges Edelstahlgitter zwischen den beiden Bereichen. Der Weg durch die Nachbeschleunigungszone wird bei der Rekonstruktion der Impulse berücksichtigt. Da die Startimpulse im Fall mehrerer Beschleunigungsabschnitte nicht mehr analytisch bestimmt werden können, werden sie per *Newton-Verfahren* numerisch genähert (siehe Anhang A.2).

Das Edelstahlgitter hat eine Transmission von 80 % bei einer Maschenweite von 140 μm . Die Wahrscheinlichkeit P_D ein Ion zu detektieren ist das Produkt aus Nachweiseffizienz des Detektors (von etwa 55 %) und der Wahrscheinlichkeit den Detektor zu erreichen, ohne einen Gittersteg zu treffen, und liegt somit bei 44 %. Die Wahrscheinlichkeit für den koinzidenten Nachweis zweier geladener Teilchen aus einer Coulomb-Explosion ist $P_D^2 = 19 \%$, für den dreier geladener Teilchen nur noch $P_D^3 = 9 \%$.

5.5. Der Beamdump

Der Ti:Sa-Laser vermag ausschließlich im Fokus Target- und Restgasteilchen zu ionisieren. Hier durchqueren die Laserpulse zunächst unfokussiert das Spektrometer und treffen dann auf den Rückfokussierspiegel, um im Reaktionsort fokussiert zu werden (siehe Abschnitt 4.3.3). Weit nach dem Fokuspunkt trifft der aufgeweitete Laserstrahl Kammerinnenwände und Spektrometerplatten und wird womöglich im Kammerinneren reflektiert. Der aufgeweitete Strahl hat allerdings eine so geringe Intensität, dass er nicht mehr zu ionisieren vermag. Es entsteht also kein ionischer Untergrund durch Treffen von Oberflächen, der die Messung beeinträchtigen könnte.

Anders beim Einsatz des FEL: Hier hat ein einzelnes Photon genügend Energie, um jedes beliebige getroffene Atom zu ionisieren. Unabhängig davon ob der Puls fokussiert

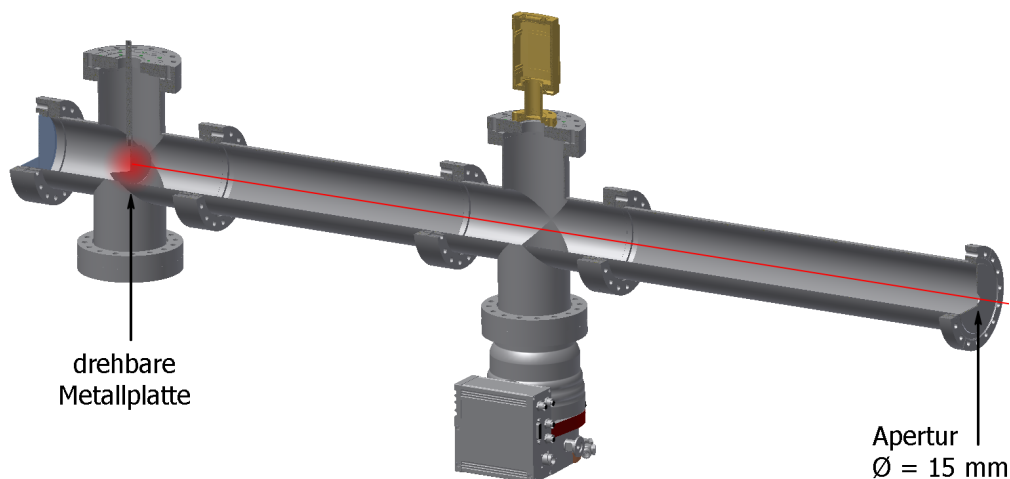


Abb. 5.20.: CAD-Modell des Beamdumps. Der Laserstrahl tritt durch eine Apertur (rechts) in den Beamdump ein und wird nach 1,4 m an einer drehbaren Metallplatte gestreut (links).

ist oder nicht, kann die Interaktion der Photonen mit Restgasteilchen und Oberflächenatomen einen ionischen Untergrund in der Kammer erzeugen. Dies ist besonders im Bereich des Spektrometers kritisch, da hier alle geladenen Teilchen aktiv zum Detektor gelenkt werden. Deshalb muss hier die Streuung von Photonen verhindert werden.

Im besten Fall wird dies erreicht, wenn ein wohl kollimierter Laserstrahl die Kammer berührungsfrei durchquert und durch eine Apertur in einen zweiten Kammerteil trifft, aus dem er nicht wieder austritt²¹. Dieser zweite Kammerteil wird *Beamdump*²² genannt. Da der Laser unweigerlich innere Oberflächen des Beamdumps trifft, müssen diese so gestaltet sein, dass reflektiertes Licht nicht wieder zurück zum Eintrittsloch gelangt.

Um die Wahrscheinlichkeit des Wiederaustritts zu minimieren, wird die Apertur zwischen Reaktionskammer und Beamdump so klein wie möglich gewählt. Dabei darf der eintretende Laserstrahl nicht an den Rändern der Apertur reflektiert werden, der Durchmesser des Laserstrahls definiert also die minimale Aperturgröße. Die eingesetzte Apertur hat einen Durchmesser von 15 mm. Zusätzlich wird die erste Oberfläche, an der der Laser reflektiert wird, in einer Entfernung von 1,4 m von der Apertur platziert (siehe Abb. 5.20)²³. Dies reduziert den Raumwinkel, den direkt zurückgestreute Strahlung treffen muss, um zurück zur Apertur zu gelangen, auf 7 ppm von 4π . Die erste getrof-

²¹Die Streuung an Restgasteilchen kann nicht verhindert werden. Sie wird minimiert, indem die Güte des Vakuums maximiert wird. Siehe dazu Abschnitt 5.3.

²²Engl. für: Strahlsumpf.

²³Insgesamt besteht der Beamdump aus einem 1,5 m langen Rohr mit einem Durchmesser von 10 cm. Er wird von einer Turbomolekularpumpe (Pfeiffer TMU 261) evakuiert und erreicht nach dem Ausheizvorgang einen Enddruck von $<5 \cdot 10^{-10}$ mbar.

fene Oberfläche im Beamdump ist eine drehbare Metallplatte. Der Winkel unter dem der Laserstrahl die Oberfläche der Metallplatte trifft wurde während der Messung am FLASH so eingestellt, dass die Rückstreuung in die Reaktionskammer, die trotz der getroffenen Maßnahmen nicht verhindert werden konnte, minimal wird. Dies geschah unter Betrachtung der Untergrundereignisse am Ionendetektor.

6. Vorbereitungen zur Datenaufnahme und Kalibrierung

Zur optimalen Aufnahme der zu untersuchenden Reaktion werden einige Vorbereitungen getroffen. Zur Verbesserung der Impulsauflösung wird die Spektrometerlänge und das elektrische Feld angepasst. Die signalverarbeitende Elektronik wird justiert, um ionische Signale von Untergrund zu unterscheiden. Der Überlapp von Laserfokus und Gasjet in der Reaktionszone wird optimiert. Diese Schritte werden in den nachfolgenden Abschnitten beschrieben. Zudem wird die Vorgehensweise zur Kalibrierung eines Ionendetektors am Ende dieses Kapitels erläutert.

6.1. Maximale Auflösung

Im Experiment wird die Coulomb-Explosion eines Van-der-Waals-Systems nach mehrfacher Ionisation betrachtet. Dazu werden die Startimpulse der geladenen Fragmente aus gemessenen Orten und Zeiten rekonstruiert. Für eine präzise Impulsmessung muss also eine hohe Orts- und Zeitauflösung erreicht werden.

Nach der Ionisation befinden sich die Teilchen auf einem repulsiven Potential E_{pot} von $q_1 q_2 / 4\pi\epsilon_0 R$. Ihren Startimpuls erhalten die Ionen während der nachfolgenden Abstoßung der Teilchen voneinander, der Coulomb-Explosion, in der die potentielle in kinetische Energie (KER) umgewandelt wird:

$$\begin{aligned} KER &= E_{pot} \\ \frac{p_1^2}{2m_1} + \frac{p_2^2}{2m_2} &= \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 \cdot R} \quad | \quad \text{mit } p_1 = p_2 = p \text{ und } m_1 = m_2 = m \\ p &= \sqrt{\frac{mq_1 q_2}{8\pi\epsilon_0 \cdot R}} \\ v &= \sqrt{\frac{q_1 q_2}{8\pi\epsilon_0 \cdot m \cdot R}} \end{aligned} \quad (6.1)$$

Er ist also abhängig von Masse $m_{1/2}$ und Ladung $q_{1/2}$ der Ionen, sowie deren anfänglichem Abstand R . Je geringer der anfängliche Abstand, desto größer der entstehende Impuls beziehungsweise die entstehende Geschwindigkeit.

Ist die maximale Geschwindigkeit v_{max} bekannt, die ein Ion durch die Reaktion erhalten kann, so kann das Spektrometer zur optimalen Abbildung dieser Reaktion angepasst werden. Optimal sei hierbei, eine möglichst hohe Impulsauflösung zu erzielen, während auch die schnellsten Ionen unabhängig von ihrer Startrichtung den Detektor erreichen¹. Die starttrichtungs-unabhängige Detektion gibt die Mindestgröße für das elektrische Feld vor, denn ein Ion, das im Reaktionsort mit v_{max} parallel zum Detektor startet, legt die Strecke von Detektormitte bis zu dessen Rand, in einer gewissen Zeit t_{min} zurück. In dieser Zeit muss das Ion vom Reaktionsort zum Detektor bewegt werden. Durch Erhöhen des Feldes kann die Flugzeit t_a (gemäß Gleichung 5.12) auf einen Wert unter t_{min} reduziert werden. Für eine gegebene Spektrometerlänge und ein parallel zum Detektor startendes Ion ist dazu nach Gleichung 5.11 ein Feld von

$$E = \frac{2sm}{qt_{min}^2} \quad (6.2)$$

notwendig.

Weiteres Erhöhen des Feldes führt zu noch kürzeren Flugzeiten t_a und damit zu noch kleineren Auslenkungen r_a . Landen alle Ionen gleichzeitig in einem Punkt, führt die limitierte Orts- und Zeitauflösung zum Verlust der Impulsauflösung. Um die Impulsauflösung für Impulskomponenten parallel zur Detektoroberfläche zu maximieren soll eine Änderung des Startimpulses eine möglichst große Änderung im Auftreffort bewirken. Die benötigte Mindestgröße des E-Feldes bei einer gegebenen Spektrometerlänge ist also dessen Optimalgröße².

Die höchste Impulsauflösung für die Impulskomponente in Richtung des elektrischen Feldes im Spektrometer (E-Feld-Richtung) p_z wird erreicht, wenn der Flugzeitunterschied zwischen zwei geladenen Fragmenten aus einer Reaktion möglichst groß wird. Nach Gleichung 5.12 folgt für den Flugzeitunterschied zweier Ionen

$$t_{diff} = t_1 - t_2 = \frac{2v_z}{a} = \frac{2p_z}{q \cdot E}. \quad (6.3)$$

Unabhängig von den erwarteten Impulsen p_z werden die Flugzeitunterschiede am größten, wenn das E-Feld am kleinsten ist. Und nach Gleichung 6.2 wird das benötigte Feld zur Abbildung des gesamten Raumwinkels dann am kleinsten, wenn die Beschleunigungsstrecke am kürzesten ist. Es wird also ein möglichst kurzes Spektrometer eingesetzt, das die Verwendung eines kleinen E-Feldes erlaubt.

¹also den gesamten Raumwinkel von 4π abzubilden

²Die Impulsauflösung kann weiter erhöht werden indem ein niedrigeres Feld eingesetzt wird. Allerdings nur auf Kosten von Verlusten im abbildbaren Raumwinkel.

Eine Randbedingung, die während der Planung des Experimentes berücksichtigt wurde, war die Möglichkeit durch Einsatz eines zweiten Detektors am gegenüberliegenden Ende des Spektrometers Elektronen nachzuweisen. Um den gesamten Raumwinkel entstehender Elektronen abbilden zu können, müssen auch Elektronen, die in Richtung des Ionendetektors starten, durch das E-Feld innerhalb des Spektrometers umgelenkt werden können. Dazu wurde eine Strecke von mindestens 40 mm veranschlagt. Diese Mindeststrecke wurde als Länge für das Spektrometer s auf der Seite des Ionendetektors gewählt. Ein weiterer Punkt, warum die Länge von 40 mm nicht maßgeblich unterschritten werden sollte, ist der damit einhergehende Verlust der Ortsauflösung für Ionen, die in Richtung des Detektors starten. Für sehr kurze Spektrometer erreichen diese nämlich selbst bei hohem Startimpuls parallel zum Detektor nur eine geringe Auslenkung.

Zur Abbildung der Coulomb-Explosion von Heliumclustern kann das optimale Feld bei einer Spektrometerlänge von 40 mm wie folgt bestimmt werden: Der kleinstmögliche Abstand R_{min} zweier Atome in einem Heliumcluster von 4,2 a.u. ($2,2 \text{ \AA}$, siehe Abschnitt 2.2) führt zu einem KER von 6,6 eV und damit nach Gleichung 6.1 zu einer Maximalgeschwindigkeit eines einzelnen Ions v_{max} von $5,7 \cdot 10^{-3}$ a.u. ($1,3 \cdot 10^4 \text{ m/s}$). Mit dieser Geschwindigkeit erreicht ein parallel zum Detektor startendes Heliumion den 40 mm entfernten Rand des Spektrometers nach einer Zeit t_{min} von 3194 ns. Um das Ion in dieser Zeit vom Reaktionsort zum Detektor zu bewegen, genügt nach Gleichung 6.2 eine Beschleunigung durch ein homogenes Feld E von $3,3 \text{ V/cm}$.

Das tatsächliche E-Feld sollte aus mehreren Gründen etwas größer gewählt werden: Zunächst wird die maximale Auslenkung bei gegebenem E-Feld nicht erreicht, wenn das Ion parallel zum Detektor startet, sondern wenn es in einem kleinen Winkel vom Detektor weg startet (rote Trajektorie in Abb. 6.1). Der Winkel θ_{max} zur maximalen Auslenkung r_{max} ist abhängig von der Spektrometerlänge s und der Beschleunigung $\vec{a}$ und damit der Feldstärke E (vgl. Schiefer Wurf):

$$\theta_{max} = \arcsin \frac{v_{max}}{\sqrt{2v_{max}^2 + 2s \cdot qE/m}} \quad (6.4)$$

Dieser Winkel führt zu einer etwas längeren Flugdauer und einer erhöhten maximalen Auslenkung von

$$r_{max} = \sqrt{v_{max}^2 + 2s \cdot qE/m} \cdot mv_{max}/qE. \quad (6.5)$$

Um die maximale Auslenkung r_{max} auf 40 mm zu begrenzen ist ein etwas höheres E-Feld von $E = mv_{max}^2(s + \sqrt{s^2 + R^2})/qr_{max}^2 = 3,95 \text{ V/cm}$ nötig.

Darüber hinaus kann der Reaktionsort etwas aus der Spektrometermitte verschoben

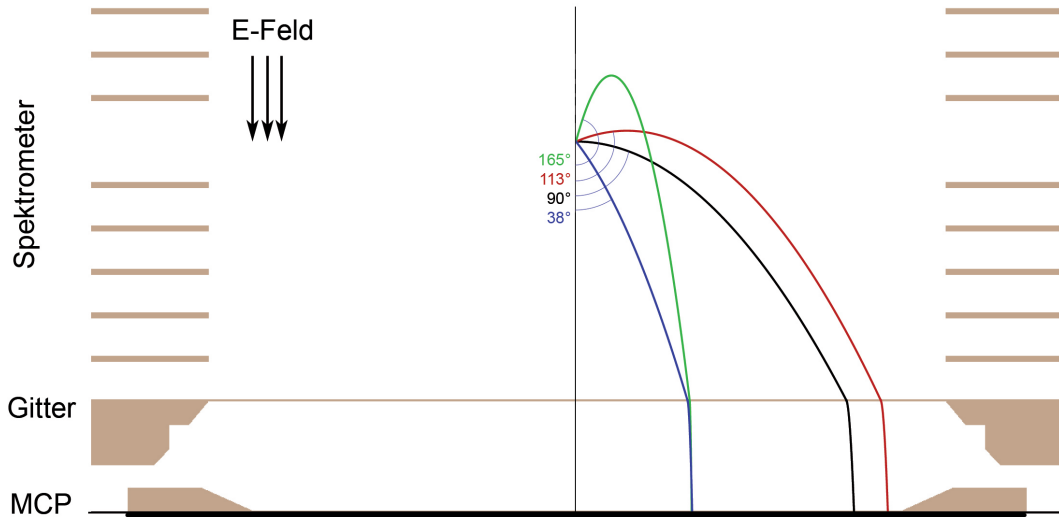


Abb. 6.1.: Trajektorien im verwendeten Spektrometer. Die größte Auslenkung erreichen Ionen mit einem Startwinkel θ_{max} von 113° (rote Trajektorie). Unterschiedliche Startwinkel können zu gleichen Auftrefforten führen (blaue und grüne Trajektorie). Sie sind durch die gemessenen Flugzeiten unterscheidbar.

sein, wodurch der Abstand bis zum Verlassen des Spektrometervolumens verkürzt wird. Zuletzt besteht durch die Jetgeschwindigkeit v_{Jet} eine Anfangsgeschwindigkeit parallel zur Detektionsebene. Sie muss zu den in der Coulomb-Explosion gewonnenen Geschwindigkeiten hinzuaddiert werden und führt dazu, dass alle Auftrefforte um einen Versatz von $y_{Versatz} = v_{Jet} \cdot t$ verschoben sind, wobei t die Flugdauer (Time-of-Flight / TOF) der Ionen ist. Beides reduziert die verfügbare Zeit, um das Ion auf den Detektor zu bewegen. Um dies zu berücksichtigen wird ein Feld von $4,41 \text{ V/cm}$ für die Messung am FEL gewählt. Die Messung am Ti:Sa-Laser wurde mit einem Feld von $3,09 \text{ V/cm}$ durchgeführt. Dies führte zu einer reduzierten Raumwinkelakzeptanz (siehe Abschnitt 7.1). Die

Parameter	Ti:Sa	FEL _{low}	FEL _{high}	
Beschleunigungsstrecke s			40	mm
Nachbeschleunigungsstrecke s_b			8	mm
Feldstärke in s	3,09	4,41	17,2	V/cm
Feldstärke in s_b			2500	V/cm
Spannung MCP-Front			-2200	V
Spannung MCP-Back			+780	V
Spannung Anode			+980	V

Tabelle 6.1.: Übersicht über Detektor- und Spektrometermaße und Felder für die Messungen am Ti:Sa-Laser und die beiden Messreihen am FEL.

Spezifikationen des eingesetzten Spektrometers sind in Tabelle 6.1 zusammengestellt.

6.2. Signalverarbeitung und Datenaufnahme

Die gemessenen Detektorsignale sollen in digitaler Form gespeichert werden, um sie zu einem späteren Zeitpunkt analysieren zu können. Der verwendete Detektor liefert zunächst analoge Signale, in Form von Spannungsschwankungen auf sieben Leitungen. Es besteht eine Leitung zum MCP und eine zu jedem Drahtende der drei Anodenebenen. Die eintreffenden Signale müssen in eine vom Computer lesbare Form umgesetzt werden. Dabei sollen die zeitlichen Abstände der Signale zueinander erhalten bleiben, da aus ihnen Auftrefforte und Auftreffzeitpunkte aller Fragmente und schließlich alle weiteren physikalischen Größen abgeleitet werden. Alle Zeiten werden hierbei relativ zur Ankunft des ionisierenden Laserpulses gemessen. Dazu dient ein Signal, das der Laserpuls auf dem Weg zum Experiment erzeugt.

Zunächst werden die Signale kapazitiv entkoppelt von der Hochspannung, auf der der Detektor betrieben wird. Für die Anodensignale findet nach diesem Schritt die Differenzbildung der Pulse von Signal- und Referenzdraht statt (siehe Abschnitt 5.4.1). Anschließend wird jeder Puls um einen Faktor von etwa 55 verstärkt um Pulshöhen zu erreichen, die die nachgeschaltete Elektronik gut verarbeiten kann. Die eingesetzten Verstärker (RoentDek, FAMP8) haben eine hohe Bandbreite von 200 MHz, damit die Signalform beim Verstärken unverändert bleibt.

Nun gibt es zwei Methoden um Signale digital zu speichern: Entweder wird ein analoges Signal in ein standardisiertes Rechtecksignal umgewandelt und dann von einem Zeit-zu-Digital-Wandler (TDC³) als Zeitpunkt gespeichert. Oder ein Analog-zu-Digital-Wandler (ADC⁴) wird eingesetzt um die Signalthöhe an mehreren äquidistanten Stellen entlang des Pulses sowie einen Startzeitpunkt für jeden Puls zu speichern.

In beiden Fällen sollen aus den etwa 20 ns langen Pulsen deren Ankunftszeitpunkt extrahiert werden, definiert durch dessen Schwerpunkt. Dabei muss der Schwerpunkt, oder ein Punkt in festem Abstand zum Schwerpunkt, für alle im Experiment vorkommenden Variationen von Pulshöhe und -form gefunden werden können.

Zunächst werden Signale nur dann weiterverarbeitet, wenn sie eine einstellbare Schwelle oberhalb des elektronischen Rauschens überschreiten. Eine Möglichkeit wäre nun, den Ankunftszeitpunkt dort zu definieren, wo der Puls eine zweite Schwelle übersteigt. Jedoch werden dadurch für Pulse unterschiedlicher Maximalhöhe Zeitpunkte gewählt, die

³Abkürzung für engl.: Time-to-Digital-Converter

⁴Abkürzung für engl.: Analog to Digital Converter

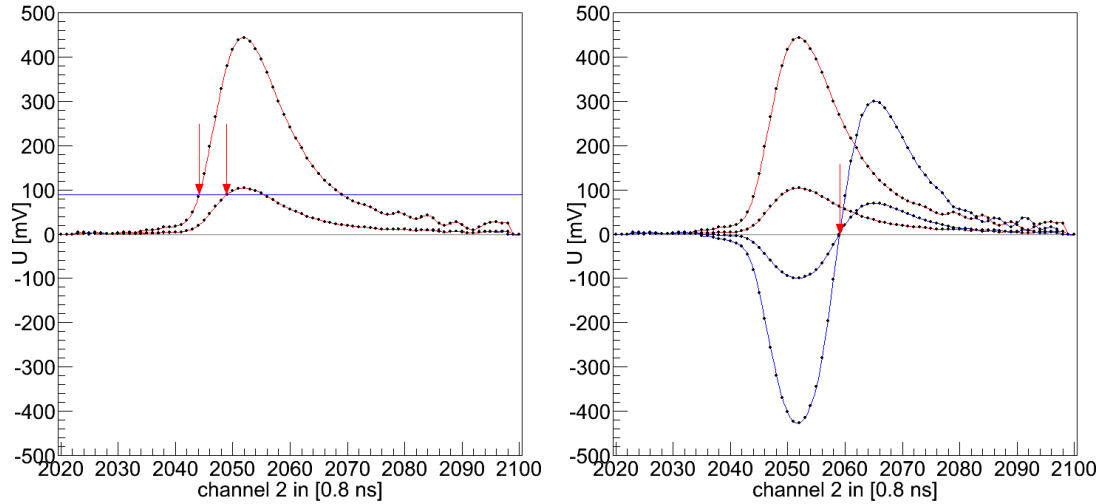


Abb. 6.2.: Methoden zur Extraktion der zeitlichen Position eines Pulses. Im Vergleich ein hoher und ein niedriger Puls (rote Kurven). Bei Definition der Position bei Überschreiten einer Schwelle besteht eine Pulshöhenabhängigkeit (links). Der CFD-Algorithmus liefert gleiche Positionen trotz unterschiedlicher Pulshöhen (rechts).

unterschiedlich weit vom Schwerpunkt der Pulse entfernt liegen. Die Schwankung der so gewählten Zeitpunkte wird in Abb. 6.2 (links) illustriert.

Eine Methode, die den Zeitpunkt unabhängig von der Pulshöhe in festem Abstand zum Schwerpunkt bestimmt, ist der *Constant-Fraction-Algorithmus*. Hierbei wird eine Kopie des analogen Signals invertiert, zeitlich verschoben, gestreckt und anschließend wieder zum Eingangssignal hinzuaddiert. Das entstandene Signal weist bei passender Wahl von Verschiebung und Streckung einen steilen Nulldurchgang auf, wie er in Abb. 6.2 (rechts) zu sehen ist. Die zeitliche Position des Nulldurchgangs ist unabhängig von der Höhe des ursprünglichen Signals und kann somit als Zeitpunkt der Signalankunft verwendet werden. Diese Signalverarbeitung läuft in einem elektronischen Modul namens *Constant-Fraction-Discriminator* (CFD) ab (RoentDek, CFD4b [85]). An diesem Modul können, unter Betrachtung der typischen Pulsformen am Experiment, Verschiebung und Streckung des kopierten Signals eingestellt werden. Schließlich liefert das Modul ein 1 V hohes Rechtecksignal in einem festen zeitlichen Abstand zur Position des Nulldurchgangs. Diese standardisierte Signalform kann von der TDC-Karte gelesen und als Zeitpunkt digital gespeichert werden.

6.2.1. ADC-Datenaufnahme

Alternativ zur Umwandlung des Pulses in einen Rechteckpuls und des Speicherns dessen zeitlicher Position durch Einsatz von CFD und TDC können die Detektorsignale mit

Signal	Schwelle	Walk	Streckung	Verschiebung	Polarität
u1	35 mV	0	1	10 ns	-1
u2	35 mV	0	1	10 ns	-1
v1	35 mV	0	1	10 ns	-1
v2	35 mV	0	1	10 ns	-1
w1	35 mV	0	1	10 ns	-1
w2	35 mV	0	1	10 ns	-1
MCP	50 mV	0	1	7 ns	-1

Tabelle 6.2.: Tabelle mit Einstellungen, die für den Software-CFD-Algorithmus verwendet wurden. Nur Pulse, die die mit *Schwelle* angegebene Mindesthöhe überschreiten, werden verarbeitet und kopiert. Der kopierte Puls wird invertiert, mit der *Streckung* multipliziert und um die *Verschiebung* verzögert. Der positionsdefinierende Nulldurchgang kann durch den *Walk* bei Bedarf angepasst werden.

einem ADC in analoger Form aufgenommen werden. Übersteigt das eingehende Signal einen definierbaren Schwellwert⁵, so ist die Datenaufnahme aktiv⁶. Der ADC wandelt nun in festen Zeitschritten die Pulshöhe in eine Zahl um und übergibt sie an den PC, wo jeder Puls als Zahlenkolonne gespeichert wird. Je kleiner die Zeitschritte sind, desto genauer kann die Form des aufgenommenen Pulses am PC rekonstruiert werden. Abbildung 6.2 zeigt, dass Zeitschritte von 0,8 ns, also eine Samplingrate = 1,25 GHz, eine gute Darstellung von typischen Signalen mit Längen von 20 ns erlauben.

Das führt zu einem enormen Anstieg des zu speichernden Datenvolumens, da nun pro Puls nicht mehr nur eine Zahl für den Zeitpunkt, sondern rund 50 Zahlen für die Pulshöhen entlang des Pulszuges gespeichert werden müssen. Dieser Preis wird natürlich nicht gezahlt, ohne einen Vorteil zu erhalten: Durch die ADC-Datenaufnahme liegt die gesamte analoge Signalform digital vor. Die Bestimmung des Zeitpunktes wird nun durch einen Computeralgorithmus vorgenommen. Dies erlaubt eine nachträgliche Optimierung der Bestimmungsmethode. Dagegen wird sie bei Verwendung eines CFD/TDC-Systems während der Messung unveränderlich festgelegt. Eine softwareseitige Zeitpunktextraktion erlaubt den Einsatz komplexerer Methoden als elektronische Module mit vertretbarem Aufwand erlauben würden. Zudem können verschiedene Methoden flexibel getestet werden. Eine Limitierung besteht im Grunde nur durch die (stets wachsende) Leistung des Rechners. Nachfolgend werden die in dieser Arbeit verwendeten Bestimmungsmethoden vorgestellt.

Eine naheliegende Methode ist die softwareseitige Nachbildung des Algorithmus der in einem CFD abläuft. Überschreitet ein Signal eine definierbare Schwelle, so wird es ko-

⁵typischerweise einige 10 mV

⁶Sie ist zusätzlich auch in einem kleinen Zeitfenster um diesen Bereich herum aktiv.

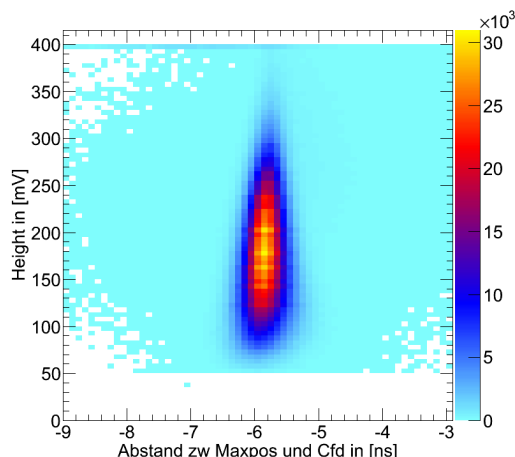


Abb. 6.3.: Differenz zweier Methoden der Positionsbestimmung von Pulsen (CFD- und Maximum-Methode). Die Senkrechte Linie zeigt, dass unabhängig von der Pulshöhe eine feste Differenz zwischen beiden Methoden besteht.

piert. Das kopierte Signal wird verschoben, invertiert, gestreckt und zum Eingangssignal hinzuaddiert, und erzeugt so den bereits beschriebenen steilen Nulldurchgang. Um den Zeitpunkt mit höherer Genauigkeit als die diskreten 0,8 ns-Schritte der Samplingrate zu bestimmen, wird der Nulldurchgang mittels linearer Regression durch die vier um null liegenden Samplingpunkte bestimmt. Tabelle 6.2 zeigt die Einstellungen, die für den CFD-Algorithmus verwendet wurden.

Ebenfalls wenig rechenintensiv ist die Bestimmung des Pulsmaximums. Um die Genauigkeit der Samplingrate zu übersteigen, kann hier eine Kurve an den höchsten Samplepunkt und dessen Nachbarpunkte angepasst, und das Maximum dieser Kurve bestimmt werden. Abbildung 6.3 zeigt die Abweichung der CFD- und der Maximums-Methode in Abhängigkeit der Pulshöhe. Die senkrechte Linie bestätigt, dass keine Pulshöhenabhängigkeit vorliegt, beziehungsweise die Abweichung der Methoden unter 0,5 ns auf 350 mV Pulshöheunterschied liegt⁷. Zudem sind Bedingungen denkbar, die ein Signal verwerfen, wenn die Abweichung zweier Methoden außerhalb der Norm liegt.

Die PC-gestützte Pulsformanalyse bringt einen weiteren Vorteil mit sich, der die Messung am FLASH überhaupt erst möglich machte. Wird der Detektor von sehr vielen Teilchen in kurzen Abständen getroffen, so kann die darauf nicht ausgelegte Spannungs-

⁷sofern der unwahrscheinliche Fall ausgeschlossen wird, dass beide Methoden exakt die gleiche Pulshöhenabhängigkeit zeigen, die dann bei Subtraktion wegfällt

versorgung des Detektors dazu führen, dass die Signale auf einer driftenden Grundlinie aufgenommen werden. Diese Drift führt zu einer Verfälschung der Position des Maximums beziehungsweise des ermittelten Nulldurchganges (vgl. Abb. 7.19). Die Form der Grundlinie kann am PC jedoch analysiert, und vor der Extraktion des Zeitpunktes korrigiert werden. Die essentiellen Schritte des verwendeten Algorithmus können in Form von Quelltext in Anhang A.3 eingesehen werden.

6.3. Fokusjustage

Für die geplanten Experimente soll der Fokus genau auf der Achse des Spektrometers und auf Höhe des Gasstrahls liegen. Der Weg des Gasstrahls ist durch die in Abschnitt 5.1 beschriebenen Blenden geometrisch vorgegeben und kreuzt die Längsachse der Reaktionskammer und damit die Achse des Spektrometers. Nun muss der Fokus des Lasers den Gasstrahl genau auf der Achse des Spektrometers treffen.

Der Ti:Sa-Laser wird über eine Strecke von 12 m mit Hilfe von 8 Spiegeln zur Kammer geleitet. Dort trifft er durch ein Glasfenster aus amorphem Quarz in die Reaktionskammer. Er durchquert das Spektrometer zunächst unfokussiert und trifft dann auf einen Rückfokussierspiegel. Dieser Spiegel hat eine feste Brennweite von 7,5 cm und ist an einem Fünf-Achsen-Manipulator aufgehängt. Mit dessen Hilfe wird der Spiegel so positioniert, dass sein Fokus auf dem Gasstrahl liegt. Um die korrekte Position zu verifizieren, kann die Rate von auftreffenden Ionen am Detektor betrachtet werden. Wird ein Überlapp von Gasstrahl und Fokus erreicht, so steigt die Rate der detektierten Ionen. Der Überlapp wurde optimiert, indem die Rate durch Justage des Spiegels maximiert wurde.

Am FEL gestaltet sich dieser Vorgang aufwendiger: Hier hat der Laserfokus eine feste Position im Raum. Da der Gasstrahl relativ zu Spektrometer und Vakuumkammer ebenfalls fest positioniert ist, muss die gesamte Vakuumkammer bewegt werden, um den Überlapp zu optimieren. Die Fokusposition am FLASH (BL2) befindet sich nach Spezifikation in einem Abstand von 527,5 mm hinter dem letzten Strahlrohrventil auf gleicher Höhe mit dem Strahlrohr von 1,6 m. Da die Position um einige Millimeter von dieser Spezifikation abwich, musste die tatsächliche Position während der Strahlzeit ermittelt und die Kammerposition anschließend nachjustiert werden.

Um den Fokus sichtbar zu machen, wird eine geringe Menge Neogas in die Kammer eingelassen. Das Gas wird in das Vorvakuumssystem geleitet und gelangt von dort durch Rückströmung durch die Turbomolekularpumpen in die Reaktionskammer, wo es

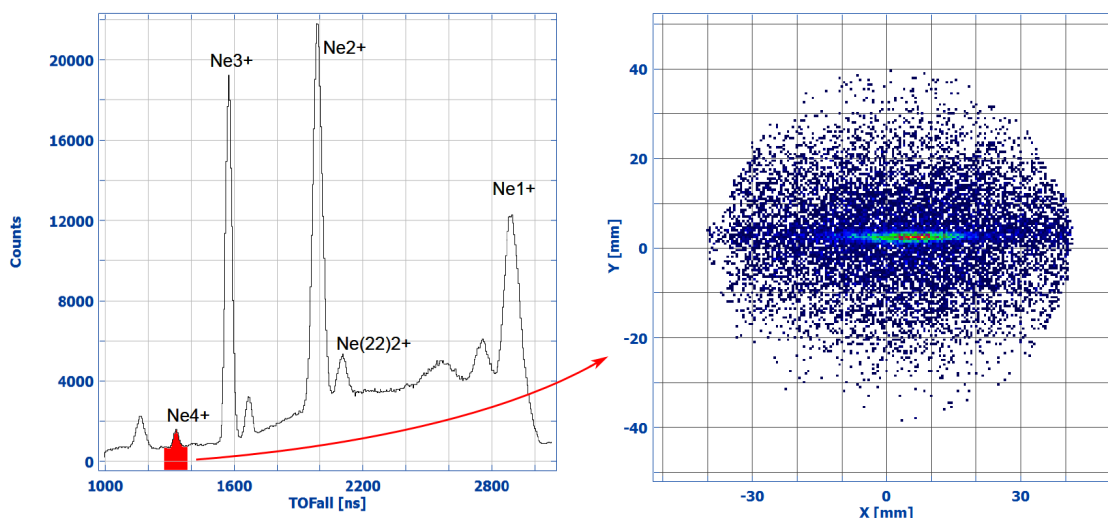


Abb. 6.4.: Flugzeitspektrum (links) und Auftreffort von Ionen einer selektierten Flugzeit (rechts) für die Ionisation von neonhaltigem Restgas durch FEL-Pulse. Im Flugzeitspektrum sind unterschiedlich hoch geladene Neonionen identifizierbar. Der höchste Ladungszustand Ne^{4+} kann nur im Fokus erzeugt werden. Somit zeigt deren Auftreffort die Projektion des Fokus (rechts).

sich homogen verteilt⁸. Jedes Photon trägt genug Energie, um Neon zu ionisieren. Dies geschieht also entlang des gesamten FEL-Strahls. Doch nur bei ausreichender Photondichte steigt die Wahrscheinlichkeit für eine mehrfache Ionisation. Der Reaktionspfad für die Mehrfachionisation ist in Abb. 6.5 (links) schematisch dargestellt. Um ein dreifach geladenes Neonion zu erzeugen, bedarf es mindestens zwei Photonen. Zur Ionisation von Ne^{3+} zu Ne^{4+} werden weitere zwei Photonen benötigt. Der höchste beobachtete Ionisationsgrad (Ne^{4+}) kann nur im Bereich höchster Photondichte, also genau im Fokus, erzeugt werden.

Die entstandenen Ionen werden vom Spektrometerfeld auf den Detektor projiziert, wobei höher geladene Ionen eine stärkere Beschleunigung erfahren und so den Detektor in kürzerer Zeit erreichen (Abb. 6.4 links). Nun werden wahlweise nur Ionen mit einer Flugzeit von Ne^{4+} betrachtet. Deren Auftreffort auf dem Detektor entspricht der Projektion des Fokus, dessen Lage somit sichtbar ist (Abb. 6.4 rechts). Die x-Komponente des Auftreffortes zeigt eine Abweichung von einer zentralen Fokuslage in x-Richtung um 6 mm (Abb. 6.5 rechts). Unter Betrachtung der Fokuslage kann nun die Position der Vakuumkammer mit Hilfe von Stellschrauben am Kammerboden feinjustiert werden, bis der Fokus zentral im Spektrometer liegt.

⁸Da Neon als Edelgas keine Verbindung mit Oberflächen eingeht kann es in kurzer Zeit wieder abgepumpt werden.

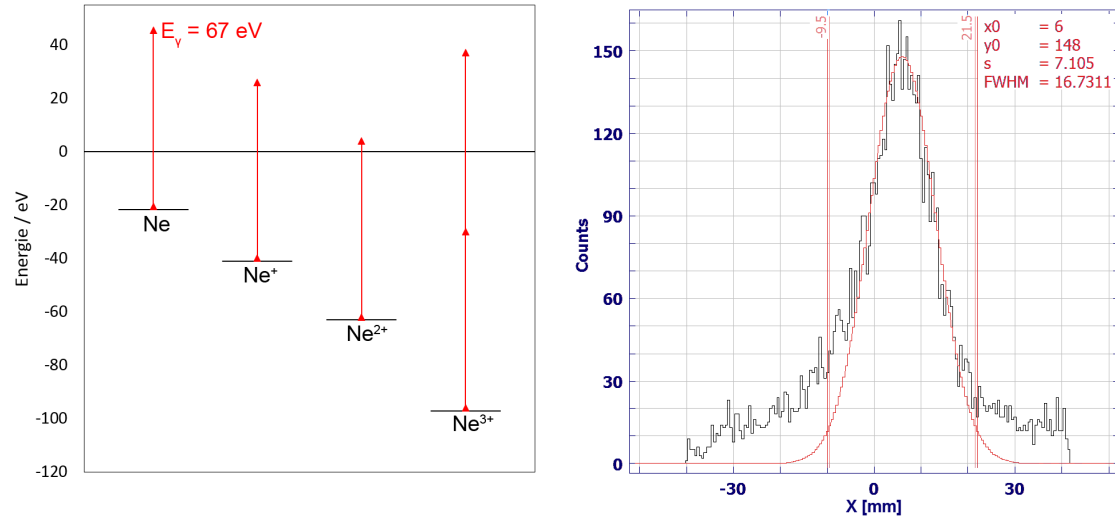


Abb. 6.5.: Reaktionspfad der Mehrfachionisation von Neon im Laserfokus (links) und x-Komponente des Auftreffortes der Ionen auf dem Detektor aus Abb. 6.4 (rechts). Zur Ionisation von Ne³⁺ werden zwei Photonen benötigt. Die x-Komponente des Auftreffortes zeigt, dass eine Verschiebung der Kammer um 6 mm notwendig ist, damit der Fokus in der Kammermitte liegt.

6.4. Kalibrierung eines Ionendetektors

Um den gemessenen Impulsen absolute Werte zuweisen zu können, müssen Spektrometer und Detektor kalibriert werden. Dazu werden Aufbrüche von Molekülen vermessen, für die die Ausbruchenergie genau bekannt ist. Die Impulsberechnung erfolgt nach Gleichung 5.14. Um eine Übersicht über alle kalibrierbaren Parameter zu erhalten, wird diese Formel hier in ausführlicher Form wiederholt:

$$\vec{p} = \begin{pmatrix} p_x \\ p_y \\ p_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} m \frac{c \cdot c_x (x_i - x_0)}{t - t_0} \\ m \left(\frac{c \cdot c_y (y_i - y_0)}{t - t_0} - v_{Jet} \right) \\ m \left(\frac{s}{t - t_0} - \frac{1}{2} \frac{qE}{m} (t - t_0) \right) \end{pmatrix}. \quad (6.6)$$

Sämtliche Parameter können nun so eingestellt werden, dass der KER der gemessenen Aufbrüche mit den Literaturwerten übereinstimmt. Nachfolgend werden die nötigen Schritte zur Kalibrierung vorgestellt.

1. Bestimmung des Zeitnullpunktes: Das Signal des Laserpulses wird während der Datenaufnahme als Zeitnullpunkt für alle gemessenen Zeiten eines Ereignisses verwendet. Der Zeitpunkt dieses Signals kann sich jedoch aufgrund von Signallaufzeiten vom physikalisch relevanten Zeitnullpunkt, dem Zeitpunkt der Ionisation

im Laserfokus, unterscheiden. Die mögliche Abweichung t_0 kann durch den Zusammenhang von ionischer Masse und zugehöriger Flugzeiten bestimmt werden. Nach Formel 5.12 besteht ein linearer Zusammenhang zwischen der Wurzel aus Massen durch Ladung $\sqrt{m/q}$ und der Flugzeit, sofern die Startgeschwindigkeit null ist ($t_a = \sqrt{2s_a/E \cdot m/q}$). Nun können unterschiedliche Targetgase verwendet werden, um mehrere Datenpunkte ($\sqrt{m_i/q_i} / t_i$) zu erhalten⁹. Diese Punkte sollten sich auf einer Geraden befinden, die durch den Ursprung verläuft. Ist dies nicht der Fall, kann t_0 entsprechend angepasst werden.

2. Kalibrierung der Impulse in E-Feld-Richtung: Die Berechnung der Impulse in E-Feld-Richtung p_z ist abhängig von den elektrischen Feldern im Spektrometer und den Längen der Spektrometerabschnitte. Diese Größen sind zuvor bestimmbar, jedoch mit einem Messfehler behaftet. Zur Kalibrierung wird der Aufbruch eines Stoffes gemessen, dessen Aufbruchsenergie möglichst scharfe Energiewerte liefert deren Größe mit hoher Präzision aus der Literatur bekannt sind. Längen und E-Felder werden in der Analyse derart angepasst, dass die Werte der Kalibrierungsmessung mit den Literaturwerten übereinstimmen.
3. Bestimmung der Detektormitte: Befindet sich der Fokus nicht exakt auf der Spektrometerachse, so landet ein Ion ohne Startimpuls nicht in der Detektormitte sondern mit entsprechenden Abständen x_0 und y_0 dazu. Diese Abweichungen müssen für die korrekte Berechnung der Impulse berücksichtigt werden. Bestehende Abweichungen spiegeln sich in den Summenimpulsen von Coulomb-Aufbrüchen wieder. Sie sollten eine Verteilung um null ergeben, werden aber durch bestehende Abweichungen verschoben. Die Parameter x_0 und y_0 müssen also derart angepasst werden, dass eine Verteilung um null erreicht wird.
4. Kalibrierung der Impulse senkrecht zur E-Feld-Richtung: Die x- und y-Komponenten des Impulses werden durch den Auftreffort bestimmt, der über Proportionalitätsfaktoren aus den Zeitdifferenzen der Delaylinesignale berechnet wird (siehe Gleichung 5.7). Die Proportionalitätsfaktoren sind vorgegeben durch die bekannte Länge der Anodendrähte und die gemessenen maximalen Signallaufzeiten. Sie werden anschließend von einem Algorithmus feinabgestimmt, indem die redundanten Informationen der drei Anodenebenen genutzt werden. Zur Kalibrierung wird der Aufbruch eines Moleküls betrachtet, von dem bekannt ist, in jeder Raumrichtung die gleiche Aufbruchsenergie zu liefern. Die entstehenden Impulse liegen folglich

⁹Alternativ lassen sich oftmals mehrere Reastgas-Peaks im Flugzeitspektrum den Masse-zu-Ladungsverhältnissen zuordnen.

auf einer Kugeloberfläche. Von dieser Impulskugel ist bekannt, dass die Impulse in E-Feld-Richtung den korrekten Wert haben, denn diese Richtung ist bereits kalibriert. Durch Streckung der Impulse senkrecht zur E-Feld-Richtung um einen gemeinsamen Faktor c oder zwei separate Faktoren $c_{x/y}$ können die Impulse senkrecht zur E-Feld-Richtung an die Impulse in E-Feld-Richtung angepasst werden. Dazu sollte nach Möglichkeit der gesamte Raumwinkel der entstehenden Impulse abgebildet werden können.

Die Kalibrierung der Detektoren und des Spektrometers ist von entscheidender Bedeutung für die Genauigkeit mit der die Bindungsenergie des Heliumdimers ermittelt werden kann. Die Streuung der kalibrierten Aufbruchsenergien um die Literaturwerte, die nach der Optimierung der Parameter aus Gleichung 6.6 erreicht wird, sind ein Maß für den relativen Fehler des gemessenen KER. Dieser Fehler ist proportional zu dem Fehler der berechneten Abstandsverteilung der Dimere zum Zeitpunkt der Ionisation, aus der schließlich die Bindungsenergie bestimmt wird (siehe Abschnitt 7.1.2).

7. Ergebnisse

Nachdem in den vorangestellten Kapiteln die theoretischen Hintergründe, die verschiedenen Komponenten des experimentellen Aufbaus und die vorgenommenen Vorbereitungen erläutert wurden, stellt dieses Kapitel die Ergebnisse der Messungen am Heliumdimer vor. Um die Wellenfunktion des Heliumdimers aus der Fragmentation ionisierter Dimerer zu ermitteln, darf der Ionisationsprozess die Gestalt des untersuchten Systems nicht beeinflussen. Dazu wurden im Rahmen dieser Arbeit zwei vielversprechende Arten der Ionisation untersucht: Die Tunnelionisation im Fokus eines Ti:Sa-Lasers und die Photoionisation durch einen FEL-Puls. In den folgenden Abschnitten werden die Ergebnisse der durchgeführten Messungen mit beiden Ionisationsmethoden beschrieben.

7.1. Messungen am Ti:Sa-Laser

Laserpulse mit ausreichender Intensität zur Tunnelionisation von Helium wurden von dem in Abschnitt 4.2.1 beschriebenen Ti:Sa-Laser bereitgestellt. Hier wurden zwei Messungen mit jeweils unterschiedlicher Polarisationsrichtung des Lasers vorgenommen, um sensitiv auf einen möglichen Einfluss der Polarisationsrichtung zu sein. Die Messungen wurden nacheinander bei identischen Spektrometereinstellungen durchgeführt und stützen sich auf die selbe Kalibrierung.

7.1.1. Kalibrierung der Messungen am Ti:Sa-Laser

Entsprechend der in Abschnitt 6.4 beschriebenen Vorgehensweise wurde zunächst der exakte Zeitversatz t_0 zwischen Lasersignal und dem Stattfinden der Reaktion bestimmt. Dazu wurden Messungen mit unterschiedlichen Targetgasen vorgenommen (O_2 , Ar, He). Entstandene Maxima im Flugzeitspektrum konnten den Masse-zu-Ladungs-Verhältnisse der erzeugten Ionen zugeordnet werden, zusätzlich konnten mehrere Stoffe im Restgas identifiziert werden. Wird die Flugzeit der Ionen gegen die Wurzel ihres Masse-zu-Ladungs-Verhältnisses aufgetragen, zeigt sich die lineare Abhängigkeit (Abb. 7.1). Aus der Regressionsgeraden folgt eine Korrektur des Zeitnullpunktes t_0 um 25,26 ns.

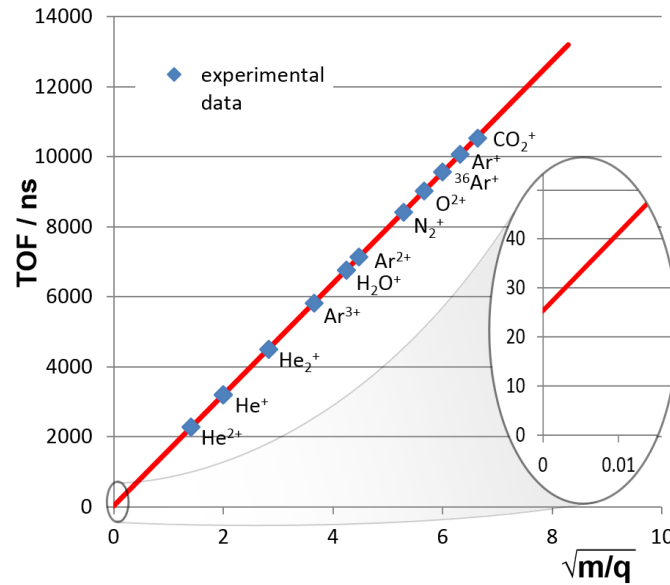


Abb. 7.1.: Bestimmung des Flugzeitnullpunktes t_0 aus dem Achsenabschnitt (Detail) einer Regressionsgeraden an mehrere Flugzeiten von Ionen mit bekanntem Masse-zu-Ladung-Verhältnis.

Zustand	Vibrationslevel	KER Referenz	KER Messung
$B^3\Pi_g \rightarrow O^+(^4S) + O^+(^4S)$	0	11,198 eV	11,196 eV
	1	11,356 eV	11,370 eV
	2	11,496 eV	11,514 eV
$1^1\Pi_g \rightarrow O^+(^4S) + O^+(^4S)$	0	12,715 eV	12,695 eV

Tabelle 7.1.: Vergleich von Referenzwerten aus [93] und Messwerten des O_2 -Aufbruchs.

Zur Kalibrierung der Aufbruchenergien in E-Feld-Richtung wurde der Aufbruch von Sauerstoffmolekülen O_2 in zwei einfach geladene Ionen betrachtet. Dazu werden nur Aufbrüche betrachtet, deren Impulse ausschließlich eine Komponente in E-Feld-Richtung besitzen. Diese Komponente ist nach Gleichung 6.6 nur vom elektrischen Feld, der Spektrometerlänge und dem bereits kalibrierten Flugzeitnullpunkt t_0 abhängig. Die Impulskomponenten parallel zum Detektor sind abhängig von weiteren Parametern, und werden deshalb vorerst außer Acht gelassen. Betrachtet werden Ereignisse, für die der Winkel ϑ zwischen Molekülachse und E-Feld-Richtung kleiner als $11,5^\circ$ ist ($\cos \vartheta > 0,98$). Die freiwerdende Energie beim Übergang zwischen einzelnen Energieniveaus und dem Kontinuum bleibt nur scharf definiert, wenn die Impulse der fragmentierenden Moleküle nicht nachträglich vom Laserfeld beeinträchtigt werden. Deshalb wird diese Messung bei möglichst geringer Laserleistung (70 mW) bzw. Laserintensität im Fokus durchgeführt (etwa $1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$). Die geringe Intensität führt zu einer reduzierten Ionisationswahrschein-

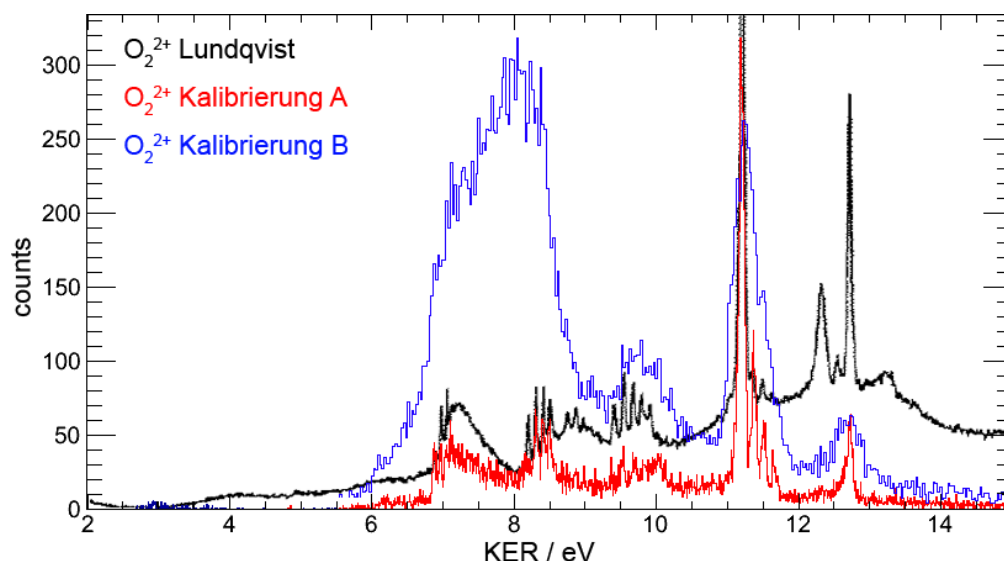


Abb. 7.2.: Vergleich von O_2^{2+} -Referenzmessung [93] (schwarz) und O_2^{2+} -Kalibrierungsmessung am Ti:Sa-Laser (rot). In beiden Messungen konnten Vibrationslevel aufgelöst und durch Wahl der Spektrometerparameter in Übereinstimmung gebracht werden. Eine Messung bei höherer Intensität (blau) zeigt die Veränderung der Anregungswahrscheinlichkeiten und den Verlust der Energieauflösung.

lichkeit. Damit erhöht sich die benötigte Messzeit bis zum Erhalt einer ausreichenden Statistik. Doch nur so kann eine gute Auflösung der feinen Vibrationslevel im KER-Spektrum realisiert werden.

Abbildung 7.2 zeigt den Vergleich der Kalibrierungsmessung zu einer Referenzmessung von Lundqvist et al.[93]. Die Referenzmessung basiert auf der Flugzeitmessung zweier geladener O^+ Fragmente nach der Ionisation von O_2 durch 200 eV Elektronen aus einer Elektronenkanone. Durch die koinzidente Messung beider Flugzeiten konnte der KER bestimmt werden. Der KER dieser Referenzmessung wurde wiederum mit Hilfe einer Messung von Dawber et al.[94] kalibriert. Dawber et al. bestimmten die Vibrationslevel durch eine Elektron-Elektron Koinzidenzmessung nach der Einzelphotonen-Doppelionisation von O_2 . Die Ionisationsschwellen, an denen die Elektronenpaare gerade so entstehen aber keine zusätzliche kinetische Energie besitzen, wurden mit einer Genauigkeit von ± 10 meV ermittelt. In Tabelle 7.1 sind die Aufbruchenergien aus der Referenz- und der Kalibrierungsmessung für die dominantesten Vibrationslevel angegeben. Die maximale relative Abweichung dieser Werte beträgt 0,16 %. Diese gute Übereinstimmung konnte durch die Anpassung des elektrischen Feldes und der Spektrometerlänge zur Berechnung der Impulse nach Gleichung 6.6 auf die in Tabelle 7.2 angegebenen Werte erreicht werden.

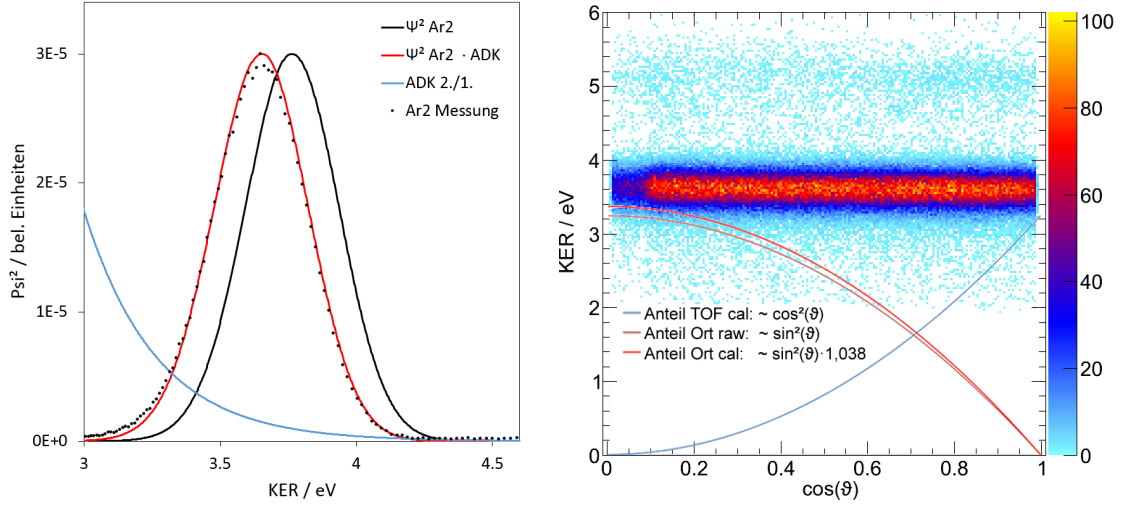


Abb. 7.3.: (**links**) KER-Verteilung des Aufbruchs von Ar_2 aus Messung (Punkte) und Theorie (schwarze Linie). Die ADK-Rate im zweiten Ionisationsschritt ist KER-abhängig (Verhältnis zur einfachen ADK-Rate (blau)). Für eine Intensität von $2 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ entsteht die rote KER-Verteilung. (**rechts**) KER des Aufbruchs von Ar_2 , aufgetragen gegen den Winkel zwischen Aufbruchsrichtung und E-Feld-Richtung $\cos(\vartheta)$. Die farbigen Linien kennzeichnen zu welchen Anteilen der KER aus Impulskomponenten in E-Feld-Richtung und Komponenten senkrecht dazu besteht, abhängig von $\cos(\vartheta)$. (Laserpolarisation parallel zum Gasstrahl)

Zur Kalibrierung der Auftrefforte auf dem Detektor wurde der Aufbruch von Argondimeren betrachtet. Die zweifache Ionisation von Ar_2 resultiert in einen Aufbruch, dessen Richtung von der statistischen Orientierung des Dimers im Raum abhängt, und damit isotrop ist. Unabhängig von der Aufbruchsrichtung besitzt der KER die gleiche gaußähnliche Verteilung. Durch Anwenden eines Streckungsfaktors c von 1,038 auf die gemessenen Auftrefforte wird auch in der Messung eine Raumwinkelunabhängigkeit des KERs erreicht. Als Referenz dient hierbei der KER der in E-Feld-Richtung aufbrechenden Dimere, da die Energie in dieser Raumrichtung bereits kalibriert ist. Sichtbar wird dies, indem der KER gegen den Winkel ϑ zwischen Aufbruchsachse und E-Feld-Richtung aufgetragen wird (siehe Abb. 7.3). Die Abbildung zeigt zudem, zu welchen Anteilen sich der KER aus Impulskomponenten in E-Feld-Richtung und Komponenten senkrecht dazu zusammensetzt. Die Schwerpunkte von Gaußkurven, die entlang ϑ an die KER-Verteilung angepasst wurden, weichen um maximal 0,86% vom KER in E-Feld-Richtung ab.

Die KER-Verteilung des Ar_2 -Aufbruchs kann nun mit einer Modellrechnung[95] verglichen werden. Die in Abschnitt 4.3.2 beschriebene Ionisationsrate ω_{ADK} ist für eine feste Laserintensität abhängig vom zu überwindenden Potential I_P (vgl. Gleichung 4.21). Im ersten Ionisationsschritt ist dieses Potential gleich dem Ionisationspotential von Ar-

Parameter nach Gleichung 6.6	Wert	
Korrektur des Zeitnullpunktes t_0	25,26	ns
Beschleunigungsstrecke s	37,9	mm
E-Feld in s	3,092	V/cm
Nachbeschleunigung s_b	6	mm
E-Feld in s_b	4266,7	V/cm
Ortsversatz x_0	1,4	mm
Ortsversatz y_0	4,7	mm
Streckungsfaktor c	1,038	

Tabelle 7.2.: Kalibrierte Spektrometer- und Detektorparameter für die He₂-Messung am Ti:Sa-Laser.

gon I_{Ar} . Im zweiten Ionisationsschritt muss zusätzlich zu I_{Ar} der KER überwunden werden. Es ergibt sich also eine KER-abhängige Ionisationsrate, dargestellt in Abb. 7.3 (links). Die aus einer Messung erwartete KER-Verteilung entspricht dem Produkt aus der unbeeinflussten KER-Verteilung und der KER-abhängigen Ionisationswahrscheinlichkeit. Um die Ionisationswahrscheinlichkeit für einen konkreten Puls zu erhalten, werden die Ionisationsraten ω_{ADK} für das Feld an jeder Stelle des Pulses bestimmt und über die Länge des Pulses aufintegriert. Der eingesetzte Ti:Sa-Laser lieferte 35 fs lange, linear polarisierte Pulse bei einer Wellenlänge von 780 nm. Für eine Laserintensität von $2 \cdot 10^{13}$ W/cm², die für die verwendete Laserleistung von 90 mW bei einem Strahldurchmesser von 1,5 mm (FWHM) entsteht, besteht eine gute Übereinstimmung zwischen Rechnung und Messung.

Auch für Heliumdimere ist eine Abhängigkeit der Ionisationswahrscheinlichkeit vom aufzubringenden KER zu erwarten. Ähnlich zur Ionisation von Argondimeren führt dies zu einer Verzerrung der KER-Verteilung. Abbildung 7.4 zeigt die KER-abhängigen Ionisationswahrscheinlichkeiten für die im Experiment verwendeten Pulseigenschaften ($\lambda = 780$ nm, Pulslänge = 35 fs, lineare Polarisation) für eine Intensität von $1 \cdot 10^{15}$ W/cm² (links) und $3,6 \cdot 10^{15}$ W/cm² (rechts). In beiden Fällen resultiert eine deutliche Verzerrung der dargestellten KER-Verteilungen. Zu beachten ist jedoch, dass im letzteren Fall die Ionisationswahrscheinlichkeit für einen KER von kleiner als 5,7 eV größer als 1 wird. In diesem Bereich, in dem die Ionisationswahrscheinlichkeit gesättigt ist, wird die KER-Verteilung durch den Ionisationsprozess unverzerrt abgebildet. Dieser Fall ist in Abb. 7.4 (unten) dargestellt. Für die Messung des Heliumdimers wird entsprechend diesen Überlegungen eine Laserintensität angestrebt, die eine solche unverzerrte Abbildung ermöglicht.

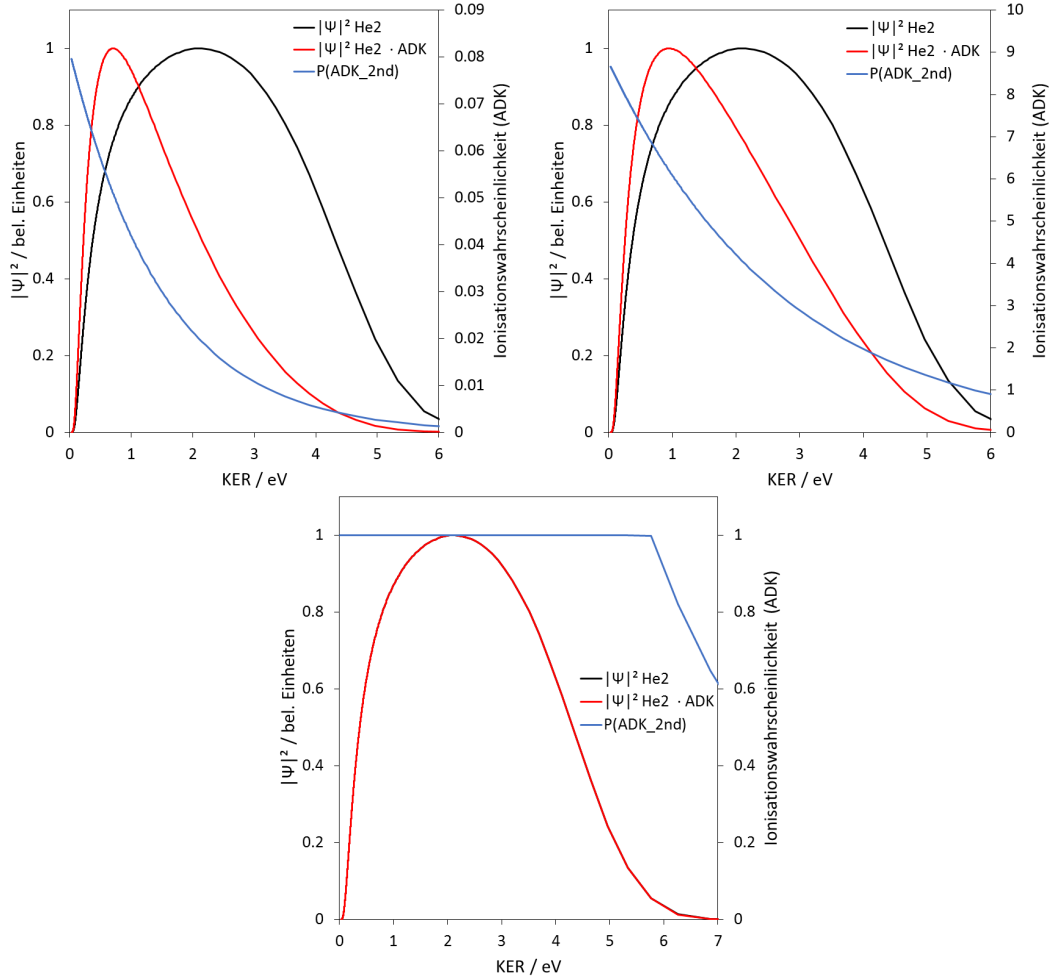


Abb. 7.4.: KER-Verteilung des Aufbruchs von He₂ entsprechend der He₂-Grundzustandswellenfunktion nach [22] (schwarz) neben der KER-Verteilung (rot), die sich aufgrund der KER-abhängigen ADK-Ionisationswahrscheinlichkeiten (blau) ergibt. Der Vergleich beider Verteilungen wird gezeigt für einen linear polarisierten Laserpuls von 35 fs Länge ($\lambda = 780$ nm) bei einer Intensität von $1 \cdot 10^{15}$ W/cm² (links) und $3,6 \cdot 10^{15}$ W/cm² (rechts). Wird berücksichtigt, dass die Ionisationswahrscheinlichkeit maximal 1 werden kann, ergibt sich ab einer Intensität von $3,6 \cdot 10^{15}$ W/cm² eine unverzerrte KER-Verteilung (**unten**). Die KER-Verteilungen sind auf eine Höhe von 1 normiert.

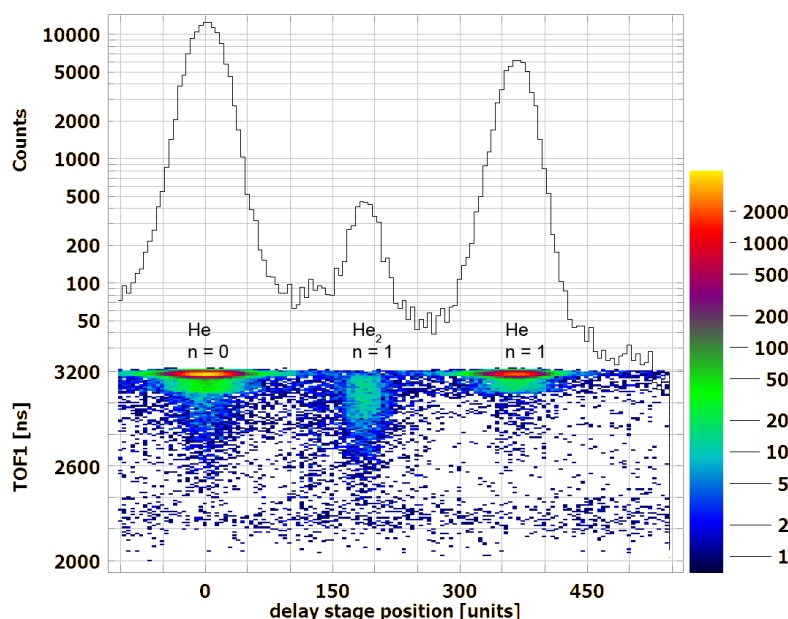


Abb. 7.5.: Beugungsbild der im Gasjet enthaltenen Heliumatome und -cluster zur Wahl von He_2 für die Messung am Ti:Sa-Laser. Aufgetragen ist die Schrittmotorposition gegen die Rate von Dimeraufbrüchen (oben) und gegen die Flugzeit der Ionen (unten). He^+ -Ionen haben eine Flugzeit von 3200 ns. Durch den KER des Coulomb-Zerfalls können aus Dimeren stammende He^+ -Ionen auch kürzere Flugzeiten erreichen.

7.1.2. He_2 Messung am Ti:Sa-Laser

Zur Erzeugung von Heliumdimeren wurde Heliumgas in dieser Messung bei einer Temperatur von 12 K und einem Druck von 1 bar durch eine 5 μm große Düse expandiert (Details in Abschnitt 3.1). Beugung der im Gasjet enthaltenen Heliumatome und -cluster am Transmissionsgitter führte zu der in Abb. 7.5 gezeigten Separation der Beugungsordnungen. Unter der Bedingung, dass die Flugzeiten der Ionen zu Aufbrüchen von Heliumdimeren passen, wird die erste Beugungsordnung von He_2 deutlich zwischen nullter und erster Ordnung der Heliummonomere sichtbar. Diese erste Beugungsordnung von He_2 wird in den Fokus des Ti:Sa-Lasers positioniert.

Bei dem Aufbruch eines Heliumdimers nach zweifacher Ionisation im Laserfokus erhalten beide ionischen Fragmente aufgrund der Impulserhaltung den gleichen, aber vektoriell entgegengesetzten Impuls. Die Summe beider Fragmentimpulse ist also nahezu null. Das wird ausgenutzt, um die Ereignisse der Dimeraufbrüche von sämtlichen Untergrundeignissen zu trennen. Die gesuchten Ereignisse werden dabei in zwei Schritten herausgefiltert: Zunächst werden Fragmentpaare gesucht, deren Flugzeiten den von der Impulserhaltung erzeugten Zusammenhang erfüllen. Aus der Ankunftszeit t_1 eines Ions kann

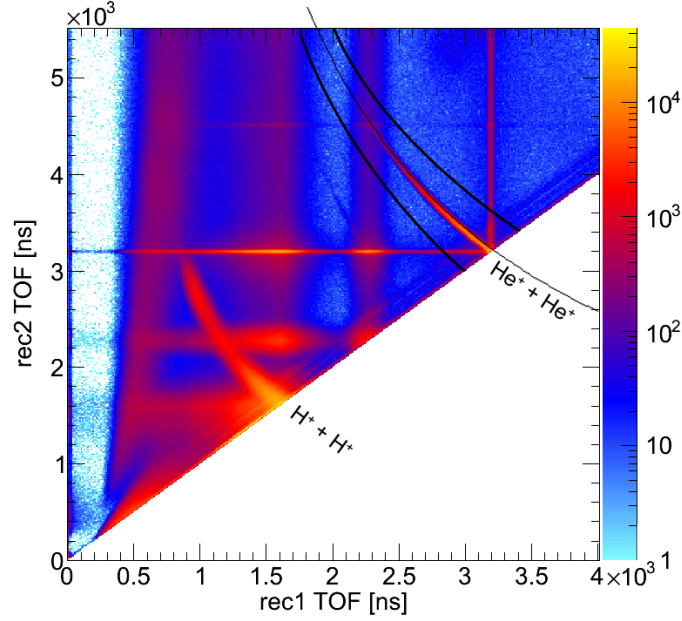


Abb. 7.6.: Flugzeit des zweiten Ions in Abhängigkeit von der des ersten. Heliumionenpaare aus einer Reaktion sind aufgrund der Impulserhaltung im schwarz markierten Bereich zu finden.

sein Impuls in E-Feld-Richtung z bestimmt werden (Formel 5.14). Nun kann berechnet werden, in welcher Zeit t_2 ein Ion mit entgegengesetztem Impuls den Detektor erreicht. Der daraus folgende Zusammenhang zwischen Flugzeit t_2 und t_1 wird beschrieben durch

$$t_2(t_1) = \frac{sm_1}{q_2Et_1} - \frac{q_1t_1}{2q_2} + \sqrt{\frac{2sm_2}{q_2E} + \left(\frac{sm_1}{q_2Et_1} - \frac{q_1t_1}{2q_2}\right)^2}, \quad (7.1)$$

sofern kleinere Korrekturen durch das Feld im Nachbeschleunigungsbereich vernachlässigt werden. Die Funktionskurve $t_2(t_1)$ ist für Massen und Ladungen der beiden He^+ -Fragmente in Abb. 7.6 als dünne schwarze Linie dargestellt¹. Sie liegt in guter Übereinstimmung mit dem in der Messung beobachteten Flugzeitzusammenhang aufbrechender Heliumdimere. Der erste Schritt besteht darin, nur Teilchen weiterzuverarbeiten, deren Flugzeiten in einem gewissen Bereich um die nach Funktion 7.1 beschriebenen Kurve liegen.

Im zweiten Schritt werden die Impulssummen in jeder Raumrichtung betrachtet und Ereignisse mit zu großer Abweichung von null verworfen. Eine geringe Abweichung von null kann aufgrund der endlich guten Auflösung des Detektors nie vermieden werden. Entscheidender ist hier aber der Impulsübertrag aus dem Laserfeld, der zu einer Ver-

¹Masse $m_{1/2} = 4,00260325415$ a.u., Ladung $q_{1/2} = 1$ a.u.

breiterung der gemessenen Impulssummenverteilung führt (Details in Abschnitt 7.1.3). Nach Anwendung dieser beiden Filter können je Messung über 1,2 Mio Ereignisse von aufbrechenden Heliumdimeren identifiziert werden. Die Messungen wurden in 22 h bzw. 26 h aufgenommen, und bestehen ungefiltert aus $3,2 \cdot 10^8$ bzw. $2,3 \cdot 10^8$ Ereignissen.

Zu jedem dieser Ereignisse wird der Relativimpuls und aus ihm der KER des Dimeraufbruchs bestimmt (vgl. Gleichung 5.17). Aus dem KER eines Aufbruchs kann wiederum die Information über den anfänglichen Abstand der Coulomb-explodierenden Ionen gewonnen werden. Er ist abhängig vom Coulomb-Potential, auf dem sich die Ionen nach der Ionisation befinden. Das Potential ist abstandsabhängig. Somit lässt sich vom KER auf den anfänglichen Abstand schließen. In atomaren Einheiten gilt

$$KER = \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 \cdot R} = \frac{q_1 q_2}{R} \quad (7.2)$$

Diese klassische Betrachtung wird *Reflexions-Näherung*² genannt, da der Abstand durch Reflexion des KER am $1/R$ -Potential gewonnen wird[96]. Für eine präzisere Beschreibung muss der Übergang von Grundzustand zu Endzustand quantenmechanisch beschrieben werden. Dazu wird der Überlapp von Anfangswellenfunktion Ψ_i und Endwellenfunktion Ψ_{fKER} bestimmt.

$$P(KER) = \left| \int \Psi_i(R) \Psi_{fKER}(R) dR \right|^2 \quad (7.3)$$

Die Endwellenfunktionen sind Eigenfunktionen des $1/R$ -Potentials, die einem festen KER entsprechen. Aus Formel 7.3 folgt, dass nur eine Wahrscheinlichkeitsaussage darüber getroffen werden kann, welcher Anfangsabstand vorlag, wenn ein bestimmter KER gemessen wurde. Doch auch wenn ein Bereich von verschiedenen Abständen zu ein und dem selben KER führt, stammt der Hauptbeitrag der Wahrscheinlichkeitsverteilung von dem Abstand den auch die *Reflexions-Näherung* ergäbe. Tatsächlich zeigen Simulationen, dass die quantenmechanische Betrachtung zu nahezu dem gleichen Ergebnis führt wie die klassische[55] (siehe Abb. 7.7). Der Grund für diese fast perfekte Übereinstimmung der Ergebnisse aus der klassischen *Reflexions-Näherung* mit denen der quantenmechanischen Rechnung liegt darin, dass bei He_2 aufgrund der geringen Potentialtiefe die Impulse der Atome im Anfangszustand vernachlässigbar gering sind [97]. Für das Heliumdimer ist die Anwendung der klassischen *Reflexions-Näherung* also gerechtfertigt.

²engl.: Reflection Approximation

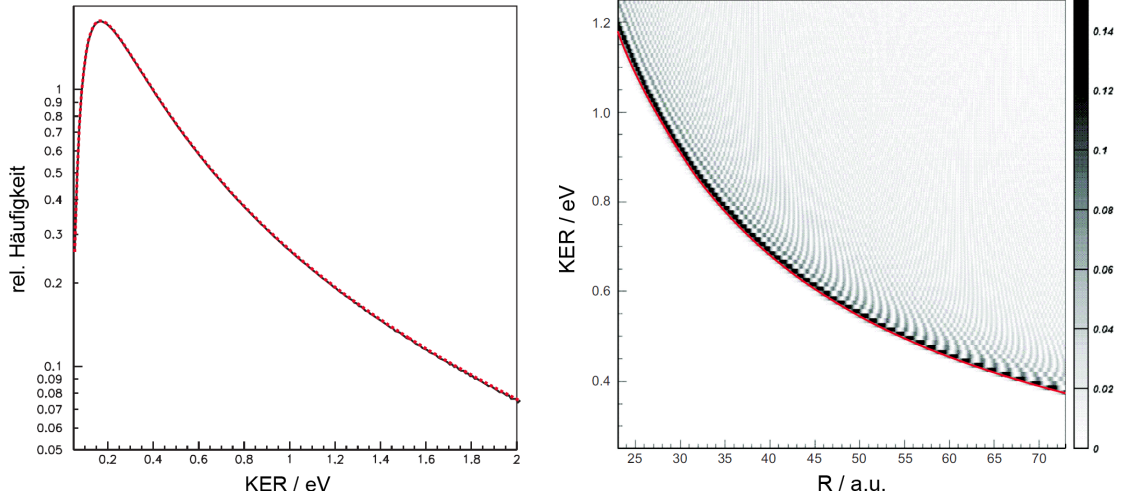


Abb. 7.7.: (links) Vergleich der KER-Verteilungen von He_2 nach klassischer Rechnung (schwarz) und quantenmechanischer Rechnung (rot). (rechts) Betragsquadrat der Kontinuumswellenfunktion in Abhängigkeit von KER und Abstand R . Der Hauptbeitrag der Wellenfunktion besteht bei jedem KER aus dem Maximum bei einem internuklearen Abstand R der auch nach klassischer Rechnung zu diesem KER führt (aus [55]).

Der Abstand R ($=1/\text{KER}$) wird für jedes Ionisationsereignis bestimmt und in ein Histogramm eingetragen. Die entstehende Abstandsverteilung (Abb. 7.8) entspricht dem Quadrat der Wellenfunktion des Heliumdimers $|\Psi|^2$. An der Position des inneren Umkehrpunktes des Potentials bei 4,8 a.u. steigt die gemessene Wahrscheinlichkeitsdichte $|\Psi|^2$ stark an. Abbildung 7.9 zeigt, dass die Messung hier in sehr guter Übereinstimmung mit theoretischen Berechnungen liegt.

Am äußeren Umkehrpunkt, bei 25,6 a.u., ist die Potentialstufe extrem gering, und so erstreckt sich die Wahrscheinlichkeitsdichte $|\Psi|^2$ weit über den Umkehrpunkt hinaus (vgl. Abschnitt 2.2). Jenseits des Umkehrpunktes befindet sich die Wellenfunktion im klassisch verbotenen Tunnelbereich. Aufgrund der sehr flachen Potentialstufe dringt die Wellenfunktion sehr weit in diesen Bereich ein. In der Potentialbarriere fällt die Aufenthaltswahrscheinlichkeit exponentiell ab. In logarithmischer Darstellung 7.11 entspricht dies einer Geraden.

Der strikt exponentielle Zerfall einer Wellenfunktion unter einer Potentialbarriere bestätigt nicht nur eine zentrale Voraussage der Quantenmechanik in einer direkten Messung des sonst schwer zugänglichen Bereichs einer evaneszenten Welle, sondern enthält auch einen Zugang zur gesuchten Bindungsenergie des Heliumdimers: Die Schrödingerglei-

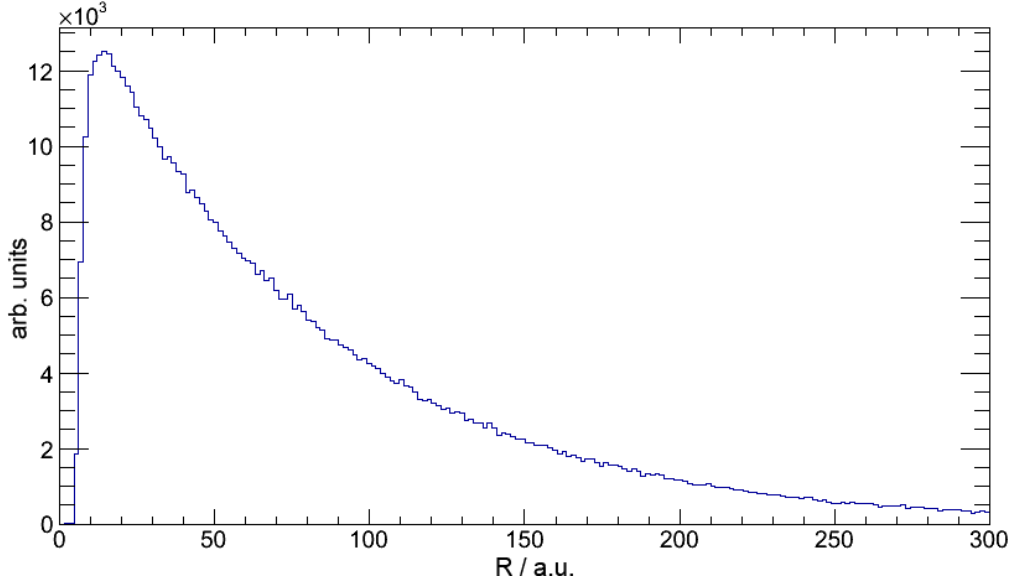


Abb. 7.8.: Abstandsverteilung von He_2 , gemessen nach der Ionisation von He_2 mit Ti:Sa-Laserpulsen, die linear in Richtung des Gasstrahls polarisiert sind.

chung beschreibt eine Wellenfunktion in einer stufenförmigen Barriere mit

$$\Psi(R) = A_0 \cdot e^{-\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} E_{\text{bind}} \cdot R}}. \quad (7.4)$$

Die Zerfallsrate ist abhängig von Masse m , Plancks Konstante $\hbar$ und der Bindungsenergie E_{bind} . Da m und $\hbar$ wohlbekannte konstante Größen sind, kann die Bindungsenergie E_{bind} ermittelt werden, indem die gemessene Abstandsverteilung durch eine Exponentialfunktion mit einem anpassbaren Parameter beschrieben wird. Diese Kurvenanpassung (Fit) wird bei Abständen zwischen 50 a.u. und 300 a.u. vorgenommen. Der Beginn bei 50 a.u. liegt in ausreichendem Abstand vom äußeren Umkehrpunkt und somit sicher im Bereich in dem die Potentialbarriere als Stufe konstanter Höhe angenommen werden kann. Das Potential[22] bei einem Abstand R von 50 a.u. beträgt 2,4 neV (siehe Abb. 7.10). Das obere Ende von 300 a.u. liegt vor dem Bereich, in dem systematische Fehler wie der Impulsübertrag der Elektronen die Messung verfälschen. Für die Messung mit linearer Polarisation des Lasers in E-Feld-Richtung folgt aus der Kurvenanpassung ein Wert für die Bindungsenergie von 157,5 neV. Für die Messung mit linearer Polarisation parallel zum Gasstrahl folgt ein Wert von 151,6 neV. Die Abweichung wird in der Fehlerbetrachtung 7.1.4 diskutiert.

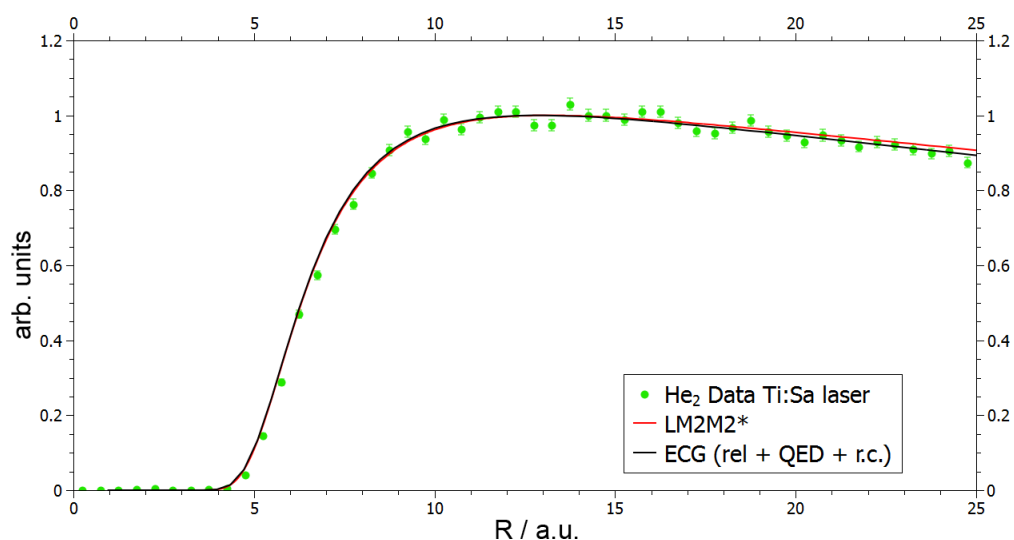


Abb. 7.9.: Innerer Bereich der Abstandsverteilung von He_2 (grün, gemessen am Ti:Sa-Laser mit linearer Polarisation parallel zum Gasstrahl) im Vergleich mit theoretischen Berechnungen von Luo et al. (rot, LM2M2* [21]) und Przybytek et al. (schwarz, ECG [22]).

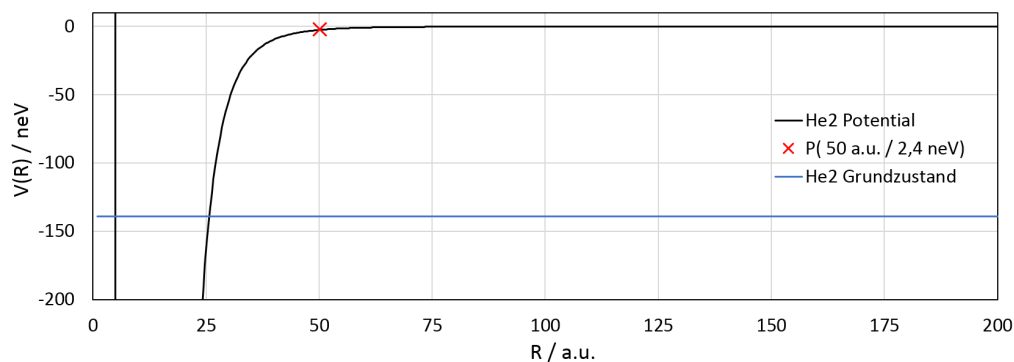


Abb. 7.10.: He_2 -Potentialkurve von Przybytek et al. (schwarz, [22]). Die Potentialtiefe bei 50 a.u. (rot) ist vernachlässigbar klein gegenüber der Bindungsenergie (blau).

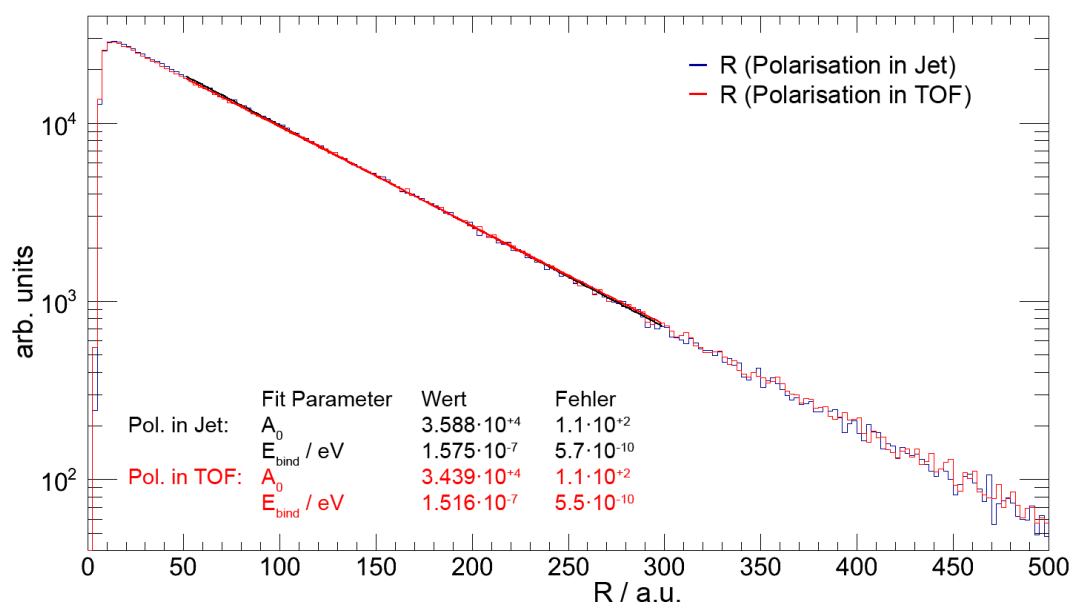


Abb. 7.11.: Gemessene Abstandsverteilungen von He_2 in logarithmischer Darstellung für die Messungen mit linearer Polarisation parallel zum Gasstrahl (schwarz) und in E-Feld-Richtung (rot). Es wurde je ein exponentielle Kurvenanpassung zwischen 50 und 300 a.u. durchgeführt, deren Parameter E_{bind} und A_0 angegeben sind.

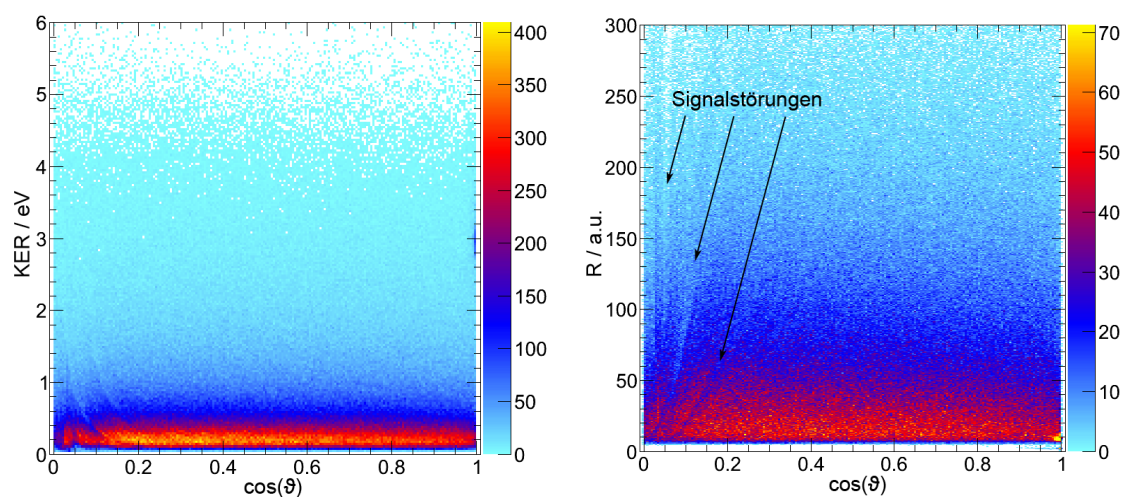


Abb. 7.12.: KER (links) und den Abstand R (rechts) von He_2 aufgetragen gegen den Winkel zwischen Aufbruchrichtung des Dimers und E-Feld-Richtung $\cos(\vartheta)$. Für $\cos(\vartheta)$ kleiner als 0,2 und größer als 0,95 sind Störungen in den Verteilungen erkennbar.

Für diese Auswertung wurde nicht der gesamte Raumwinkel einbezogen, sondern nur Ereignisse für die der Winkel zwischen dem Relativimpuls $\vec{p}_{rel}$ und der Feldrichtung des Spektrometers $\cos(\vartheta)$ größer als 0,2 ist. Abbildung 7.12 zeigt, dass im Bereich von $\cos(\vartheta) < 0,2$ Störungen vorliegen, die die Güte der Messung einschränken. Ursache für diese Störungen sind Signalreflexionen an den Enden der Anodendrähte oder anderen Kabelverbindungen. Für Aufbrüche mit $\cos(\vartheta) < 0,2$ ist der Flugzeitunterschied zwischen den beiden Ionen im gleichen Bereich wie die Laufzeiten der Störungen auf den Anodendrähten. Genau in E-Feld-Richtung wurden gehäuft zwei Ionen detektiert, die nicht aus einem Aufbruch stammen³ aber trotz Forderung von Impulserhaltung nicht herausgefiltert werden konnten. Deshalb wurden auch Ereignisse mit $\cos(\vartheta) > 0,95$ ausgeschlossen.

7.1.3. Korrekturen aufgrund des Startimpulses der Ionen

Die *Reflexions-Näherung* setzt voraus, dass die kinetische Energie der Ionen ausschließlich aus der Umwandlung der anfänglichen potentiellen Energie der Ionen entsteht, sie also keinen Startimpuls besitzen. Dies ist im Laserfeld nur näherungsweise wahr. Die Ionen erhalten aufgrund der Impulserhaltung den entgegengesetzten Impuls der Elektronen bei der Starkfeld Tunnelionisation. Das ionisierende Wechselfeld des Laserpulses wirkt auch nach der Ionisation noch für einen kurzen Moment auf die entstandenen geladenen Teilchen. Ebenso wie die Elektronen im Laserfeld einen geringen Impuls erhalten (siehe Impulsverteilung in Abb. 4.8), nehmen die Ionen den betragsmäßig gleichen Impuls im Laserfeld auf. Dabei gibt die Polarisierung die Ausrichtung des elektrischen Feldes, und damit die Richtung der beschleunigenden Kraft vor. Die Auswirkung davon lässt sich in den beiden Messungen bei unterschiedlicher Polarisierung vergleichen. Dazu wird die Summe der Impulse beider Ionen (fortan Summenimpuls) betrachtet. Hier ist die Polarisationsrichtung direkt erkenntlich, wie Abb. 7.13 zeigt. Die Coulomb-Explosion erfüllt die Impulserhaltung, jeglicher Summenimpuls stammt also von Abbildungsfehlern im Spektrometer, limitierter Detektorauflösung und eben dem Impuls aus dem Ionisationsprozess.

Erhalten beide ionischen Fragmente durch das Laserfeld einen Impuls gleicher Größe und in gleicher Richtung, so wird der Summenimpuls p_{sum} maximal. Der Relativimpuls p_{rel} wird dabei nicht verändert (siehe Abb. 7.14). Werden zwei betragsmäßig gleiche Impulse durch das Laserfeld in entgegengesetzte Richtungen übertragen, heben sie sich bei

³zufällige Koinzidenzen

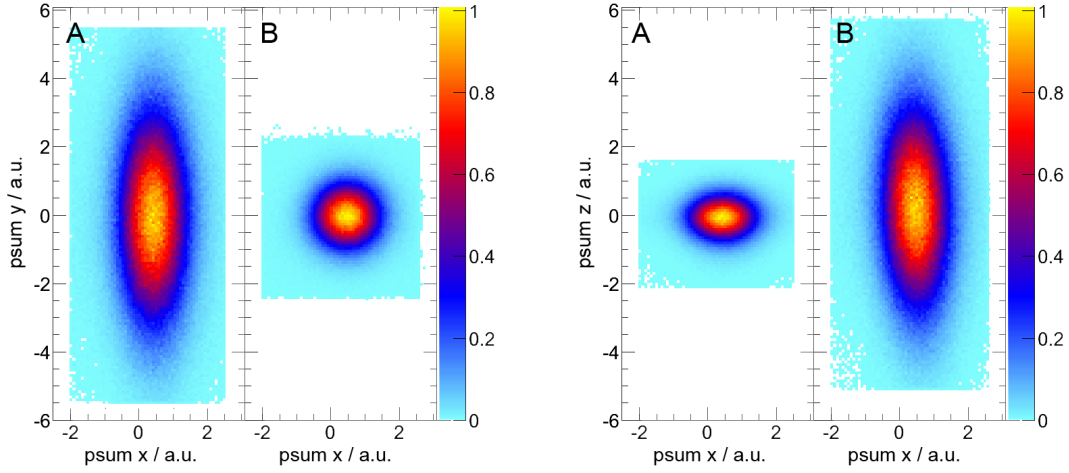


Abb. 7.13.: Vergleich der Summenimpulse aus der Messung mit Polarisation parallel zum Gasstrahl (y-Achse) (A) und der Messung mit Polarisation in E-Feld-Richtung (z-Achse) (B). In Polarisationsrichtung ergibt sich jeweils die stärkste Summenimpulsverbreiterung.

vektorieller Addition auf, und der Summenimpuls bleibt null. Stattdessen wird der Relativimpuls p_{rel} der Ionen stark verändert (siehe Abb. 7.15). Zwischen diesen beiden Extremfällen, bei der Übertragung von Impulsen unterschiedlicher Größe und Richtung, entstehen komplementäre Kombinationen aus Summenimpuls und Relativimpuls. Die Verfälschung des Relativimpulses wirkt sich auf die Berechnung des KERs und schließlich des Abstands R aus. Dadurch entsteht ein systematischer Fehler auf den Messgrößen. Der gemessene Relativimpuls $p_{rel,mess}$ setzt sich zusammen aus p_{rel} und $p_{rel,error}$, wobei für ein einzelnes Ereignis keine Information über die Größe des Fehlers $p_{rel,error}$ ermittelt werden kann. Jedoch ist die Wahrscheinlichkeiten dafür, dass die Ionen einen zusätzlichen Impuls in die gleiche oder die entgegengesetzte Richtung erhalten, gleich groß. Dies führt dazu, dass auch die Verteilung der Impulssumme ($\Delta p_1 + \Delta p_2$) identisch zur Verteilung der Impulsdifferenz ($\Delta p_1 - \Delta p_2$) ist. Somit kann die Verteilungen des Fehlers $p_{rel,error}$ aus der gemessenen Summenimpulsverteilung gewonnen werden.

Um zu ermitteln, wie sich die gemessene Abstandsverteilung ändert, wenn jedes Ereignis einen Fehler $p_{rel,error}$ enthält, werden künstliche Ereignisse am PC simuliert. Dazu werden 10^7 Aufbrüche berechnet, bei denen sich jeweils zwei Ionen in einem zufälligen Abstand gemäß einer abfallenden e-Funktion befinden. Die Steigung der e-Funktion entspricht einem Bindungsenergiwert. Zu jedem KER dieser berechneten Ereignisse wird die Energie eines zufälligen Relativimpulses gemäß der Summenimpulsverteilung in den

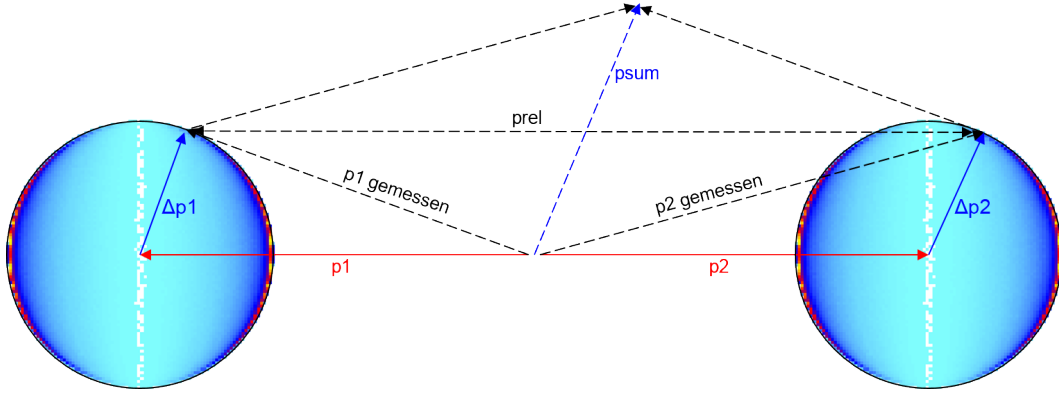


Abb. 7.14.: Ionische Impulse durch Coulomb-Explosion und Laserfeld (rot, blau) neben den messbaren Impulsen (gestrichelt). Zwei gleichgerichtete Impulse auf die Ionen durch das Laserfeld Δp_i führen zu einem unveränderten Relativimpuls p_{rel} aber einem vergrößerten Summenimpuls p_{sum} .

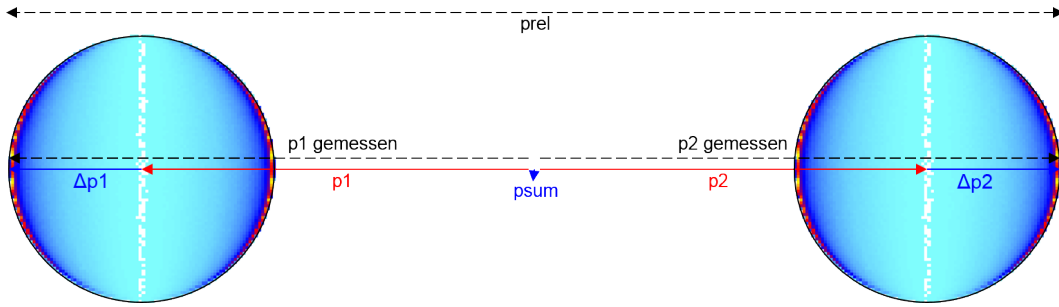


Abb. 7.15.: Ionische Impulse durch Coulomb-Explosion und Laserfeld (rot, blau) neben den messbaren Impulsen (gestrichelt). Zwei entgegengesetzte Impulse auf die Ionen durch das Laserfeld Δp_i führen zu einem unveränderten Summenimpuls p_{sum} aber einem vergrößerten Relativimpuls p_{rel} .

drei Raumrichtungen x , y , und z hinzuaddiert. Es gilt also

$$KER = KER_0 + E_x + E_y + E_z = KER_0 + \frac{p_{rel,ex}^2}{2\mu_{He_2}} + \frac{p_{rel,ey}^2}{2\mu_{He_2}} + \frac{p_{rel,e_z}^2}{2\mu_{He_2}} \quad (7.5)$$

Durch die zusätzliche Energie werden die gemessenen Werte des KERs größer, und damit die gemessenen Abstände scheinbar kleiner. Das führt zu einer steiler abfallenden e -Funktion und folglich einer größeren berechneten Bindungsenergie. Das bedeutet ohne den zusätzlichen Relativimpuls $p_{rel,error}$ wäre eine geringere Bindungsenergie gemessen worden. Um zu ermitteln, welche (geringere) Bindungsenergie den Messwerten zugrunde liegt, wird die Ausgangsbindungsenergie in der Rechnung so angepasst, dass der Messwert

reproduziert wird⁴. Die gemessene Bindungsenergie von 157,5 eV bei linearer Polarisation parallel zum Gasstrahl entspricht also tatsächlich einer Bindungsenergie von 149,8 eV. Die Bindungsenergie aus der Messung bei Polarisation in E-Feld-Richtung wird von 151,6 eV auf 144,5 eV korrigiert.

7.1.4. Fehlerbetrachtung

Neben dem bereits beschriebenen systematischen Fehler (Abschnitt 7.1.3) bestehen weitere Unsicherheiten, die die Genauigkeit der ermittelten Bindungsenergie beeinträchtigen. Dies ist zum Einen die Genauigkeit der Kalibrierungen und zum Anderen der stochastische Fehler, der sich in der Restabweichung der Kurvenanpassung zur Bestimmung der Bindungsenergie niederschlägt.

Die Präzision, die bei der Kalibrierung erreicht werden konnte, wurde bereits in Abschnitt 7.1 beschrieben. Durch die Flugzeitkalibrierung konnte der KER mit einer relativen Genauigkeit von 0,16% angegeben werden. Diese Unsicherheit gilt für Energien, die aus Relativimpulsen berechnet wurden, die parallel zur Feldrichtung im Spektrometer stehen. Haben die Relativimpulse auch Komponenten der anderen beiden Raumrichtungen, so muss zusätzlich die Kalibrierung des Auftreffortes berücksichtigt werden. Die Aufbruchsenergie konnte hier mit einer Genauigkeit von 0,86% ermittelt werden. Um den resultierenden Fehler auf die Bindungsenergie zu bestimmen, werden die Impulse in E-Feld-Richtung um den Faktor $\sqrt{1,0016}$ gestreckt oder um den Kehrwert gestaucht. Die Impulse senkrecht zur E-Feld-Richtung werden um den Faktor $\sqrt{1,0016 \cdot 1,0086}$ gestreckt und gestaucht. Daraus ergibt sich ein Fehler von $\pm 3,9$ neV für die Messung mit Polarisation parallel zum Gasstrahl und $\pm 3,8$ neV für die Messung mit Polarisation in E-Feld-Richtung.

Mit dem Fehler der exponentiellen Kurvenanpassung von $\pm 0,6$ neV resultiert für die Messung mit Polarisation parallel zum Gasstrahl ein Gesamtfehler von $149,8 \pm 4,4$ neV. Bei Polarisation in E-Feld-Richtung beträgt der Fehler der Kurvenanpassung $\pm 0,6$ neV womit der Gesamtfehler $144,5 \pm 4,3$ neV ist.

Eine weitere Möglichkeit eine Aussage über die Güte der Messergebnisse zu treffen ist der Test auf inhärente Konsistenz der Daten. Da die Orientierung der Dimere im Fokus zufällig bestimmt ist und bei diesen großen Abständen die Anwesenheit des zweiten Teilchens keine Auswirkungen auf den Ionisationsprozess im Laserfeld haben sollte, ist ein

⁴Hierzu wird die entstehende Abstandsverteilung der künstlichen Ereignisse im gleichen R-Bereich und unter den gleichen Bedingungen an den Raumwinkel durch eine Exponentialfunktion beschrieben, wie die Messdaten.

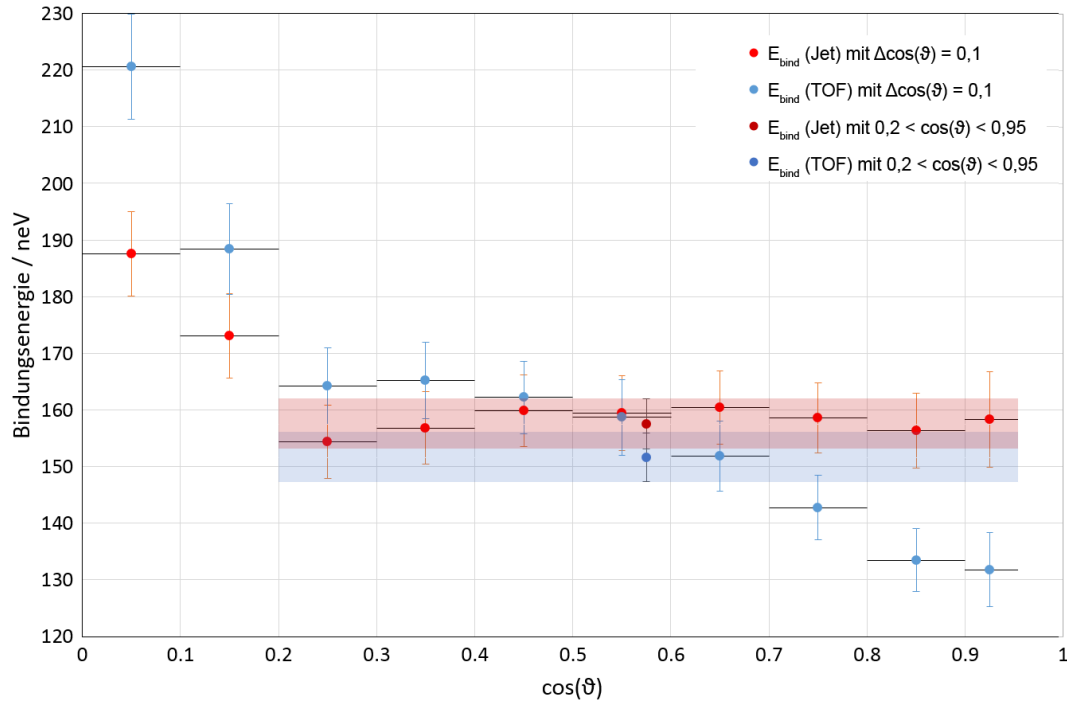


Abb. 7.16.: Bindungsenergien von He_2 in verschiedenen Raumwinkelbereichen ($\Delta\cos(\vartheta) = 0,1$) im Vergleich zu den ermittelten Werten für den Gesamtbereich ($0,2 < \cos(\vartheta) < 0,95$).

vollständig isotroper Aufbruch zu erwarten. Der KER, und damit auch die Abstandsverteilung und die ermittelte Bindungsenergie sollten in jeder Raumrichtung gleich sein. Allein die Laserpolarisation könnte diese Isotropie brechen.

Für diesen Test wird die Bindungsenergie in unterschiedlichen Raumwinkelbereichen bestimmt und verglichen. Dazu werden die Daten in zehn Blöcke geteilt, die sich durch den Bereich des Winkels zwischen Aufbruch- und E-Feld-Richtung $\cos(\vartheta)$ unterscheiden. Die ermittelten Bindungsenergien der zehn einzelnen Abschnitte ist in Abb. 7.16 neben den Gesamtergebnissen dargestellt. Während bei der Messung mit Polarisation parallel zum Gasstrahl sämtliche Einzelwerte im Rahmen ihrer Fehler mit dem Gesamtergebnis vereinbar sind, streuen die Einzelwerte bei der Messung mit Polarisation in E-Feld-Richtung über die Fehlergrenzen hinaus. Erst mit einem Fehler von mindestens $151,6 \pm 14,1$ neV stimmen die ermittelten Bindungsenergien aller Teilabschnitte im Rahmen ihrer Fehler mit dem Wert aus der Kurvenanpassung des Gesamtbereichs überein.

Die Wahl des Bereichs der Kurvenanpassung zur Ermittlung der Bindungsenergie von 50 a.u. bis 300 a.u. wurde in Abschnitt 7.1.2 erläutert. Werden diese Grenzen leicht variiert ist keine Veränderung des Ergebnisses zu erwarten, da die Wellenfunktion gemäß

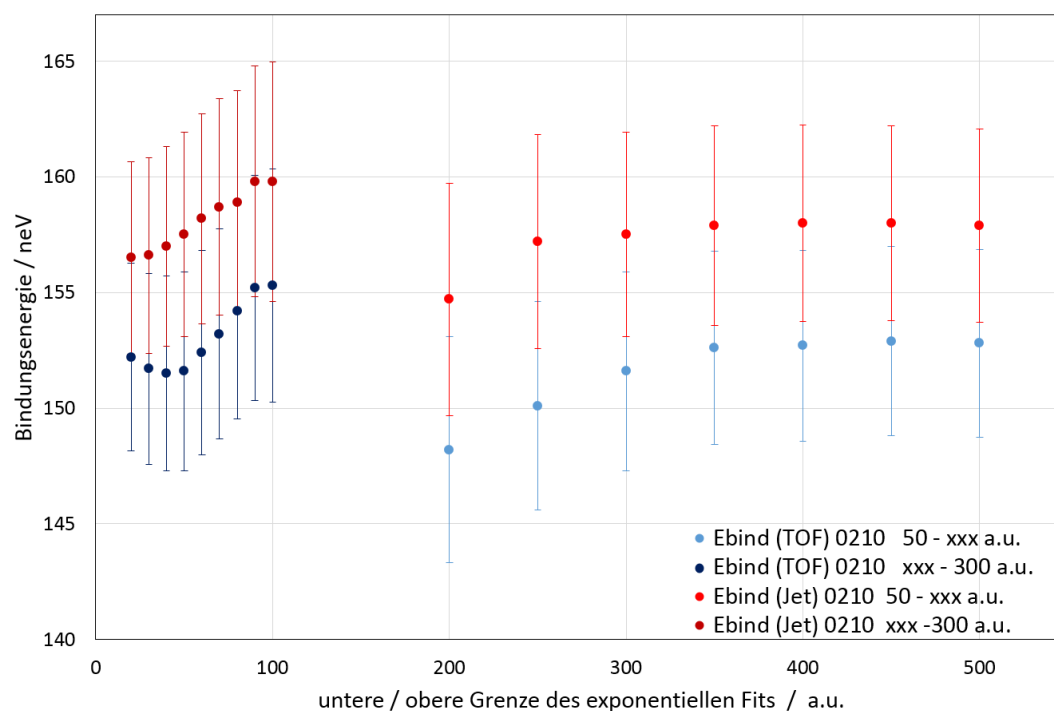


Abb. 7.17.: Abhängigkeit der ermittelten He_2 -Bindungsenergie vom Intervall der exponentiellen Kurvenanpassung. Bei Variation der unteren Grenze bleibt die obere Grenze fest bei 300 a.u., bei Variation der oberen Grenze bleibt die untere Grenze fest bei 50 a.u..

der theoretischen Beschreibung im gesamten Bereich unter der Barriere dem gleichen exponentiellen Zerfallsgesetz folgt. Beobachtete Variationen des Ergebnisses geben einen weiteren Anhaltspunkt zu dessen Belastbarkeit. Abbildung 7.17 zeigt, dass eine Variation der Grenzen eine Abweichung der Bindungsenergie von $+2,3/-2,8$ neV (Polarisation parallel zum Gasstrahl) bzw. $+3,7/-3,4$ neV (Polarisation in E-Feld-Richtung) bewirkt.

Um die Auswirkung der endlichen Orts- und Zeitauflösung auf die Bestimmung der Bindungsenergie abzuschätzen, wurde die Auflösung künstlich reduziert und der Einfluss auf die Bindungsenergie beobachtet. Dazu wird eine Zufallszahl zwischen ± 0 und ± 2 mm zum Auftreffort bzw. ± 0 und ± 2 ns zur Auftreffzeit hinzu addiert. Die zusätzliche Unschärfe führt zu einer erhöhten Bindungsenergie, da ein quadratischer Zusammenhang zwischen Ort und Impuls besteht. So folgt eine durchschnittliche Erhöhung der Impulse und damit eine Erhöhung der Energien, eine Reduktion der Abstände und schließlich eine Erhöhung der Bindungsenergie. Eine zusätzliche Unschärfe der Auftreffzeit hat nahezu keinen Einfluss auf die ermittelte Bindungsenergie. Diese Ergebnisse sind in Abb. 7.18 zusammengestellt.

Die real bestehende Ortsauflösung des Detektors führt zu einer geringen Verbreiterung

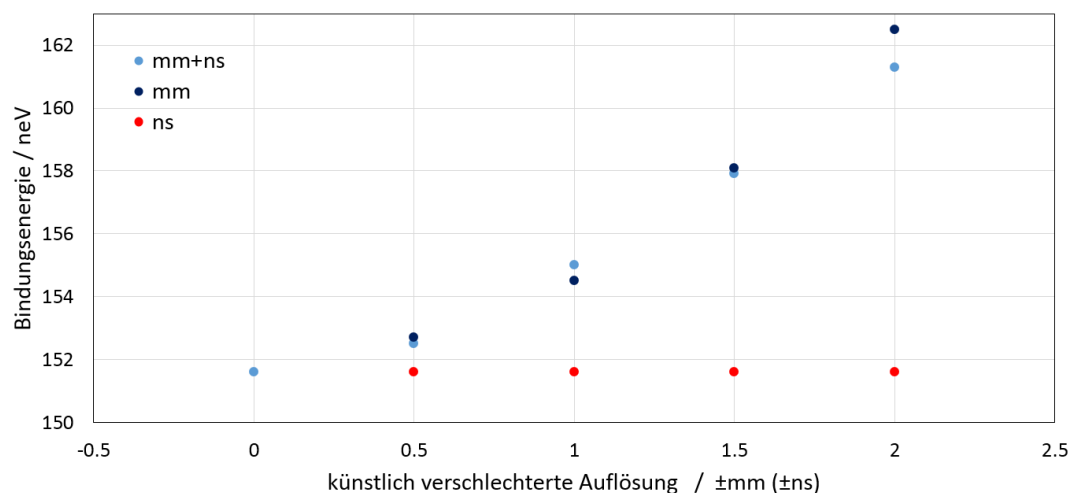


Abb. 7.18.: Auswirkung einer künstlich reduzierten Auflösung auf die ermittelte He_2 -Bindungsenergie. Eine Reduktion der Ortsauflösung führt zu einem merklichen Anstieg der Bindungsenergie, während die Zeitauflösung kaum Einfluss zeigt.

der Summenimpulsverteilung und der Relativimpulsverteilung. Die Auswirkungen einer verbreiterten Relativimpulsverteilung auf die Bindungsenergie wurde bereits in Abschnitt 7.1.3 korrigiert. Die Korrektur des Rückstoßes der Elektronen beinhaltet also auch die Korrektur die Vergrößerung des Relativimpulses durch die endliche Ortsauflösung.

7.2. Messung am FEL

Der Freie Elektronen Laser FLASH in Hamburg kann Photonen erzeugen, von denen bereits ein einzelnes genügend Energie trägt, um Helium zu ionisieren. Die Photondichte im Laserfokus dieser Anlage ist so hoch, dass die zweifache Photoionisation des Targets gesättigt werden kann (Details zu FLASH in Abschnitt 4.3.4).

Zur Ionisation von Heliumdimeren werden Photonen mit einer Wellenlänge von 18,5 nm und damit einer Energie von 67 eV gewählt⁵. Der bereitgestellte Photonenfluss führt zu einer großen Menge an Ionisationen von Restgasteilchen, obwohl ein Restgasdruck von $8 \cdot 10^{-12}$ mbar erreicht werden konnte (siehe Abschnitt 5.3). Damit dieser Untergrund nicht das Finden echter Koinzidenzen beeinträchtigt, wurde die Laserintensität abgeschwächt. Dazu wurde in einen Abschnitt der Beamline Gas eingelassen, das einen hohen Absorptionsquerschnitt für Photonen der verwendeten Wellenlänge besitzt. Durch Regelung der Gasmenge konnte eingestellt werden wie viele Photonen am Experiment

⁵Eine Photonenenergie von 24,6 eV + KER hätte für das vorgestellte Experiment bereits genügt. Bei 67 eV war die Fokusposition der Beamline jedoch besser bestimmbar und näher am Sollwert, auf die das Experiment ausgelegt war.

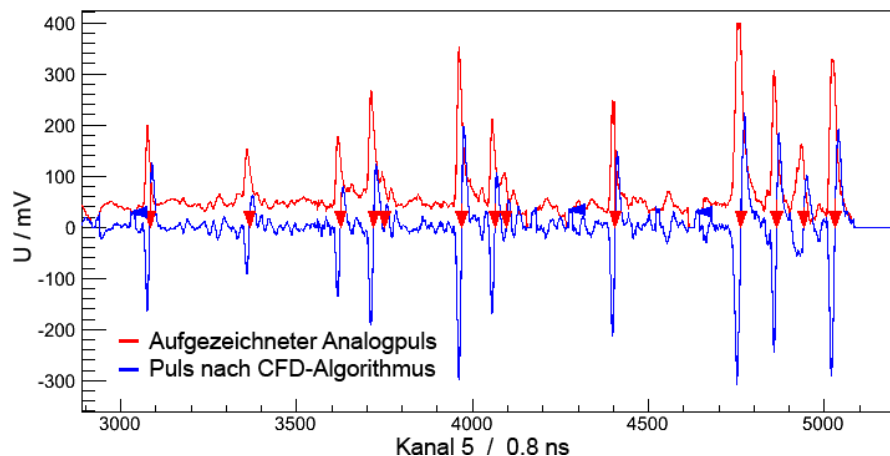


Abb. 7.19.: Beispiel eines aufgezeichneten Analogpulses und der Pulsform nach Anwendung des CFD-Algorithmus. Der Detektor verzeichnet viele Signalpulse in kurzer Zeit. Die erhöhte Grundlinie des aufgezeichneten Analogsignals (rot) wird durch den verwendeten CFD-Algorithmus (blau) kompensiert.

ankommen. Dadurch wurde die Anzahl von detektierten Ionen pro Laserpuls auf rund 20 reduziert.

Viele dieser Ionen stammten von ionisiertem Wasserstoff, der einen Großteil des verbliebenen Restgases ausmachte. Aufgrund ihrer geringen Masse haben Wasserstoffionen eine geringe Flugzeit und erreichen den Detektor vor den gesuchten Heliumionen. Um die Aufnahmeelektronik nicht mit diesen kategorisch falschen Signalen aufzuhalten, wurde nur Signale aufgezeichnet, die nach der typischen Flugzeit von H^+ gemessen wurden. So wurde noch durchschnittlich 10 Ionen je Laserpuls detektiert und gespeichert.

Gespeichert wurde bei dieser Messung die analoge Pulsform der Signale, unter Verwendung des in Abschnitt 6.2.1 beschriebenen ADC-Datenaufnahmesystems. Dies ermöglicht die Zeitpunktsextraktion an die speziellen Gegebenheiten der Messung anzupassen und nachträglich zu optimieren. Die hohe Zahl von Ionen führte häufig dazu, dass Pulse nicht isoliert, sondern in Form von Pulszügen mit mehreren Peaks auftraten. Im exemplarisch dargestellten Pulszug in Abb. 7.19 wird sichtbar, dass dies dazu führt, dass nicht alle Pulse von der Nulllinie aus ansteigen, sondern die Grundlinie von Puls zu Puls unterschiedlich hoch sein kann. Die Höhe der Grundlinie kann für jeden Puls ausgemessen werden, und hebt sich bei dem verwendeten Verstärkungsfaktor von 1 im CFD-Algorithmus gerade auf (siehe Abschnitt 6.2.1).

Die Daten wurden bei einer FLASH-Repetitionsrate von 800 Hz und einer Pulsenergie zwischen 6 und 12 μJ aufgenommen. Die Messung war unterteilt in mehrere Messblöcke

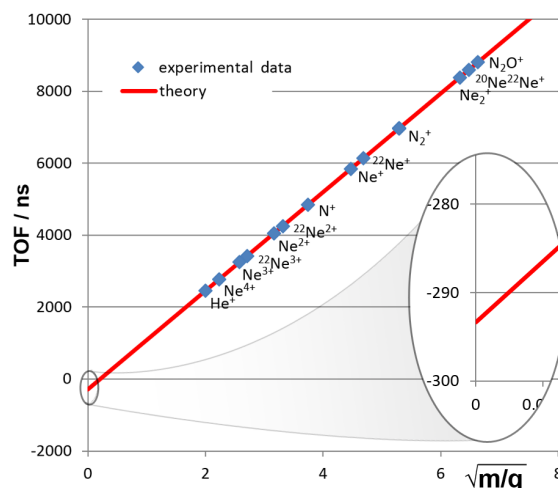


Abb. 7.20.: Bestimmung des Flugzeitnullpunktes t_0 aus dem Achsenabschnitt (Detail) einer Regressionsgeraden an mehrere Flugzeiten von Ionen mit bekanntem Masse-zu-Ladung-Verhältnis.

von jeweils einigen 10 Stunden die sich zu einem Gesamtzeitraum von 81 h aufsummieren. Die Speicherung der Rohdaten, bestehend aus analogen Pulsformen, benötigt einen hohen Speicherplatz von etwa 3 TB. Nach der Umwandlung in Zeitpunkte durch den CFD Algorithmus wird der benötigte Speicherplatz auf 73 GB reduziert. Anschließend können Ereignisse herausgefiltert werden, die zwei Ionen enthalten, welche die Flugzeitabhängigkeit nach Gleichung 7.1 erfüllen. Werden nur noch die Daten der beiden relevanten Ionen gespeichert, reduziert sich das Datenvolumen um einen Faktor 10, wodurch die weitere Datenanalyse schneller durchgeführt werden kann. Insgesamt konnten 490.000 Dimeraufbrüche identifiziert werden.

Nachfolgend wird die Kalibrierung, die Auswertung der He_2 -Daten und die Fehlerbetrachtung der Messung am FLASH vorgestellt. Darüber hinaus wurde am FLASH eine Messung bei höherem Spektrometerfeld durchgeführt, um interatomaren Coulomb-Zerfall (ICD) in Heliumclustern unterschiedlicher Größe zu untersuchen. Die zugehörigen Ergebnisse werden in Kapitel 9 beschrieben.

7.2.1. Kalibrierung der Messung am FEL

Die Kalibrierung von Spektrometer und Detektor folgt auch hier den in Abschnitt 6.4 beschriebenen Schritten. Zunächst wird der Zeitversatz zwischen dem Signal des Laserpulses und dem Stattfinden der Reaktion bestimmt. Als Signal diente hier ein Puls, der durch geladene Teilchen erzeugt wurde, die durch die Interaktion des Lasers mit Gas in

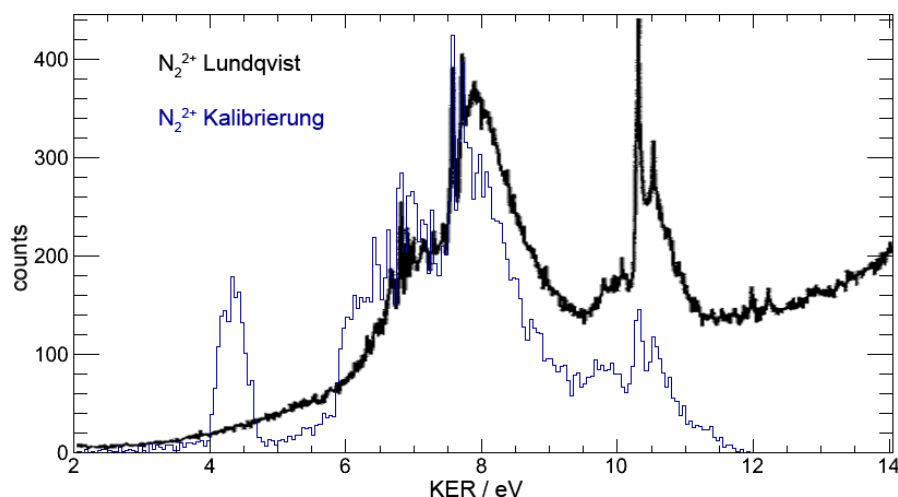


Abb. 7.21.: Vergleich von N_2 -Referenzmessung [98] und N_2 -Kalibrierungsmessung am FLASH. In beiden Messungen konnten Vibrationslevel aufgelöst und durch Wahl der Spektrometerparameter in Übereinstimmung gebracht werden.

Zustand	Vibrationslevel	KER [98]	KER Messung
$D \ ^3\Pi_g \rightarrow N^+(^3P) + N^+(^3P)$	0	7,584 eV	7,574 eV
	1	7,719 eV	7,721 eV
$D \ ^1\Sigma_u^+ \rightarrow N^+(^3P) + N^+(^1D)$	1	10,316 eV	10,315 eV
	2	10,546 eV	10,541 eV

Tabelle 7.3.: Vergleich von Referenzwerten aus [98] und Messwerten des N_2 -Aufbruchs.

einer Gaszelle entstanden. Diese Gaszelle befand sich etwa 30 m von der Reaktionskammer entfernt entlang der FEL-Strahlführung. Messungen mit Neon, Stickstoff, Lachgas (N_2O) und Helium lieferten ausreichend bekannte Masse-zu-Ladung-Verhältnisse, um die in Abb 7.20 dargestellte lineare Regression durchzuführen und t_0 zu bestimmen. Es resultiert ein Zeitversatz t_0 von 293,34 ns.

Zur Kalibrierung des elektrischen Feldes und der Spektrometerlänge, die nach Gleichung 6.6 zur Berechnung der Impulskomponente parallel zur Feldrichtung benötigt werden, wurde der Aufbruch von N_2 untersucht. Wie auch bei dem in Abschnitt 7.1 beschriebenen Aufbruch von O_2 entstehen hier ionische Fragmente mit scharf definierter Energie. Die resultierende KER-Verteilung wird mit der einer Referenzmessung[98] verglichen (siehe Abb. 7.21). Durch Feineinstellung der Spektrometerparameter auf eine Beschleunigungsstrecke s_1 von 39,04 mm und einer Feldstärke E_1 von 4,41 V/cm konnte die in Tab. 7.3 gezeigte Übereinstimmung der Energieniveaus erreicht werden. Die maximale relative Abweichung zur Referenzmessung beträgt 0,13 %, die mittlere relative

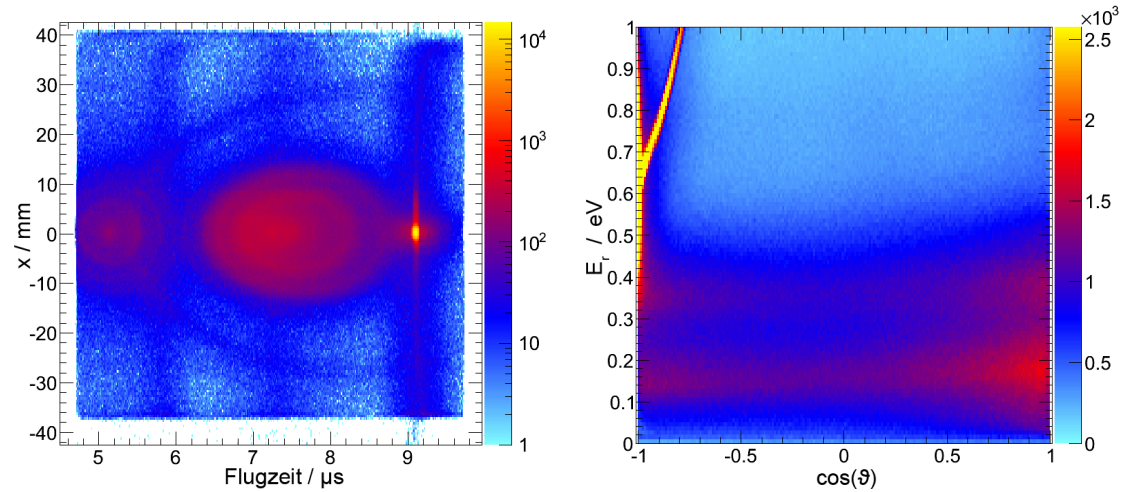


Abb. 7.22.: (links) Flugzeit gegen Auftreffort in x-Richtung von Ionen aus dem dissoziativen Aufbruch von N_2O für einen schmalen Schnitt in y-Richtung. (rechts) Energie des detektierten Ions gegen den Winkel zwischen dessen Impulsvektor und der Richtung des elektrischen Feldes im Spektrometer.

Aufbruch	Energie E_r / KER	rel. Abweichung
$\text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{NO}^+ + \text{N}^0$	0,165	6,17%
$\text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{NO}^+ + \text{N}^0$	0,356	0,62%
$\text{Ne}_2 \rightarrow \text{Ne}^+ + \text{Ne}^+$	4,425	0,16%

Tabelle 7.4.: Mittlere relative Abweichungen der Aufbruchenergien entlang ϑ bei Kalibrierung der Impulskomponenten in der Ebene senkrecht zur E-Feld-Richtung mit einem Streckungsfaktor c von 0,98.

Abweichung beträgt 0,054 %. Die Referenzmessung wird mit einem Fehler von ± 10 meV angegeben, was einer relativen Abweichung von $\pm 0,09$ % bis $\pm 0,13$ % für die verwendeten Vergleichswerte entspricht.

Die x- und y-Komponenten des Impulses nach Gleichung 6.6 wurden mit Hilfe einer N_2O -Messung kalibriert. Um den korrekten Absolutwert dieser Komponenten zu erhalten, wird der gemeinsame Streckungsfaktor c eingestellt. Nach der Photoionisation von N_2O kann das Molekül auf mehreren Wegen dissoziieren. Die Dissoziationsenergie der beobachteten Kanäle verteilt sich dabei jeweils auf ein neutrales und ein geladenes Fragment, wobei nur das geladene Fragment nachgewiesen werden kann. Die Energien sind vergleichbar mit dem KER fragmentierender Heliumdimere, die sich im Tunnelbereich befinden (siehe Abb. 7.22). Die x- und y-Komponenten werden also genau in dem Energiebereich kalibriert, der auch zur Bestimmung der He_2 -Bindungsenergie verwendet wird. Durch einen Streckungsfaktor von 0,98 konnte die Abweichung der gemessenen Ionen-

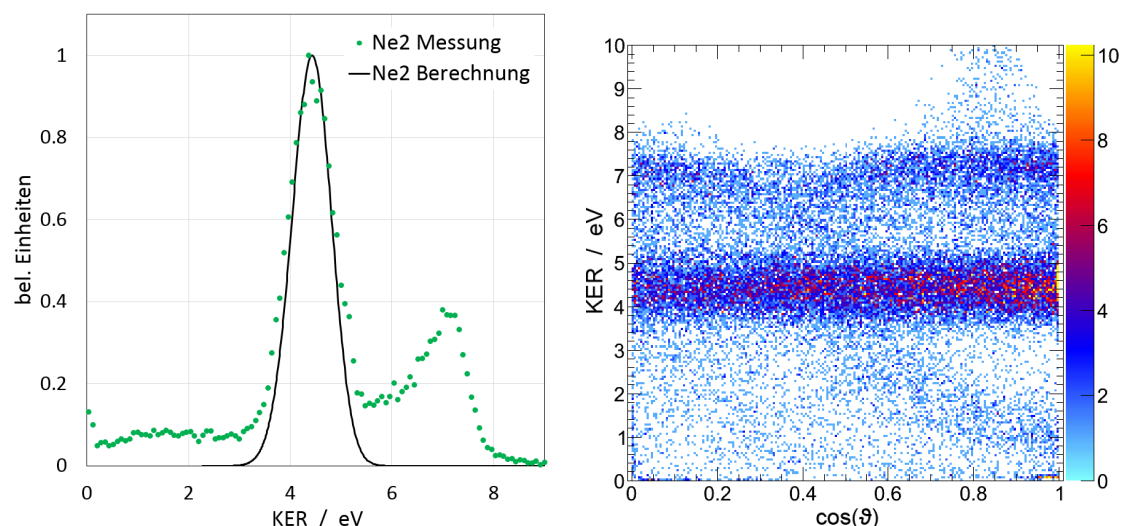


Abb. 7.23.: (links) Vergleich der gemessenen KER-Verteilung des Aufbruchs von Ne_2 mit der berechneten Verteilung nach Gleichung 7.3. (rechts) Darstellung der gemessenen KER-Verteilung gegen den Winkel $\cos(\vartheta)$ zwischen dem Relativimpuls der detektierten Ne^+ -Ionen p_{rel} und der Richtung des elektrischen Feldes im Spektrometer.

energien in x- und y-Richtung von den bereits kalibrierten Energien in E-Feld-Richtung minimiert werden. Zusätzlich wurde überprüft ob bei diesen Einstellungen der KER des Aufbruchs von Neondimeren eine möglichst kleine Abweichung zwischen E-Feld-Richtung und den Richtungen senkrecht dazu aufweist (siehe Abb. 7.23 rechts). Dazu wird die Streuung des Schwerpunkts von Gaußkurven betrachtet, die an die Aufbruchsenergie entlang des Winkels zwischen Aufbruchs- und E-Feld-Richtung ϑ angepasst wurden. Die mittleren relativen Abweichungen der Aufbruchsennergien entlang ϑ sind in Tabelle 7.4 zusammengefasst. Die kalibrierten Spektrometer- und Detektorparameter

Parameter nach Gleichung 6.6	Wert	
Beschleunigungsstrecke s	39,04	mm
E-Feld in s	4,41	V/cm
Nachbeschleunigung s_b	8	mm
E-Feld in s_b	2000	V/cm
Ortsversatz x_0	-1,23	mm
Ortsversatz y_0	-3,79	mm
Korrektur des Zeitnullpunktes t_0	293,34	ns
Streckungsfaktor c	0,98	

Tabelle 7.5.: Kalibrierte Spektrometer- und Detektorparameter für die He_2 -Messung am FEL FLASH.

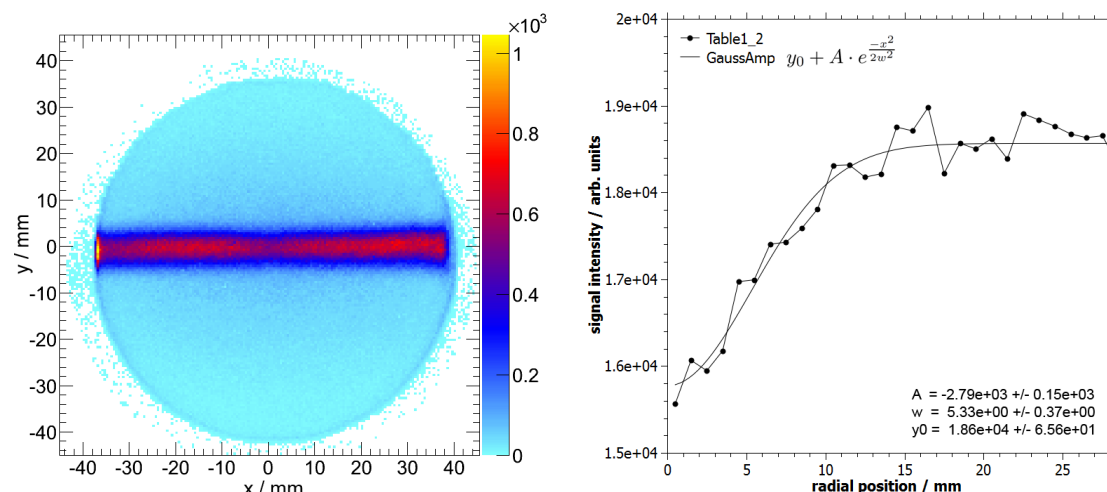


Abb. 7.24.: (links) Auftreffort von Ionen auf dem Detektor bei ortsabhängig reduzierter Nachweiseffizienz. Gezeigt sind nur Ionen, deren Flugzeit der von He^+ -Ionen entspricht. (rechts) Ionsensignal in Abhängigkeit der radialen Auftreffposition auf den Detektor. Die Ortsabhängigkeit der Nachweiseffizienz wird durch einen Gauß-Fit beschrieben.

sind in Tabelle 7.5 aufgelistet. Mit diesen Parametern zeigt sich eine gute Übereinstimmung der gemessenen KER-Verteilung aufbrechender Neondimere mit der Berechnung der Verteilung nach Gleichung 7.3 (siehe Abb. 7.23 links).

7.2.2. He_2 -Messung am FEL

Die Abstandsverteilung, und damit das Quadrat der He_2 -Wellenfunktion, wird hier analog zu der in Abschnitt 7.1.2 beschriebenen Weise aus den Messdaten extrahiert. Die extrem hohe Ionisationsrate durch den FEL erfordert jedoch zuvor zwei Korrekturen: Die Kompensation der reduzierten Nachweiseffizienz und die Subtraktion des Untergrundes.

Die dauerhafte hohe Beanspruchung der MCPs führte zu reduzierter Nachweiseffizienz in der Mitte des Detektors. Die besondere zeitliche Abfolge der beschleunigten Elektronenpakete am FLASH (siehe Abschnitt 4.3.4) erzeugt einen Laserpulszug alle 0,1 s, der 800 μs lang ist und in unserem Fall aus 80 äquidistanten Einzelpulsen besteht. Jeder dieser Laserpulse erzeugt bis zu 50 Ionen im Spektrometervolumen, womit die Ionenrate innerhalb eines Pulszuges 5 MHz erreichen kann. Die meisten dieser Ionen treffen in der Mitte des Detektors auf. Nach etwa 200 h der Beanspruchung des MCPs zeigten Referenzmessungen hier einen Effizienzeinbruch. Diese Messungen bestehen aus der Aufnahme von Ereignissen, die ohne den Einsatz eines Gasstrahls entstanden und der

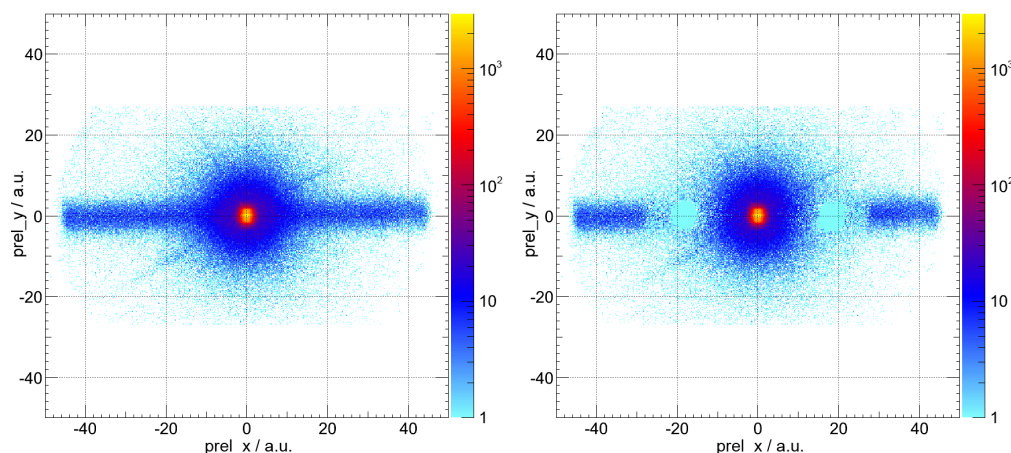


Abb. 7.25.: Relativimpulsverteilung der He₂-Messung am FLASH in der Ebene senkrecht zur E-Feld-Richtung für Ionenpaare, deren Summenimpuls in jeder Raumrichtung kleiner als ± 3 a.u. ist. Durch Ionisation des Restgases entsteht eine Linie von Ereignissen, die trotz Forderung der Impulserhaltung nicht verschwinden (links). Die Intensität der Linie wird im Randbereich ermittelt und dort wo sie echte Daten überlagert subtrahiert (rechts).

FEL nur das Restgas ionisierte (Abb. 7.24 links)⁶. Da die Nachweiseffizienz abhängig von der Geschwindigkeit der Ionen, und damit von Masse-zu-Ladung-Verhältnis ist, wurden nur die Auftrefforte von Ionen, die im relevanten Bereich der Flugzeit von Helumionen He⁺ detektiert wurden, ausgewertet⁷. Die reduzierte Nachweiswahrscheinlichkeit kann durch die in Abb. 7.24 (rechts) dargestellte Gauß-Kurve genähert werden. In den Messdaten wird sie durch einen ortsabhängigen Gewichtungsfaktor entsprechend der reziproken Funktion zu dieser Gauß-Kurve ausgeglichen. Der Gewichtungsfaktor wird für jedes nachgewiesene Ion eines Ereignisses angewandt, für Nachweis von zwei He⁺-Ionen also zwei mal.

Die zweite notwendige Korrektur für die Messung am FEL besteht in der Subtraktion des Untergrundes, der durch die Ionisation von He-Atomen im Restgas entsteht. Der FEL kann Atome nicht nur im Fokus sondern entlang des gesamten Strahlpfades ionisieren. Bereits ein einzelnes seiner Photonen trägt genügend Energie zur Photoionisation, unabhängig von der Sorte des getroffenen Restgasteilchens (siehe Abschnitt 4.3.4).

⁶Diese Messungen wurden zu zwei verschiedenen Zeitpunkten während der He₂-Messung aufgenommen. Die Konzentration von warmem Helium im Restgas wurde dazu absichtlich erhöht, indem Helium ins Vorvakuumssystem geleitet wurde. Aufgrund des limitierten Kompressionsvermögens der Turbomolekularpumpen beeinflusst dies auch die Heliumkonzentration im Hochvakuumbereich der Reaktionskammer.

⁷Die Geschwindigkeitsabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit ist direkt einsehbar, wenn der Auftreffort gegen die Flugzeit aufgetragen wird, denn unter Annahme einer ionischen Startgeschwindigkeit v_0 von null ist die Flugzeit Maß für die Teilchengeschwindigkeit. Das entsprechende Histogramm befindet sich in Anhang A.5.

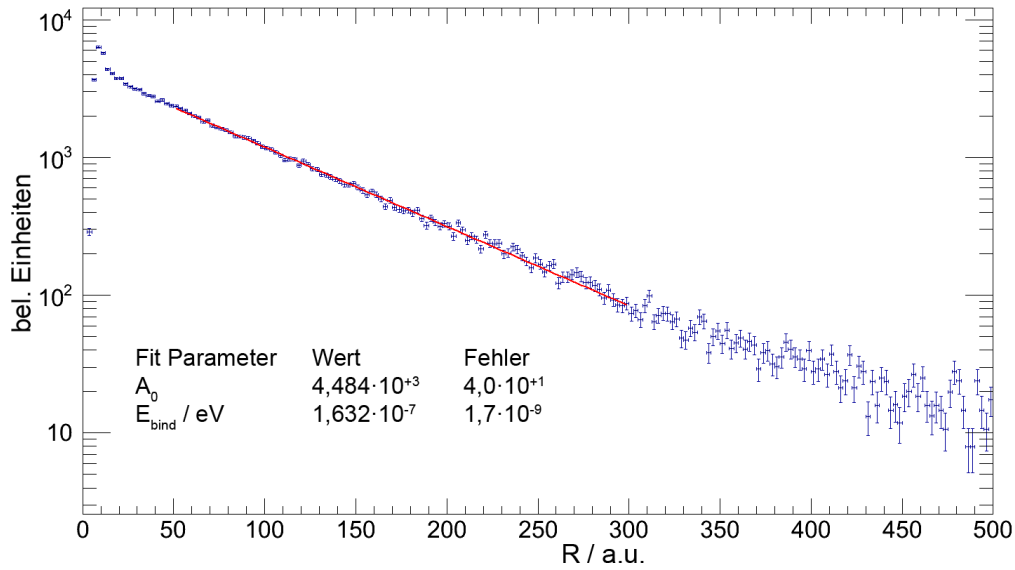


Abb. 7.26.: Gemessene Abstandsverteilung von He_2 in logarithmischer Darstellung. Der Parameter E_{bind} der exponentiellen Kurvenanpassung gibt die Bindungsenergie in eV an.

Das Restgas hat in der gesamten Kammer die gleiche Dichte, und so ist anzunehmen, dass dessen Ionisationswahrscheinlichkeit entlang des Photonenpfades durch die Kammer gleich hoch ist. Die ionisierten Restgasteilchen erreichen den Detektor in zufälligen räumlichen und zeitlichen Abständen zueinander. Ein kleiner Teil hiervon erfüllt zufällig die geforderte Bedingung, dass der Summenimpuls der detektierten Ionenpaare in jeder Raumrichtung kleiner als 3 a.u. ist. Die Verteilung der Relativimpulse dieser Untergrundereignisse entspricht einer Linie in Ausbreitungsrichtung des Strahls x , die die Relativimpulsverteilung der echten Ereignisse überlagert, wie Abb. 7.25 (links) zeigt. Die Relativimpulsverteilung der zufälligen Ereignisse ist uniform entlang dieser Linie. Sie kann also in einem Bereich ermittelt werden, an dem keine echten Ereignisse vorliegen, in einem Abstand von $x = 15$ mm vom Detektormittelpunkt. Diese Verteilung wird von der Verteilung im zentralen Bereich des Detektors, an dem echte Ereignisse vorliegen, subtrahiert (siehe Abb. 7.25 rechts).

Nachdem diese beiden Korrekturen, die Kompensation der Nachweiseffizienz und die Subtraktion falscher Koinzidenzen, durchgeführt wurden, resultiert die in Abb. 7.26 dargestellte Abstandsverteilung. Die Bindungsenergie wird analog zur Vorgehensweise aus Abschnitt 7.1.2 aus dem Exponenten einer exponentiellen Kurvenanpassung an die Abstandsverteilung zwischen 50 und 300 a.u. extrahiert, wodurch ein Wert von 163,2 neV ermittelt wird.

Ähnlich wie bei der Messung am Ti:Sa-Laser waren auch bei der Messung am FEL Teile

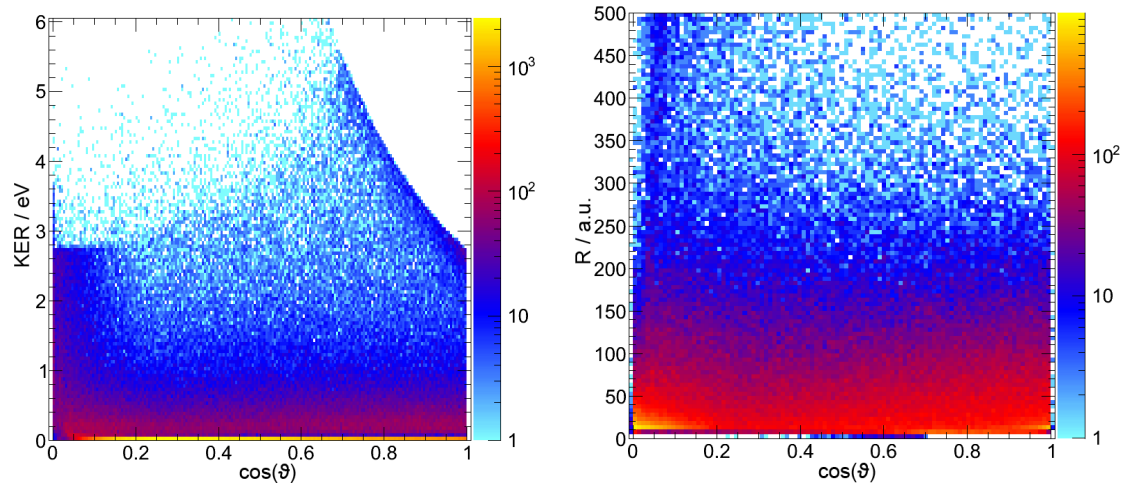


Abb. 7.27.: KER (links) und den Abstand R (rechts) von He_2 aufgetragen gegen den Winkel zwischen Aufbruchrichtung des Dimers und E-Feld-Richtung $\cos(\vartheta)$. Für $\cos(\vartheta)$ kleiner als 0,4 sind Untergrundereignisse in den Verteilungen erkennbar.

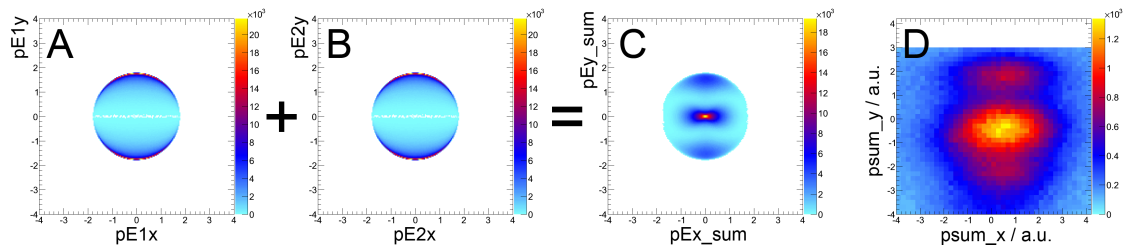


Abb. 7.28.: Vergleich der Summenimpulsverteilung nach zweifacher Photoionisation bei linearer Polarisation in y-Richtung aus Simulationsdaten und der Messung. Die Relativimpulsverteilung zweier Elektronenimpulsverteilungen mit fester Energie (A+B) ist identisch zur dargestellten Summenimpulsverteilung (C), die sich in der Summenimpulsverteilung der Messdaten (D) wieder spiegelt.

des Raumwinkels durch Störungen verfälscht. Signalreflexionen an den Enden der Anodendrähte verfälschen das echte Signal in Bereichen, in denen die Flugzeitdifferenz der beiden Ionen so groß ist wie die Laufzeit der Reflexionen auf den Drähten. Zur Bestimmung der Bindungsenergie werden deshalb nur Ereignisse mit einem Winkel $\cos(\vartheta)$ größer als 0,4 einbezogen, wobei ϑ der Winkel zwischen dem Relativimpuls und der Richtung des elektrischen Feldes ist. Abbildung 7.27 zeigt den KER und die Abstandsverteilung aufgetragen gegen den Winkel $\cos(\vartheta)$.

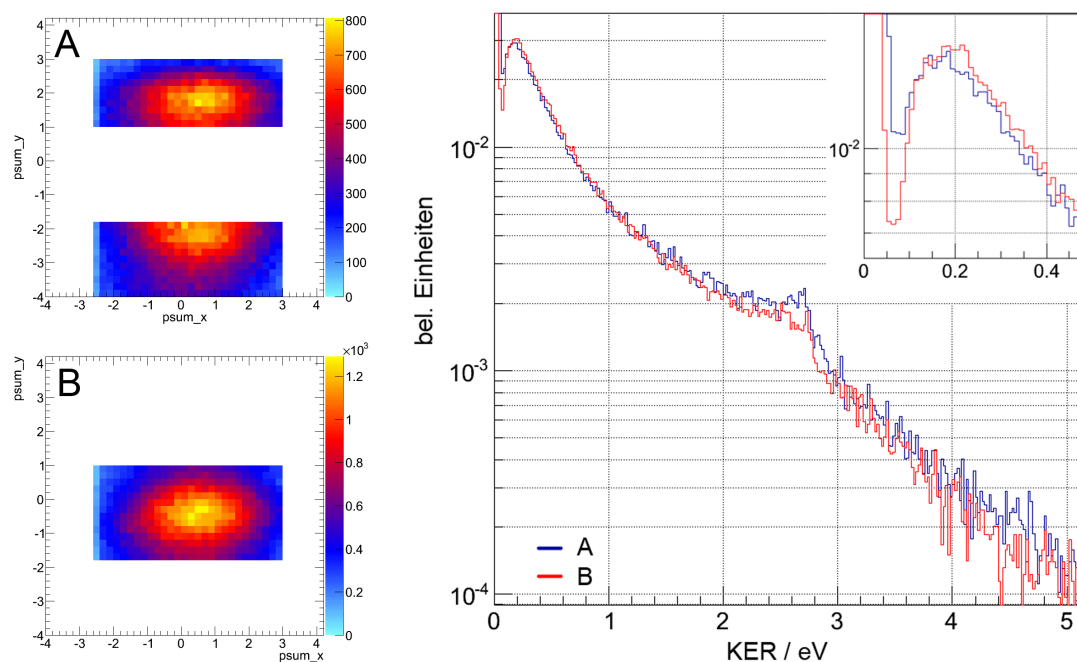


Abb. 7.29.: Summenimpulsbereiche A und B (links) mit zugehörigen normierten KER-Verteilungen (rechts). Für Bereich B wird ein größerer Relativimpuls auf das Dimer übertragen, deshalb sind hier weniger Ereignisse bei sehr kleinem KER und eine Erhöhung bei 0,2 eV gegenüber Bereich A zu beobachten (Ausschnitt rechts).

7.2.3. Rückstoß der Elektronen

Der Rückstoß der Photoelektronen auf die verbleibenden Ionen ist bei der Photoionisation scharf definiert. Sowohl die Ionisationsenergie von Helium I_{HeI} , als auch die Energie der verwendeten Photonen des FEL E_γ sind bekannt. Die überschüssige Energie wird in Form von kinetischer Energie zwischen Photoelektron und Ion aufgeteilt. Im ersten Ionisationsschritt sind das $E_\gamma - I_{HeI} = 67 \text{ eV} - 24,6 \text{ eV} = 42,4 \text{ eV}$. Entsprechend der Impulserhaltung erhält das Elektron dabei den Großteil der Energie bei einem Impuls p_e von 1,77 a.u.. Im zweiten Ionisationsschritt ist die überschüssige Energie um den KER reduziert, und der Impuls p_e entsprechend etwas geringer.

Die Winkelverteilung der emittierten Elektronen nach der Photoionisation entspricht einer $\cos^2$ -Verteilung um die Polarisationsachse des Lichtes (siehe Abb. 4.3). Auf die Coulomb-explodierenden Ionen wirkt nun die Summe zweier solcher Elektronenimpulse. Die entstehende dreigeteilte Hauptstruktur der Summenimpulsverteilung spiegelt sich in der gemessenen Verteilung 7.28 D wieder. Analog zu dieser Verteilung wird der Relativimpuls der Ionen erhöht (siehe Abschnitt 7.1.3). Dieser zusätzliche Impuls erhöht den gemessenen KER der Coulomb-Explosion, und führt damit zu einer scheinbar enge-

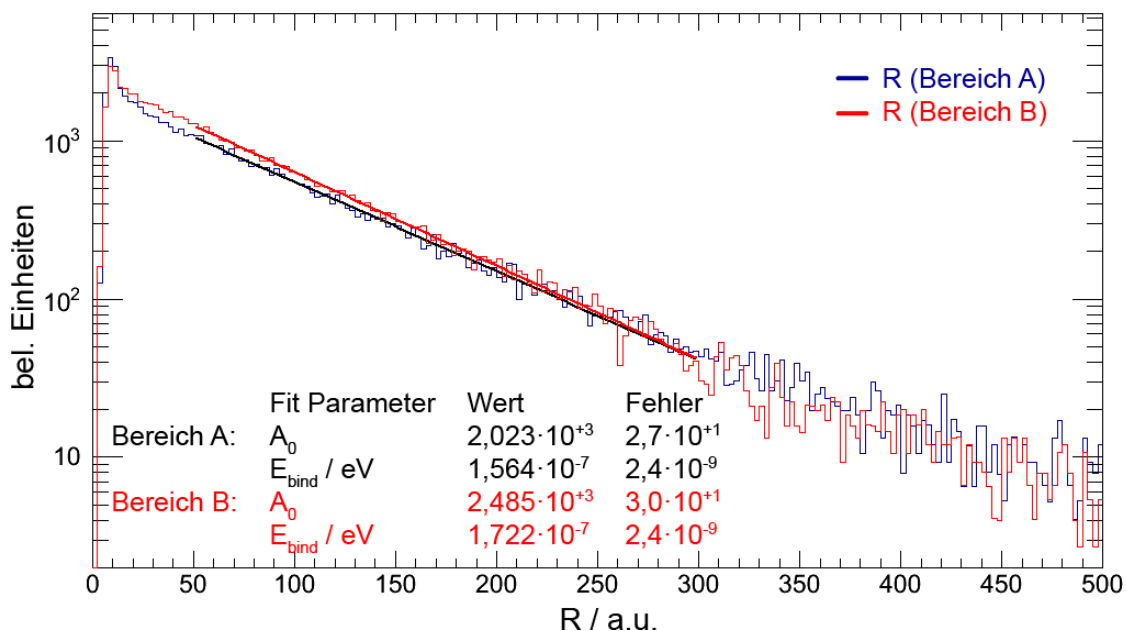


Abb. 7.30.: Vergleich der gemessenen Abstandsverteilungen von He_2 in den beiden Bereichen des Summenimpulses A und B. Der Parameter E_{bind} der exponentiellen Kurvenanpassung gibt die Bindungsenergie in eV an.

ren Abstandsverteilung und einer größeren Bindungsenergie. Um diesen Effekt zu korrigieren, wird nun analog zu der in Abschnitt 7.1.3 beschriebenen Vorgehensweise die Relativimpulsverteilung der Elektronenrückstöße aus der gemessenen Summenimpulsverteilung bestimmt. Dann wird ermittelt welche anfängliche Bindungsenergie durch die zusätzliche Energie der Elektronenrückstöße zu der gemessenen Bindungsenergie von 163,2 neV führt. Dies ist für eine Bindungsenergie von 151,9 neV der Fall.

Die dreigeteilte Struktur des Summenimpulses kann genutzt werden, um den Datensatz in zwei separierten Bereichen zu analysieren. Dazu wird die Summenimpulsverteilung in zwei Bereiche A und B zerlegt (siehe Abb. 7.29). Im niederenergetischen Bereich ist die KER-Verteilung von Bereich B gegenüber der Verteilung von Bereich A zu etwas höheren Energien hin verschoben. Dieses Verhalten ist zu erwarten, da für Bereich B ein größerer Relativimpuls durch den Rückstoß der Elektronen auf das Dimer übertragen wird.

Nun können auch die He_2 -Abstandsverteilungen für die beiden Bereiche getrennt betrachtet werden (siehe Abb. 7.30). Die leicht erhöhte KER-Verteilung wird umgesetzt in eine etwas weniger weit ausgedehnte Abstandsverteilung woraus eine scheinbar erhöhten Bindungsenergie von 172,2 neV folgt. Der niedrigere Relativimpulsübertrag von Bereich A führt zu einer Bindungsenergie von 156,4 neV. Zu bemerken ist, dass auch dieser Wert

über dem Simulationswert von 151,9 neV liegt. Das liegt zum Einen daran, dass auch für eine geringe Verbreiterung der Relativimpulsverteilung noch eine scheinbare Erhöhung der Bindungsenergie folgt, und zum Anderen, dass die gewählten Summenimpulsbereiche die Relativimpulsbereiche nicht perfekt trennen.

Auch die Simulation kann in zwei Bereiche mit unterschiedlichem Relativimpuls A und B zerlegt werden. Die Bindungsenergie wird durch die beiden Relativimpulsverteilungen aus Bereich A und Bereich B unterschiedlich stark verfälscht. Um die gemessene Bindungsenergie von 172,2 neV in Bereich B zu erreichen, ist ein tatsächlicher Wert von 154,6 neV in der Simulation nötig. Die gemessene Bindungsenergie von 156,4 neV in Bereich A resultiert aus einem tatsächlichen Wert von 149,9 neV. Diese beiden Werte schwanken um den für den gesamten Datensatz ermittelten Wert von 151,9 neV. Die Abweichung von $+2,7/-2$ neV kann als Maß für die Güte der Simulation betrachtet werden.

7.2.4. Fehlerbetrachtung für die FEL-Messung

Die erreichbare Genauigkeit der gemessenen Bindungsenergie ist von mehreren Faktoren abhängig: Der Statistik der Messung, der Genauigkeit der Kalibrierung und der Unsicherheit der durchgeführten Korrekturen.

Der statistische Messfehler ist abhängig von der Anzahl der gemessenen Ereignisse und schlägt sich im Fehler der durchgeführten Kurvenanpassung zur Ermittlung der Bindungsenergie wieder. Die Unsicherheit der Kurvenanpassung beträgt $\pm 1,7$ neV, was einer relativen Abweichung von 1 % entspricht.

Die Genauigkeit der Kalibrierungsmessungen ist bereits in Abschnitt 7.2.1 beschrieben worden. Mit einer maximalen relativen Abweichung von 0,13 % ist der KER für Aufbrüche in E-Feld-Richtung durch die N₂-Kalibrierung weit besser bestimmt als in der Richtung senkrecht dazu. Deren obere Fehlergrenze ist durch den niederenergetischen Dissoziationskanal von N₂O mit einer relativen Abweichung von 6,17 % gegeben. Die Unsicherheit der gemessenen Energien führt zu einem Fehler der gemessenen Bindungsenergie von $\pm 10,2$ neV.

Die Ortskalibrierungen auf Basis des höherenergetischen Dissoziationskanals von N₂O und auf Basis des Aufbruchs von Ne₂ zeigen weitaus kleinere relative Abweichung von 0,62 % und 0,16 %. Auf Basis dieser Abweichungen resultieren Fehler von $\pm 2,8$ neV und $\pm 1,2$ neV.

Auch die nachträglichen Korrekturen der Messdaten sind fehlerbehaftet. Mit welcher Unsicherheit der Ausgleich der reduzierten Nachweiseffizienz und die Subtraktion zufälliger Koinzidenzen behaftet ist, wird nachfolgend abgeschätzt. Die Gauß-Kurve, die die redu-

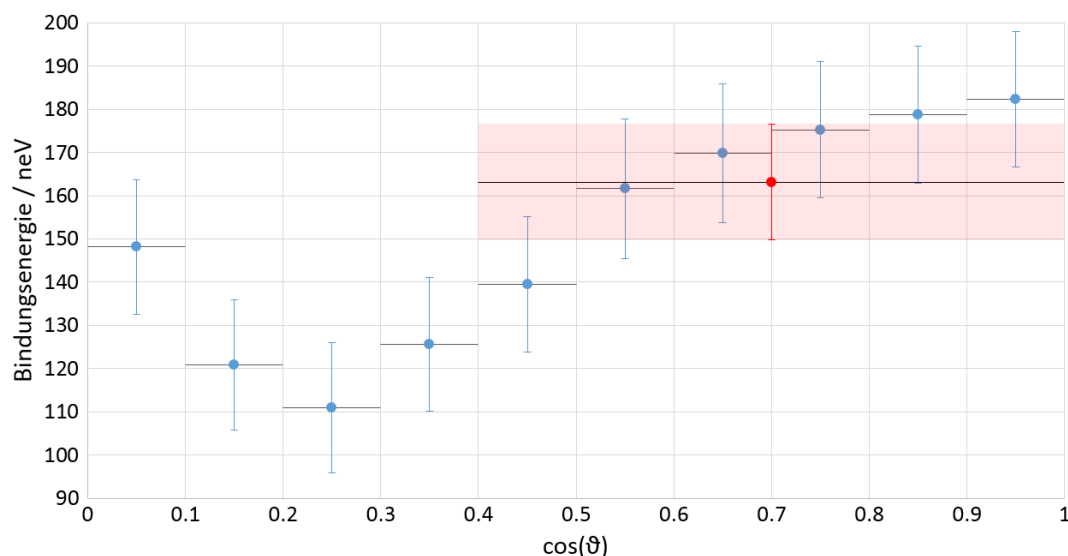


Abb. 7.31.: Bindungsenergien von He_2 in verschiedenen Raumwinkelbereichen mit $\Delta\cos(\vartheta) = 0,1$ (blau) im Vergleich zum ermittelten Wert für den Gesamtbereich mit $\cos(\vartheta) > 0,4$ (rot).

zierte Nachweiseffizienz beschreibt und anschließend den Gewichtungsfaktor bestimmt, ist mit einem relativen Fehler von 5,5 % behaftet. Variation des Gewichtungsfaktors um $\pm 5,5$ % resultiert in einem Fehler der berechneten Bindungsenergie von ± 1 neV. Die Subtraktion des Untergrundes ist nur unter der Annahme gerechtfertigt, dass er konstant entlang des gesamten Strahlpfades ist. Er wird bei einem Abstand von 15 mm zum Detektormittelpunkt ermittelt, und diese Größe dann im Zentrum des Detektors subtrahiert. Der Vergleich verschiedener Bereiche entlang des Strahlpfades zeigt, dass dieser Untergrund tatsächlich auf einem Niveau von < 5 % konstant ist. Aus der Variation der Untergrundsubtraktion um ± 5 % folgt ein Fehler der Bindungsenergie von $\pm 0,4$ neV. Unter Berücksichtigung aller Einzelfehler kann die Bindungsenergie des Heliumdimers mit einer Genauigkeit von $151,9 \pm 13,3$ neV angegeben werden. Zusätzlich soll auch hier die Fluktuation der ermittelten Bindungsenergien in Teilbereichen des Raumwinkels betrachtet werden, um einen zusätzlichen Blickwinkel auf Messwert und Fehler zu erhalten. Abbildung 7.31 zeigt, dass eine Übereinstimmung aller Teilbereiche erst für einen Fehler von $\pm 23,6$ neV gegeben ist.

Die Bindungsenergie wurde durch eine exponentielle Kurvenanpassung der gemessenen Abstandsverteilung zwischen 50 und 300 a.u. ermittelt. Abbildung 7.32 zeigt die Abhängigkeit des Ergebnisses von den gewählten Grenzen der Kurvenanpassung. Dabei ist eine Variation des Ergebnisses um $+8,1/-7,5$ neV zu beobachten.

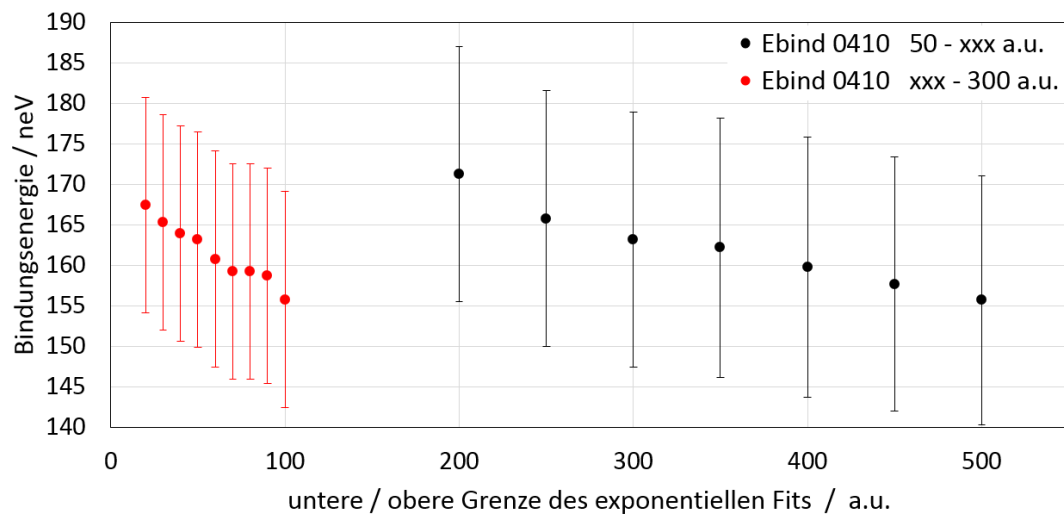


Abb. 7.32.: Abhängigkeit der ermittelten He_2 -Bindungsenergie vom Intervall der exponentiellen Kurvenanpassung. Bei Variation der oberen Grenze bleibt die untere Grenze fest bei 50 a.u., bei Variation der unteren Grenze bleibt die obere Grenze fest bei 300 a.u..

8. Diskussion

Wie passen die erzielten neuen Ergebnisse zur Bindungsenergie des Heliumdimers zu den bisherigen Forschungsergebnissen? Zur Einordnung werden die aktuellen Messwerte nachfolgend sowohl untereinander als auch mit sämtlichen vorangegangenen Messungen und theoretischen Modellen verglichen. Anschließend werden Möglichkeiten betrachtet, die Messgenauigkeit noch weiter zu erhöhen.

8.1. Einordnung der Messergebnisse

Die Messungen am Ti:Sa-Laser ergaben Bindungsenergien von $149,8 \pm 4,4$ neV und $144,5 \pm 4,3$ neV und stimmen im Rahmen ihrer Fehler mit der Wert der Messung am FEL von $151,9 \pm 13,3$ neV überein. Hierbei fällt auf, dass die FEL-Messung einen weitaus größeren Fehler trägt, als die Messungen am Ti:Sa-Laser. Dies ist auf die Kalibrierungsmethode der Aufbruchenergien in der Ebene senkrecht zur E-Feld-Richtung zurückzuführen, die am FEL mit Hilfe der Dissoziation von N_2O erfolgte. Sie hat den Vorteil eine Energie zu liefern, die mit dem KER aufbrechender Heliumdimere vergleichbar ist. Sie wurde bei den Ti:Sa-Messungen nicht durchgeführt, doch möglicherweise hätte sich auch hier eine größere Abweichung offenbart. Die Kalibrierung dieser Raumrichtungen mit Hilfe eines aufbrechenden Moleküls bei höherem KER scheint keine ausreichende Indikation für die Güte bei kleinem KER zu liefern. So ist die Isotropie der Ne_2 -Kalibrierung am FEL mit einer relativen Abweichung von 0,16 % vergleichbar mit der Ar_2 -Kalibrierung am Ti:Sa-Laser mit einer relativen Abweichung von 0,86 %.

Die Messung, die mit der Vorgängerversion der hier vorgestellten Messapparatur durchgeführt wurde, lieferte eine Bindungsenergie von $147 + 20,4/-14,4$ neV[55] und liegt damit in guter Übereinstimmung mit den aktuellen Werten (siehe Abschnitt 4.2.1). Dagegen liegen frühere experimentelle Ergebnisse von Grisenti et al.[12] mit $95 + 26/-17$ neV und Luo et al.[99] mit 56-112 neV um 4 bzw. 5 σ außerhalb der Fehlergrenzen der FEL-

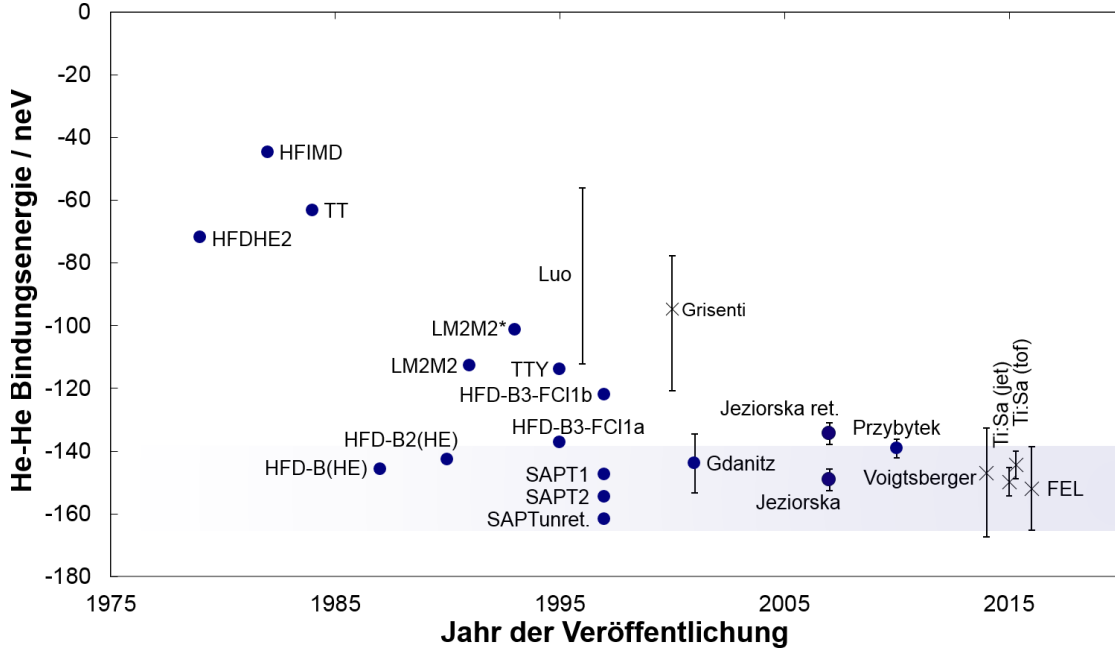


Abb. 8.1.: Übersicht über experimentell bestimmte Werte für die Bindungsenergie des Heliumdimers ($\times$) (Luo[99], Grisenti[12], Voigtsberger[55] und aktuelle Werte) und Ergebnisse unterschiedlicher theoretischer Modelle ($\bullet$) (HFDHE2[100], HFIMD[101], TT[102], HFD-B(HE)[103], HFD-B2[104], LM2M2[19], LM2M2*[21], TTY[23], HFD-B3-FCI1a[105], HFD-B3-FCI1b, SAPT[106, 107], Gdanitz[108], Jeziorska, Jeziorska ret.[109] und Przybytek[22]).

Messung¹. Abbildung 8.1 gibt eine Übersicht über diese Ergebnisse.

Auch die Entwicklung der theoretischen Vorhersagen für den Wert der He₂-Bindungsenergie wird in Abb. 8.1 visualisiert, und kann mit den experimentellen Ergebnissen verglichen werden². Die aktuelle Messung ist vereinbar mit der wohl präzisesten Berechnung von Przybytek et al.[22]. Dagegen stehen sie im Widerspruch zu einigen älteren Modelle, darunter auch dem viel verwendeten TTY-Potential[23] und LM2M2-Potential[19].

Zusätzlich zum extrahierten Wert der Bindungsenergie kann die Form der Wellenfunktion aus Experiment und Theorie verglichen werden. Der Anstieg der Wellenfunktion am inneren Umkehrpunkt ist nach vielen theoretischen Modellen gleich. Abbildung 8.2 zeigt, dass die aktuellen Messungen in sehr guter Übereinstimmung mit den Modellen

¹Grisenti et al. maßen den mittleren internuklearen Abstand $\langle R \rangle$ und bestimmten daraus die Bindungsenergie mit einem vereinfachten Modell (siehe Abschnitt 3). Cencek et al. wählten 2012 einen exakteren Ansatz, indem sie ihr theoretisches Modell-Potential so modifizierten, dass es einen mittleren internuklearen Abstand von 52 Å lieferte. Aus dem modifizierten Potential folgte eine Bindungsenergie von $112 \pm 22/-16$ neV[24].

²Die Werte aus Abb. 8.1 können im Anhang in Tabelle A.2 eingesehen werden.

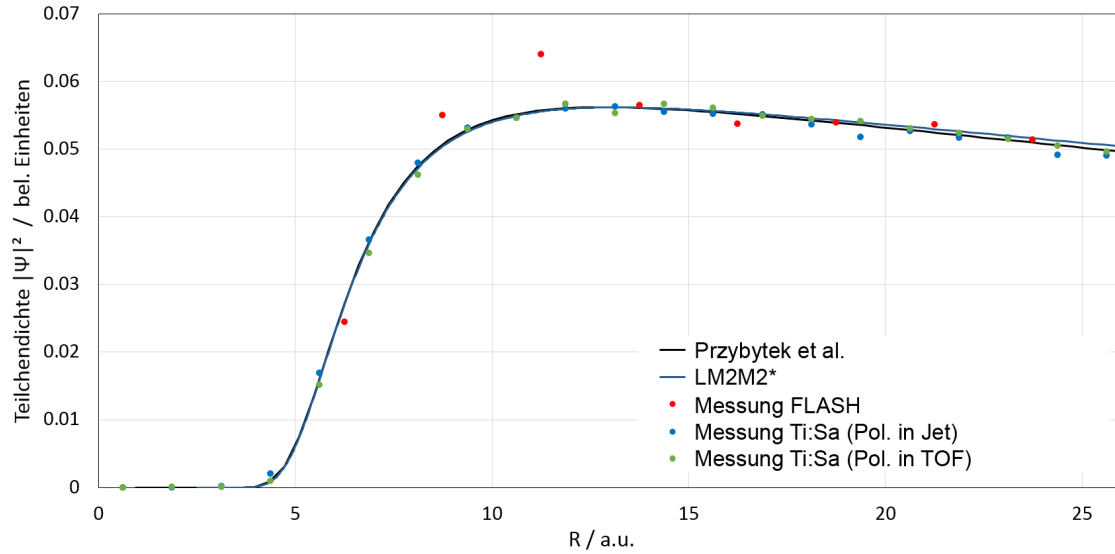


Abb. 8.2.: Gemessene Verteilungen der He_2 -Teilchendichte im Vergleich mit Ergebnissen theoretischer Modelle von Przybytek et al.[22] und Luo et al. (LM2M2*)[21] im Bereich klassisch erlaubter Abstände. Die Integrale aller Verteilungen sind in diesem Bereich auf 1 normiert.

liegen. Die einzige deutliche Abweichung besteht zu den Daten der FEL-Messung, die um 12 a.u. oberhalb aller anderen Ergebnisse liegt. Grund dafür ist der Ablauf weiterer Zerfallsprozesse, die durch die Photonenenergie von 67 eV ermöglicht wurden. Sie werden in Abschnitt 10.2 diskutiert.

Die unterschiedlichen Bindungsenergien aus Theorie und Experiment deuten bereits darauf hin, dass sich die Wellenfunktionen im Tunnelbereich voneinander unterscheiden. Die Bindungsenergie beschreibt die Steigung der Wellenfunktion in exponentieller Darstellung. Entsprechend ist in Abb. 8.3 zu sehen, dass die Wellenfunktionen unterschiedlich steil abfallen. Auch hier ist eine klare Abweichung zu Modell LM2M2* und die Übereinstimmung mit dem Modell von Przybytek et al. erkennbar. Das LM2M2* Modell bezieht ausschließlich Retardierungseffekte ein, während Przybytek et al. zusätzlich die Auswirkungen von adiabatischen und relativistischen Korrekturen, sowie die Quantenelektrodynamik in ihren Rechnungen berücksichtigen. Abbildung 8.4 zeigt die Änderung der berechneten Bindungsenergie bei Hinzufügen der unterschiedlichen Korrekturen. Die Retardierungseffekte reduzieren die anziehende Kraft wodurch das nichtrelativistische $1/R^6$ -Potential für große Abstände effektiv zu einem $1/R^7$ -Potential wird[21]. Dies senkt die Bindungsenergie. Die in dieser Arbeit gemessenen Bindungsenergien zeigen, dass die Berücksichtigung von Retardierungseffekten allein nicht zur Beschreibung der Realität genügt.

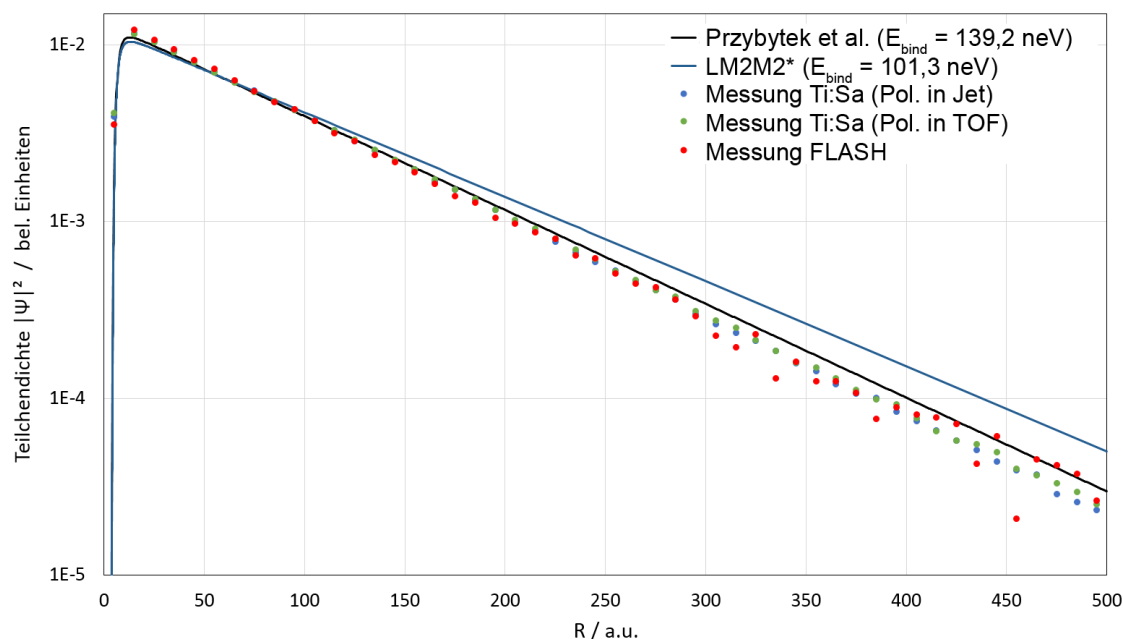


Abb. 8.3.: Gemessene Verteilungen der He_2 -Teilchendichte im Vergleich mit Ergebnissen theoretischer Modelle von Przybytek et al.[22] und Luo et al. (LM2M2*)[21] in exponentieller Darstellung. Die Integrale aller Verteilungen sind auf 1 normiert.

8.2. Möglichkeiten zur Fehlerreduktion

Die Energieauflösung des COLTRIMS-Reaktionsmikroskopes kann erhöht werden. Sie wurde entsprechend den Ausführungen in Abschnitt 6.1 daraufhin optimiert, den Aufbruch von Heliumdimeren mit Energien von bis zu 6,6 eV abzubilden. Für die Extraktion der Bindungsenergie wurde jedoch nur der Bereich intermolekularer Abstände R von größer als 50 a.u. verwendet, also nur Aufbrüche mit einem KER kleiner als 0,54 eV. Solch geringe Energien können bereits mit einem homogenen E-Feld von unter 0,5 V/cm raumwinkelunabhängig abgebildet werden. Das erhöht die zeitliche und räumliche Auflösung des Detektors, und damit letztlich auch die Energieauflösung.

Umgesetzt werden kann eine Messung bei erhöhter Auflösung allerdings nur, wenn eine Möglichkeit zur Kalibrierung des benötigten geringen Spektrometerfeldes verfügbar ist. Die Kalibrierung in E-Feld-Richtung kann weiterhin mit dem Aufbruch von N_2 oder O_2 durchgeführt werden. Einzige Voraussetzung ist, dass die Fragmente, deren Startimpulsvektor vom Detektor weg zeigt, noch innerhalb des Spektrometers umgedreht werden können. Für die Kalibrierung der Energien senkrecht zur E-Feld-Richtung wird ein Kanal benötigt der isotrope Aufbruchsennergien unterhalb von 0,54 eV erzeugt.

Der dissoziative Aufbruch von N_2O erfüllt dieses Kriterium. Seine energetische Breite

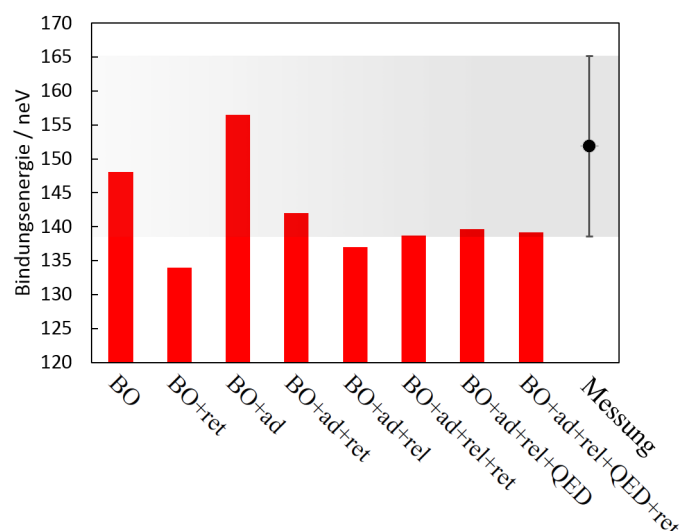


Abb. 8.4.: Vergleich der He_2 -Bindungsenergie aus der FEL-Messung mit Modellrechnungen unter Einbeziehung unterschiedlich vieler, über die Born-Oppenheimer-Näherung (BO) hinausgehender Effekte: Retardierungseffekte (ret), adiabatische (ad) und relativistische (rel) Korrektur und Quantenelektrodynamik (QED) (Werte aus [22]).

limitierte jedoch die erreichbare Genauigkeit der Kalibrierung für die He_2 -Messung an FLASH. Er verursachte den größten Anteil des angegebenen Fehlers. Wünschenswert wäre stattdessen ein isotroper Prozess, der eine schärfer definierte Zerfallsenergie unter 1 eV liefert. Ein solcher ist uns nicht bekannt.

Zuletzt kann noch betrachtet werden, wie der statistische Fehler der Messung zu reduzieren ist, beziehungsweise in kürzerer Zeit mehr Ereignisse gemessen werden können. In der aktuellen Messung spielt der statistische Fehler mit einer Größe von $\pm 0,6$ bis $\pm 1,7$ nur eine untergeordnete Rolle. Aber erhöhte Detektionsraten beschleunigen zukünftige Messungen und eröffnen die Messbarkeit unwahrscheinlicher Prozesse. Zudem führen verkürzte Messzyklen zu verbesserter Optimierbarkeit einer Messung.

Die erreichbare Detektionsrate wird von mehreren Faktoren bestimmt, nämlich der Ionisationsrate und der Detektionswahrscheinlichkeit. Die Ionisationsrate steigt, wenn Laserintensität und Targetdichte erhöht werden. Die Targetdichte steigt, je näher die Reaktionszone an der Düse liegt. Dieser Abstand wurde entsprechend den Erläuterungen in Abschnitt 5.2 unter Berücksichtigung einer ausreichenden Auflösung der Beugungsordnungen reduziert. Für die Auflösung ist der Abstand zwischen Gitter und Reaktionszone maßgeblich, während der Abstand zwischen Düse und Gitter groß genug sein muss, um eine kohärente Beleuchtung des Gitters zu gewährleisten. Wann die Kohärenzbedingung

nicht mehr erfüllt ist wurde aber nie getestet. Könnte dieser Abstand von aktuell 40 cm auf beispielsweise 14 cm reduziert werden, verdoppelt das die Targetdichte des gebeugten Strahls in der Reaktionszone. Der Abstand zwischen Gitter und Reaktionszone könnte reduziert werden, wenn ein Transmissionsgitter mit geringerer Gitterkonstante bei gleichbleibender offener Fläche gefunden werden kann. Dies würde eine gleichbleibende Auflösung der Beugungsordnungen bei geringerem Abstand und damit höherer Targetdichte ermöglichen. Dies könnte nicht nur weitere Untersuchungen des Heliumdimers, sondern sämtliche Messungen mit Benutzung des Beugungsgitters verbessern.

Der zweite Faktor, die Detektionswahrscheinlichkeit, ist gegeben durch Verluste im Spektrometer und die Nachweiseffizienz des MCPs. Im durchgeführten Experiment wurde ein Gitter mit einer Transmission von 80 % und ein MCP mit einer Nachweiseffizienz von etwa 55 % eingesetzt. Durch den Einsatz von MCPs mit optimierter Vorderseitengeometrie (trichterförmige Kanaleingänge) können Nachweiseffizienzen von 85 % erreicht werden, wie aktuelle Tests zeigen [110]. Die Detektionswahrscheinlichkeit von Zweiteilchenkoinzidenzen wird dadurch verdoppelt, die von Dreiteilchenkoinzidenzen sogar verdreifacht.

9. Ergebnisse zu größeren Clustern

Die Messkampagne am Freie-Elektronen-Laser in Hamburg wurde genutzt, um Antworten auf eine weitere interessante Frage zu finden: Wie verändert sich der interatomare Coulomb-Zerfall (ICD¹) bei steigender Clustergröße. Im Unterschied zu bisherigen Untersuchungen zu dieser Fragestellung [49, 111, 112] bestand hier erstmals die Möglichkeit der direkten Kontrolle der Clustergröße mit Hilfe von Materiewellenbeugung. Die resultierenden geringen Targetdichten konnten durch die hohe Ionisationswahrscheinlichkeit des FEL wett gemacht werden. Warum das interessant ist und welche Erkenntnisse gewonnen werden konnten wird nachfolgend beschrieben.

9.1. Interatomarer Coulomb-Zerfall

Der interatomare Coulomb-Zerfall ist ein Zerfallsprozess eines mehratomigen Systems dessen Ablauf dem Auger-Zerfall ähnelt. Er kann stattfinden, wenn das System eine Vakanz in einer inneren Schale aufweist. Nun kann ein Elektron einer äußeren Schale in den energetisch günstigeren Zustand der inneren Schale übergehen. Im Falle des Auger-Zerfalls genügt die freiwerdende Energie dabei, um ein weiteres Elektron des gleichen Atoms ins Kontinuum zu heben.

Befindet sich das betrachtete Atom in einem Verbund mehrerer Atome, so kann die freiwerdende Energie (in Form eines virtuellen Photons) auch auf ein Nachbaratom übertragen werden, und ein dort befindliches schwach gebundenes Elektron ins Kontinuum heben. Dieser Zerfallskanal wird ICD genannt. Er bietet eine Zerfallsmöglichkeit wenn der Auger-Zerfall unmöglich ist, entweder da die freiwerdende Energie geringer als die Bindungsenergie aller weiteren Elektronen ist, oder es keine weiteren Elektronen im gleichen Atom gibt, wie im Fall von Helium. In Konkurrenz zu ICD kann die freiwerdende Energie auch in Form eines Photons emittiert werden. Dieser strahlende Zerfall ist mit einer Halbwertszeit im Bereich von 10^{-9} s jedoch um Größenordnungen langsamer² als ICD, der im Neondimer beispielsweise auf einer Zeitskala von 10^{-12} s stattfindet [92]. In

¹Abk. für, englisch, Interatomic Coulombic Decay

²Der $2p_{1/2}$ Zustand in He^+ hat eine Lebensdauer τ_{2p} von $(0,9992 \pm 0,0026) \cdot 10^{-10}$ s [113].

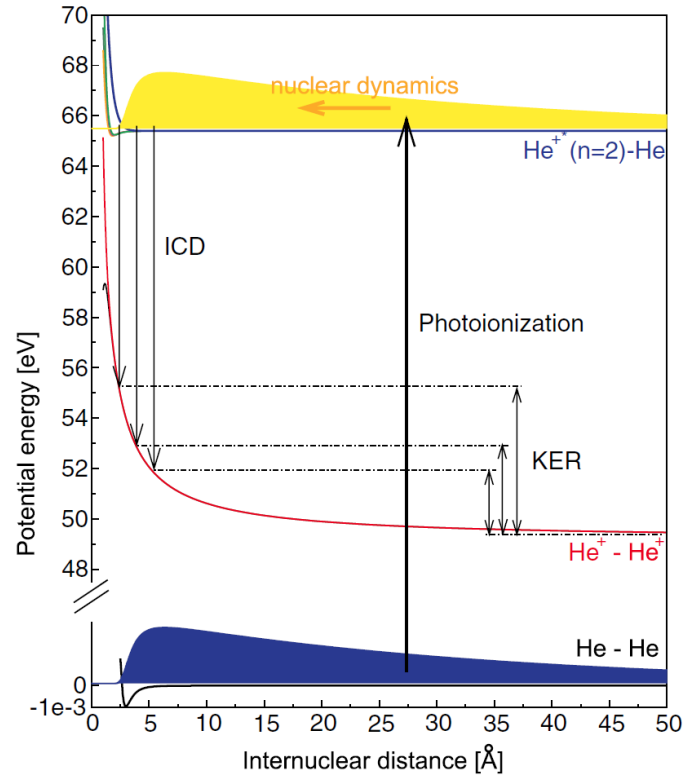


Abb. 9.1.: Potentiale der beteiligten Zustände beim Ablauf des ICD-Prozess in He_2 aus [49]. Nach der Anregung zu $\text{He}_2^{*+}(n=2)$ adaptieren sich die Kerne in ihrem neuen Potential, bis schließlich ICD stattfindet und die Kerne auf eine repulsive Potentialkurve gelangen.

diesem Fall ist ICD der dominante Prozess.

Um in einem Heliumcluster den ICD-Zerfallskanal zu eröffnen, muss zunächst ein Atom des Clusters ionisiert und dessen zweites Elektron in einen angeregten Zustand versetzt werden. Die 1s-Ionisationsschwelle I_{1s} von Helium beträgt 24,59 eV. Um das zweite Elektron von 1s in den 2p Zustand zu heben, wird eine Anregungsenergie $\Delta E_{1s>2p}$ von $3/4 \cdot 54,41 \text{ eV} = 40,81 \text{ eV}$ benötigt. Es wird also ein Photon mit einer Energie E_{ICD} von mindestens $I_{1s} + \Delta E_{1s>2p} = 65,4 \text{ eV}$ benötigt.

Fällt das in den 2p-Zustand angeregte Elektron zurück in den 1s-Zustand, wird die Anregungsenergie $\Delta E_{1s>2p}$ wieder frei und genügt, um ein 1s-Elektron eines benachbarten Heliumatoms des Clusters zu ionisieren. Die überschüssige Energie von $40,81 \text{ eV} - 24,59 \text{ eV} = 16,22 \text{ eV}$ wird auf die kinetische Energie des ICD-Elektrons und der beiden Ionen aufgeteilt.

Abbildung 9.1 skizziert den gesamten Prozess, von der Anregung des Ausgangssystems

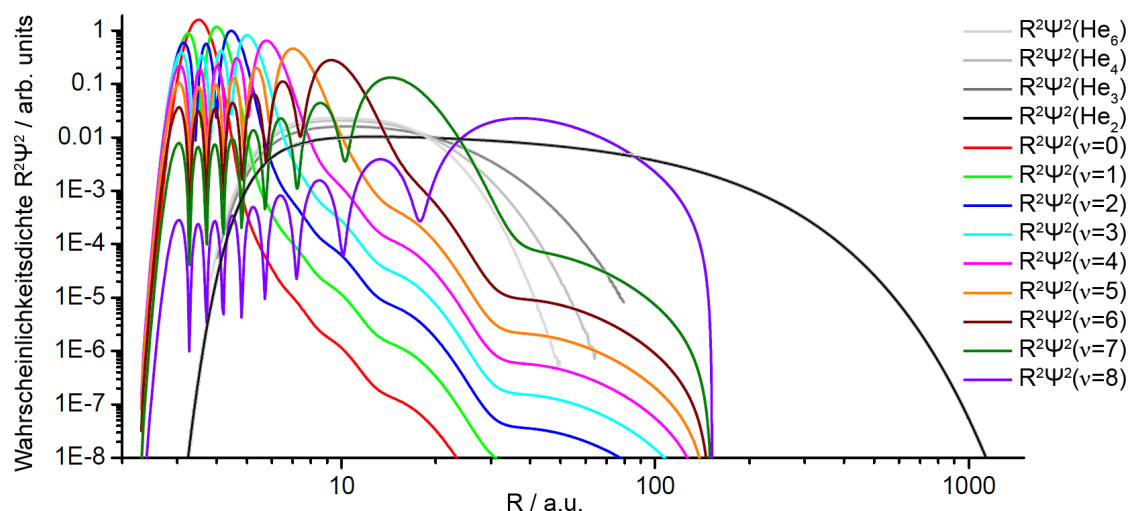


Abb. 9.2.: Berechnete Wahrscheinlichkeitsdichte der Vibrationszustände in $\text{He}_2^{*+}: {}^2\Pi_g: 2p_{x,y}$ (bunt) neben den Grundzustandswellenfunktionen von He_2 , He_3 , He_4 und He_6 (Graustufen) von Przybytek et al.[22] und D. Blume[114]. Das Integral der Funktionen ist jeweils auf 1 normiert. (verändert nach [46])

bis zur Coulomb-Explosion der geladenen Teilchen im Endkanal am Beispiel von He_2 . $\text{He}_2^{*+}(n=2)$ besteht aus vier 2p-Zuständen ($1s \pm 2p_z$, $1s \pm 2p_{x,y}$) und zudem zwei schwächer gebundenen 2s-Zuständen. Die Potentiale dieser Zustände sind im Gegensatz dem He_2 -Potential tief genug, um bis zu acht Vibrationsanregungen zu erlauben[115]. Die Übergangswahrscheinlichkeit von He_2 in die Zustände von He_2^{*+} wird bestimmt durch die Franck-Condon-Faktoren. Da diese vom Überlapp von Ausgangs- und Endwellenfunktionen abhängen, werden hauptsächlich die höchsten Vibrationszustände besetzt. Nur sie haben signifikante Beiträge bei großen internuklearen Abständen, die von der Ausgangswellenfunktion des Heliumdimers vorgegeben werden. Für niedrigere Vibrationszustände werden die Übergangswahrscheinlichkeiten schnell um Größenordnungen geringer. Abbildung 9.2 veranschaulicht den Überlapp der Wellenfunktionen am Beispiel eines der 2p-Zustände.

Die Wahrscheinlichkeit für den nachfolgend ablaufenden ICD-Prozess zeigt eine Abhängigkeit vom Kernabstand die näherungsweise mit $1/R^6$ beschrieben werden kann. Damit läuft der ICD wesentlich häufiger im Bereich kleiner Kernabstände ab.

Der ICD hinterlässt zwei einfach geladene Heliumionen, die sich dann auf einer repulsiven Potentialkurve befinden. In der nachfolgenden Coulomb-Explosion wird ihre potentielle in kinetische Energie umgewandelt. Entsprechend der in Abschnitt 7.1.2 erläuterten *Reflexions-Näherung* kann aus dem KER beider Ionen auf den Kernabstand zum Zeitpunkt des ICD geschlossen werden.

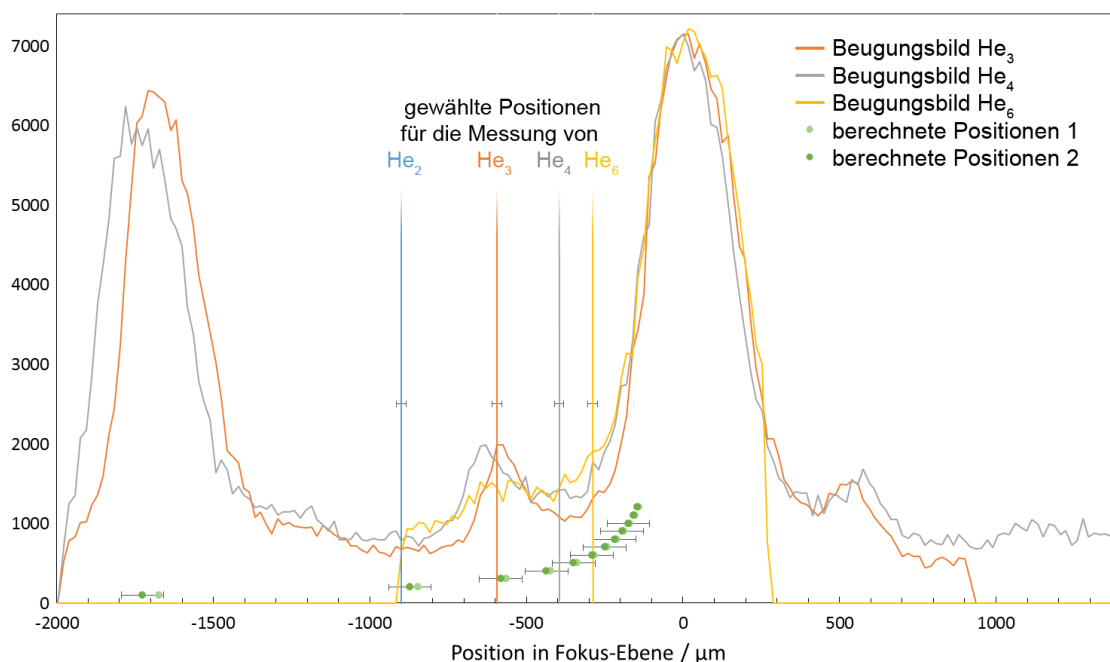


Abb. 9.3.: Beugungsbildaufnahmen zur Wahl der Messposition. Die senkrechten Linien markieren die gewählten Positionen für die vier Messungen, ihr Fehlerbalken zeigt die Unsicherheit durch Fokusgröße und Positionierungsgenauigkeit der Schrittmotoren. Die grünen Punkte zeigen die berechneten Positionen der ersten Beugungsordnung der unterschiedlichen Clustergrößen und deren Halbwertsbreite.

Die Effizienz und damit die Zerfallszeiten des ICD sind theoretischen Modellen zufolge abhängig von der Anzahl der benachbarten Teilchen im betrachteten System und deren interatomaren Abständen zum angeregten Teilchen[116]. Demnach besteht die Annahme, dass mit steigender Anzahl an nächsten Nachbarn die Geschwindigkeit des ICD zunimmt[117]. Nachfolgend wird die Untersuchung dieser Abhängigkeit an verschiedenen Heliumclustern definierter Größe präsentiert. Ergebnisse zu diesem Datensatz wurden auch im Rahmen einer vom Autor mitbetreuten Bachelorarbeit von A. Hellfritsch[118] dargelegt.

9.2. Auswahl der Clustergröße

Um den Verlauf von ICD in Clustern verschiedener Größe zu vergleichen, wurden mehrere Messungen mit jeweils unterschiedlicher Clustergröße vorgenommen. Durch Positionierung des Beugungsgitters kann gewählt werden, welche Größe an Heliumclustern in den FEL-Fokus gelangt (siehe Abschnitt 5.2).

Clustergröße	gewählte Position	berechnete Position	T_0 / K	p_0 / bar
He ₂	-255	-240	8	0,45
He ₃	-170	-162	8	1,2
He ₄	-115	-126	8	1,6
He ₆	-85	-86	8	2,1

Tabelle 9.1.: Gasstrahl- und Beugungsgitter-Einstellungen der ICD Messungen. Die Position ist in Schrittmotor-Schritten relativ zur nullten Beugungsordnung angegeben.

Abbildung 9.3 zeigt mehrere Beugungsbildaufnahmen, die angefertigt wurden, um die Position der ersten Beugungsordnung der gewünschten Clustergröße zu finden. Der gewünschte Peak war entweder direkt zu sehen, oder konnte aus den stets sichtbaren Positionen von nullter und erster Ordnung der Heliummonomere berechnet werden. Die erste Beugungsordnung von Clustern der Größe N sind nach Formel 3.5 nur $1/N$ mal so weit von der nullten Ordnung entfernt wie die erste Ordnung der Monomere. Diese Positionen sind durch die grünen Punkte in Abb. 9.3 gekennzeichnet.

Die Messungen wurden nun bei den in Abb. 9.3 durch senkrechte Linien markierten Positionen durchgeführt, womit Cluster der Größe 2, 3, 4 und 6 selektiert wurden. Mit dem Ziel die Ausbeute der so gewählten Clustergrößen im Gasstrahl zu erhöhen, wurden der Druck bei jeder Messung angepasst. Tabelle 9.1 listet die gewählten Einstellungen auf. Bei einem Vordruck p_0 von 1,2 bis 1,6 bar in der Anteil an Heliumtrimeren so groß, dass ihre erste Beugungsordnung deutlich im Beugungsbild sichtbar wird (siehe Abb. 9.3). Die Abstände zwischen den ersten Beugungsordnungen benachbarter Clustergrößen werden mit steigender Clustergröße nach Formel 5.2 zunehmend geringer. Wird die Form und Breite des Trimer-Maximums auch für die Beugungsmaxima größerer Cluster angenommen, so können die Maxima ab einer Clustergröße von $N = 4$ nicht mehr klar voneinander getrennt werden. An der Messposition für Heliumtetramere He₄ können also auch Heliumpentamere He₅ vorliegen, und an der gewählten Position für Heliumhexamere He₆ können He₅ und He₇ auftreten. Die ersten Ordnungen von He₂ und He₃ sind jeweils wohl separiert von anderen Clustergrößen.

Parameter	Wert
Beschleunigungsstrecke s	39,04 mm
E-Feld in s	17,2 V/cm
Nachbeschleunigung s_b	8 mm
E-Feld in s_b	2000 V/cm
Ortsversatz x_0	-1,23 mm
Ortsversatz y_0	-3,62 mm
Korrektur des Zeitnullpunktes t_0	286,5 ns
Streckungsfaktor c	0,96

Tabelle 9.2.: Kalibrierte Spektrometer- und Detektorparameter bei ICD-Messung an FLASH.

9.3. Experimentelle Ergebnisse zu ICD

Für die Messung wurden Photonen mit einer Energie von 67 eV (18,5 nm) gewählt und damit der ICD in Heliumclustern ermöglicht³. Die entstandenen Ionen wurde von einem Spektrometerfeld von 17,2 V/cm auf den Detektor geleitet, und somit der volle Raumwinkel abgebildet. Die Kalibrierung von Feld und Detektor konnte mit den Daten der Messung selbst vorgenommen werden. Aus vorangegangenen Messungen ist die Position des dominanten Maximums der KER-Verteilung bei 8,5 eV bekannt und kann zur Energiekalibrierung genutzt werden. Die kalibrierten Parameter des Spektrometers sind in Tabelle 9.2 zusammengestellt.

Die KER-Verteilung ist gleichzeitig die maßgebliche Messgröße. Aus ihr lassen sich Rückschlüsse auf die involvierten Vibrationswellenfunktionen und die Abstandsabhängigkeit des ICD ziehen. Die KER-Verteilungen der vier Messungen jeweils unterschiedlicher Clustergröße sind in Abb. 9.4 vergleichend dargestellt. Die Verteilungen wurden auf den Bereich zwischen 5 und 12 eV normiert. Neben dem ICD-Prozess war bei der verwendeten Photonenintensität auch eine zweifache Photoionisation der Targets möglich. Sie überlagert die gemessenen ICD-Ereignisse unterhalb einer Energie von 5 eV.

Freiwerdende kinetische Energien von mehr als 5 eV sind auf geringere Kernabstände zurückzuführen, als im Grundzustand kleiner Heliumcluster überhaupt vorkommen. Sie weisen auf angeregte Zwischenzustände hin, deren Potentiale geringere Kernabstände zulassen. Aufgrund der $1/R^6$ -Abhängigkeit des ICD werden diese Abstände am häufigsten gemessen.

³Diese Energie ermöglicht nur eine Anregung in den $\text{He}_2^+(n=2)$ -Zustand. Für $(n=3,4,\dots)$ wären mindestens $24,59 + (54,42 - 13,6 \cdot 4/n^2) = 72,96$ eV nötig. Neben der Ionisation mit Anregung ist auch eine Ionisation ohne Anregung möglich. Bei 67 eV ist eine Ionisation ohne Anregung mit einem Verhältnis von 10:1 begünstigt[119].

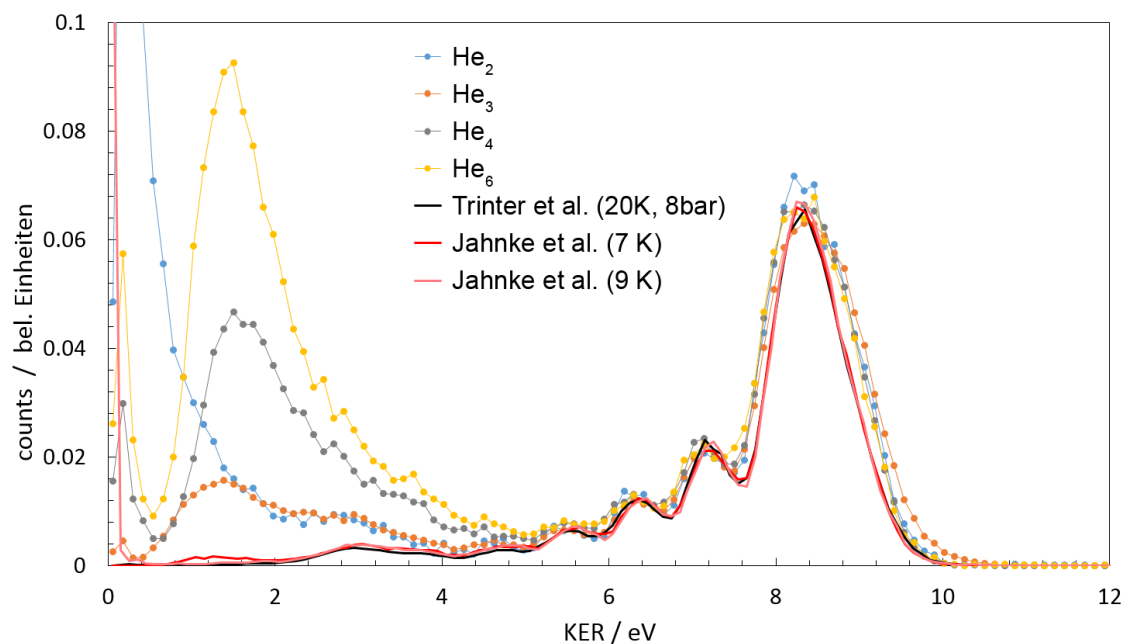


Abb. 9.4.: Vergleich der KER-Verteilungen nach Ablauf des ICD in Heliumclustern der Größe $N = 2, 3, 4$ und 6 neben Messungen mit unbestimmter Clustergröße von Trinter et al.[49] und Jahnke et al.[120].

Die KER-Verteilungen zeigen eine deutliche Oszillationsstruktur oberhalb von 5 eV. Sie ist auf die Vibrationsanregungen in den Zwischenzuständen zurückzuführen, die während der Anregung populiert werden. Obwohl sich hier eine Vielzahl von Vibrationszuständen überlagern, bleibt eine Struktur von Maxima und Minima erhalten. Dies ist empfindlich von der relativen Höhe der Franck-Condon-Faktoren für alle beteiligten Zustände abhängig. Eine theoretische Berechnung an He_2 (Abb. 9.5) zeigt, wie sich die KER-Verteilung aus Einzelbeiträgen der Vibrationswellenfunktionen unterschiedlicher He_2^{*+} -Zustände zusammensetzt.

Umso erstaunlicher ist es, dass die gemessenen KER-Verteilungen für alle Clustergrößen nahezu identisch sind. Eine veränderte Grundzustandswellenfunktion des Clusters sollte zu einem veränderten Überlapp mit den Vibrationswellenfunktionen, und damit zu veränderten Übergangswahrscheinlichkeiten führen. Entscheidend ist hierbei auch, welches Zwischensystem zu betrachten ist. Die Ähnlichkeit der Ergebnisse legt den Schluss nahe, dass sich als Zwischensystem stets He_2^{*+} ausbildet, unabhängig von der Größe des ionisierten Clusters. Somit würde stets der gleiche Satz von Vibrationswellenfunktionen populiert. Natürlich verändern sich die Franck-Condon-Faktoren. Der Effekt dieser Veränderung könnte jedoch gering ausfallen, denn auch wenn zusätzlich zu den Vibrationszuständen $\nu = 8$ und 7 noch $\nu = 6$ und 5 besetzt werden, so unterscheidet sich die

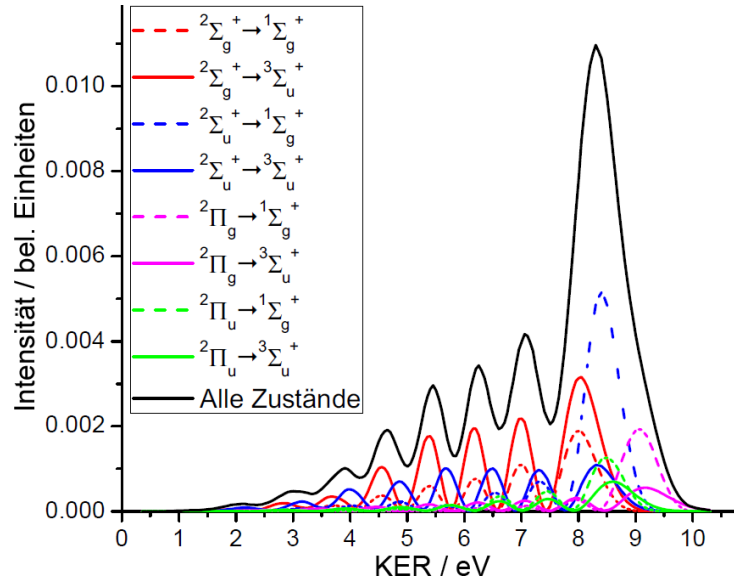


Abb. 9.5.: Berechnete KER-Verteilung nach Ablauf des ICD im $\text{He}_2^+(n=2)$ -System aus [115]. Die Gesamtverteilung (schwarz) setzt sich aus den Beiträgen verschiedener Potentialkurven zusammen. Es wird zwischen zwei möglichen Endzuständen $^1\Sigma_g^+$ und $^3\Sigma_u^+$ im He^+-He^+ -System unterschieden.

Position deren Maxima und Minima im Bereich kleiner Abstände nur geringfügig (siehe Abb. 9.2).

9.4. He-He Abstandsverteilung

Während der Messung des ICD-Prozesses bei einer Photonenenergie von 67 eV war die Laserintensität ausreichend hoch um zwei Atome eines Clusters mit signifikanter Wahrscheinlichkeit einfach zu ionisieren. Werden zwei einfach geladene Heliumionen detektiert können sie also von zwei Prozessen stammen: Zum Einen von dem im vorangegangenen Abschnitt 9.1 beschriebenen ICD-Prozess. Und zum Anderen von der zweifachen Photoionisation des Targets, der in Abschnitt 7.2 ausführlich beschrieben ist.

Die Signatur der zweifachen Photoionisation ist das Maximum unterhalb von 4 eV in den KER-Verteilungen (Abb. 9.4). Analog zur Auswertung des Heliumdimers in Kapitel 7 kann aus der KER-Verteilung Informationen über die vorkommenden interatomaren Abstände im Cluster gewonnen werden. Während im Dimer alle Atome ionisiert wurden, werden in größeren Clustern zwei von N möglichen Atomen ionisiert, und damit einer von $(N-1)!$ vorkommenden Abstände gemessen. Bei zufälliger Wahl der beiden ionisierten Atome bildet die gemessene Verteilung die tatsächlich vorkommende Abstandsverteilung

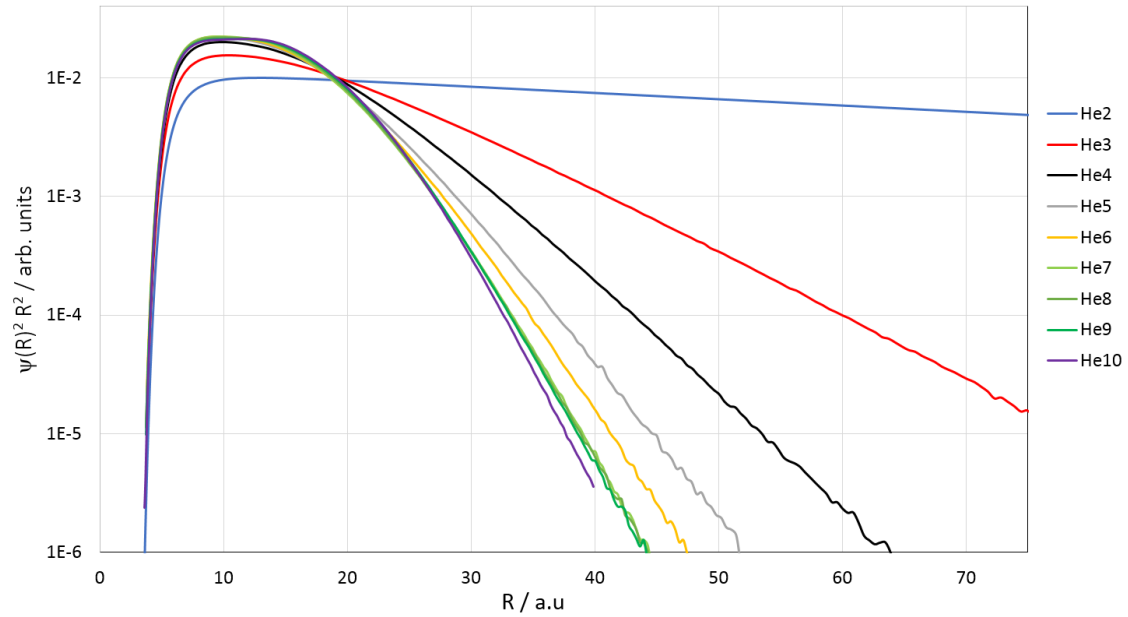


Abb. 9.6.: Berechnete He-He Paar-Abstandsverteilungen für Heliumcluster der Größe $N = 2$ bis 10 nach Przybytek et al.[22] für $N = 2$ und Blume et al.[114] für $N \geq 3$.

ab. Der Datensatz, der zum Vergleich des ICD für unterschiedliche Clustergrößen aufgenommen wurde, enthält also zusätzlich einen Vergleich der He-He Abstandsverteilung für verschiedene Clustergrößen. Sie können nun mit Modellberechnungen verglichen werden.

Die Verteilung der Abstände zwischen zwei Heliumatomen in einem Cluster wird durch die Form des Paarpotentials bestimmt. Unabhängig von der Clustergröße steigt das Potential durch die Kern-Kern-Abstoßung steil an, wodurch der Mindestabstand zwischen zwei Heliumatomen definiert wird. Deshalb ist die Ausdehnung der Wellenfunktion zu kleinen Abständen hin (der innere Umkehrpunkt) für alle Clustergrößen gleich. Die äußere Region der Abstandsverteilung wird vom Eindringen der Wellenfunktion in den klassisch verbotenen Bereich bestimmt. Die Auswirkungen der geringen Potentialdifferenz zwischen gebundenem Zustand und Kontinuum wurde bereits am Beispiel des Dimers dargelegt (Abschnitt 2.2). Mit steigender Clustergröße steigt die Bindungsenergie und damit die Potentialdifferenz. Das reduziert die Eindringtiefe der Wellenfunktion in die Potentialbarriere (Tunnelbereich), ihre Ausdehnung nimmt also immer weiter ab. Abbildung 9.6 zeigt die Paar-Abstandsverteilungen für Heliumcluster der Größe $N = 3$ bis 10, die mit Hilfe der DMC-Methode (diffusive Monte Carlo-Methode) aus den jeweiligen Potentialen berechnet wurden[114]. Zusätzlich ist die Abstandsverteilung im Heliumdimer ($N = 2$) von Przybytek et al.[22] dargestellt.

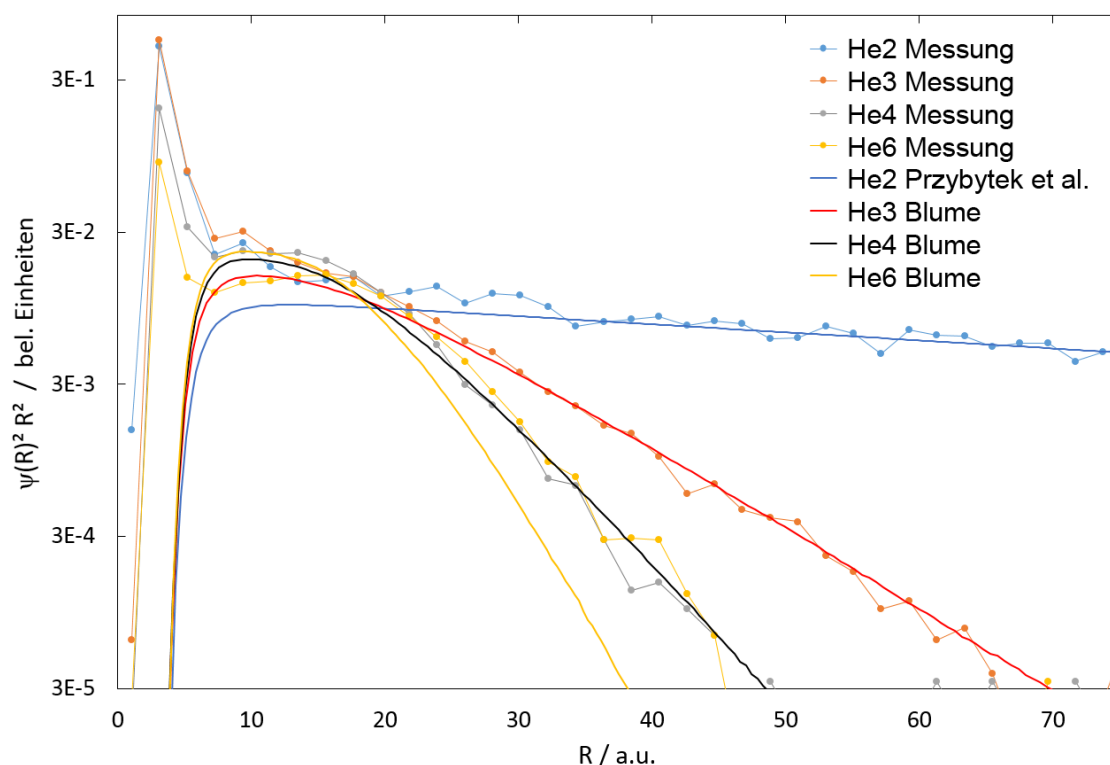


Abb. 9.7.: Vergleich der gemessenen He-He Paar-Abstandsverteilungen von Heliumclustern der Größe $N = 2, 3, 4$ und 6 mit den berechneten Verteilungen aus Abb. 9.6. Die Diskrepanz bei kleinen Abständen ist auf den ICD-Prozess zurückzuführen, der während der Messung ablief.

Um die theoretischen Berechnungen mit den Messdaten vergleichen zu können, muss der dem ICD zuzuordnende Teil der Verteilung subtrahiert werden. ICD geschieht mit hoher Wahrscheinlichkeit bei kleinen internuklearen Abständen. Die unkorrigierten Messdaten in Abb. 9.7 zeigen daher ein zusätzliches Maximum bei $3,1$ a.u.. Zur Korrektur wird eine am Synchrotron durchgeführte Messung des ICD in Heliumclustern herangezogen [121]. Aufgrund der geringen Photonendichte konnte hier keine doppelte Photoionisation stattfinden, alle gemessenen Ereignisse stammen also von ICD. In Abschnitt 9.3 wurde gezeigt, dass der Verlauf des ICD unabhängig von der Größe N des Clusters ist. Eine Messung mit unbekannter Clustergröße kann also zur Korrektur verwendet werden.

Der Vergleich der theoretischen Berechnungen mit den korrigierten Messdaten zeigt eine gute Übereinstimmung für Cluster der Größe $N = 2$ und $N = 3$ (siehe Abb. 9.8). Für Cluster der Größe $N = 4$ zeigt sich eine geringe Abweichung zwischen Messung und Theorie, bei Clustern der Größe $N = 6$ besteht eine deutliche Abweichung.

Ursache dieser Abweichung könnte eine Präferenzierung von großen Abständen durch den Ionisationsprozess sein. Die zwei Photoionisationen finden während eines FEL-Pulses

statt. Dessen Länge von etwa 100 fs ist somit der maximale zeitliche Abstand zwischen erster und zweiter Ionisation. Die Atomkerne des Clusters sind zu träge um sich während dieser Zeit signifikant zu bewegen. Doch Vakanzen⁴ können auf Zeitskalen von einigen 10 fs auf ein Nachbaratom übergehen. Dabei sind die Übergangszeiten abhängig vom Abstand der beteiligten Atome[122, 123]. Eine positive Ladung, die an einem relativ isolierten Atom im Cluster erzeugt wird, bleibt also lange lokalisiert. Wird die Vakanz jedoch an einem Atom mit naheliegenden Nachbarn erzeugt, so wird die Ladung über diese Atomgruppe delokalisiert.

Berechnungen von Sisourat et al. [116] konnten die Delokalisierung der Ladung in He₄ und He₆ innerhalb von 100 fs quantifizieren. Im Heliumtetramer ist die Ladung in 44% der besetzten Zustände delokalisiert. In 70% dieser Fälle besteht eine Delokalisation der Ladung über zwei nächste Nachbarn im Cluster. In He₆ entsprechen bereits 58% der Zustände solchen, in denen die Ladung delokalisiert ist⁵.

Diese Ladungsmigration hat Einfluss auf die Paar-Abstandsverteilung, die gemessen wird, sobald die zweite Photoionisation stattfindet. Um abzuschätzen, wie stark dieser Einfluss ist, wurde eine einfache Simulation durchgeführt.

Ausgangspunkt dazu bilden berechnete Konfigurationen von Atomen in Heliumclustern. Dazu stellte D. Blume [114] Datensätze zu He₄ und He₆ zur Verfügung, mit jeweils 20.000 Sets von Raumkoordinaten aller Atome im Cluster. Nun wird für jedes Atom des Clusters angenommen es sei dasjenige, das zuerst ionisiert wird. Die mögliche Delokalisation der erzeugten Vakanz wird in der Simulation als Übergang der Vakanz zu einem Nachbaratom realisiert. Um die Obergrenze des Effekts der Ladungsmigration auszuloten wird eine hohe Wahrscheinlichkeit von 80 % für den Übergang auf den nächsten Nachbarn angenommen, und eine Wahrscheinlichkeit von 20 % für den Übergang auf den übernächsten Nachbarn. Es werden drei Übergänge während des Laserpulses angenommen. Zu bemerken ist, dass die Art der Delokalisation in der Simulation zufällig, und damit unabhängig von der speziellen Konfiguration der Atome im Cluster, angenommen wurde. Real besteht nicht nur eine Abhängigkeit von den relativen, sondern auch von den absoluten internuklearen Abständen im Cluster.

Die Simulation bewirkt rein stochastisch eine Migration der Ladung in Richtung der Clustermitte. Für Dimer und Trimer zeigt sich hierdurch keine Veränderung. Im Heliumdimer werden alle vorhandenen Atome ionisiert. Im Trimer wählt die Simulation

⁴Eine Vakanz ist ein unbesetztes Orbital, das entsteht nachdem das Elektron ins Kontinuum gehoben wurde.

⁵Die Ladung wird als delokalisiert betrachtet, wenn min. zwei Atome min. 15% der Ladung tragen. Wird die Ladung bereits als delokalisiert betrachtet, wenn nur 10% auf einem zweiten Atom befindlich ist, so steigt der Anteil delokalisierter Zustände auf 62% an.

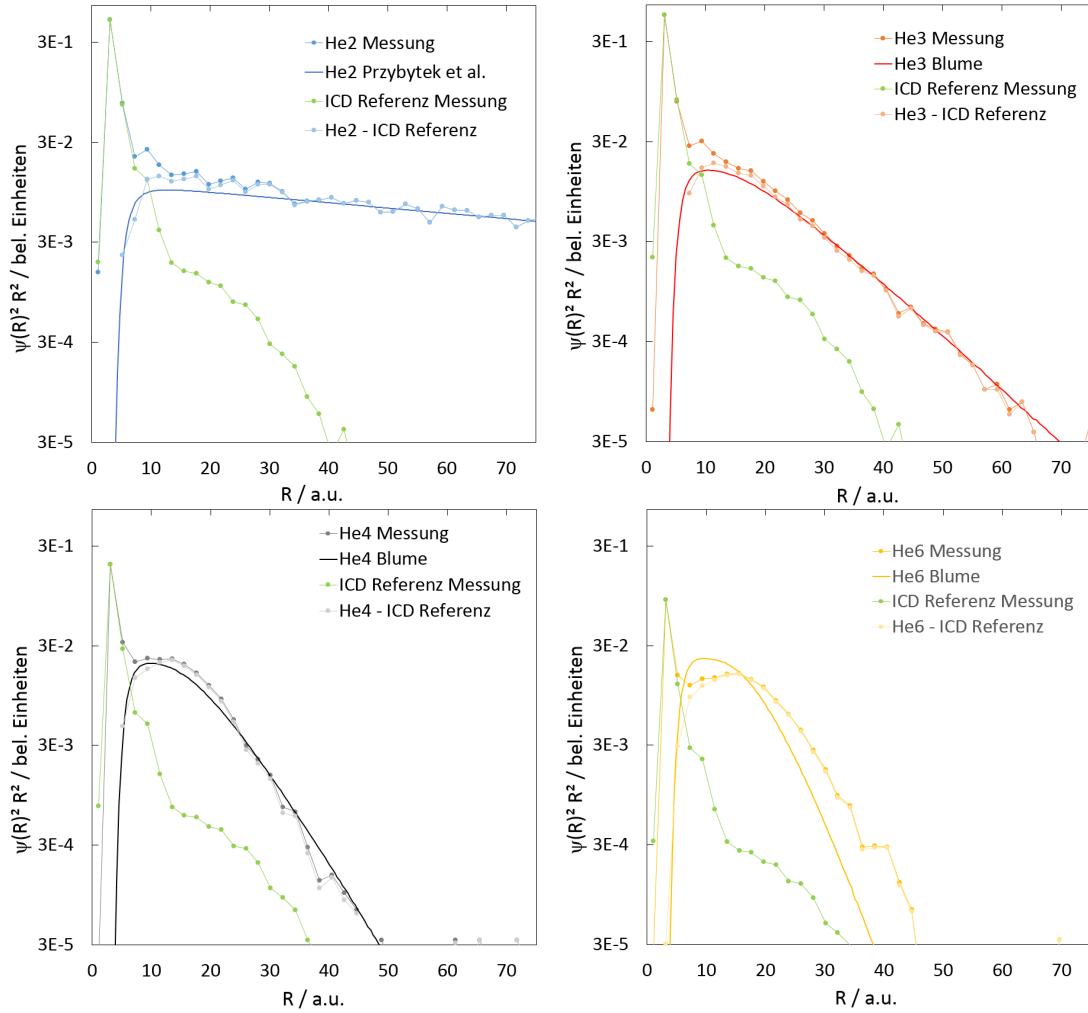


Abb. 9.8.: Vergleich der korrigierten Abstandsverteilungen von He₂, He₃, He₄ und He₆ (helle Farben) mit den entsprechenden theoretischen Berechnungen (punktlose Linien). Die Korrektur besteht in der Subtraktion der Verteilung des ICD in Heliumclustern aus [121] (grün) von den Messdaten.

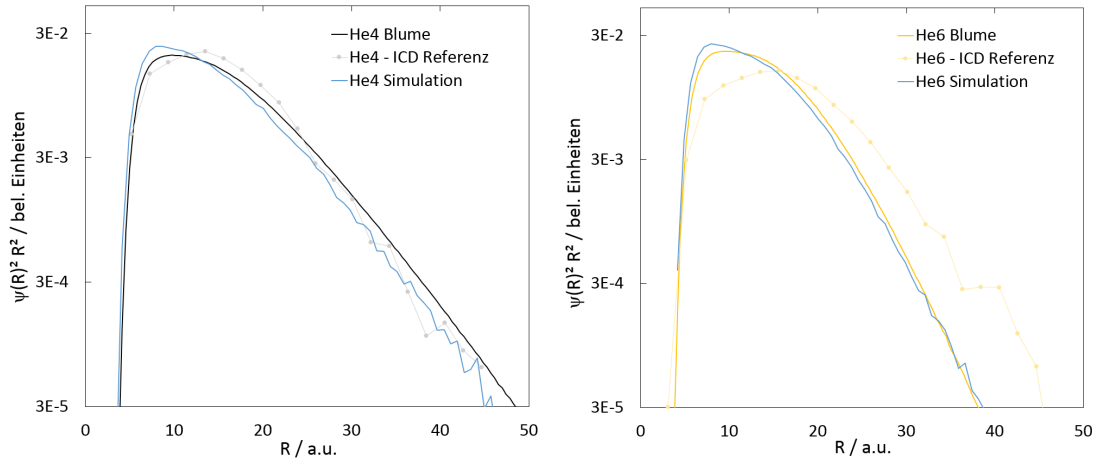


Abb. 9.9.: Vergleich der gemessenen Abstandsverteilungen von He_4 (links) und He_6 (rechts) mit Modelldaten von Blume[114] und modifizierten Modelldaten (blau), für die eine Ladungsmigration innerhalb der Pulsdauer des Lasers von 100 fs berücksichtigt wurde.

immernoch zufällig zwei von drei Atomen aus. Für He_4 und He_6 resultiert aus der Umverteilung der Ladung vor dem zweiten Ionisationschritt eine Erhöhung von kurzen Abständen und entsprechend weniger große Abstände in der Paar-Abstandsverteilung. Dies ist der entgegengesetzte Effekt zu den in der Messung beobachteten Umverteilungen (siehe Abb. 9.9).

10. Zusammenfassung und Ausblick

Die Vibrationswellenfunktion des Heliumdimers konnte vollständig abgebildet werden. Die Messung zeigt eindrucksvoll wie außergewöhnlich dieses größte stabile diatomare System ist. Seine äußerst geringe Potentialtiefe führt zu einer Ausdehnung weit über den klassisch erlaubten Bereich hinaus. Die Ausdehnung in den Tunnelbereich konnte bis hin zu internuklearen Abständen von 500 a.u. gemessen werden. Die Messung bestätigt eine grundlegende Gesetzmäßigkeit unseres Universums: die Wahrscheinlichkeit die Bausteine eines Systems in großem Abstand voneinander zu finden wird niemals null, sondern folgt einem exponentiellen Zerfallsgesetz. Aus dem exponentiellen Abklingen der Wellenfunktion wurde die Bindungsenergie dieses fragilen Systems bestimmt. Dieser neue Wert bestätigt aufwendige theoretische Modellrechnungen, während älteren Experimenten und Berechnungen widersprochen wird.

Doch jedes erreichte Ziel ist letztendlich eine Etappe. Es bildet den Ausgangspunkt für weitere Messungen. Messungen, deren Ziel es ist die Wellenfunktion mit noch geringerer Unsicherheit zu bestimmen¹. Und Messungen die darauf abzielen Ionisationsmechanismen besser zu verstehen und die Dynamik in Heliumclustern zu beleuchten. In Abschnitt 10.3 werden einige Gedanken zu weiteren möglichen Untersuchungen kleinster Heliumcluster angestoßen. Zuvor werden in Abschnitt 10.1 die Fortschritte erläutert, die im Rahmen dieser Arbeit erzielt wurden, sowohl im Hinblick auf die technische Realisierung als auf die experimentellen Ergebnisse. Außerdem werden in Abschnitt 10.2 Fragen behandelt, die während den durchgeführten Untersuchungen aufgeworfen wurden.

10.1. Erzielte Fortschritte

Die Ausgangslage für den experimentellen Aufbau dieser Arbeit bildete die Vakuumkammer mit der Voigtsberger et al. Messungen an Heliumclustern am Ti:Sa-Laser durchführten [55] (siehe Abschnitt 4.2.1). Heliumcluster wurden durch die Expansion von gekühltem Heliumgas durch eine Düse erzeugt und an einem Beugungsgitter in Teilstrahlen

¹Gedanken dazu in Abschnitt 8.2.

unterschiedlicher Clustergröße aufgeteilt. Nach einer zurückgelegten Strecke von einem Meter erreichten die Heliumcluster den Laserfokus. Um zu wählen, welche Clustergröße in den Fokus gelangt konnte das Transmissionsgitter und ein vorangestellter Spalt durch Einstellung von je einer Mikrometerschraube positioniert werden. Um das gesamte Beugungsbild aufzunehmen und anschließend das Beugungsmaximum der gewünschten Clustergröße zu bestimmen, wurden die beiden Mikrometerschrauben von Hand in kleinen Schritten parallel verschoben.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Positionierung von Gitter und Spalt automatisiert. Dazu wurden die manuell bedienten Mikrometerschrauben durch Schrittmotoren mit einer Verfahrensgenauigkeit im μm -Bereich ersetzt. Ihre Steuerung wurde in die Software zur Datenaufnahme integriert. Dies ermöglichte eine direkte Visualisierung des Beugungsbildes und die Verknüpfung der Anzeige mit weiteren Messwerten und Bedingungen an Messwerte. Unter Berücksichtigung der erreichbaren Auflösung der Beugungsbilder wurde der Abstand zwischen Düse und Gitter reduziert und damit eine Erhöhung der Targetdichte um 26 % erzielt. Für eine erhöhte Ausfallsicherheit im Messbetrieb wurde eine zweite Düse mit separater Zuleitung implementiert, auf die nahezu unterbrechungsfrei gewechselt werden konnte.

Aus diesen Verbesserungen resultiert eine starke Vereinfachung und Beschleunigung der Beugungsbildaufnahme. Dies ermöglichte eine systematische Untersuchung der Beziehung zwischen Düsenparameter und Ausbeute unterschiedlicher Clustergrößen. So konnten Kunitski et al. ermitteln, ob es Parameter gibt unter denen der theoretisch vorhergesagte Efimovzustand im Heliumtrimer entsteht. Er wurde schließlich bei Einstellungen gefunden unter denen auch eine hohe Ausbeute von Heliumdimeren erzielt wird und konnte anschließend mit dem in dieser Arbeit beschriebenen Aufbau vermessen werden[43].

Für die Messkampagne am Freie Elektronen Laser in Hamburg (FLASH) wurde der Aufbau um eine differenzielle Pumpstufe und einen Beamdump erweitert (siehe Abschnitt 5.3.2 und 5.5). Die differenzielle Pumpstufe verhinderte die Beeinflussung des Kammervakuums von $<1 \cdot 10^{-11}$ mbar durch das Vakuum in der Beamline von $5 \cdot 10^{-8}$ mbar. Da der Fokus des FEL fest im Raum liegt, war die Länge der Pumpstufe auf 32 cm begrenzt. Und da der Gasstrahl fest an die Kammergeometrie gebunden ist, musste die gesamte Kammer präzise positioniert werden, um einen Überlapp von Fokus und Gasstrahl zu erhalten. Zu diesem Zweck wurde ein neues Gestell für die Kammer aufgebaut, das eine Feinjustierung der Kammerposition im Millimeterbereich ermöglicht.

Mit dieser verbesserten Messapparatur wurde das Heliumdimer untersucht. Dazu wurde

das Dimer in einer ersten Messung durch die Strahlung eines Ti:Sa-Lasers und in einer zweiten Messung durch die eines Freie-Elektronen-Lasers ionisiert. Durch den Nachweis der entstehenden Ionen mit orts- und zeitauflösenden Detektoren konnten die ionischen Impulse und damit die Abstandsverteilung des Dimers zum Zeitpunkt der Ionisation rekonstruiert werden. Anschließend wurde aus dieser Verteilung die He_2 -Bindungsenergie ermittelt. Der Wert von $151,9 \text{ neV} \pm 13,3 \text{ neV}$ liegt in Übereinstimmung mit aktuellen theoretischen Berechnungen von Przybytek et al.[22]. Früheren experimentellen Ergebnissen von Luo et al.[99] und Grisenti et al.[12] wird dagegen widersprochen.

Darüber hinaus konnte die Möglichkeit zur Separation des Gasstrahls durch Materiewellenbeugung genutzt werden, größere Heliumcluster definierter Masse zu untersuchen. So konnten die Paar-Abstandsverteilungen von He_3 , He_4 und He_6 vermessen und mit Modellrechnungen verglichen werden. Zusätzlich wurde der Auger-Zerfall-ähnliche ICD-Prozess in Abhängigkeit der Clustergröße beobachtet. Nachdem ein Cluster ionisiert und gleichzeitig angeregt wurde, zerfällt er hierbei nach kurzer Zeit in zwei geladene Fragmente. Trotz unterschiedlicher Ausgangswellenfunktionen und Anzahl an Atomen im Cluster zeigt die gemessene Energieverteilung jedoch keine Abhängigkeit von der Clustergröße. Dies deutet darauf hin, dass bei Clustern verschiedener Größe die gleichen Zwischenzustände erzeugt werden.

10.2. Offene Fragen

Die Vermessung des Heliumdimers am FEL wurde bei einer Photonenenergie von 67 eV vorgenommen. Diese Energie ermöglicht den Ablauf weiterer Prozesse, die während der Messung mit niedrigem Spektrometerfeld nicht direkt beobachtet wurden: Zum Einen kann der billardstoßartige *Knock-Off* Prozess stattfinden, bei dem ein Elektron genügend kinetische Energie erhält, um ein zweites Elektron ins Kontinuum zu befördern. Zum Anderen kann der ICD-Prozess ablaufen, der in der Messung mit hohem Spektrometerfeld untersucht wurde. Beide Prozesse konnten bereits in Messungen mit Synchrotronstrahlung beobachtet werden (siehe Abschnitt 4.1.1). Aus diesen Messungen und theoretischen Berechnungen ist bekannt, dass beide Prozesse eine geringere Wahrscheinlichkeit besitzen als die doppelte Photoionisation unter der Annahme einer Ionisationswahrscheinlichkeit von eins. Ausgangslage für den ICD ist die Photoionisation eines Atoms mit gleichzeitiger elektronischer Anregung in den 2p-Zustand. Die gleichzeitige Anregung wird in etwa 11 % der Ionisationen erreicht[124] (bei einer Photonenenergie von 89,5 eV). Der *Knock-Off* Prozess ist im Vergleich zu ICD um einen weiteren Faktor 50 untersetzt[46]. Beide Prozesse laufen bevorzugt ab, wenn ein geringer Abstand zwischen den beteilig-

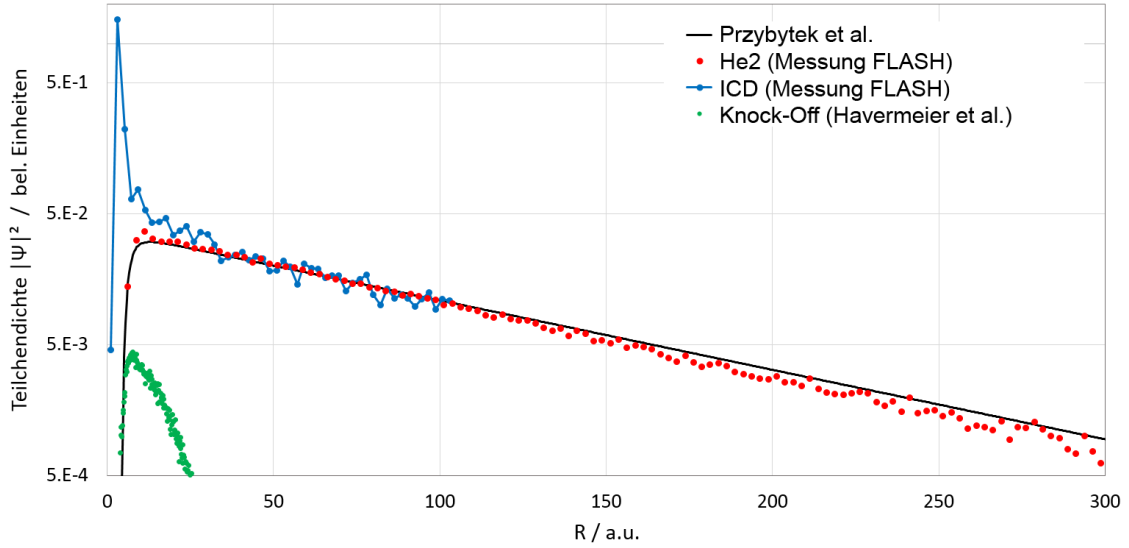


Abb. 10.1.: Gemessene Abstandsverteilungen von He₂ (FLASH), ICD (FLASH) und Knock-Off[46]. Das Verhältnis von ICD (blau) zu Knock-Off (grün) von 50:1 ist korrekt dargestellt. Das Verhältnis von ICD zur He₂-Verteilung (rot) wurde im exponentiellen Bereich aufeinander angepasst. Damit wird das Integral der He₂-Verteilung für die verwendete Pulsintensität des FEL unterschätzt.

ten Atomen besteht. Abbildung 10.1 zeigt die gemessenen Abstandsverteilungen von ICD und Knock-Off neben der von He₂. Die Abweichung zwischen Theorie und Experiment bei Abständen um 12 a.u. entstand möglicherweise durch das Vorhandensein dieser beiden Prozesse. Dagegen zeigen ICD und *Knock-Off* keine Beiträge zwischen 50 und 300 a.u. und haben somit keinen Einfluss auf die Ermittlung der Bindungsenergie aus der exponentiellen Kurvenanpassung (Fit) der He₂-Verteilung.

Die hohe Photonendichte im Fokus des FEL ermöglichte die Ionisation zweier Heliumatome im Cluster. Mit 67 eV war die Photonenenergie zudem hoch genug, um ein bereits ionisiertes Heliumatom (He⁺) ein weiteres mal zu ionisieren, wofür eine Energie von 54,41 eV nötig ist. Statt der Ionisation zweier unterschiedlicher Atome im Cluster ist also auch die zweifache Ionisation eines Atoms im Cluster denkbar². Ein zweifach geladenes He²⁺-Ion polarisiert die Nachbaratome im Cluster, was zu einer attraktiven Kraft zwischen Ion und Nachbarn führt. Es folgt eine Annäherung der Nachbarn an das Ion. Sobald hierbei ein Abstand von 2,9 a.u.[47] unterschritten wird, steigt die Wahrscheinlichkeit für den Ladungsaustausch stark an und ein Elektron wechselt von

²Der Wirkungsquerschnitt der Photoionisation von He⁺ ist bei der verwendeten Photonenenergie etwa 90 % so groß wie der von neutralem Helium.

einem neutralen Nachbarn zum Ion. So entstehen zwei einfach geladene Heliumionen, die Coulomb-explodieren. Dabei wird die Energiedifferenz zwischen den beiden Bindungszuständen des Elektrons frei. Die Energie wird in Form eines Photons ausgesandt und der Prozess entsprechend strahlender Ladungstransfer genannt³. Da der Ladungsaustausch stets bei einem Abstand um 2,9 a.u. eintritt, erhalten die geladenen Fragmente stets den gleichen KER von 9,5 eV (folgt aus Gleichung 7.2). Die Signatur dieses Prozesses ist also ein Maximum der KER-Verteilung bei 9,5 eV. Während der He₂-Messung war die Beobachtung von KERs dieser Höhe aufgrund des niedrigen Spektrometerfeldes von 4,41 V/cm ausgeschlossen. Bei der ICD-Messung waren die Spektrometereinstellungen dagegen optimal, um auch dieses Maximum zu detektieren. Dennoch ist es in keiner der aufgenommenen KER-Verteilungen sichtbar (siehe Abb. 9.4)

Ein möglicher Grund dafür, dass dieses Maximum nicht entsteht, wäre ein Konkurrenzprozess, der bei gleicher Ausgangslage schneller oder effizienter abläuft als der Ladungsaustausch. In Frage kommt dafür ein Prozess der Elektronenaustausch-vermittelter Zerfall (ETMD(3)⁴) genannt wird. Auch hier wechselt ein Elektron von einem neutralen zum zweifach geladenen Heliumkern. Die freiwerdende Energie wird allerdings nicht in Form eines Photons ausgesandt, sondern aufgewendet, um ein weiteres benachbartes Atom zu ionisieren. So entstehen drei einfach geladene Heliumionen. Da auch der KER der drei Coulomb-explodierenden Fragmente aus der beim Ladungstransfer freiwerdenden Energie aufgebracht werden muss, kann der ETMD(3) nur bei bestimmten Konstellationen der beteiligten Clusternachbarn ablaufen. Nach dem Ladungstransfer steht eine Energie von $\Delta E = 54,41 \text{ eV} - 24,59 \text{ eV} = 29,78 \text{ eV}$ zur Verfügung. Wenn davon 24,59 eV aufgebracht werden, um ein weiteres neutrales Heliumatom zu ionisieren, kann keine Konstellation von Nachbarn ionisiert werden deren KER 5,19 eV überschreiten würde. Damit sind alle Konstellationen ausgeschlossen bei denen ein Paarabstand eine Länge von 5,3 a.u. unterschreitet.

Um zu überprüfen ob ETMD(3) ein dominanter Zerfallskanal ist, wurden die ICD-Datensätze auf das Vorhandensein von Dreiteilchenaufbrüchen hin untersucht. Bei der Ionisation von Dimeren ist ETMD(3) kategorisch ausgeschlossen. Für alle größeren Cluster wurden Ereignisse von Dreiteilchenaufbrüchen detektiert, die die Impulserhaltung erfüllen. Ein geringer Anteil kann dabei der Photoionisation von drei Atomen im Cluster durch drei Photonen zugeordnet werden. Für Ereignisse, bei denen ein Fragment einen sehr kleinen Impuls trägt, können zufällige Koinzidenzen nicht ausgeschlossen werden.

³Sind zwei Heliumatome beteiligt erhält das Photon eine Energie von $54,41 \text{ eV} - 24,59 \text{ eV} - \text{KER} = 20,32 \text{ eV}$.

⁴ETMD(3) steht für electron transfer mediated decay, bei dem 3 Teilchen involviert sind.

Um den Ablauf von ETMD(3) zu bestätigen, wird also zusätzlich die Information der emittierten Elektronen benötigt, die für diese Messung nicht aufgenommen wurde.

10.3. Neue Möglichkeiten

Bereits kurz nach dem experimentellen Nachweis der Existenz der Heliumdimers wurde vorgeschlagen, das Heliumdimer könne in Rotations-Misch-Zustände anregbar sein[125]. Wie in Abschnitt 2.2 dargelegt, erlaubt das Dimerpotential ausschließlich die Existenz des durch die Nullpunktsenergie gegebenen Grundzustandes im Rotationsgrundzustand $J = 0$. Für alle höheren Rotationszustände $J \geq 1$ führt der Zentrifugalterm im effektiven Potential zur Dissoziation ($U(R) = V(R) + \langle J^2 \rangle \hbar^2 / 2\mu R^2$), denn sobald J größer als 0,0337 wird, wird das effektive Potential größer als null. Durch die Interaktion mit einem externen Laserfeld kann jedoch ein beliebiges unganzzahliges Drehmoment J auf das Dimer übertragen werden. Dies erzeugt einen Mischzustand aus dem Rotationsgrundzustand und geringen Beiträgen von $J = 2$ und $J = 4$ (ungerade Rotationszustände sind aus Symmetriegründen verboten)[125, 126].

Die Rotationsanregung wird durch die Interaktion des Laserpulses mit dem induzierten elektrischen Dipolmoment des Systems vermittelt. Da die Polarisierbarkeit des Dimers mit zunehmendem internuklearen Abstand abnimmt, werden vorwiegend Dimere mit kleinen internuklearen Abständen angeregt. Dies verändert das Wellenpaket im Rotationsgrundzustand und erzeugt Wellenpakete in Zustand $J = 2$ und $J = 4$. Anschließend breiten sich die Wellenpakete entsprechend ihrer zur Verfügung stehenden Potentiale aus. Dieser zeitliche Ablauf könnte experimentell nachgewiesen werden, indem das Dimer von einem Probepuls zu mehreren zeitlich festen Abständen zur Anregung zweifach ionisiert wird. Analog zur Vorgehensweise aus Kapitel 7 könnte das Betragsquadrat der Vibrationswellenfunktion bestimmt, und seine zeitliche Veränderung betrachtet werden.

Neben der Untersuchung von Heliumdimeren konnte der experimentelle Aufbau bereits für weitere impulsspektroskopische Messungen genutzt werden, für die eine Massenselektion unerlässlich ist. In dieser Arbeit wurden Ergebnisse zu interatomarem Coulomb-Zerfall (ICD) präsentiert, der in Clustern ausgewählter Masse ablief. Gleichzeitig wurden bei dieser Messung die He-He Paarverteilungen für eben diese Clustergrößen bestimmt. Darüber hinaus diente der Aufbau, um die Struktur von Heliumtrimeren zu ermitteln[56] und den Efimov-Zustand des Heliumtrimers zu entdecken[43].

Die einzigartige Kombination aus der Möglichkeit zur Materiewellenbeugung und dem Einsatz eines Impulsspektroskopes bietet die Voraussetzungen auch zukünftig offene Fra-

gen zu beantworten. Die Massenselektion wurden bereits mit Elementen von Wasserstoff bis Neon getestet [82]. Es ist denkbar Wasserstoffmolekül-Dimere zu untersuchen oder ein gewünschtes Target vom genutzten Trägergas zu trennen. Nachdem Heliumdimere und -trimere untersucht wurden, bietet sich die Ermittlung der Struktur von Tetrameren an.

Die durchgeführten Messungen zu ICD in Clustern unterschiedlicher Größe gewinnen eine ganze Dimension an Information, wenn es gelingt in zukünftigen Messungen auch die während dem Zerfall emittierten Elektronen zu detektieren. Trinter et al. stellten 2013 eine Methode vor, mit der die Zerfallsdauer des ICD aus der Energie des Photoelektrons ermittelt werden kann [49]. Die vorgestellte Methode basiert darauf, dass das Photoelektron nach dem Zerfall von dem schnellen ICD-Elektron überholt wird, und dann einen zweifach positiv geladenen Kern sieht. Je früher dies geschieht, desto früher wird das Photoelektron abgebremst. So kann aus seiner Energie ermittelt werden, wie viel Zeit zwischen der Anregung und der Zerfall verstrichen ist. Mit dem vorliegenden Aufbau könnte die Zerfallsdauer für definierte Clustergrößen verglichen werden.

Alternativ ist ein Pump-Probe Experiment vorstellbar, bei dem die Zerfallsdauer des ICD aus den ionischen Fragmenten allein extrahiert werden kann. Durch den Pump-Puls wird ein Cluster einfach ionisiert und angeregt, so dass ICD ermöglicht wird. Der Probe-Puls ionisiert den Cluster nun ein zweites mal, wobei der Zeitabstand zum Pump-Puls variiert wird. An den Ladungszuständen der entstehenden ionischen Fragmente kann abgelesen werden, ob ICD bereits vor Eintreffen des Probe-Pulses abgelaufen ist. Damit kann die Geschwindigkeit von ICD untersucht, und für verschiedene Clustergrößen verglichen werden [127].

Ein solches Pump-Probe Experiment ist mit den von einem Freie-Elektronen-Laser bereitgestellten Photonendichten realisierbar. Die Möglichkeit blieb während der Messkampagne an FLASH, trotz den technischen Möglichkeiten einer Strahlteil-und-Verzögerungseinheit, leider verwehrt. Grund dafür waren die im Ausgangskanal entstehenden He^{2+} -Ionen, die das gleiche Masse-zu-Ladungs-Verhältnis wie H_2^+ -Ionen haben, und somit nicht von dem massiv vorliegenden Wasserstoff-Untergrund trennbar waren.

Literaturverzeichnis

- [1] Mark Littmann, Fred Espenak, and Ken Willcox. *Totality - Eclipses of the Sun*. Oxford University Press, 3rd edition, 2008. ↑9
- [2] J. C. Slater. The normal state of helium. *Phys. Rev.*, 32:349, September 1928. ↑10, ↑16
- [3] S. Chang and M. Boninsegni. Ab initio potentials and the equation of state of condensed helium at high pressure. *J. Chem. Phys.*, 115, 2001. ↑10
- [4] S. Goyal, D. L. Schutt, and G. Scoles. Vibrational Spectroscopy of Sulfur Hexafluoride Attached to Helium Clusters. *Phys. Rev. Lett.*, 69(6), 1992. ↑10
- [5] J. B. Mehl, M. R. Moldover, and L. Pitre. Designing quasi-spherical resonators for acoustic thermometry. *Metrologia*, 41:295–304, 2004. ↑10
- [6] L. Pitre, M. R. Moldover, and W. L. Tew. Acoustic thermometry: new results from 273 K to 77 K and progress towards 4 K. *Metrologia*, 43:142–162, 2006. ↑10
- [7] M Kühne. Redefinition of the SI. In *Book of Abstracts, Ninth International Temperature Symposium*, Los Angeles, Kalifornien, USA: NIST, 03 2012. ↑11
- [8] E. F. May, R. F. Berg, and M. R. Moldover. Reference Viscosities of H₂, CH₄, Ar, and Xe at low Densities. *Internat. J. Thermophys.*, 28(4):1085, 03 2007. ↑11
- [9] R. F. Berg, E. F. May, and M. R. Moldover. Viscosity Ratio Measurements with Capillary Viscometers. *J. Chem. Engin.*, 59:116–124, 2014. ↑11
- [10] W. Cencek, J. Komasa, K. Pachucki, and K. Szalewicz. Relativistic Correction to the Helium Dimer Interaction Energy. *Phys. Rev. Lett.*, 2005. ↑11, ↑19
- [11] J. W. Schmidt, R. M. Gaviolo, E. F. May, and M. R. Moldover. Polarizability of Helium and Gas Metrology. *Phys. Rev. Lett.*, 98:254504, 2007. ↑11

- [12] 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(11):2284–2287, September 2000. ↑11, ↑25, ↑34, ↑41, ↑147, ↑148, ↑169, ↑215
- [13] W. Demtröder. *Experimentalphysik 3 - Atome, Moleküle und Festkörper*, volume 3. Springer, 4 edition, 2010. ↑14, ↑16
- [14] J. Bienlein and R. Wiesendanger. *Einführung in die Struktur der Materie*. Teubner Verlag, Wiesbaden, 2003. ↑16
- [15] S. C. Wang. The mutual influence between hydrogen atoms. *Phys. Z.*, 28:663–666, 1927. ↑16
- [16] J. B. Anderson, C. A. Traynor, and B. M. Boghosian. An exact quantum Monte Carlo calculation of the helium-helium intermolecular potential. *J. Chem. Phys.*, 99:345, July 1993. ↑17
- [17] B. Liu and 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. ↑17
- [18] 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. ↑17
- [19] R. A. Aziz and M. J. Slaman. An examination of ab initio results for the helium potential energy curve. *J. Chem. Phys.*, 94:8047–8053, 1991. ↑17, ↑148, ↑215
- [20] 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. ↑17
- [21] F. Luo, G. Kim, G. C. McBane, F. C. Giese, and W. R. Gentry. Influence of the retardation on the vibrational wave function and binding energy of the helium dimer. *J. Chem. Phys.*, 98:9687–9890, 1993. ↑18, ↑124, ↑148, ↑149, ↑150, ↑192, ↑194, ↑215
- [22] M. Przybytek, W. Cencek, J. Komasa, G. Lach, B. Jeziorski, and K. Szalewicz. Relativistic and quantum electrodynamics effects in the helium pair potential. *Phys. Rev. Lett.*, 104:183003, 2010. ↑18, ↑19, ↑20, ↑41, ↑118, ↑123, ↑124, ↑148, ↑149, ↑150, ↑151, ↑155, ↑161, ↑169, ↑189, ↑192, ↑194, ↑215

- [23] 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(9):1546–1549, February 1995. ↑18, ↑148, ↑215
- [24] W. Cencek, M. Przybytek, J. Komasa, J. B. Mehl, B. Jeziorski, and K. Szalewicz. Effects of adiabatic, relativistic, and quantum electrodynamics interaction on the pair potential and thermophysical properties of helium. *J. Chem. Phys.*, 136(224303), 2012. ↑19, ↑20, ↑148
- [25] J. Komasa, W. Cencek, and J. Rychlewski. Adiabatic corrections of the helium dimer from exponentially correlated gaussian functions. *Chem. Phys. Lett.*, 304:293–298, February 1999. ↑19
- [26] Statistisches Bundesamt. Pendler nach Entfernung zwischen Wohnung und Arbeitsstätte in den Jahren 1996 und 2012. In Statista - Das Statistik-Portal, Oktober 2009. Zugriff am 19.09.2016. ↑21
- [27] DIW Berlin. Wie viele Kilometer ist Ihr Arbeitsplatz von Ihrer Wohnung entfernt? In Statista - Das Statistik Portal, Oktober 2009. Zugriff am 19.09.2016. ↑21
- [28] E. W. Becker. On the History of Cluster Beams. *Z. Phys. D*, 3:101–107, 1986. ↑23
- [29] H. G. Bennewitz, H. Busse, H. D. Dohmann, D. E. Oates, and W. Schrader. He4 - He4 Interaction Potential from Low Energy Total Cross Section Measurements. *Zeitschrift für Physik*, 253:435–457, 1972. ↑23
- [30] A. P. J. van Deursen and J. Reuss. Experimental investigation of small He clusters. *Journal of Chemical Physics*, 63(10), 1975. ↑23
- [31] J. N. Bardsley. Potential Curves for He_2^+ and Li_2^+ . *Physical Review A*, 3(4), 1971. ↑24
- [32] Peter W. Stephens and John G. King. Experimental Investigation of Small Helium Clusters: Magic Numbers and the Onset of Condensation. *Phys. Rev. Lett.*, 51(17), 1983. ↑24
- [33] F. Luo, G. C. McBane, G. Kim, F. C. Giese, and W. R. Gentry. The weakest Bond: Experimental observation of helium dimer. *J. Chem. Phys.*, 98(4):3564–3567, February 1993. ↑24, ↑40

- [34] Eric S. Meyer and Isaac F. Silvera. Comment on "The weakest bond: Experimental observation of helium dimer"[J. Chem. Phys. 98, 3564 (1993)]. *J. Chem. Phys.*, 100(4021), 1994. ↑24
- [35] W. Schöllkopf and J. P. Toennies. Nondestructive Mass Selection of Small van der Waals Cluster. *Science*, 266(5189):1345–1348, 1994. ↑24, ↑40, ↑189
- [36] David M. Lubmann, Charles T. Rettner, and Richard N. Zare. How isolated are molecules in a molecular beam? *J. Chem. Phys.*, 86:1129–1135, 1982. ↑27
- [37] Ludwig W. Bruch, Wieland Schöllkopf, and J. P. Toennies. The formation of dimers and trimers in free jet ^4He cryogenic expansions. *J. Chem. Phys.*, 117(4), 2002. ↑27, ↑29, ↑189
- [38] H. Suno, B. D. Esry, Chris H. Greene, and James P. Burke Jr. Three-body recombination of cold helium atoms. *Phys. Rev. A*, 65, 2002. ↑27
- [39] Marcel Snels, Veronika Horka-Zelenkova, Hans Hollenstein, and Martin Quack. *High-Resolution FTIR and Diode Laser Spectroscopy of Supersonic Jets*. John Wiley & Sons, Ltd, 2011. ↑28, ↑189
- [40] D. R. Miller. *Atomic and Molecular Beam Methods*, volume 1. Oxford University Press, 1988. ↑28, ↑29, ↑189
- [41] M. Jugroot, C. P. T. Groth, B. A. Thomson, V. Baranov, and B. A. Collings. Numerical investigation of interface region flows in mass spectrometers: neutral gas transport. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 37:1289–1300, 2004. ↑28
- [42] H. Ashkenas and F. S. Sherman. *Rarefield Gas Dynamics - The Structure and Utilization of Supersonic Free Jets in Wind Tunnels*, volume 2. Academic Press, 1966. ↑29
- [43] M. Kunitski, S. Zeller, J. Voigtsberger, A. Kalinin, L. P. H. Schmidt, M. Schöffler, A. Czasch, W. Schöllkopf, R. E. Grisenti, T. Jahnke, D. Blume, and R. Dörner. Observation of the Efimov state of the helium trimer. *Science*, 348:551–555, 2015. ↑29, ↑30, ↑168, ↑172
- [44] R. Kariotis, L. W. Bruch, and O. Kornilov. Kinetic temperature effects on ^4He dimers in jets. *J. Chem. Phys.*, 121(7), 2004. ↑29

- [45] R. E. Grisenti, W. Schöllkopf, J. P. Toennies, J. R. Manson, T. A. Savas, and Henry I. Smith. He-atom diffraction from nanostructure transmission grating: The role of imperfections. *Phys. Rev. A*, 61:033608, 2000. ↑34
- [46] T. Havermeier. *Photoionisation von Heliumdimeren*. PhD thesis, Goethe Universität Frankfurt am Main, 2010. ↑35, ↑155, ↑169, ↑170, ↑195
- [47] Jasmin Titze. *Die Untersuchung der Ionisationsdynamik von Heliumdimeren in Stößen mit α Teilchen*. PhD thesis, Goethe Universität Frankfurt am Main, 2011. ↑35, ↑36, ↑37, ↑39, ↑170
- [48] Hong Keun Kim. *Ion-Dimer Collisions*. PhD thesis, Goethe Universität Frankfurt am Main, 2014. ↑35, ↑36, ↑39, ↑73
- [49] F. Trinter, J. B. Williams, M. Weller, M. Waitz, M. Pitzer, J. Voigtsberger, C. Schöber, G. Kastirke, C. Müller, C. Goihl, P. Burzynski, F. Wiegandt, T. Bauer, R. Wallauer, H. Sann, A. Kalinin, L. P. H. Schmidt, M. Schöffler, N. Sisourat, and T. Jahnke. Evolution of Interatomic Coulombic Decay in the Time Domain. *Phys. Rev. Lett.*, 111:093401, 2013. ↑35, ↑153, ↑154, ↑159, ↑173, ↑194, ↑195
- [50] J. Ullrich, R. Moshammer, A. Dorn, R. Dörner, L. P. H. Schmidt, and H. Schmidt-Böcking. Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: reaction-microscopes. *Rep. Prog. Phys.*, 66:1463–1545, 2003. ↑35
- [51] T. Havermeier, T. Jahnke, K. Kreidi, R. Wallauer, S. Voss, M. Schöffler, S. Schöbeler, 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.*, 2010. ↑36
- [52] Stefan Zeller. *Wechselwirkung von langsamen hochgeladenen Argonionen mit kleinsten Heliumclustern*. Master’s thesis, Johann Wolfgang Goethe-Universität, 2011. ↑36, ↑39
- [53] T. Havermeier, T. Jahnke, K. Kreidi, R. Wallauer, S. Voss, M. Schöffler, S. Schöbeler, 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, 2010. ↑36

- [54] T. Havermeier, K. Kreidi, R. Wallauer, S. Voss, M. Schöffler, S. Schöbner, 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, 2010. ↑36
- [55] Jörg Voigtsberger. *Experimentelle Untersuchung von kleinen Heliumclustern mit Hilfe eines Diffraktionsgitters*. PhD thesis, Goethe Universität Frankfurt am Main, 2014. ↑41, ↑60, ↑121, ↑122, ↑147, ↑148, ↑167, ↑215
- [56] Jörg 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. P. H. Schmidt, M. Schöffler, R. E. Grisenti, T. Jahnke, and R. Dörner. Imaging the structure of the trimer systems $^4\text{He}_3$ and $^3\text{He}^4\text{He}_2$. *Nat. Comm.*, 5:5765, 2014. ↑41, ↑172
- [57] B. H. Bransden and C. J. Joachain. *Physics of Atoms and Molecules*. Longman Scientific & Technical, 1983. Seite 156ff. ↑43
- [58] A. Stark and A. Saenz. Accurate non-relativistic photoionization cross section for He at non-resonant photon energies. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 44(3):035004, 2011. ↑44
- [59] J. A. R. Samson, Z. X. He, L. Yin, and G. N. Haddad. Precision measurements of the absolute photoionization cross sections of He. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 27(5):887, 1994. ↑44
- [60] K Schnorr. *XUV Pump-Probe Experiments on Electron Rearrangement and Interatomic Coulombic Decay in Diatomic Molecules*. PhD thesis, Ruperto-Carola-University Heidelberg, Germany, 2014. ↑44
- [61] I. V. Hertel and C.-P. Schulz. *Atome, Moleküle und optische Physik 1*, volume 1. Springer-Lehrbuch, 2008. ↑45, ↑48
- [62] DESY. FLASH, 01 2016. ↑45, ↑66, ↑197
- [63] National Institute of Standards and Technology (NIST), 02 2016. ↑46
- [64] L. V. Keldysh. Ionization in field of a strong electromagnetic wave. *Soviet Physics JETP-USSR*, 20:1307, 1965. ↑48

- [65] F. A. Ilkov, J. E. Decker, and S. L. Chin. Ionization of atoms in the tunnelling regime with experimental evidence using Hg atoms. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 25:4005–4020, 1992. ↑48
- [66] M. Richter. *Ionisation in Zwei-Farben-Laserfeldern: Steuerung von Elektronenwellenpaketen*. PhD thesis, Goethe Universität Frankfurt am Main, 2016. ↑49, ↑57
- [67] N. B. Delone and V. P. Krainov. Tunneling and barrier-suppression ionization of atoms and ions in a laser radiation field. *Physics Uspekhi*, 41(5):469–485, 1998. ↑49
- [68] B. Walker, B. Sheely, L. F. DiMauro, P. Agostini, K. J. Schafer, and K. C. Kulander. Precision Measurement of Strong Field Double Ionization of Helium. *Phys. Rev. Lett.*, 73:1227, 1994. ↑50, ↑60, ↑190
- [69] A. M. Perelomov, V. S. Popov, and M. V. Terent’ev. Ionization of Atoms in an alternating electric field: II. *Soviet Physics JETP*, 24(1):207, 1967. ↑50
- [70] Z. Chen, Y. Zheng, W. Yang, X. Song, J. Xu, L. F. DiMauro, O. Zatsarinny, K. Bartschat, T. Morishita, S.-F. Zhao, and C. D. Lin. Numerical simulation of the double-to-single ionization ratio for the helium atom in strong laser fields. *Phys. Rev. A*, 92:063427, 2015. ↑50
- [71] P. F. Moulton. Spectroscopic and laser characteristics of Ti:Al₂O₃. *J. Opt. Soc. Am. B*, 3(1):125, 1986. ↑53
- [72] F. Budde. *Entwicklung, Aufbau und Charakterisierung eines Titan:Saphir - OPCPA - Hybridlasersystems*. PhD thesis, Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf, 2012. ↑56
- [73] S. Voss. *Orientierungseffekte bei der Doppelionisation von kleinen Molekülen*. Diplomarbeit, Goethe Universität Frankfurt, 2004. ↑60
- [74] European XFEL. Website, 12 2016. ↑61
- [75] P. Schmüser, M. Dohlus, and J. Rossbach. *Ultraviolet and soft X-ray free-electron lasers. Introduction to physical principles, experimental results, technological challenges.*, volume 229 of *Springer tracts in modern physics*. Springer, Berlin, 2008. ↑62, ↑64

- [76] G. Margaritondo and Primoz Rebernik Ribic. A simplified description of X-ray free-electron lasers. *Journal of Synchrotron Radiation*, 18(2):101–108, Mar 2011. ↑64, ↑65
- [77] J. Feldhaus. FLASH - the first soft x-ray free electron laser (FEL) user facility. *J. Phys. B*, 43, 2010. ↑65, ↑66
- [78] K. Tiedtke, A. Azima, N. von Bargen, L. Bittner, S. Bonfigt, S. Düsterer, B. Faatz, U. Fröhling, M. Gensch, Ch. Gerth, N. Guerassimova, U. Hahn, T. Hans, M. Hesse, K. Honkavaar, U. Jastrow, P. Juranic, S. Kapitzki, B. Keitel, T. Kracht, M. Kuhlmann, W. B. Li, M. Martins, T. Nunez, E. Plönjes, H. Redlin, E. L. Saldin, E. A. Schneidmiller, J. R. Schneider, S. Schreiber, N. Stojanovic, F. Tavella, S. Toleikis, R. Treusch, H. Weigelt, M. Wellhöfer, H. Wabnitz, M. V. Yurkov, and J. Feldhaus. The soft x-ray free-electron laser FLASH at DESY: beamlines, diagnostics and end-stations. *New Journal of Physics*, 11(2):023029, 2009. ↑66, ↑197
- [79] O. Kornilov and J. P. Toennies. Matter-wave diffraction of quantum magical helium clusters. *Europhysics News*, 38(1), 2007. ↑71
- [80] W. Schöllkopf, J. P. Toennies, T. A. Savas, and H. I. Smith. A cluster size nanofilter with variable openings between 2 and 50 nm. *J. Chem. Phys.*, 109(21):9252, December 1998. ↑73
- [81] J. Hahnenbruch. *Automatisierte Aufnahme von Materiewellen-Beugungsspektren eines Heliumclusterstrahls*. Master’s thesis, Goethe Universität Frankfurt am Main, 2014. ↑77
- [82] D. Aslitürk. *Beugung von Neon- und Wasserstoffgasstrahlen an einem Transmissionsgitter und Untersuchung des H₂-Dimers*. Master’s thesis, Goethe Universität Frankfurt am Main, 2015. ↑81, ↑173
- [83] K. Jousten, W. Jitschin, R. Lachenmann, A. Jünemann, U. Friedrichsen, E. Lippelt, B. Kossek, H. Grave, K. Galda, K.H. Bernhardt, et al. *Wutz Handbuch Vakuumtechnik: Theorie und Praxis*. Vieweg+Teubner Verlag, 2013. ↑84
- [84] *Betriebsanleitung Compact Turbo - TurboDrag Pumpe TMU521 - Pfeiffer Vacuum*. ↑86
- [85] Roentdek Handels GmbH. MCP Delay Line Detector Manual (Version 11.0.1610.2). Online, 10 2016. ↑86, ↑92, ↑104, ↑211

- [86] A. Czasch. *Fragmentierung diatomarer Moleküle durch langsame Streuprozesse*. Master's thesis, Goethe Universität Frankfurt, 1999. ↑89
- [87] M. Zhang, Z. Cao, and L. Yobas. Microchannel plate (MCP) functionalized with Ag nanorods as a high-porosity stable SERS-active membrane. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 2013. ↑90
- [88] O. Jagutzki, A. Cerezo, A. Czasch, R. Dörner, M. Hattas, M. Huang, V. Mergel, U. Spillmann, K. Ullmann-Pfleger, T. Weber, H. Schmidt-Böcking, and G. D. W. Smith. Multiple Hit Readout of a Microchannel Plate Detector With a Three-Layer Delay-Line Anode. *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 49(5):2477–2483, October 2002. ↑91, ↑92
- [89] T. Bauer. *Koinzidente Photoelektronenspektroskopie an Kuprat-Hochtemperatursupraleitern*. PhD thesis, Goethe Universität Frankfurt am Main, 2015. Abschnitt 4.2.1. ↑92
- [90] N. Neumann. *Fragmentationsdynamik von CO₂*. PhD thesis, Goethe Universität Frankfurt am Main, 2010. Abschnitt 5.5. ↑92
- [91] H. Sann. *Elektronenemission aus dissoziierenden Molekülen*. PhD thesis, Goethe Universität Frankfurt am Main, 2015. Abschnitt 3.5.2.2. ↑92
- [92] T. Jahnke. *Interatomic Coulombic Decay - Experimentelle Untersuchung eines neuartigen, interatomaren Abgungsmechanismus*. PhD thesis, Goethe Universität Frankfurt am Main, 2005. ↑94, ↑153
- [93] M. Lundqvist, D. Edvardsson, P. Baltzer, M. Larsson, and B. Wannberg. Observation of predissociation and tunnelling processes in O₂²⁺: a study using Doppler free kinetic energy release spectroscopy and ab initio CI calculations. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 29(3):499, 1996. ↑114, ↑115, ↑192, ↑197
- [94] G. Dawber, A. G. McConkey, L. Avaldi, M. A. MacDonald, G. C. King, and R. I. Hall. Threshold photoelectrons coincidence spectroscopy of doubly-charged ions of nitrogen, carbon monoxide, nitric oxide and oxygen. *J. Phys. B.*, 27:2191–2209, 1994. ↑115
- [95] U. Thumm. Persönliche Mitteilung. 2015. ↑116

- [96] E. A. Gislason. Series expansions for Franck-Condon factors. I. Linear potential and the reflection approximation. *J. Chem. Phys.*, 58:3702, 1973. ↑121
- [97] L. P. H. Schmidt, T. Jahnke, A. Czasch, M. Schöffler, H. Schmidt-Böcking, and R. Dörner. Spatial Imaging of the H^2+ Vibrational Wave Function at the Quantum Limit. *Phys. Rev. Lett.*, 108:073202–1, 2012. ↑121
- [98] M. Lundqvist, D. Edvardsson, P. Baltzer, and B. Wannberg. Doppler-free kinetic energy release spectrum of N_2^{2+} . *J. Phys. B*, 29:1489–1499, 1996. ↑135, ↑193, ↑197
- [99] F. Luo, C. F. Giese, and W. R. Gentry. Direct measurement of the size of the helium dimer. *J. Chem. Phys.*, 104:1151–1154, 1996. ↑147, ↑148, ↑169, ↑215
- [100] R. A. Aziz, V. P. S. Nain, J. S. Carley, W. L. Taylor, and G. T. McConville. An accurate intermolecular potential for helium. *J. Chem. Phys.*, 70:4330–4342, 1979. ↑148, ↑215
- [101] R. Feltgen, H. Kirst, K. A. Köhler, H. Pauly, and F. Torello. Unique determination of the He_2 ground state potential from experiment by use of a reliable potential model. *J. Chem. Phys.*, 76:2360–2378, 1982. ↑148, ↑215
- [102] K. T. Tang and J. P. Toennies. An improved simple model for the van der Waals potential based on universal damping functions for the dispersion coefficients. *J. Chem. Phys.*, 80:3726–3741, 1984. ↑148, ↑215
- [103] R. A. Aziz, F. R. W. McCourt, and C. C. K. Wong. A new determination of the ground state interatomic potential for He_2 . *Mol. Phys.*, 61:1487–1511, 1987. ↑148, ↑215
- [104] R. A. Aziz and M. J. Slaman. An Analysis of the ITS-90 Relations for the Non-Ideality of 3He and 4He : Recommended Relations Based on a New Interatomic Potential for Helium. *Metrologia*, 27:211–219, 1990. ↑148, ↑215
- [105] R. A. Aziz, A. R. Janzen, and M. R. Moldover. Ab initio Calculations for Helium: A Standard for Transport Property Measurements. *Phys. Rev. Lett.*, 74:1586–1589, 1995. ↑148, ↑215
- [106] A. R. Janzen and R. A. Aziz. An accurate potential energy curve for helium based on ab initio calculations. *J. Chem. Phys.*, 107:914–919, 1997. ↑148, ↑215

- [107] T. Korona, H. L. Williams, R. Bukowski, B. Jeziorski, and K. Szalewicz. Helium dimer potential from symmetry-adapted perturbation theory calculations using large Gaussian geminal and orbital basis sets. *Journal of Chemical Physics*, 106:5109, 1997. ↑148, ↑215
- [108] R. J. Gdanitz. Accurately solving the electronic Schrödinger equation of atoms and molecules using explicitly correlated (r12-)MR-CI. VI. The helium dimer (He_2) revisited. *Mol. Phys.*, 99:923–930, 2001. ↑148, ↑215
- [109] M. Jeziorska, W. Cencek, K. Patkowski, B. Jeziorski, and K. Szalewicz. Pair potential for helium from symmetry-adapted perturbation theory calculations and from supermolecular data. *Journal of Chemical Physics*, 127:124303, 2007. ↑148, ↑215
- [110] K. Fehre. Persönliche Mitteilung. 2016. ↑152
- [111] F. Wiegandt. *Iondynamics in helium nanoclusters after Interatomic Coulombic Decay*. Master’s thesis, Goethe Universität Frankfurt am Main, September 2015. ↑153
- [112] T. Jahnke. Interatomic and intermolecular Coulombic decay: the coming of age story. *J. Phys. B*, 48:082001, 2015. ↑153
- [113] G. W. F. Drake, J. Patel, and A. van Wijngaarden. Lifetime of the 2p state in He II. *Phys. Rev. A*, 28(6), 1983. ↑153
- [114] D. Blume. Persönliche Mitteilung. 2016. ↑155, ↑161, ↑163, ↑165, ↑194, ↑195
- [115] N. Sisourat, N. V. Kryzhevoi, P. Koloenc, S. Scheit, T. Jahnke, and L. S. Cederbaum. Ultralong-range energy transfer by interatomic Coulombic decay in an extreme quantum system. *Nature Physics*, 6:508–511, 2010. ↑155, ↑160, ↑195
- [116] N. Sisourat and S. Kazandjian. Persönliche Mitteilung. 2016. ↑156, ↑163
- [117] R. Santra, J. Zobeley, and L. S. Cederbaum. Electronic decay of valence holes in clusters and condensed matter. *Phys. Rev. B*, 64(245104), 2001. ↑156
- [118] A. Hellfritsch. *Größenabhängigkeit des Interatomic Coulombic Decay am Beispiel des Helium*. Bachelorarbeit, Goethe Universität Frankfurt am Main, 2015. ↑156
- [119] J. M. Bizau and F. J. Wuilleumier. Redetermination of absolute partial photoionization cross section of He and Ne atoms between 20 and 300 eV photon energy. *J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom.*, 1995. ↑158

- [120] T. Jahnke. Persönliche Mitteilung. 2016. ↑159, ↑195
- [121] 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. P. H. Schmidt, M. Schöffler, G. Schiewietz, N. Sisourat, T. Jahnke, and R. Dörner. Interatomic-Coulombic-decay-induced recapture of photoelectrons in helium dimers. *Phys. Rev. A*, 90:022515, 2014. ↑162, ↑164
- [122] N. Halberstadt and K. C. Janda. The resonant charge hopping rate in positively charged helium clusters. *Chem. Phys. Lett.*, 282:409–412, 1998. ↑163
- [123] J. Seong, K. C. Janda, N. Halberstadt, and F. Spiegelmann. Short-time charge motion in He_n^+ clusters. *J. Chem. Phys.*, 109:10873, 1998. ↑163
- [124] R. Wehlitz, I. A. Sellin, O. Hemmers, S. B. Whitfield, P. Glans, H. Wang, D. W. Lindle, B. Langer, N. Berrah, J. Viefhaus, and U. Becker. Photon energy dependence of ionization-excitation in helium at medium energies. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 30(2):L51, 1997. ↑169
- [125] B. Friedrich, M. Gupta, and D. Herschbach. Probing weakly-bound species with nonresonant light: Dissociation of He_2 induced by rotational hybridization. *Collect. Czech. Chem. Commun.*, 63:1089–1093, 1998. ↑172
- [126] M. Leshchko and B. Friedrich. Probing weakly bound molecules with nonresonant light. *Phys. Rev. Lett.*, 2009. ↑172
- [127] K. Schnorr, A. Senftleben, M. Kurka, A. Rudenko, L. Foucar, G. Schmid, A. Broska, T. Pfeifer, K. Meyer, D. Anielski, R. Boll, D. Rolles, M. Kübel, M. F. Kling, Y. H. Jiang, S. Mondal, T. Tachibana, K. Ueda, T. Marchenko, M. Simon, G. Brenner, R. Treusch, S. Scheit, V. Averbukh, J. Ullrich, C. D. Schröter, and R. Moshammer. Time-Resolved Measurement of Interatomic Coulombic Decay in Ne_2 . *Phys. Rev. Lett.*, 111:093402, Aug 2013. ↑173
- [128] M. Lewerenz. Structure and energetics of small helium clusters: Quantum simulations using a recent perturbation pair potential. *J. Chem. Phys.*, 106(11):4596, 1997. ↑215
- [129] J. B. Anderson. An exact quantum Monte Carlo calculation of the helium-helium intermolecular potential. II. *J. Chem. Phys.*, 115(10):4546, 2001. ↑215

-
- [130] R. Hellmann, E. Bich, and E. Vogel. Ab initio potential energy curve for the helium atom pair and thermophysical properties of dilute helium gas. I. Helium-helium interatomic potential. *Mol. Phys.*, 105(23-24):3013–3023, 2007. ↑215

Abbildungsverzeichnis

2.1.	Schematische Darstellung der Linearkombination zweier Atomorbitale zu einem Molekülorbital für den Grundzustand von H_2 (links) und He_2 (rechts).	14
2.2.	Lennard-Jones Potentiale für homonukleare Edelgas-Dimere.	16
2.3.	Potential und Wahrscheinlichkeitsdichte der Grundzustandswellenfunktion von He_2 nach [22].	18
2.4.	Berechnete Bindungsenergie D_0 und mittlerer Bindungsabstand $\langle R \rangle$ für 4He_2 .	19
2.5.	Ausdehnung des Heliumdimers (rot) unter der Annahme 1 a.u. sei so groß wie ein durchschnittlicher Arbeitsweg (15 km) oder der Abstand zwischen Sonne und Erde (1 AE) auf logarithmischer Skala.	20
3.1.	Schematischer Aufbau zur Beugung eines Gasstrahls aus Heliumatomen und -clustern aus [35].	24
3.2.	Kollisionsfrequenz in Abhängigkeit vom Abstand zur Düse x/D in Einheiten des Düsendurchmessers D .	27
3.3.	(links) Schematische Darstellung einer <i>Freien Jet-Expansion</i> (aus [39] nach [40]). (rechts) Stromlinien und Verteilungen der Mach Zahl M und der Entropieänderung Δs .	28
3.4.	Gemessene Anteile verschiedener Clustergrößen (gefüllte Symbole) in Abhängigkeit vom Vordruck p_0 an der Düse bei Temperaturen von 6, 12 und 30 K aus [37].	29
3.5.	Gemessene Anteile verschiedener Clustergrößen in Abhängigkeit vom Vordruck p_0 an der Düse bei Temperaturen von 8 und 11,9 K.	30
3.6.	(links) Beugung eines Laserstrahls an einem optischen Gitter (von D-Kuru unter CC BY-SA 3.0). (rechts) Schematische Darstellung der Beugung an einem Transmissionsgitter.	31
3.7.	Schematische Darstellung der Ausbreitung ebener Wellen hinter unterschiedlichen Blenden.	31
3.8.	Intensitäten von Haupt- und Nebenmaxima (idealisiert) nach Beugung an einem Gitter aufgetragen gegen den Gangunterschied δs .	32

4.1. Vereinfachte Darstellung der Ionisationswahrscheinlichkeit $P(b)$ um die Trajektorie eines α -Teilchens.	38
4.2. Totaler Wirkungsquerschnitt der Photoionisation von Helium (1S Grund- zustand).	44
4.3. Winkelverteilungen des Wirkungsquerschnittes linear polarisierter Photo- nen für β -Parameter von -1, 0, 1 und 2.	45
4.4. Ionisationswahrscheinlichkeiten in Abhängigkeit der Photonendichte für die Ionisation von Helium.	46
4.5. Überlagerung des atomaren He-Potentials $V(r)$ (grün) und des starken Laserfeldes F (blau).	47
4.6. Elektrische Feldstärke eines Laserpulses $F(t)$ während einer Laserperiode.	49
4.7. Vergleich der Ionisationswahrscheinlichkeit nach theoretischen Modellen (ADK, PPT und SFA) mit Messdaten von Walker et al.[68]	50
4.8. Ionisationsrate in Abhängigkeit der Impulse $p_{\parallel}$ und $p_{\perp}$ für linear polari- siertes Licht	51
4.9. Schemata von Zwei-, Drei- und Vierniveausystemen.	52
4.10. Schematische Darstellung eines Laserresonators.	54
4.11. Vereinfachte Darstellung des Aufbaus zum Kompensation der Dispersion eines Laserstrahls.	56
4.12. Schematische Darstellung des verwendeten Lasersystems.	57
4.13. Breite eines Gauß-Strahls $\omega(z)$ als Funktion des Abstandes zum Fokus z	59
4.14. Intensitätsverteilung des Laserfokus bei einer Maximalintensität von $2 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$	60
4.15. Schematische Darstellung eines Undulators.	61
4.16. Phasenbeziehung zwischen Undulatorperiode und elektromagnetischer Wel- le für den Fall das die Resonanzbedingung erfüllt ist.	64
4.17. Erzeugung von Mikrobunchen aufgrund der Geschwindigkeitsdifferenz zwi- schen elektromagnetischer Welle und Elektronen ($c-v_y$).	65
4.18. Schematisches Layout der FLASH Anlage.	66
5.1. CAD-Modell des experimentellen Aufbaus.	68
5.2. CAD-Zeichnung des experimentellen Aufbaus, geschnitten in der Ebene senkrecht zur Laserpropagationsrichtung auf Höhe des Laserfokus.	69
5.3. Optische und elektronenmikroskopische Aufnahmen des Transmissionsgit- ters.	71

5.4. Pfad des Gasstrahls zwischen Düse und Laserfokus für den Fall eines unbeweglichen Transmissionsgitters für eine Düsentemperatur von 8 K und eine Blende von 25 μm	74
5.5. Pfad des Gasstrahls zwischen Düse und Laserfokus für den Fall eines beweglichen Transmissionsgitters für eine Düsentemperatur von 8 K und eine Blende von 25 μm	75
5.6. Beugungsbildaufnahme mit CoboldPC bei Einsatz eines Heliumgasstrahls bei T_0 von 12 K und p_0 von 1,5 bar.	76
5.7. Beugungsbildaufnahme mit CoboldPC bei Einsatz eines Heliumgasstrahls bei T_0 von 8 K und p_0 von 1,2 bar.	77
5.8. Beugungsbildaufnahme mit CoboldPC bei Einsatz eines Heliumgasstrahls bei T_0 von 8 K und p_0 von 1,2 bar unter zwei verschiedenen Bedingungen auf die Ionenflugzeit.	78
5.9. Aufnahmeserie von Beugungsbildern bei Einsatz unterschiedlicher Schlitzblenden vor dem Transmissionsgitter.	78
5.10. Schema des Gasstrahls zur Darstellung des Zusammenhanges zwischen der Breite der Quelle Q , der Schlitzblende S und der Beugungsordnungen B . .	80
5.11. Berechnete Quellgröße in Abhängigkeit der Düsentemperatur T_0 (links) und des Vordrucks p_0 (rechts)	81
5.12. Aufnahmeserie von Beugungsbildern bei unterschiedlichen Düsentemperaturen T_0	82
5.13. Aufnahmeserie von Beugungsbildern bei unterschiedlichen Vordrücken an der Düse p_0	82
5.14. Beugungsbilder bei Einsatz eines Neongasstrahls (links) und eines Wasserstoffgasstrahls (rechts, log. Darstellung).	83
5.15. Zeitliche Veränderung der Partialdrücke in der Reaktionskammer während des Ausheizvorganges (oben) und der zugehörige Temperaturverlauf. . . .	85
5.16. CAD-Modell der differentiellen Pumpstufe.	88
5.17. Aufbau und Funktion des MCPs.	90
5.18. Schematische Darstellung der hexagonalen Anode.	91
5.19. CAD-Modell des Spektrometers.	93
5.20. CAD-Modell des Beamdumps.	96
6.1. Trajektorien im verwendeten Spektrometer.	102
6.2. Methoden zur Extraktion der zeitlichen Position eines Pulses.	104

6.3.	Differenz zweier Methoden der Positionsbestimmung von Pulsen (CFD- und Maximum-Methode).	106
6.4.	Flugzeitspektrum (links) und Auftreffort von Ionen einer selektierten Flugzeit (rechts) für die Ionisation von neonhaltigem Restgas durch FEL-Pulse. 108	
6.5.	Reaktionspfad der Mehrfachionisation von Neon im Laserfokus (links) und x-Komponente des Auftreffortes der Ionen auf dem Detektor aus Abb. 6.4 (rechts).	109
7.1.	Bestimmung des Flugzeitnullpunktes t_0 aus dem Achsenabschnitt (Detail) einer Regressionsgeraden.	114
7.2.	Vergleich von O ₂ -Referenzmessung [93] (schwarz) und O ₂ -Kalibrierungsmessung am Ti:Sa-Laser (rot).	115
7.3.	(links) KER-Verteilung des Aufbruchs von Ar ₂ aus Messung (Punkte) und Theorie (schwarze Linie). (rechts) KER des Aufbruchs von Ar ₂ , aufgetragen gegen den Winkel zwischen Aufbruchsrichtung und E-Feld-Richtung $\cos(\vartheta)$	116
7.4.	KER-Verteilung des Aufbruchs von He ₂ entsprechend der He ₂ -Grundzustandswellenfunktion nach [22] (schwarz) neben der KER-Verteilung (rot), die sich aufgrund der KER-abhängigen ADK-Ionisationswahrscheinlichkeiten (blau) ergibt. . . .	118
7.5.	Beugungsbild der im Gasjet enthaltenen Heliumatome und -cluster zur Wahl von He ₂ für die Messung am Ti:Sa-Laser.	119
7.6.	Flugzeit des zweiten Ions in Abhängigkeit von der des ersten.	120
7.7.	(links) Vergleich der KER-Verteilungen von He ₂ nach klassischer Rechnung (schwarz) und quantenmechanischer Rechnung (rot). (rechts) Betragsquadrat der Kontinuumswellenfunktion in Abhängigkeit von KER und Abstand R.	122
7.8.	Abstandsverteilung von He ₂ , gemessen nach der Ionisation von He ₂ mit Ti:Sa-Laserpuls, die linear in Richtung des Gasstrahls polarisiert sind. .	123
7.9.	Innerer Bereich der Abstandsverteilung von He ₂ im Vergleich mit theoretischen Berechnungen von Luo et al. LM2M2* [21] und Przybytek et al. ECG [22].	124
7.10.	He ₂ -Potentialkurve von Przybytek et al. (schwarz, [22]).	124
7.11.	Gemessene Abstandsverteilungen von He ₂ in logarithmischer Darstellung für die Messungen mit linearer Polarisation parallel zum Gasstrahl (schwarz) und in E-Feld-Richtung (rot).	125

- 7.12. KER (**links**) und den Abstand R (**rechts**) von He₂ aufgetragen gegen den Winkel zwischen Aufbruchrichtung des Dimers und E-Feld-Richtung $\cos(\vartheta)$. 125
- 7.13. Vergleich der Summenimpulse aus der Messung mit Polarisation parallel zum Gasstrahl (y-Achse) (A) und der Messung mit Polarisation in E-Feld-Richtung (z-Achse) (B). 127
- 7.14. Ionische Impulse durch Coulomb-Explosion und Laserfeld (rot, blau) neben den messbaren Impulsen (gestrichelt). (gleichgerichtete Impulse) . . . 128
- 7.15. Ionische Impulse durch Coulomb-Explosion und Laserfeld (rot, blau) neben den messbaren Impulsen (gestrichelt). (entgegengesetzte Impulse) . . 128
- 7.16. Bindungsenergien von He₂ in verschiedenen Raumwinkelbereichen ($\Delta\cos(\vartheta) = 0,1$) im Vergleich zu den ermittelten Werten für den Gesamtbereich ($0,2 < \cos(\vartheta) < 0,95$). 130
- 7.17. Abhängigkeit der ermittelten He₂-Bindungsenergie vom Intervall der exponentiellen Kurvenanpassung. 131
- 7.18. Auswirkung einer künstlich reduzierten Auflösung auf die ermittelte He₂-Bindungsenergie. 132
- 7.19. Beispiel eines aufgezeichneten Analogpulses und der Pulsform nach Anwendung des CFD-Algorithmus. 133
- 7.20. Bestimmung des Flugzeitnullpunktes t_0 aus dem Achsenabschnitt (Detail) einer Regressionsgeraden an mehrere Flugzeiten von Ionen mit bekanntem Masse-zu-Ladung-Verhältnis. 134
- 7.21. Vergleich von N₂-Referenzmessung [98] und N₂-Kalibrierungsmessung an FLASH. 135
- 7.22. (**links**) Flugzeit gegen Auftreffort in x-Richtung von Ionen aus dem dissoziativen Aufbruch von N₂O für einen schmalen Schnitt in y-Richtung. (**rechts**) Energie des detektierten Ions gegen den Winkel zwischen dessen Impulsvektor und der Richtung des elektrischen Feldes im Spektrometer. . 136
- 7.23. (**links**) Vergleich der gemessenen KER-Verteilung des Aufbruchs von Ne₂ mit der berechneten Verteilung nach Gleichung 7.3. (**rechts**) Darstellung der gemessenen KER-Verteilung gegen den Winkel $\cos(\vartheta)$ zwischen dem Relativimpuls der detektierten Ne⁺-Ionen p_{rel} und der Richtung des elektrischen Feldes im Spektrometer. 137
- 7.24. (**links**) Auftreffort von Ionen auf dem Detektors bei ortsabhängig reduzierter Nachweiseffizienz. (**rechts**) Ionensignal in Abhängigkeit der radialen Auftreffposition auf den Detektor. 138

7.25. Relativimpulsverteilung der He ₂ -Messung am FLASH in der Ebene senkrecht zur E-Feld-Richtung für Ionenpaare, deren Summenimpuls in jeder Raumrichtung kleiner als ± 3 a.u. ist.	139
7.26. Gemessene Abstandsverteilung von He ₂ in logarithmischer Darstellung.	140
7.27. KER (links) und den Abstand R (rechts) von He ₂ aufgetragen gegen den Winkel zwischen Aufbruchrichtung des Dimers und E-Feld-Richtung $\cos(\vartheta)$	141
7.28. Vergleich der Summenimpulsverteilung nach zweifacher Photoionisation bei linearer Polarisierung in y-Richtung aus Simulationsdaten und der Messung.	141
7.29. Summenimpulsbereiche A und B (links) mit zugehörigen normierten KER-Verteilungen (rechts).	142
7.30. Vergleich der gemessenen Abstandsverteilungen von He ₂ in den beiden Bereichen des Summenimpulses A und B.	143
7.31. Bindungsenergien von He ₂ in verschiedenen Raumwinkelbereichen mit $\Delta\cos(\vartheta) = 0,1$ (blau) im Vergleich zum ermittelten Wert für den Gesamtbereich mit $\cos(\vartheta) > 0,4$ (rot).	145
7.32. Abhängigkeit der ermittelten He ₂ -Bindungsenergie vom Intervall der exponentiellen Kurvenanpassung.	146
8.1. Übersicht über experimentell bestimmte Werte für die Bindungsenergie des Heliumdimers und Ergebnisse unterschiedlicher theoretischer Modelle.	148
8.2. Gemessene Verteilungen der He ₂ -Teilchendichte im Vergleich mit Ergebnissen theoretischer Modelle von Przybytek et al.[22] und Luo et al. (LM2M2*)[21] im Bereich klassisch erlaubter Abstände.	149
8.3. Gemessene Verteilungen der He ₂ -Teilchendichte im Vergleich mit Ergebnissen theoretischer Modelle von Przybytek et al.[22] und Luo et al. (LM2M2*)[21] in exponentieller Darstellung.	150
8.4. Vergleich der He ₂ -Bindungsenergie aus der FEL-Messung mit Modellrechnungen unter Einbeziehung unterschiedlich vieler, über die Born-Oppenheimer-Näherung (BO) hinausgehender Effekte.	151
9.1. Potentiale der beteiligten Zustände beim Ablauf des ICD-Prozess in He ₂ aus [49].	154
9.2. Berechnete Wahrscheinlichkeitsdichte der Vibrationszustände in He ₂ ⁺ : ² Π _g : 2p _{x,y} (bunt) neben den Grundzustandswellenfunktionen von He ₂ , He ₃ , He ₄ und He ₆ (Graustufen) von Przybytek et al.[22] und D. Blume[114].	155
9.3. Beugungsbildaufnahmen zur Wahl der Messposition.	156

9.4. Vergleich der KER-Verteilungen nach Ablauf des ICD in Heliumclustern der Größe $N = 2, 3, 4$ und 6 neben Messungen mit unbestimmter Clustergröße von Trinter et al.[49] und Jahnke et al.[120].	159
9.5. Berechnete KER-Verteilung nach Ablauf des ICD im $\text{He}_2^{*+}(n=2)$ -System aus [115].	160
9.6. Berechnete He-He Paar-Abstandsverteilungen für Heliumcluster der Größe $N = 2$ bis 10	161
9.7. Vergleich der gemessenen He-He Paar-Abstandsverteilungen von Heliumclustern der Größe $N = 2, 3, 4$ und 6 mit den berechneten Verteilungen aus Abb. 9.6.	162
9.8. Vergleich der korrigierten Abstandsverteilungen von He_2 , He_3 , He_4 und He_6 (helle Farben) mit den entsprechenden theoretischen Berechnungen (punktlose Linien).	164
9.9. Vergleich der gemessenen Abstandsverteilungen von He_4 (links) und He_6 (rechts) mit Modelldaten von Blume[114] und modifizierten Modelldaten (blau), für die eine Ladungsmigration innerhalb der Pulsdauer des Lasers von 100 fs berücksichtigt wurde.	165
10.1. Gemessene Abstandsverteilungen von He_2 (FLASH), ICD (FLASH) und Knock-Off[46].	170
A.1. Restgasdruck der Reaktionskammer nach Ausheizen der Kammer und Einsatz von Getterpumpe und Kühlfalle während der Strahlzeit am FLASH.	212
A.2. Detaillierte Darstellung der Partialdrücke in der Reaktionskammer während des Ausheizvorganges.	213
A.3. Auftreffort in x -Richtung gegen die Flugzeit der Ionen aus der Messung am FLASH.	214

Tabellenverzeichnis

4.1. Parameter von FLASH (aus [78, 62])	66
5.1. Raten von detektierten Aufbrüchen nach Ionisation der ersten Beugungs- ordnung im Laser-Fokus bei unterschiedlichen Expansionstemperaturen T_0 und -drücken p_0	73
5.2. Zusammenhang zwischen der Spaltbreite S und der Halbwertsbreite der Beugungsmaxima (FWHM) sowie der Ionenrate.	79
6.1. Übersicht über Detektor- und Spektrometermaße und Felder für die Mes- sungen am Ti:Sa-Laser und die beiden Messreihen am FEL.	102
6.2. Tabelle mit Einstellungen, die für den Software-CFD-Algorithmus ver- wendet wurden.	105
7.1. Vergleich von Referenzwerten aus [93] und Messwerten des O_2 -Aufbruchs.	114
7.2. Kalibrierte Spektrometer- und Detektorparameter für die He_2 -Messung am Ti:Sa-Laser.	117
7.3. Vergleich von Referenzwerten aus [98] und Messwerten des N_2 -Aufbruchs.	135
7.4. Mittlere relative Abweichungen der Aufbruchsennergien entlang ϑ	136
7.5. Kalibrierte Spektrometer- und Detektorparameter für die He_2 -Messung am FEL FLASH.	137
9.1. Gasstrahl- und Beugungsgitter-Einstellungen der ICD Messungen.	157
9.2. Kalibrierte Spektrometer- und Detektorparameter bei ICD-Messung an FLASH.	158
A.1. Umrechnungsfaktoren zwischen SI-Einheiten und atomaren Einheiten.	199
A.2. He-He Potentiale mit Topftiefe E_0 , Minimumabstand r_{min} , Bindungsener- gie E_B , Bindungslänge $\langle R \rangle$, Steulänge a , effektive Reichweite r_0 , Anzahl der Efimovzustände des Trimers N_{Ef}	215

A. Anhang

A.1. Atomare Einheiten

Für die Beschreibung von Atomen und Molekülen eignen sich Einheiten, die im Reich dieser winzigen Systeme eine Bedeutung haben. Statt zu bestimmen wie viele Meter beispielsweise ein Wasser-Molekül misst, wird dessen Länge besser in Vielfachen der Größe des einfachsten atomaren Systems beschrieben, dem Wasserstoffatom¹. Das Wasserstoffatom, oder genauer der Bahnradius seines Elektrons, hat also eine Länge von einer atomaren Einheit (a.u., für engl. atomic unit). Masse wird in atomaren Einheiten in Vielfachen der Elektronenmasse angegeben, Ladung in Vielfachen der Ladung eines Elektrons. In Tabelle A.1 sind die Umrechnungsfaktoren zwischen SI-Einheiten und atomaren Einheiten aufgeführt.

Als Maß der Energie wird in atomaren Einheiten die Hartree-Energie verwendet. Sie hat den doppelten Wert der Bindungsenergie des Elektrons im Grundzustand des Wasserstoffatoms. Eine gute Alternative bietet die Einheit Elektronenvolt (eV). 1 eV ist die kinetische Energie die ein Elektron erhält, wenn es eine Spannungsdifferenz von 1 Volt durchläuft. Energien dieser Größenordnung sind nötig, um Atome zu ionisieren, was diese Einheit geeignet zur Beschreibung atomarer Systeme macht. Photonen im sichtbaren Bereich haben Energien zwischen 1,6 und 3,2 eV, Moleküle in der Erdatmosphäre haben

¹OH-Bindungslänge im Wasser-Molekül: $9,6 \cdot 10^{-11}$ m. Dies entspricht der 1,8-fachen Größe des Wasserstoffatoms.

Größe	a.u.	SI
<u>Länge</u> des e^- Radius in H r_{Bohr}	= 1 a.u. =	$5,2918 \cdot 10^{-11}$ m
<u>e^- Masse</u> m_e	= 1 a.u. =	$9,1095 \cdot 10^{-31}$ kg
<u>e^- Ladung</u> e	= 1 a.u. =	$1,6022 \cdot 10^{-19}$ C
<u>e^- Geschwindigkeit</u> in H v_{Bohr}	= 1 a.u. =	$2,1877 \cdot 10^6$ m/s = $c \cdot 1/137$
<u>Hartree-Energie</u> $m_e(\alpha c)^2$	= 1 a.u. =	$4,3598 \cdot 10^{-18}$ kg m ² /s ² = 27,211 eV
<u>Zeit</u> $\hbar/m_e(\alpha c)^2$	= 1 a.u. =	$2,4189 \cdot 10^{-17}$ s

Tabelle A.1.: Umrechnungsfaktoren zwischen SI-Einheiten und atomaren Einheiten beziehen sich meist auf Eigenschaften des Elektrons e^- im Wasserstoffatom H.

Bewegungsenergien von etwa 0,03 eV.

A.2. Newton-Verfahren

Besteht das Spektrometer aus mehreren Abschnitten mit unterschiedlichen homogenen E-Feldern so setzt sich die gemessene Flugzeit t aus den Zeiten, die das Ion zum Durchlaufen der einzelnen Abschnitte benötigt, zusammen ($t = t_1 + t_2$). In welcher Zeit t_1 der erste Abschnitt durchlaufen wird, hängt von der Startgeschwindigkeit v_0 und der Beschleunigung a_1 durch das elektrische Feld E_1 ab ($a_1 = qE_1/m$ nach Gleichung 5.10).

$$t_1 = -\frac{v_0}{a_1} + \sqrt{\frac{v_0^2}{a_1} + \frac{2s_1}{a_1}} \quad (\text{A.1})$$

Analog ist die Zeit zum Durchlaufen des zweiten Abschnittes

$$t_2 = -\frac{v_1}{a_2} + \sqrt{\frac{v_1^2}{a_2} + \frac{2s_2}{a_2}}, \quad (\text{A.2})$$

wobei hier nicht die Startgeschwindigkeit v_0 eingesetzt werden muss, sondern die Geschwindigkeit v_1 mit der das Teilchen in den Abschnitt s_2 eintritt. Die Geschwindigkeit v_1 ist die Geschwindigkeit, die das Teilchen in Abschnitt s_1 aufgenommen hat, also $\sqrt{v_0^2 + 2s_1a_1}$. Für die gemessene Flugzeit ergibt sich damit

$$\begin{aligned} t &= t_1 + t_2 \\ &= -\frac{v_0}{a_1} + \frac{\sqrt{v_0^2 + 2s_1a_1}}{a_1} - \frac{\sqrt{v_0^2 + 2s_1a_1}}{a_2} + \frac{\sqrt{v_0^2 + 2s_1a_1 + 2s_2a_2}}{a_2}. \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

Zur Rekonstruktion des Startimpulses muss diese Gleichung nach v_0 aufgelöst werden, was analytisch nicht machbar ist. Deshalb wird v_0 , für den Fall, dass das Spektrometer mehrere Feldabschnitte besitzt, mit Hilfe des *Newton-Verfahrens* numerisch bestimmt:

$$v_{0\text{new}} = v_0 - \frac{t(v_0)}{t'(v_0)} \quad (\text{A.4})$$

Zielgröße ist in unserem Fall die Startgeschwindigkeit v_0 , sie wird als Funktion der gemessenen Flugzeit $t(v_0)$ bestimmt.

$$t(v_0) = 0 = -t + \frac{-v_0 + \sqrt{v_0^2 + 2s_1 a_1}}{a_1} + \frac{-\sqrt{v_0^2 + 2s_1 a_1} + \sqrt{v_0^2 + 2s_1 a_1 + 2s_2 a_2}}{a_2} + \frac{-\sqrt{v_0^2 + 2s_1 a_1 + 2s_2 a_2} + \sqrt{v_0^2 + 2s_1 a_1 + 2s_2 a_2 + 2s_3 a_3}}{a_3} \quad \text{für 3 Abschnitte} \quad (\text{A.5})$$

Die Längen der unterschiedlichen Feldabschnitte sind mit s_n notiert, die von den unterschiedlichen Feldern erzeugten Beschleunigungen mit a_n . Die Ableitung der Flugzeit nach der Geschwindigkeit $t'(v_0)$ ist

$$\frac{dt(v)}{dv} = 0 = + \frac{-1 + \frac{v_0}{\sqrt{v_0^2 + 2s_1 a_1}}}{\frac{a_1}{\sqrt{v_0^2 + 2s_1 a_1}}} + \frac{-\frac{v_0}{\sqrt{v_0^2 + 2s_1 a_1}} + \frac{v_0}{\sqrt{v_0^2 + 2s_1 a_1 + 2s_2 a_2}}}{\frac{a_2}{\sqrt{v_0^2 + 2s_1 a_1 + 2s_2 a_2}}} + \frac{-\frac{v_0}{\sqrt{v_0^2 + 2s_1 a_1 + 2s_2 a_2}} + \frac{v_0}{\sqrt{v_0^2 + 2s_1 a_1 + 2s_2 a_2 + 2s_3 a_3}}}{\frac{a_3}{\sqrt{v_0^2 + 2s_1 a_1 + 2s_2 a_2 + 2s_3 a_3}}} \quad \text{für 3 Abschnitte} \quad (\text{A.6})$$

Gleichung A.4 wird so oft angewandt bis sich die resultierende Startgeschwindigkeit v_0 nicht mehr wesentlich ändert ($v_{0_{new}} - v_0 < v_0 \cdot 10^{-6}$).

A.3. Algorithmus zur ADC-Pulsanalyse

Gemessene Pulse werden als Zahlenkolonnen digital gespeichert. Sie werden mit einem Programm (lmf2root) eingelesen, um die Ankunftszeitpunkte der Pulse zu ermitteln. Dazu wird die Funktion *FindPeakCFD* angesprochen. Die essentiellen Schritte dazu sind nachfolgend in Form von Quelltext präsentiert:

```
//Find all signals on the detector with CFD-Algorithm
void Event::FindPeakCFD(int DetID)
{
    Detector *det = 0;
    switch(DetID)
    {
        case 0: det = proj; break;
        case 1: det = rec; break;
        case 2: det = elec;
    }

    //Durchläuft alle Channels eines Events, typischerweise 7 Stk (6 Anoden und 1
    //MCP, ggf noch bunchmarker)
    for (int ch=0; ch < (int)det->Channels.size(); ch++)
```

```

{
if(!det->Channels[ch].isTDC){
double gain = det->Channels[ch].Gain;

//get the right cfd settings
const long delay = (long)det->Channels[ch].cfdset.delay *1000 / det->
Channels[ch].samplerate; //ns -> sampleinterval units (Delay wird in
ADC_parameters.txt in ns angegeben, samplerate ist 800, es wird also
*1000/800 gerechnet)
const double walk = det->Channels[ch].cfdset.walk *gain; //mV -> ADC Bytes
const double threshold = det->Channels[ch].cfdset.threshold * gain; //mV ->
ADC Bytes
const double fraction = det->Channels[ch].cfdset.fraction;
const int abstand = fraction * delay /2; //ungefähre Position eines
Peakmaximums in Bezug auf den Nulldurchgang der im CFD-Algorithmus erzeugt
wird (delay in sample steps). Ein Puls soll nur als solcher erkannt werden,
wenn das Pulsmaximum größer als der threshold ist.

//go through all Pulses in the Channel
for (int pu=0; pu < (int)det->Channels[ch].Pulses.size(); pu++)
{
const int *Data = &det->Channels[ch].Pulses[pu].ZeroSuppressedWaveform[0];
//einlesen der Pulsform als Liste von y-Werten. ZeroSuppressed steht
hier dafür, das die Baseline zwischen Trigger und Pulsbeginn nur als
Zeitabstand gespeichert wird, und nicht ganz viele Nullen in der Liste
stehen.
const long pLength = det->Channels[ch].Pulses[pu].DataLength; //Anzahl der
Listeneinträge aus denen der Puls besteht. Ein Listeneintrag entspricht
einer Zeit von 800 ps (bei 1.25 GHz sampling rate)

//copy the waveform to the new array
//if the copy puls is not big enough to hold the original puls then the
container will be resized
det->Channels[ch].Pulses[pu].cfd_array.resize(pLength);
double *tmp1 = &det->Channels[ch].Pulses[pu].cfd_array[0]; //pointer auf ein
Array (das im Moment noch leer ist)
const int *tmp2 = Data; //pointer auf Data (was wiederum ein pointer auf die
Pulsform ist)
for (int i=0;i<pLength;++i)
*tmp1++ = *tmp2++; //hier wird nun Wert für Wert das Array mit den y-
Werten aus der Pulsform gefüllt

//Extrahieren der baseline aus den ERSTEN paar samples jedes Pulses:
const int baseline_n_bins = 10; //Anzahl der bins am Pulsbeginn aus deren
Mittelwert die Höhe der baseline bestimmt werden soll
double baseline_sum = 0.;
double peak_baseline = 0.;
//Höhen sollen nur aufaddiert werden, wenn der Puls überhaupt so viele sample
Punkte enthält:
if(pLength >= baseline_n_bins) {
for (int i=0; i<baseline_n_bins;i++){

```

```

        baseline_sum += det->Channels[ch].Pulses[pu].cfd_array[i]; //Alle Höhen
        werden aufaddiert
    }
    peak_baseline = baseline_sum / baseline_n_bins / gain; //Der Mittelwert
        ist die Höhe der baseline in [mV] (deshalb "/gain")
}
//Extrahieren der baseline aus den LETZTEN paar samples jedes Pulses:
const int baseline_n_bins_end = 10; //Anzahl der bins am Pulsende aus deren
    Mittelwert die Höhe der baseline bestimmt werden soll
double baseline_sum_end = 0.;
double peak_baseline_end = 0.;
//Höhen sollen nur aufaddiert werden, wenn der Puls überhaupt so viele sample
    Punkte enthält:
if(pLength >= baseline_n_bins_end) {
    for (int i=pLength-1; i>(pLength-baseline_n_bins_end-1);i--){
        baseline_sum_end += det->Channels[ch].Pulses[pu].cfd_array[i]; //Alle
        Höhen werden aufaddiert
    }
    peak_baseline_end = baseline_sum_end / baseline_n_bins_end / gain; //Der
        Mittelwert ist die Höhe der baseline in [mV] (deshalb "/gain")
}

// go through the puls, by always loading 1 sample (+ the 3 adjacent samples)
    of the ADC-shape, then the next samples, etc...
for (int i=delay+1; i<pLength-2;++i)
{
    const double fx = det->Channels[ch].Pulses[pu].cfd_array[i]; //the
        original Point at i (___/\_____)
    const double fxd = det->Channels[ch].Pulses[pu].cfd_array[i-delay]; //the
        delayed Point at i (_____\/_)
    const double fsx = -fx*fraction + fxd; //the calculated CFPoint at i (
        Fraction ration ist als parameter einstellbar, z.B. 0.3) Bei fr=1 heben
        sich mögliche Fehler durch eine baseline gerade auf.

    const double fx_1 = det->Channels[ch].Pulses[pu].cfd_array[i+1]; //the
        original Point at i+1
    const double fxd_1 = det->Channels[ch].Pulses[pu].cfd_array[i+1-delay]; //
        the delayed Point at i+1
    const double fsx_1 = -fx_1*fraction + fxd_1; //the calculated CFPoint at i
        +1 (Fraction ration ist als parameter einstellbar, z.B. 0.3)

    //check wether the criteria for a Peak are fulfilled
    if (((fsx-walk) * (fsx_1-walk)) <= 0 ) { //one point above one below the
        walk (nur dann wird das Produkt kleiner Null. Damit wird getestet ob
        genau bei dem Punktepaar gerade der Nulldurchgang liegt)
    const double fxt = det->Channels[ch].Pulses[pu].cfd_array[i-abstand]; //
        Höhe des Originalpulses an einer Stelle etwas weiter links, dort wo das
        Peakmaximum liegen sollte

    //if (TMath::Abs(fx) > (threshold)) //original point above the threshold (
        in respect to pulse baseline)? Beachte: Hier wird immernoch in ADC-

```

```

    bytes gerechnet, die baseline in [mV] muss also umgerechnet werden.
if (TMath::Abs(fxt) > (threshold + peak_baseline*gain)) //Ist der Original-
    Punkt (etwas weiter links) über der Schwelle (in respect to pulse
    baseline)? Beachte: Hier wird immernoch in ADC-bytes gerechnet, die
    baseline in [mV] muss also umgerechnet werden.
{
    //--it could be that the first criteria is 0 because one of the Constant
    Fraction Signal Points or both are exactly where the walk is
    if (TMath::Abs(fsx-fsx_1) < 1e-8) //both points are on the walk
    { //go to next loop until at least one is over or under the walk
        continue;
    }
    else if ((fsx-walk) == 0) //only first is on walk
    { //(einfach den Schleifendurchlauf fortsetzen, nicht abbrechen)
        //this is what we want so: do nothing
    }
    else if ((fsx_1-walk) == 0) //only second is on walk
    { //we want that the first point will be on the walk, so in the next loop
        this point will be the first.
        continue;
    }
}

//later we need two more points, create them here
const double fx_m1 = det->Channels[ch].Pulses[pu].cfd_array[i-1]; //the
    original Point at i-1
const double fxd_m1 = det->Channels[ch].Pulses[pu].cfd_array[i-1-delay];
    //the delayed Point at i-1
const double fsx_m1 = -fx_m1*fraction + fxd_m1; //the calculated CFPoint
    at i-1

const double fx_2 = det->Channels[ch].Pulses[pu].cfd_array[i+2]; //
    original Point at i+2
const double fxd_2 = det->Channels[ch].Pulses[pu].cfd_array[i+2-delay];
    //delayed Point at i+2
const double fsx_2 = -fx_2*fraction + fxd_2; //calculated CFPoint at i+2

// Wir wollen, dass fsx_m1 auf der gleichen Seite von Null ist wie fsx,
    und fsx_2 genauso über oder unter Null ist wie fsx_1.
// Also: (-) * (-) sei > 0
if (((fsx_m1-walk) * (fsx-walk)) <= 0) continue; //Sonst:
    Schleifendurchlauf dieses Peaks abbrechen
// Und: (+) * (+) sei > 0
if (( (fsx_1-walk) * (fsx_2-walk)) <= 0) continue; //Sonst:
    Schleifendurchlauf dieses Peaks abbrechen

// find x_0a (Nulldurchgang_a) with a linear interpolation between the
    two points
const double m_a = fsx_1-fsx; //Steigung bestimmen: (fsx_1 - fsx)/(i+1 -
    i);
if(m_a == 0.) continue; //per continue wird die loop-expr-Klausel
    ausgeführt, dieser Schleifendurchlauf wird abgebrochen und der

```



```

    nächste Schleifendurchlauf gestartet
const double xLin_a = i + (walk - fsx)/m_a; //Nullstelle berechnen: PSF
    fx = (x - i)*m + cfs[i]
//--find x_0b (Nulldurchgang_b) with a linear interpolation between the
    two other points--//
const double m_b = (fsx_2-fsx_m1)/3.; //Steigung bestimmen: (fsx_2 -
    fsx_m1)/(i+2 -(i-1));
if(m_b == 0.) continue;
const double xLin_b = i-1 + (walk - fsx_m1)/m_b; //Nullstelle berechnen:
    PSF fx_m1 = (x - (i-1))*m + cfs[i]
//arithmetisches Mittel zwischen den beiden Nullstellen ergibt noch
    bessere/genauere Nullstelle (da hier die Unsicherheit, die auf jedem
    Messpunkt liegt, reduziert wird)
const double pos = (xLin_a + xLin_b)/2.;
const double m = (m_a + m_b)/2.;
//std::cout << "\n xLin = " << xLin << ";    xLin_b = "<< xLin_b << ";
    xLin_b-xLin = "<< xLin_b-xLin;

if (pos > pLength) {std::cout << "pos > pLength !!!";}

if(fsx < fsx_1 && fsx_m1 < fsx_2) //check polarity first, only pulses
    with correct polarity are added as true pulses
{
    Peak newPeak;
    // set all known settings
    newPeak.is_valid = true;
    newPeak.was_used_in_fit = false;
    newPeak.Pk_from_Pu = pu;
    newPeak.TimefromFit = -1.;
    newPeak.Cfd = pos; //newPeak.Cfd entspricht der TDC-Zeit des Pulses in
        [sampling-steps]
    newPeak.Slope = m;
    newPeak.runtime = -100.;
    newPeak.Time = ((newPeak.Cfd * det->Channels[ch].samplerate) + det->
        Channels[ch].Pulses[pu].timestamp) *0.001; //newPeak.Time
        entspricht der TDC-Zeit des Pulses in [ns]

    newPeak.peakbaseline = peak_baseline;
    newPeak.peakbaseline_end = peak_baseline_end;

    startstop(ch, pu, &newPeak, det);

    // height stuff
    maximum(ch, pu, &newPeak, det);
    //if (!newPeak.is_valid) {
    //    return;
    //}

    // fwhm stuff
    fwhm(ch, pu, &newPeak, det);

```



```

    //or we go from the previous one (i-1) to the actual one (i) through the
    baseline
    for (i = center; i < pulslength; ++i)
        if ((abs(Data[i]/*-baseline*/) < threshold) || (((Data[i]/*-baseline*/) * (
            Data[i-1]/*-baseline*/)) < 0) )
            break;
    int stop = i;

    newPeak->Startpos = start;
    newPeak->Stoppos = stop;
}

// Function to calculate Maximum of Peak (Height and position)
void Event::maximum(int ch, int pu, Peak *newPeak, Detector *det)
{
    assert(ch >= 0 && ch < 7);
    assert(newPeak);
    assert(newPeak->Cfd);

    //this function will find the maximum of the peak and its position
    const double Gain = det->Channels[ch].Gain;
    const int *Data = &det->Channels[ch].Pulses[pu].ZeroSurpressedWaveform[0];
    const long pLength = det->Channels[ch].Pulses[pu].DataLength;
    const int start = newPeak->Startpos;
    const int stop = newPeak->Stoppos;
    const long delay = (long)det->Channels[ch].cfdset.delay *1000 / det->
        Channels[ch].samplerate; //ns -> sampleinterval units (Delay wird in
        ADC_parameters.txt in ns angegeben, samplerate ist 800, es wird also
        *1000/800 gerechnet)
    const long center = newPeak->Cfd;

    int start_ = 1;
    if (center-2*delay > 1) start_ = center-2*delay; //nur rund um den
        Nulldurchgang nach dem Pulsmaximum suchen.
    int stop_ = pLength-2;
    if (center+0.1*delay < (pLength-2)) stop_ = center+0.1*delay; //nur rund um
        den Nulldurchgang nach dem Pulsmaximum suchen

    double maximum_ = Data[start_];
    int maxpos = start_;

    //nur rund um den Nulldurchgang nach dem Pulsmaximum suchen
    for (int i = start_; i < stop_++; i)
    {
        if (abs(Data[i]) > maximum_)
        {
            maximum_ = abs(Data[i]);
            maxpos = i;
        }
    }
}

```

```

}

newPeak->Maxpos = maxpos;
newPeak->Maximum = maximum_; //in ADC Bytes
newPeak->Height = (double)maximum_ / Gain; //ADC Bytes -> mV

//Feintuning der Maxpos, je nach relativer Höhe der benachbarten Punkte:
assert(maxpos > 0);
assert(maxpos+1 < det->Channels[ch].Pulses[pu].DataLength);
double diff_max_l = Data[maxpos] - Data[maxpos-1]; //Höhenunterschied
    zwischen Maximum und dem Punkt links davon
double diff_max_r = Data[maxpos] - Data[maxpos+1]; //Höhenunterschied
    zwischen Maximum und dem Punkt rechts davon
double diff_ratio = (diff_max_l - diff_max_r) / (diff_max_l + diff_max_r);
    //ergibt 1 wenn diff_max_r = 0, -1 wenn diff_max_l = 0 und 0 wenn
    diff_max_r = diff_max_l
double better_maxpos = maxpos + 0.5*diff_ratio; //Verschiebt die maxpos um
    0.5 sampleschritte nach links, wenn der Punkt links neben dem Maximum
    genauso hoch ist, bzw nach rechts, wenn der Punkt rechts genauso hoch ist
    .
if(fabs(better_maxpos-maxpos) < 1) newPeak->Better_Maxpos = better_maxpos;
else newPeak->Better_Maxpos = maxpos;
}

// Function to calculate FWHM of Pulse
void Event::fwhm(int ch, int pu, Peak *newPeak, Detector *det)
{
    const int *Data = &det->Channels[ch].Pulses[pu].ZeroSuppressedWaveform[0];
    const long pLength = det->Channels[ch].Pulses[pu].DataLength;

    //get peak fwhm
    long fwhm_l = 0;
    long fwhm_r = 0;
    const double HalfMax = 0.5* newPeak->Maximum;

    //go from middle to left until 0.5*height (find first point that is above 0.5
    height)
    for (int i=newPeak->Maxpos; i>=0;--i)
    {
        if (abs(Data[i]) < HalfMax)
        {
            fwhm_l = i+1;
            break;
        }
    }
}

//go from middle to right until 0.5*height (find last point that is still
    above 0.5 height)
    for (int i=newPeak->Maxpos; i<pLength;++i)

```

```

{
    if (abs(Data[i]) < HalfMax)
    {
        fwhm_r = i-1;
        break;
    }
}

//if we found a right side and a left side, then compute the fwhm with a
//linear interpolation between the points that are left and right from
//where the fwhm is, else return here
if (!fwhm_r || !fwhm_l)
    return;

double lx[4];
double ly[4];
lx[0] = fwhm_l-2; ly[0] = abs(Data[fwhm_l-2]);
lx[1] = fwhm_l-1; ly[1] = abs(Data[fwhm_l-1]);
lx[2] = fwhm_l-0; ly[2] = abs(Data[fwhm_l-0]);
lx[3] = fwhm_l+1; ly[3] = abs(Data[fwhm_l+1]);

double rx[4];
double ry[4];
rx[0] = fwhm_r-1; ry[0] = abs(Data[fwhm_r-1]);
rx[1] = fwhm_r-0; ry[1] = abs(Data[fwhm_r-0]);
rx[2] = fwhm_r+1; ry[2] = abs(Data[fwhm_r+1]);
rx[3] = fwhm_r+2; ry[3] = abs(Data[fwhm_r+2]);

double mLeft, cLeft, mRight, cRight;
linearRegression(4, lx, ly, mLeft, cLeft);
linearRegression(4, rx, ry, mRight, cRight);

//y = m*x+c => x = (y-c)/m;
const double fwhm_L = (HalfMax-cLeft)/mLeft;
const double fwhm_R = (HalfMax-cRight)/mRight;

const double fwhm = fwhm_R-fwhm_L;
//set all found parameters
newPeak->Fwhm = fwhm;
newPeak->Width = newPeak->Stoppos - newPeak->Startpos;
newPeak->PosHalfLeft = fwhm_L;
newPeak->PosHalfRight = fwhm_R;
}

void Event::CoM(int ch, int pu, Peak *newPeak, Detector *det)
{
    const double threshold = det->Channels[ch].cfdset.threshold * det->Channels[
        ch].Gain; //mV -> ADC Bytes
    const int *Data = &det->Channels[ch].Pulses[pu].ZeroSuppressedWaveform[0];

```

```

const long pLength = det->Channels[ch].Pulses[pu].DataLength;

//this function goes through the puls from start to stop and finds the center
//of mass
double integral = 0;
double wichtung = 0;
const int start = newPeak->Startpos;
const int stop = newPeak->Stoppos;

for (int i = start; i<=stop;++i)
{
    integral += (abs(-Data[i])-threshold);
    wichtung += ((abs(-Data[i])-threshold)*i);
}
newPeak->Integral = integral;
newPeak->Com = wichtung/integral;
}

```

A.4. Anleitung zum Ausheizen der Vakuumkammer

Nachfolgend werden die Schritte erläutert, die notwendig sind, um die in dieser Arbeit verwendete Vakuumkammer auszuheizen und so einen Restgasdruck von $<1 \cdot 10^{-11}$ mbar zu erreichen. Sämtliche Schritte zielen darauf ab die restgasreduzierenden Zwecke zu erfüllen, die in Abschnitt 5.3.1 erläutert wurden. Abbildung A.2 zeigt die Veränderung der Partialdrücke während des Ausheizvorganges. Die Arbeitsschritte, die während des Vorgangs vorgenommen wurden, sind in diesem Bild stichpunktartig notiert. Die folgende Auflistung orientiert sich an diesen Schritten. Vor Beginn des Ausheizvorganges werden folgende Vorbereitungen getroffen:

- Anbringen der Heizschlangen, -bänder oder -manschetten. Die Abstände zwischen den Heizelementen werden so gewählt, dass eine gleichmäßige Energiezufuhr über den zu heizenden Bereich gewährleistet wird. Heizschlangen dürfen dabei nie übereinander liegen bzw. sich kreuzen.
- Anbringen von Temperatursensoren. Die Position der Sensoren ist so zu wählen, dass jeder Sensor die Temperatur im Bereich eines Heizelementes widerspiegelt.
- Einbau eines Massenspektrometers zur Überwachung der Partialdrücke.
- Einhüllen von Reaktionskammer und allen direkt angrenzenden Rezipienten in Alufolie. Dies erzeugt eine Isolationsschicht und ermöglicht den Aufbau eines Wärmepolsters um den eingehüllten Bereich. Turbomolekularpumpen dürfen nicht ein-

gehüllt werden. Anschlüsse für Vakuummesszellen und Massenspektrometer so einhüllen, dass sie bei Bedarf leicht zugänglich sind.

- Anbringen von Lüftern zum punktuellen Kühlen hitzeempfindlicher Bauteile (z.B. Turbopumpen ohne Kühlwasseranschluss).
- Abpumpen des Rezipienten und Erreichen eines Enddruckes von $1 \cdot 10^{-8}$ mbar.
- Lecktest durchführen und alle gefundenen Lecks schließen.
- Funktionstest von NEG und TSP.
- Nachschlagen der maximal zulässigen Temperatur der verwendeten Bauteile (z.B. Anodendrähte 150°C[85], VAT-Mini-UHV-Schieberventil 250°C, Beamlineventil 150°C, Turbomolekularpumpen 120°C, Massenspektrometer (MKS 250°C, ohne Elektronik), Vakuummesszellen (ITR90 150°C, ohne Elektronik), Sichtflansch (Quarzglas 200°C)).

Sind diese Punkte erfüllt so kann mit dem eigentlichen Ausheizen begonnen werden.

1. Massenspektrometer einschalten (Faraday-Messmethode wählen, MCP-Messmethode ist nicht für hohe Temperaturen geeignet). Verlauf der Partialdrücke stets beobachten.
2. Heizung einschalten. Die Zieltemperatur von 150°C kann am einfachsten bei Einsatz von Temperaturcontrollern erreicht werden. Steht keine automatische Leistungsregelung für die Heizschlangen zur Verfügung müssen die Heizschlangen unter Beobachtung der Temperatur manuell von Dimmern gesteuert werden. Die Zieltemperatur muss reduziert werden, wenn hitzeempfindliche Teile eingebaut wurden.
3. Abwarten bis zum Erreichen der Zieltemperatur. Der Temperaturangleich der gesamten Anlage benötigt mehrere Stunden. Der Restgasdruck steigt währenddessen um mehrere Größenordnungen an (siehe Abb. A.2).
4. Degasen aller Vakuummesszellen und heizbaren Filamente.
5. Bewegen aller beweglichen Teile, um mögliche Totvolumen zu öffnen.
6. Abwarten bis der Partialdruck von Wasserstoff den höchsten Partialdruck bildet. Dies kann mehrere Tage in Anspruch nehmen. Zuvor ist für gewöhnlich der Partialdruck von Stickstoff höher.



Abb. A.1.: Restgasdruck der Reaktionskammer nach Ausheizen der Kammer und Einsatz von Getterpumpe und Kühlfalle während der Strahlzeit am FLASH.

7. Bei Einsatz einer TSP: Alle Filamente degasen (40 min bei 30 A).
8. Je nach zur Verfügung stehender Zeit weiter heizen. Zu erwartende Reduzierung der Partialdrücke ablesbar in Abb. A.2 zwischen Tag 4 und Tag 8.
9. Vor Ende des Heizens: Extraktorröhre ein weiteres Mal degasen.
10. NEG aktivieren (30 min bei 450°C).
11. Ausschalten der Heizung. 20 h für das Abkühlen der Anlage einplanen.
12. Messmethode des Massenspektrometers von Faraday auf MCP umstellen, sobald die Temperatur <50°C liegt.

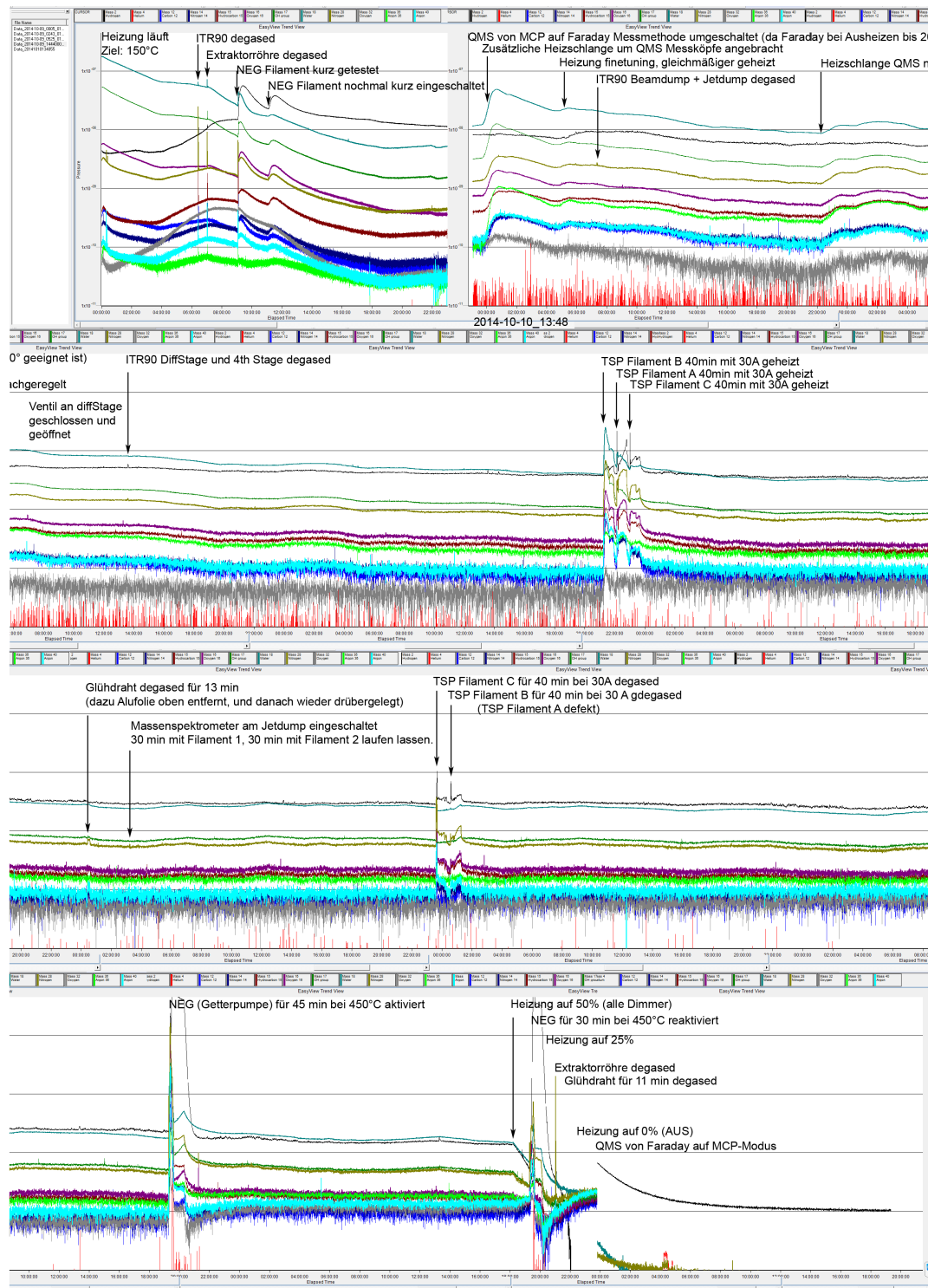


Abb. A.2.: Detaillierte Darstellung der Partialdrücke in der Reaktionskammer während des Ausheizvorganges.

A.5. Weitere Histogramme und Spektren

Die Nachweiseffizienz des Detektors ist abhängig von der Teilchengeschwindigkeit. Dies ist in Abb. A.3 klar erkennbar.

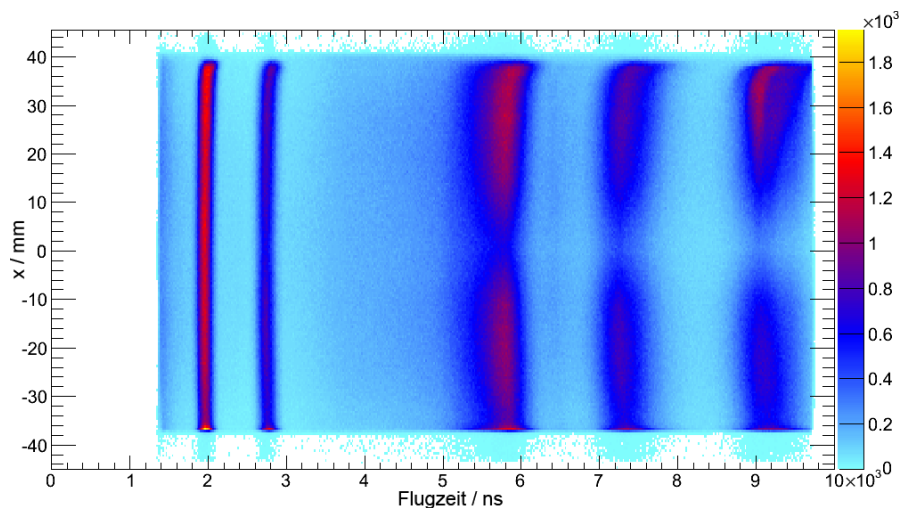


Abb. A.3.: Auftreffort in x-Richtung gegen die Flugzeit der Ionen aus der Messung am FLASH. Die Abhängigkeit der Nachweiseffizienz des Detektors von der Teilchengeschwindigkeit ist um $x = 0$ erkennbar. Dort verlor der Detektor nach hoher Belastung an Effizienz wodurch die Sensitivität auf die Teilchengeschwindigkeit stieg. Je langsamer ein Ion fliegt, desto länger braucht es, um den Detektor zu erreichen, und desto seltener wird es in der Detektormitte nachgewiesen.

Tabelle A.2 gibt eine Übersicht über die Ergebnisse bisheriger Theorien und Experimente zu den Eigenschaften des Heliumdimers. In Abb. 8.1 werden die enthaltenen Werte der Bindungsenergie visualisiert.

Potential	Jahr	E_0 / K	r_{min} / Å	E_B / mK	E_B / neV	dE_B / neV	$\langle R \rangle$ / Å	a / Å	r_0 / Å	N_{Ef}
HFDHE2[100]	1979	10,8	2,9673	-0,835	-71,95			124,27	7,396	0,9
HFIMD[101]	1982	10,741	2,9788	-0,52	-44,81			156,37	7,463	0,97
TT[102]	1984	10,8	2,967	-0,736	-63,42			132,18	7,419	0,92
HFD-B(HE)[103]	1987	10,948	2,963	-1,684	-145,12			88,46	7,277	0,8
HFD-B2(HE)[104]	1990	10,94	2,97	-1,6522	-142,38			89,35	7,283	0,8
LM2M2[19]	1991	10,97	2,9695	-1,305	-112,46		51,9	99,99	7,326	0,83
LM2M2*[21]	1993	10,961	2,9695	-1,176	-101,34		54,6	101,5		
TTY[23, 128]	1995	10,985	2,9721	-1,316	-113,40		51,5	99,52	7,329	0,83
HFD-B3-FC11a[105]	1995	10,956	2,9683	-1,594	-137,36			91	7,291	0,8
HFD-B3-FC11b[106]	1997	10,9473	2,9684	-1,417	-122,11		50,22	96,27	7,305	0,82
SAPT1[107, 106]	1997	11,0514	2,96375	-1,712	-147,53		45,84	87,92	7,268	0,79
SAPT2[107, 106]	1997	11,061	2,96463	-1,794	-154,60		44,87	85,25	7,256	0,78
SAPTunret.[107, 106]	1997			-1,877	-161,75		43,95			
Gdanitz[108]	2001	10,98		-1,67	-143,91	$\pm 9,48$	46,4			
Anderson[129]	2004	10,98		-1,67	-143,91		46,4			
Hellmann[130]	2007	10,997898	2,96766							
Jeziorska[109]	2007	11,006		-1,73	-149,08	$\pm 3,45$	45,6			
Jeziorska ret.[109]	2007			-1,56	-134,43	$\pm 3,45$	47,8			
Przybytek[22]	2010			-1,615	-139,17	$\pm 2,93$	47,1	90,4		
Luo[99]	1996			0,65-1,3	-84,02	$\pm 28,05$	62			
Grisenti[12]	2000			-1,1	-94,79	+17,2/-25,9	52			
Voigtsberger[55]	2014			-1,71	-147	+14,4/-20,4				
Ti:Sa (Jet)	2015			-1,74	-149,8	$\pm 4,4$				
Ti:Sa (TOF)	2015			-1,68	-144,5	$\pm 4,3$				
FEL	2016			-1,76	-151,9	$\pm 13,3$				

Tabelle A.2.: He-He Potentiale mit Topftiefe E_0 , Minimumabstand r_{min} , Bindungsenergie E_B , Bindungslänge $\langle R \rangle$, Steulänge a , effektive Reichweite r_0 , Anzahl der Efimovzustände des Trimers N_{Ef}

Danksagung

Die Durchführung dieser Arbeit wäre ohne die Unterstützung vieler Menschen nicht denkbar gewesen. Deshalb möchte ich an dieser Stelle ein großes Dankeschön aussprechen. Reinhard, du hast mir die Möglichkeit gegeben an einem spannenden Thema zu forschen. In deiner Arbeitsgruppe macht es Spaß zu arbeiten. Und das liegt meinem Empfinden nach daran, dass hier wissenschaftliche Fortschritte an vorderster Front erzielt werden ohne den Blick für Zusammenhalt und verständnisvolles Miteinander zu verlieren. Du hast mir stets Planungssicherheit gegeben, vor Allem im Hinblick auf Familie. Ich genoss die Arbeitsethik, bei der sich nie die Frage stellt ob man einem Kollegen hilft, sondern höchstens wann. Du lebst diese Philosophie und überträgst sie in der Art und Weise deiner Leitung auf die Gruppe.

In diesem Zuge muss auch Till unbedingt genannt werden. Die beobachtbare Kollaborationsfreudigkeit in unserer Gruppe besteht nicht zuletzt aufgrund deines Verständnisses auf die Leute einzugehen und einen gemütlichen Optimismus zu verbreiten. Die Ansage war „Alles wird gut“, und mit deiner Unterstützung wurde auch alles gut. Ihr beide hattet stets ein offenes Ohr für meine Fragen, kombiniert mit einer außerordentlichen Art komplexe Sachverhalte verständlich darzustellen, und habt mich somit fachlich bestens unterstützt.

Bei fachlichen Diskussionen darf die Nennung von Maksim nicht fehlen. Oft stand ich mit dir an meiner Kammer und wir haben besprochen wie wir Probleme beheben oder noch mehr aus der Anlage rausholen können. Und das hat sich letztendlich auch gelohnt! Geerbt habe ich die Kammer von Jörg V., du hast mir gezeigt wie das gute Stück läuft. Wenn es um tiefkalte Gasstrahlen ging war Anton ein hervorragender Ansprechpartner. Achim wusste einfach immer eine Lösung, wenn C++ mal wieder nicht das machte was es sollte. Und auch Markus S. und Lothar waren stets motiviert Verbesserungen für das Kammerdesign und die Datenauswertung zu finden. Ihr beide habt dafür sehr unterschiedliche und bemerkenswerte Ansätze: Während ein Gespräch mit Markus einen stets mit Euphorie beschwingt den nächsten Arbeitsschritt durchzuführen, hinterlässt Lothar einen mit einem fundierten Fachwissen, mit dem auch noch die Probleme, von denen

man gar nicht wusste, geklärt werden können. Horst, du öffnest den Blick Probleme von einer neuen Seite zu Betrachten und schaffst Anreize die Kompetenzen eines Physikers zur Lösung sozialer und technologischer Herausforderungen einzusetzen.

An alle eben genannten geht auch ein Dank für die Unterstützung der Messungen, die ich in der Experimentierhalle in Frankfurt durchgeführt habe. Zusätzlich konnte ich hier auf beide Werkstätten (Feinmechanik und Schlosserei) und die Beschleunigermannschaft zählen.

Die sechswöchige Strahlzeit am FLASH wurde mit der Hilfe vieler Leute gestemmt (Maksim, Jörg V. Anton, Alex S., Carl, Markus W., Hendrik, Alex H., Tobi, Martin P., Flo, Christoph, Christian, Martin R., Gregor, Miriam, Achim, Markus B., Lothar, Markus S., Josh, Till und Reinhard). Und selbst die, die gerade nicht in Hamburg waren, halfen per Ferndiagnose Probleme zu beheben, die leicht das Ende der Strahlzeit hätten bedeuten können (so wie das eines Nachts auftretende Leck, das nach Gregors Einfall durch das punktuelle Abpumpen der Kammeraußenwand geschossen wurde). Danke an Sven für alle Tipps zum bleifreien Löten, die Bereitschaft für Strahlzeit-live-Updates auf das VGC3 und viel wichtiger noch die Freundschaft, die über die Jahre in der Arbeitsgruppe entstanden ist.

Vielen Dank für den Input von theoretischer Seite an Nicolas Sisourat, Sevan Kazandjian und Dörte Blume und für experimentellen Support an Robert Grisenti. Danke an Marianne Frey für die Unterstützung bei allen organisatorischen Belangen und an Klaus, der mir bei vielen Software- und Computerproblemen weiterhalf.

In meinem Büro wurde es nie langweilig. Das lag nicht nur daran, dass die Überbelegung bei Zeiten Christians Detektorkanälen Konkurrenz machte, sondern vor allem an eurer Offenheit über alle physikalischen und unphysikalischen Dinge gerne zu plaudern. Danke für die gute Zeit an Miriam, Christian, Kilian, Jule und Max. Herrliche Diskussionen über so ziemlich alles entstanden auch mit Jonas, wie etwa zu „sind Nanobots eine Lebensform“, „ab wann wird eine Pfanne zum Topf“ oder „Freiheit und Determinismus des menschlichen Handelns“.

Dass ihr mehr wart als nur Kollegen, zeigen alle Unternehmungen über den Unialltag hinaus. Vielen Dank an alle, die bei Beachvolleyball, Mittagspausen mit *switch field*, Konferenzen mit *drei Spiele drei Teams*, Weihnachtsfeiern, Boulder- und Kletterausflügen, Kneipenabenden und Grillfeiern in vor der Experimentierhalle und auf dem Feldberg dabei waren.

Schließlich möchte ich mich für all den Rückhalt und die Sorgenfreiheit bedanken, die ich durch meine Eltern Inge und Michael, sowie durch meinen Bruder Christian erhielt. Auch wenn meine eigene Erfahrung einen Menschen zu formen erst anderthalb Jahre jung ist, zeigt mir dieser Einblick, dass das was ihr für mich getan habt mehr ist, als ich mir vorstellen kann. Diese Erfahrung teile ich mit der Person, die mich in allen Phasen meiner Promotion begleitet hat. Danke, Mara, für deine Unterstützung, mit dir (und Anton) ist das Leben bunter. Danke, dass ihr für mich da seid.