

Photodoppelionisation von H_2 – eine Analogie zum Doppelspalt

Diplomarbeit von
Katharina Kreidi
am Institut für Kernphysik Frankfurt

Vorgelegt beim Fachbereich Physik
der Johann Wolfgang Goethe Universität
Frankfurt am Main

Februar 2005

Für meine Eltern und meine kleine Schwester.

Inhaltsverzeichnis

INHALTSVERZEICHNIS	5
1. EINLEITUNG	7
2. PHYSIKALISCHER HINTERGRUND	11
2.1. Moleküle	11
2.1.1. Molekülorbitale	13
2.2. Die Photoionisation.....	17
2.3. Die Doppelionisation	20
2.3.1. Die Doppelionisation des H ₂ -Moleküls	20
2.4. Analogie des molekularen Systems zum klassischen Doppelspalt.....	23
2.5. Wechselwirkungen zwischen den Elektronen	24
3. DIE REALISIERUNG DES EXPERIMENTES.....	29
3.1. Die Reaktion.....	29
3.2. Die COLTRIMS-Technik	29
3.3. Das Target	31
3.3.1. Der Überschallgasjet.....	31
3.4. Die Synchrotronstrahlung	35
3.4.1. Die verschiedenen Betriebsmodi der Synchrotronanlage	38
3.5. Das Spektrometer	39
3.5.1. Die Flugzeitfokussierung.....	41
3.5.2. Bewegung im elektrischen Feld mit Flugzeitfokussierung.....	42
3.5.3. Die Bewegung im magnetischen Feld	43
3.6. Die Auflösung	45
3.7. Die Detektoren	46
3.7.1. Das Multi-Channel-Plate	46
3.7.2. Die Delay-Line-Anode	47
3.8. Elektronischer Aufbau und Datenaufnahme	48
3.9. Das Vakuum-Kammersystem.....	52
4. DIE DATENAUSWERTUNG.....	57

4.1. Die Kalibration	57
4.1.1. Die Eichung des absoluten Zeitnullpunktes und der Stärke des B-Feldes	57
4.1.2. Die Eichung der Stärke des elektrischen Feldes	59
4.2. Warum Photodoppelionisation?.....	60
4.3. Die Untergrundunterdrückung	61
4.4. Die Berechnung der Impulse der Fragmente	62
5. ERGEBNISSE UND DISKUSSION	67
5.1. Die Impuls- und Energieverteilung.....	67
5.2. Die Winkelverteilung.....	71
5.2.1. Das molekülfeste Koordinatensystem	72
5.2.2. Ergebnisse für den Fall der extrem asymmetrischer Energieaufteilung	73
5.3. Vergleich mit der Theorie.....	75
5.3.1. Abhängigkeit zwischen dem KER und der Winkelverteilung der Elektronen.....	75
5.4. Übergang zur Doppelionisation.....	84
5.4.1. Abhängigkeit der Interferenzstruktur von der Energie des zweiten Elektrons	85
5.4.2. Rekonstruktion der Verteilung durch Faltung	90
6. ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK	97
6.1. Zusammenfassung	97
6.2. Ausblick.....	99
ANHANG	101
1. Herleitung der Gleichung für die Interferenzstruktur des klassischen Doppelspaltes:.....	101
2.1. Herleitung der kubischen Gleichung für die Geschwindigkeit.....	102
2.2. Lösung der kubischen Gleichung für die Geschwindigkeit	103
2.3. Herleitung der Gleichung für die Flugzeit des zweiten Ions in Abhängigkeit von der Flugzeit des ersten Ions.....	104
3. Atomare Einheiten.....	105
DANKSAGUNG.....	107
LITERATURVERZEICHNIS	109

1. Einleitung

Mit stetig wachsendem Fortschritt ist der Mensch heutzutage in der Lage, die Welt im Kleinen und Großen zu erforschen, und sie dabei mehr und mehr zu begreifen. Disziplinen wie die Atomphysik sind hierbei für die Erforschung und das Verständnis des “Kleinen” verantwortlich. Die Atomphysik ist insofern ein bedeutendes Gebiet, als atomare Vorgänge das gesamte Geschehen der uns unmittelbar umgebenden Natur beherrschen. Das Verständnis des Mikrokosmos ist somit die Basis für das Verständnis des Aufbaus unserer Welt, dem Makrokosmos, und des “ganz Großen”, des Universums.

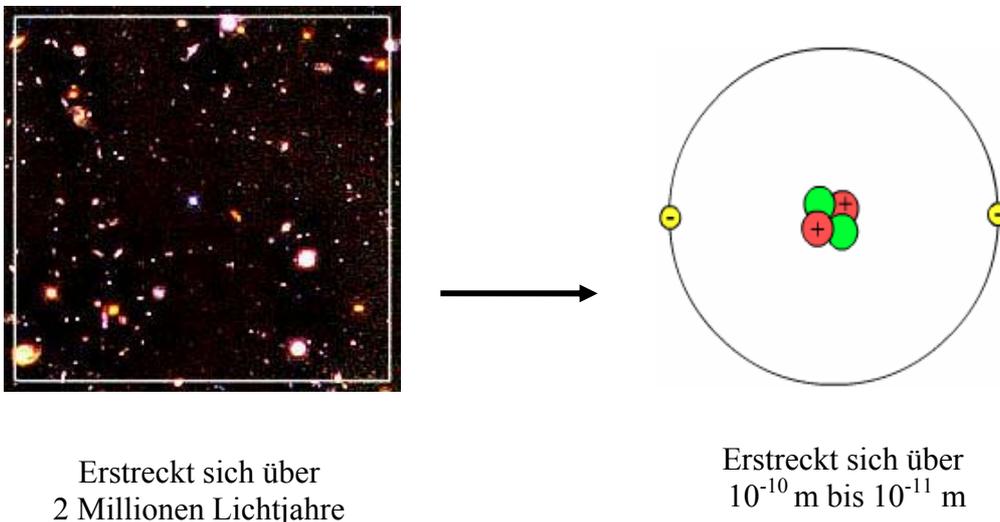


Abb. 1.1: Links: Eine Aufnahme von Hubbles zur Zeit tiefst möglichen Einblick in das Universum [science]. Rechts: der schematische Aufbau eines Heliumatoms nach dem Bohrschen Atommodell.

Der Weg in den Mikrokosmos erfordert den Übergang von den klassischen Gebieten der Physik, wie der Mechanik, der Akustik, der Wärmelehre, der Elektrizitätslehre und der Optik zur modernen Atomphysik. Sie ist die Wissenschaft der Atome und der Licht- bzw. Energiequanten.

Historisch gesehen war das Atom der kleinste, nicht mehr teilbare, charakteristische Baustein der Materie. Der Name “Atom” stammt dabei aus dem Griechischen und bedeutet “das Unteilbare”. Er wurde im 4. und 5. Jahrhundert vor Christus von einem griechischen Naturphilosophen Namens Demokritos geprägt [Hak87]. Demnach herrschte bereits in der Antike die Erkenntnis vor, dass man das Wesentliche der Materie entdecken kann, wenn man sie so lange teilt, bis eine weitere Teilung nicht mehr möglich ist.

Gegen Ende des 19. Jahrhunderts wusste man allerdings, dass sich das Atom mit Hilfe von Energiezufuhr weiter zerlegen lässt. Im Rahmen der Atomphysik wird dabei die Zerlegung des Atoms in die Bestandteile „Elektronen“ und „Kern“ sowie ihre Wechselwirkung untereinander untersucht. Aus der für die Trennung von Elektronen und Kern nötigen Energiezufuhr lässt sich ableiten, dass zwischen diesen geladenen Bestandteilen eine anziehende Kraft von elektrischer Natur herrschen muss, die Coulombkraft. Sie bestimmt die Dynamik zwischen den Atombausteinen und stellt die in der Atomphysik dominierende Wechselwirkung dar.

Ein Grundprinzip von Forschung ist nun: „Mittels einfacher Grundmodelle komplexe Zusammenhänge verstehen.“ Die Grundmodelle liefert in unserem Fall die Atomphysik, indem sie sich mit einfachen atomaren bzw. molekularen Strukturen auseinandersetzt. Sie untersucht deren Aufbau und Dynamik. Dieses „Basiswissen“ kann dann genutzt werden, um die Zusammenhänge in unserer komplexen, makroskopischen Welt verstehen zu können.

Auch das atomphysikalische Experiment dieser Arbeit beschäftigt sich mit einer einfachen, molekularen Struktur, dem H_2 -Molekül. Der Begriff „einfach“ bezieht sich hierbei auf ihren Aufbau aus nur zwei Protonen und zwei Elektronen. Allerdings herrschen schon in diesem „kleinen Verband“ viele interessante Wechselwirkungen, und es lassen sich Erscheinungen beobachten, die ihr Analogon in der makroskopischen Welt wiederfinden. Der letzte Satz impliziert ein weiteres Grundprinzip von Forschung: Wird in einem untersuchten System eine Erscheinung oder ein Vorgang entdeckt, kann in vielen Fällen - durch das Anpassen von Randbedingungen - das durch die Untersuchung erlangte Wissen auf ein (eventuell vollkommen) andersartiges System übertragen, und eine analoge Erscheinung dort beobachtet werden.

Im Rahmen dieser Arbeit geschieht dies mit dem Versuch charakteristische Erscheinungen, die an einem klassischen Doppelspalt beobachtet werden können, in der Photoionisation von molekularem Wasserstoff - und somit im Mikrokosmos - nachzuweisen. Beim Experiment des klassischen Doppelspaltes entstehen hinter dem Spalt Interferenzmuster, sobald Lichtwellen auf diesen treffen. Die Kugelwellen, die sich entsprechend dem Huygenschen Prinzip am Spalt ausbilden, überlagern sich konstruktiv und destruktiv und erzeugen so die beobachtete Interferenzerscheinung. Im Fall des „molekularen Doppelspalts“ werden die Spalte durch die beiden Protonen des H_2 -Moleküls, und die Lichtwellen durch die Elektronenwelle repräsentiert.

Die Beugung von Elektronenwellen an einem wirklichen Spalt wurde 1961 schon von Jönsson realisiert [Joe61]. Aufgrund der geringen Wellenlänge von Elektronen schien es zunächst unmöglich, Spalte mit einem Abstand in der Größenordnung der Elektronenwellenlänge herzustellen. Durch besonders kohärente Ausleuchtung und starke Nachvergrößerung gelang es ihm dennoch, die von der Lichtoptik bekannten Beugungserscheinungen mit Elektronen an mehreren Spalten zu beobachten [Abb.1.2].

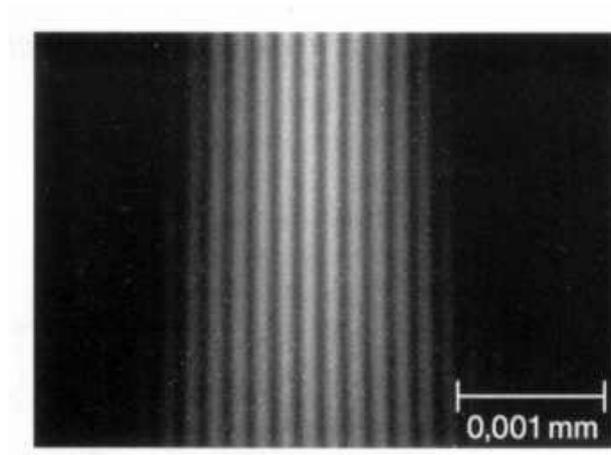


Abb.1.2: Bild der Elektroneninterferenzen am Doppelspalt [Joe61].

Bereits 1966 wurde in Arbeiten von H.D. Cohen und U. Fano [Coh66] vorhergesagt, dass in der Photoelektronenemission aus diatomaren Molekülen, wie N_2 , O_2 oder H_2 ein dem Doppelspalt analoges Interferenzmuster zu finden ist. Die Interferenzeffekte resultieren hierbei aus dem gleichzeitigen Start der erzeugten Elektronenwelle an zwei unterschiedlichen Orten, den beiden Kernen des Moleküls. Die Struktur der Interferenz der emittierten Photoelektronen kann hierbei anschaulich mit der von sich überlagernden Wasserwellen, die gleichzeitig an unterschiedlichen Orten erzeugt werden, verglichen werden [Abb.1.3].

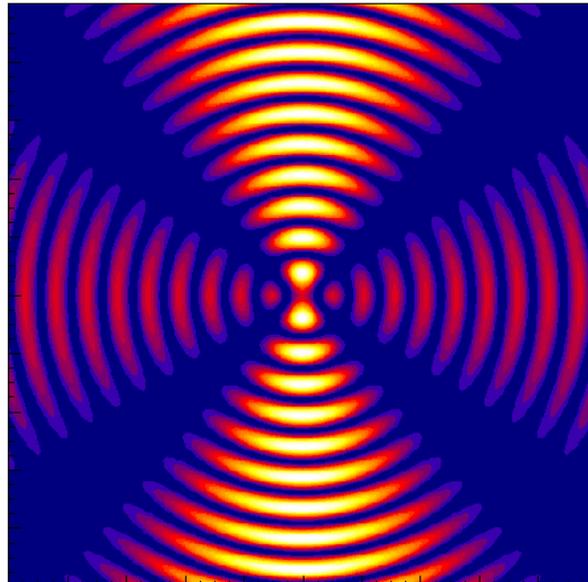


Abb.1.3: Darstellung der Interferenzstruktur von Wasserwellen, die gleichzeitig an zwei Punkten erzeugt werden. Das gleiche Bild wird für eine am Spalt gebeugte Elektronenwelle erwartet. Der Abstand der Ausgangszentren beträgt hierbei 2 a.u., der für die Rechnung gewählte Impuls der Elektronen beträgt 3,8 a.u.

Auf diese Überlegungen folgten weitere theoretische Arbeiten, z. B. von I.G. Kaplan et al [Kap69], welche sich mit Interferenzphänomenen bei der Photoionisation von Molekülen beschäftigt. Die Arbeit von Walter und Briggs behandelt die Elektronenwinkelverteilung des doppelionisierten H_2 -Moleküls [Wal99]. Hier wird die Interferenzerscheinung durch die Zweizentren-Natur des Anfangszustandes der Elektronen im Wasserstoffmolekül beschrieben. Eine weitere theoretische Arbeit, welche die Interferenzerscheinung im Wasserstoffmolekül untersucht, ist ebenfalls von Michael Walter [Wal00]. Hierbei wird die Doppelionisation des Heliumatoms, des H_2^+ -Moleküls sowie des H_2 -Moleküls mit linear polarisiertem Licht untersucht.

Experimentell wurde in der Vergangenheit schon mehrfach das prinzipielle Vorhandensein der Interferenzerscheinung nachgewiesen. Hierbei wurde allerdings die Elektronenwelle durch Ion/Atom-Stöße erzeugt, so dass eine exakte Feststellung der Elektronenwellenlänge nicht möglich ist¹ [Lan04], und außerdem war die räumliche Ausrichtung des Wasserstoffmoleküls zum Zeitpunkt der Reaktion nicht bekannt [Sto87, Hos03]. In [Sto87] wurde z.B. die Interferenz in der Elektronenwinkelverteilung nach der Ionisation des H_2 -Moleküls durch Kr^{34+} -Ionen untersucht. A. Landers et al. untersuchten 2004 die Doppelionisation des H_2 -Moleküls nach einem Ion-Atom-Stoß im molekülfesten Koordinatensystem [Lan04].

Experimente zur Photodoppelionisation des Wasserstoff- bzw. Deuteriummoleküls wurden schon mehrfach durchgeführt - zur Untersuchung des differentiellen Wirkungsquerschnittes, der nuklearen Dissoziation und der Korrelation der aus dem Molekülverband austretenden Elektronen [Lev84], [Duj87], [Kos89], [Red97], [Dör98], [Red99], [Sec02], [Web04].

In der vorliegenden Arbeit wird nun im Vergleich dazu der Versuch unternommen, die Interferenzerscheinung am H_2 -Molekül in einer sehr intuitiv zugänglichen, sauberen Art zu beobachten. Durch die Wahl von Synchrotronstrahlung zur Photoionisation erhält man eine eindeutig definierte Elektronenwelle, und durch Impulsspektroskopie kann die Orientierung des H_2 Moleküls im Raum zum Zeitpunkt der Reaktion bestimmt werden. Der die Interferenz erzeugende „Doppelspalt“ ist in diesem Experiment also ebenfalls eindeutig festgelegt.

Des weiteren kann aufgrund der definierten Reaktionsbedingungen die gemessene Intensitätsverteilung mit den Vorhersagen für den klassischen Doppelspalt leicht verglichen werden, und es können - wie sich im Folgenden zeigen wird - gefundene Abweichungen anderen Prozessen innerhalb des Moleküls zugeordnet werden.

¹ Näherungsweise kann ein ionisierender Ion/Atom-Stoß mit einer Photoionisation mit weißem Licht verglichen werden (sog. „Weizsäcker/Williams-Näherung“).

2. Physikalischer Hintergrund

Die Möglichkeiten der exakten Berechnung nichtstationärer Zustände in der Quantenmechanik ist gerade einmal für das Wasserstoffatom möglich, welches ein einfaches Zweikörperproblem darstellt. Schon im Fall des Heliumatoms mit nur einem Elektron mehr ist die exakte Lösung des Problems (noch) nicht zu berechnen. Nach dem Heliumatom und dem einfach ionisierten H_2 -Molekül, welche Dreikörperstrukturen darstellen, ist das H_2 -Molekül der nächst komplexere Aufbau. Als Vierkörperproblem stellt es das einfachste molekulare Mehrelektronensystem dar. In dieser Arbeit sollen einige Zusammenhänge und Wechselwirkungen dieses Systems experimentell gezeigt und erklärt werden. Im nächsten Abschnitt wird zunächst eine kurze Beschreibung von Molekülen, ihrem Aufbau und ihren Eigenschaften gegeben.

2.1. Moleküle

Die Entstehung von Molekülen basiert auf der chemischen Verbindung von zwei oder mehr Atomen. Die verschiedenen, in der Natur vorkommenden Bindungsarten lassen eine Vielzahl an Kombinationsmöglichkeiten unterschiedlicher Atome und somit eine Vielzahl an Molekülspezies zu. Hiermit ist auch die Vielfalt an Materialien in unserer Welt zu erklären.

Es gibt vier verschiedene Bindungsarten. Die Bindung, welche im Wasserstoffmolekül herrscht, ist die kovalente Bindung. Diese lässt sich quantenmechanisch erklären. Die Atome schließen sich durch die zu beiden Atomen gehörenden Elektronen zusammen, da die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen nach der Quantentheorie zwischen den Kernen erhöht ist. Dadurch wird die Abstoßung zwischen den Kernen kompensiert und ein bindender Zustand der beiden Atome entsteht. Die erhöhte Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen zwischen den Kernen lässt sich durch die Anziehung zwischen positiv geladenem Kern und negativ geladenem Elektron erklären. Resultierend aus der Coulombwechselwirkung zwischen Kernen und Elektronen ergibt sich so ein Gleichgewichtsabstand zwischen den Atomen. Beispiele für diese Molekülart sind neben Wasserstoff: N_2 , O_2 , CO , LiF , HCl . Da das H_2 -Molekül das zu untersuchende System dieses Experimentes ist, beschäftigen wir uns in einem späteren Kapitel genauer mit dessen Eigenschaften.

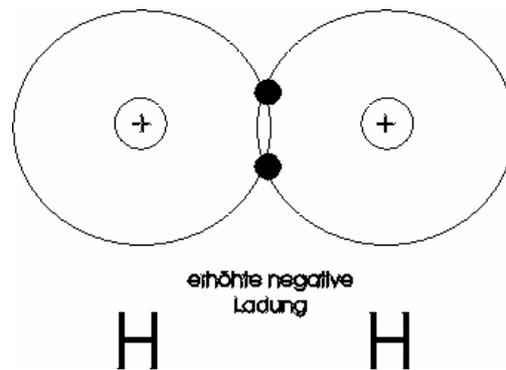


Abb. 2.1: Kovalente Bindung in einem Wasserstoffmolekül [kov].

Weitere Arten der Molekülbindung sind die ionische Bindung, welche durch die Anziehung entgegengesetzt geladener Atome bewirkt wird, die Metallbindung und die Van-der-Waals-Bindung, welche z.B. die Bildung von Clustern bewirkt.

Führt man einem molekularen System Energie zu, so erreicht man höhere Energiezustände. Ab einer bestimmten Energieschwelle führt dies zur Dissoziation bzw. Fragmentation des Moleküls. Die Energiezustände des Moleküls werden durch Potentialkurven beschrieben, welche in Korrelationsdiagrammen dargestellt werden. Die potentielle Energie wird dabei in Abhängigkeit vom Kernabstand aufgetragen. Diese Kurven beschreiben also den Übergang der sich im Molekülverband befindlichen Atome vom vereinigten Fall (kleiner internuklearer Abstand) in den Zustand getrennter Atome (großer internuklearer Abstand) [Abb.2.5]. Der Verlauf der Potentialkurven ergibt sich aus den Lösungen der entsprechenden Schrödinger-Gleichung. Der mittlere Abstand bzw. der Gleichgewichtsabstand eines Moleküls befindet sich im Minimum der entsprechenden Potentialkurve. Hier liegt der energetisch günstigste Zustand. Kleinere Abstände haben eine drastische Erhöhung der Energie aufgrund der atomaren Abstoßung zur Folge, während bei größeren Abständen als dem Gleichgewichtsabstand die potentielle Energie gegen Null geht, die Atome sind getrennt. Die Differenz zwischen der Energie im Gleichgewichtsabstand und der Energie der getrennten Atome bezeichnet man als Bindungsenergie.

Die Tatsache, dass man einen bestimmten elektronischen Energiewert einem festen internuklearen Abstand zuordnen kann, beruht auf der Beschreibung des Systems im Rahmen der sog. „Born-Oppenheimer-Näherung“. Diese lässt eine unabhängige Beschreibung der Bewegung der Elektronen von der der Ionen zu: die im Verhältnis zu den Kernen viel kleinere Masse der Elektronen und die daraus resultierende viel höhere Geschwindigkeit der Elektronen erlaubt es, die Ionen während der Bewegung der Elektronen näherungsweise als ruhend anzusehen [Abb.2.2].

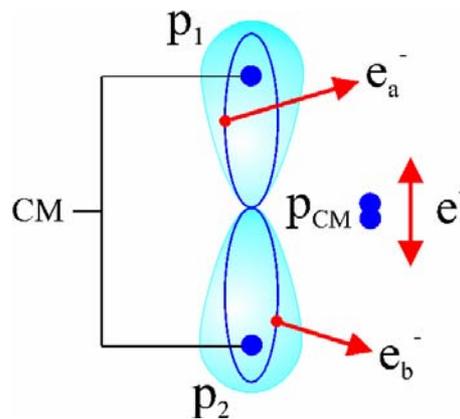


Abb.2.2: Schematische Darstellung der Born-Oppenheimer-Näherung; p_1 und p_2 stellen die Protonen dar, p_{CM} ist der Schwerpunkt dieser. Die Elektronen werden durch e_a^- und e_b^- dargestellt [Web03].

2.1.1. Molekülorbitale

Wie beim Atom werden die Zustände und die zeitlichen Vorgänge im Molekül durch Lösungen der Schrödinger-Gleichung beschrieben. Die Lösungen lassen sich in einem entsprechend gewählten Koordinatensystem in einen Radial- und einen Winkelanteil separieren. Die Lösung des Winkelanteils beschreibt das Orbital. Als Orbital bezeichnet man die Wahrscheinlichkeitsverteilung des Aufenthaltsortes – den elektronischen Anteil der Wellenfunktion – der Elektronen um die Atomkerne. Es gibt verschiedene Ansätze um nun den Übergang von Atomorbitalen zu Molekülorbitalen zu beschreiben. Nach der Verbindung der Atome zu einem Molekül haben sich gemeinsame Elektronenorbitale gebildet. Im Fall des Wasserstoffmoleküls besetzen die beiden s-Elektronen der Wasserstoffatome das gemeinsame Σ -Orbital. Der Begriff s-Elektron bezieht sich auf den Gesamtdrehimpuls l der Atome des Orbitals. Für das s-Orbital ist der Gesamtdrehimpuls null. Ein Orbital mit dem Gesamtdrehimpuls eins bildet ein p-Orbital usw.. Da aufgrund der Kernverbindungsachse in Molekülen die Zentralsymmetrie des Coulombfeldes gebrochen ist, stellt hier die Projektion des Drehimpulses m_l auf die Kernachse eine gute Quantenzahl dar. Orbitale mit $m_l = 0, 1, 2 \dots$ bezeichnet man mit $\Sigma, \Pi, \Delta, \dots$, analog zur Bezeichnung s, p, d... für die Elektronenorbitale in Atomen.

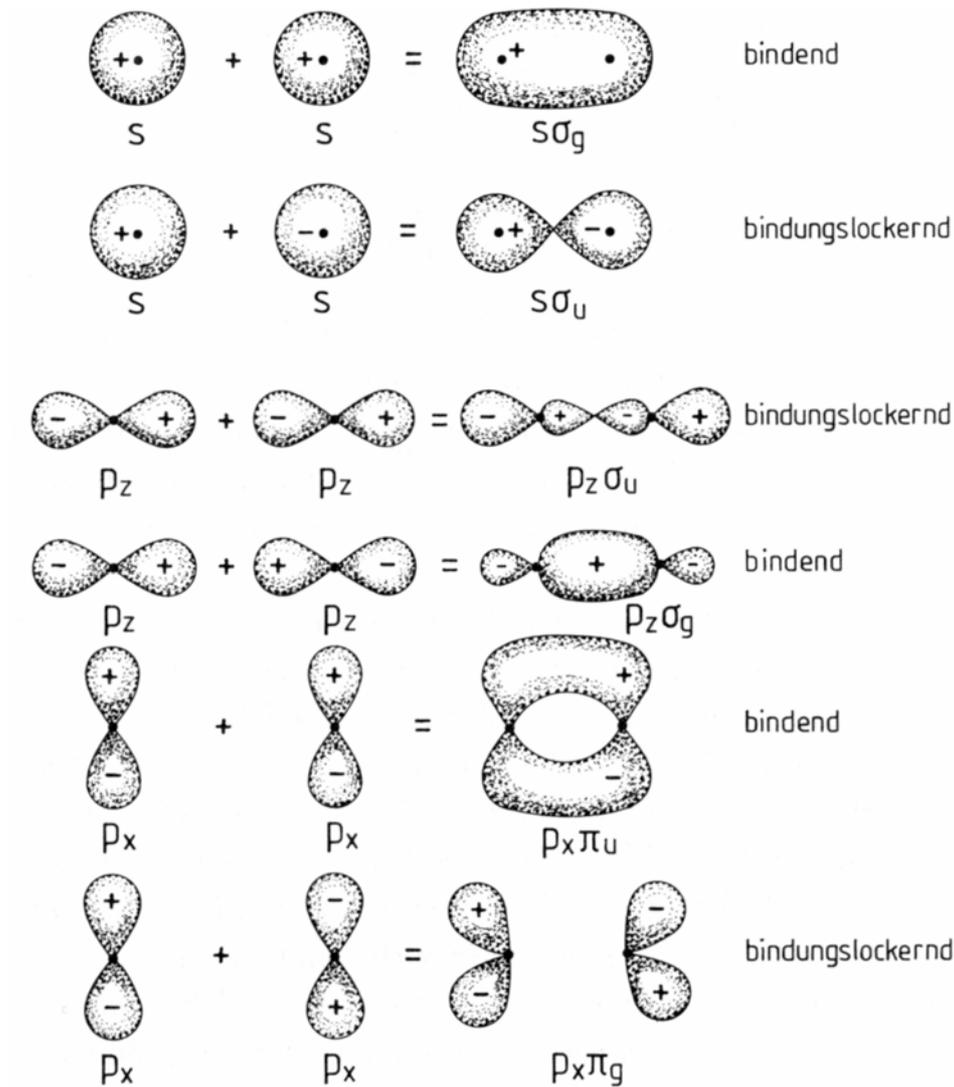


Abb. 2.3: Darstellung der bindenden und antibindenden Überlagerung atomarer s- und p-Orbitale zu σ - und π -Molekülorbitalen [Bet90]

Diese Methode zur Konstruktion von Molekülorbitalen nennt sich "LCAO"-Ansatz (Linear Combination of Atomic Orbitals). Er geht von der linearen Kombination der einzelnen Atomorbitale aus. Die Überlagerung der atomaren Wellenfunktionen ϕ_A und ϕ_B , welche zum Kern A bzw. B gehören, führen durch Addition bzw. Subtraktion der atomaren Wellenfunktionen so zu symmetrischen ϕ_s und antisymmetrischen ϕ_a molekularen Wellenfunktionen [Abb. 2.4]. Bei der Addition der atomaren Wellenfunktionen lässt sich eine erhöhte Aufenthaltswahrscheinlichkeit zwischen den Kernen errechnen, und es kommt zu bindenden Orbitalen, während es bei der Subtraktion zu einer erhöhten Aufenthaltswahrscheinlichkeit außerhalb der Kerne kommt und in den meisten Fällen „antibindende“ Orbitale die Folge sind:

$$\phi_s = N_s (\phi_A + \phi_B)$$

$$\phi_a = N_a (\phi_A - \phi_B)$$

N_s und N_a stellen Normierungskonstanten dar, die vom Grad der Überlappung der Wellenfunktionen abhängen [Bet90].

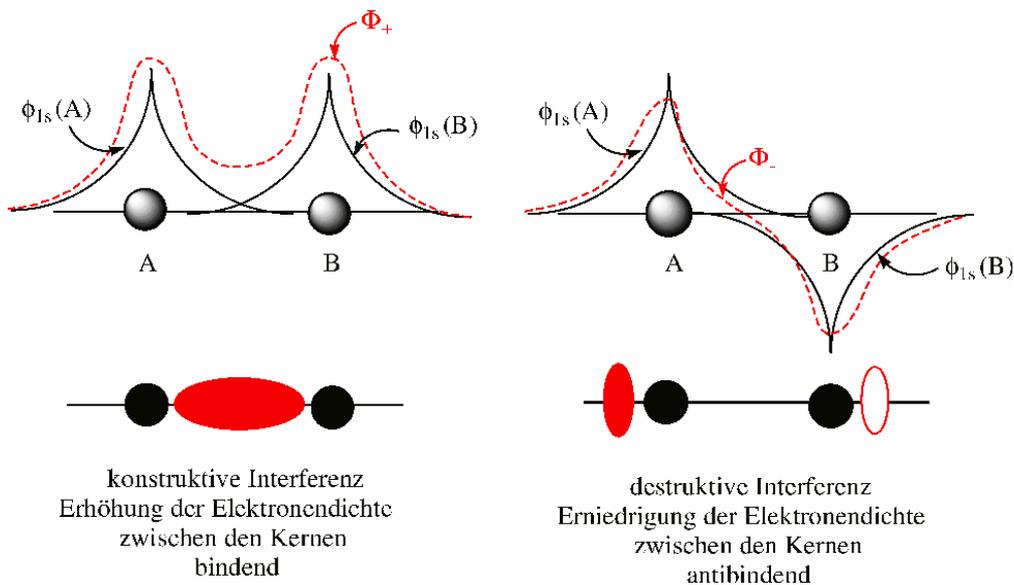


Abb. 2.4: Darstellung der bindenden und der antibindenden molekularen Wellenfunktionen Φ_+ und Φ_- , hervorgerufen durch die zu den Kernen A und B gehörigen atomaren Wellenfunktionen $\phi_{1s}(A)$ und $\phi_{1s}(B)$ [Web03].

Die Lösung der Schrödinger-Gleichung ist für das Wasserstoffmolekül nicht einfach, da es sich um ein Vierkörper-Problem handelt. Die Schrödinger-Gleichung der Elektronen sieht unter der Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung zwischen allen Teilchen folgendermaßen aus [Hak94]:

$$H\phi = \left(-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta_1 - \frac{e^2}{r_{a1}} - \frac{\hbar^2}{2m} \Delta_2 - \frac{e^2}{r_{b2}} - \frac{e^2}{r_{a2}} - \frac{e^2}{r_{b1}} + \frac{e^2}{r_{12}} \right) \phi = E\phi.$$

Hierbei ist r_{a1} der Abstand des Elektrons a zum Ion 1, r_{b2} ist der Abstand des Elektrons b zum Ion 2. Die anderen Abstände sind analog bezeichnet.

Eine Methode zur Lösung der Schrödinger-Gleichung ist die Heitler-London-Näherung [Hak94]. Man geht hierbei von zwei isolierten Atomen aus, die sich einander nähern und betrachtet den Hamiltonoperator als eine Zusammensetzung aus den Hamiltonoperatoren der einzelnen Atome H_1 und H_2 und einem Störungsanteil H_{ST} :

$$\begin{aligned}
 H &= H_1 + H_2 + H_{ST} \\
 H_1 &= -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta_1 - \frac{e^2}{r_{a1}} \\
 H_2 &= -\frac{\hbar^2}{2m} \Delta_2 - \frac{e^2}{r_{b2}} \\
 H_{ST} &= -\frac{e^2}{r_{a2}} - \frac{e^2}{r_{b1}} + \frac{e^2}{r_{12}}
 \end{aligned}$$

Der Term der Störung H_{ST} verschwindet dabei für große Abstände zwischen den Kernen. Im Heitler-London-Anfangszustand ergeben sich somit nur Terme, bei denen die Elektronen jeweils am eigenen Kern gebunden sind. Im Gegensatz dazu treten bei dem LCAO-Ansatz auch Terme auf, bei denen sich beide Elektronen an einem Kern befinden. Der Heitler-London-Ansatz berücksichtigt somit die abstoßende Elektronenwechselwirkung, die ein Vorhandensein beider Elektronen an einem Kern stark unterdrückt.

Der Heitler-London-Ansatz lautet:

$$\phi_{\pm}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) = \frac{1}{N_{\pm}} [\phi_a(\vec{r}_1)\phi_b(\vec{r}_2) \pm \phi_b(\vec{r}_1)\phi_a(\vec{r}_2)],$$

wobei ϕ_a und ϕ_b die atomaren Wellenfunktionen, \vec{r}_1 und \vec{r}_2 den Abstand zum jeweiligen Elektron darstellen. Das Vorzeichen unterscheidet zwischen dem symmetrischen und dem antisymmetrischen Fall.

Die sich aus den Wellenfunktionen ergebenden Energien beschreiben die Potentialkurven des Moleküls mit ausreichender Genauigkeit. In Abbildung 2.5. sind diese für das Wasserstoffmolekül dargestellt.

2.2. Die Photoionisation

Die Photoionisation ist in vielen Experimenten das Werkzeug zur Untersuchung elektronischer molekularer Zustände. Bei der Absorption eines Photons durch ein Molekül wird das Molekül angeregt bzw. ionisiert. Ist die Anregungsenergie (also die Energie des Photons) groß genug, kann es auch zur mehrfachen Ionisation des Moleküls kommen. Dabei werden mehrere Elektronen ins Kontinuum gehoben. Die Messung der kinetischen Energie der emittierten Elektronen bzw. aller Fragmenteilchen lässt daraufhin die Spektroskopie der Zustände des jeweiligen Moleküls zu.

Die Photonenenergie repräsentiert die bei der Photoionisation insgesamt zur Verfügung stehende Energie. Sie teilt sich auf in die Bindungsenergie E_B , die kinetische Energie der entstehenden atomaren Fragmente (KER²) und die kinetische Energie E_e der Elektronen.

Es gilt:

$$E_{kin} = h\nu - E_B,$$

wobei

$$E_{kin} = E_e + KER$$

Die Photoionisation lässt sich auch quantenmechanisch beschreiben. Dabei wird die Übergangswahrscheinlichkeit vom Anfangs- in den Endzustand mit Hilfe des Dipoloperators beschrieben. Der Anfangszustand $\Psi_i(\vec{r}, \vec{R})$ wird im Rahmen der Born-Oppenheimer-Näherung beschrieben durch [Wal00]:

$$\Psi_i(\vec{r}, \vec{R}) = \chi_i(\vec{R})\phi_i(\vec{r}, \vec{R}). \quad (2.1)$$

R beschreibt hier den Abstand zwischen den Kernen und r die Elektronenkoordinate. χ_i ist der Anfangszustand des Kernanteils und ϕ_i der Anfangszustand der Elektronen.

² KER ist die Abkürzung für den englischen Begriff „kinetic energy release“.

Der Endzustand sieht demnach entsprechend aus:

$$\Psi_f(\vec{r}, \vec{R}) = \chi_f(\vec{R})\psi_f(\vec{r}, \vec{R}).$$

Dabei ist ψ_f der elektronische Kontinuumszustand.

Da wir von der Born-Oppenheimer Näherung ausgehen, bei der die Bewegung der Elektronen unabhängig von der der Kerne behandelt werden darf, lässt sich die Übergangswahrscheinlichkeit durch das rein elektronische Matrixelement T^{el} beschreiben.[Wal00]:

$$T^{el} = \langle \psi_f \chi_f | \vec{\varepsilon} \cdot \vec{D} | \phi_i \chi_i \rangle,$$

wobei $\vec{\varepsilon} \cdot \vec{D}$ der Dipoloperator ist. Man berechnet in diesem Fall die Übergangswahrscheinlichkeit also im Rahmen der „Dipolnäherung“ [Wal00]. Dies ist erlaubt, solange der Impuls des Photons klein ist und somit seine Absorption näherungsweise keinen Impulsübertrag auf das Elektron bewirkt. Von einem kleinen Impuls spricht man üblicherweise bei Photonenenergien unter einem keV.

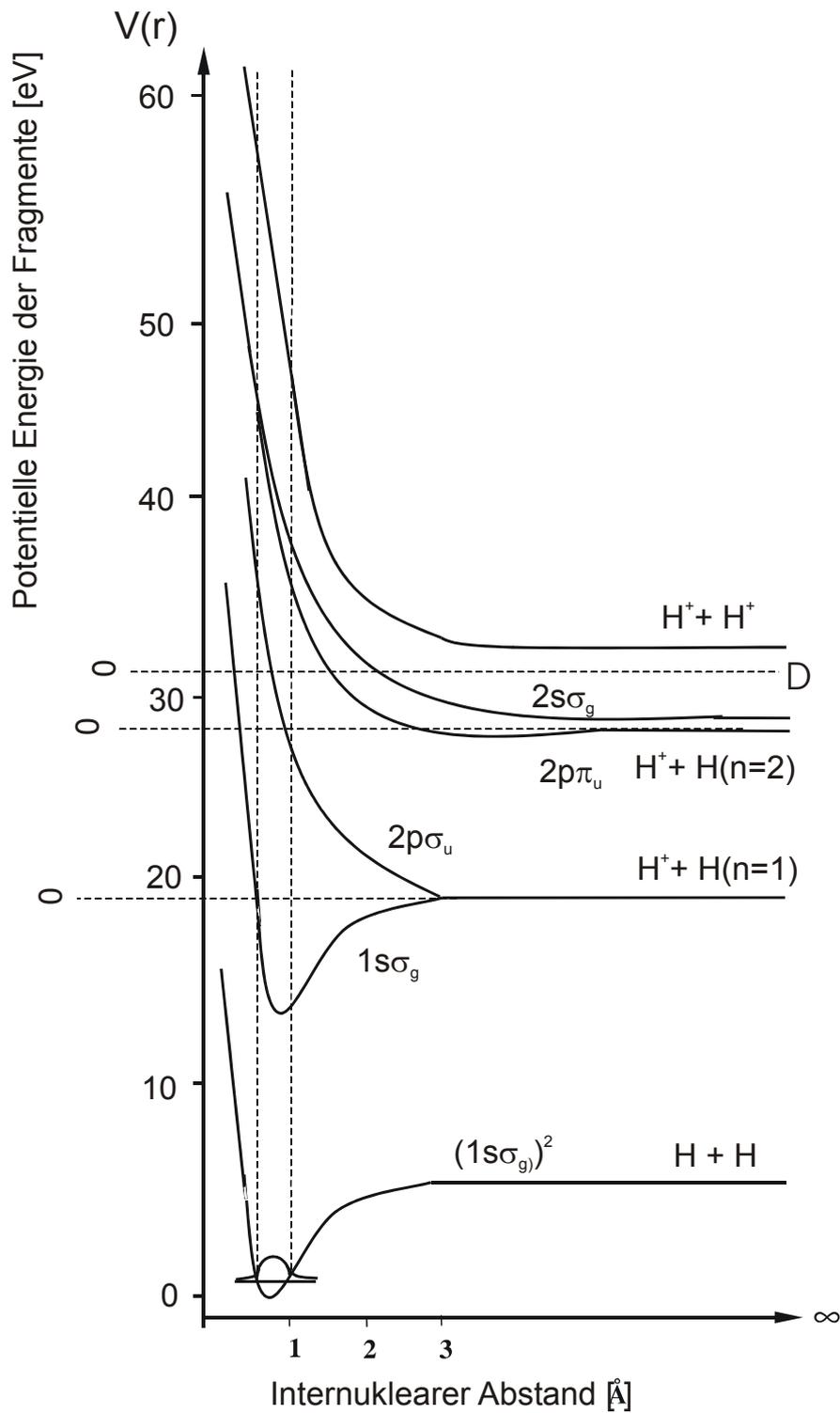


Abb.2.5: Korrelationsdiagramm von H_2 , dargestellt sind die Grundzustandsfunktion sowie die Potentialkurven der angeregten Zustände des Wasserstoffmoleküls [Woo77].

2.3. Die Doppelionisation

Absorbiert ein Molekül *ein* Photon genügend hoher Energie, erwartet man anschaulich zunächst die Emission nur *eines* Elektrons. Nun gibt es allerdings auch den Fall der Doppelionisation, die trotz der Absorption nur *eines* Photons auftritt.

Um den Effekt der Doppelionisation mit nur einem Photon erklären zu können, geht man von verschiedenen Modellen aus. Beide im Folgenden vorgestellten Prozesse sind Zweistufenprozesse, d.h. die Doppelionisation geschieht über eine Zwischenstufe [Popov94, Cap98].

Der erste Prozess nennt sich Two-Step-1-Prozess (TS1). Hierbei absorbiert zunächst ein Elektron das Photon. Das Elektron wechselwirkt dann mit einem anderen Elektron und stößt dieses wie bei einem Billardstoß auch in das Kontinuum.

Eine andere Möglichkeit stellt der Shake-Off-Prozess (SO) dar. Hierbei wird ebenfalls einem Elektron die gesamte Energie des Photons übertragen, so dass es sofort in einen hohen Kontinuumszustand gehoben wird. Das andere Elektron befindet sich nun schlagartig in einem System mit einem veränderten Potential. In diesem System hat der ursprünglich ungestörte Eigenzustand des Elektrons einen Überlapp mit dem Kontinuum, wodurch auch das zweite Elektron eine gewisse Übergangswahrscheinlichkeit in einen Kontinuumszustand hat.

2.3.1. Die Doppelionisation des H₂-Moleküls

Die Doppelionisation des H₂-Moleküls entspricht einer Fragmentation des Moleküls in vier einzelne Teilchen, zwei Elektronen und zwei Protonen. Die Energie E , welche zur Doppelionisation des Moleküls nötig ist, setzt sich folgendermaßen zusammen: $E = 2 \cdot 13,54 \text{ eV} + 4,52 \text{ eV} = 31,6 \text{ eV}$. Sie entspricht also zweimal der Ionisationsenergie von atomarem Wasserstoff zuzüglich der Bindungsenergie von 4,52 eV. Diese ist zusätzlich aufzubringen, da das Wasserstoffmolekül nach der Ionisation des ersten Elektrons positiv geladen, und die Coulomb'sche Anziehung somit verstärkt ist. Die verbleibende Energie des Photons teilt sich dann auf die kinetische Energie der beiden Protonen und der Elektronen auf. Die Energieverteilung der Ionen hat dabei eine Breite etwa von 4,5 eV (FWHM). Die restliche Energie steht dann den Elektronen zur Verfügung. Aufgrund der Breite der ionischen Energieverteilung kann also nicht wie beim Wasserstoffatom ein fester Wert für die Schwelle der Doppelionisation des Wasserstoffmoleküls angegeben werden.

Bei der Photodoppelionisation von Wasserstoff lässt sich anhand des internuklearen Abstandes, der zum Zeitpunkt der Ionisation herrschte, die kinetische Energie der Ionen (KER = Kinetic Energy Release) bestimmen, die frei wird, wenn das Molekül dissoziiert bzw. fragmentiert. Der KER entspricht hierbei der Differenz aus der potentiellen Energie, die das Molekül bei dem zum Zeitpunkt der Ionisation herrschenden internuklearen Abstand hat und der Energie, die sich asymptotisch für den dissoziierten Zustand des Moleküls ergibt [Abb.2.6]. Der Übergang zwischen den verschiedenen Molekülpotentialen erfolgt dabei schnell im Vergleich zur Kernbewegung. Im Korrelationsdiagramm entspricht er näherungsweise einem Wechsel der Potentialkurven entlang einer Senkrechten. Diese Beschreibung des Überganges bei der Photoionisation wird die „Frank-Condon-Näherung“ genannt.

Um die Bewegung der Protonen nach der Doppelionisation beschreiben zu können, wird der Anfangszustand des H_2 -Moleküls gewöhnlich wie in (2.1.) dargestellt. Die beiden Protonen haben die bindenden Elektronen verloren und stehen sich mit gleicher Ladung gegenüber. Aufgrund der Abstoßung kommt es zur „Coulomb-Explosion“, d.h. das Molekül fragmentiert unter einem Winkel von 180° . Befinden sich die Kerne zur Zeit der Explosion in einem Abstand R zueinander, wandeln sie ihre potentielle Energie vollständig in kinetische Energie E um:

$$E = \frac{q_1 \cdot q_2}{4\pi\epsilon_0 R}$$

Dabei ist $q_1 = q_2$ die Ladung der Ionen, ϵ_0 ist die Dielektrizitätskonstante. In atomaren Einheiten [a.u.] ($q_1 = q_2 = e = 1$ und $\epsilon_0 = 1/4\pi$) gilt daher folgender, einfacher Zusammenhang zwischen der Energie und dem Abstand:

$$E = 1/R \quad (2.2.)$$

Der Zusammenhang zwischen dem KER und dem zwischen den Kernen herrschenden Relativimpuls ist dabei: $k = \sqrt{2 \cdot \mu \cdot KER}$.

Daraus ergibt sich folgender Zusammenhang zwischen dem Abstand und dem Relativimpuls:

$$k = \sqrt{\frac{2\mu}{R}}$$

wobei $\mu = \frac{m_A \cdot m_B}{m_A + m_B}$ die reduzierte Masse der beiden Kerne ist.

Das bedeutet, aus dem Relativimpuls bzw. aus dem KER lässt sich der Kernabstand R berechnen, und umgekehrt kann man aus dem Kernabstand R auf den KER bzw. auf k schließen.

Die KER-Verteilung ergibt sich somit aus der Abstandsverteilung der Grundzustandswellenfunktion des Moleküls. Dieser Zusammenhang wird im Korrelationsdiagramm durch den senkrechten Wechsel zwischen den Potentialkurven und einer anschließenden Spiegelung des Betragsquadrates der Grundzustandswellenfunktion an der angeregten Potentialkurve (für Wasserstoff ist dies eine reine Coulombkurve = $1/R$ -Potential) beschrieben [Abb.2.6]. Man nennt dies die Reflexionsmethode. Das Betragsquadrat der Grundzustandswellenfunktion entspricht hierbei der Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Kerne. Diese ist im Minimum der Potentialkurve am höchsten.

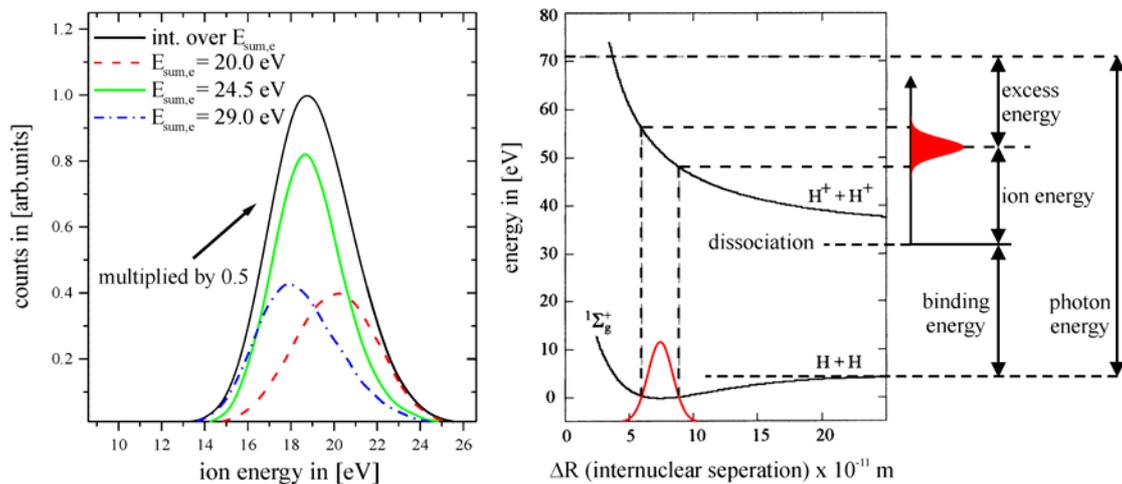


Abb. 2.6: Links: die Verteilung der kinetischen Energie der Ionen (KER) für verschiedene Summenenergien $E_{\text{sum,e}}$ der Elektronen. Rechts: Das Korrelationsdiagramm des Wasserstoffmoleküls, dieses zeigt den Zusammenhang zwischen der Abstandsverteilung (rote Kurve) und dem KER (ausgefüllte rote Kurve) durch die Reflexionsmethode [Web03].

In [Web04] wurde die Abstandsverteilung des Deuteriummoleküls sowohl für das Potential des harmonischen Oszillators als auch für das der Realität eher entsprechende Morse-Potential angenähert, wobei eine sehr gute Übereinstimmung der experimentellen Daten des doppelionisierten Deuteriummoleküls mit dem Morse-Potential festgestellt wurde. Verwendet man dagegen das Potential des harmonischen Oszillators, um die Abstandsverteilung der Grundzustandswellenfunktion zu beschreiben, so weichen die Verteilungen des KER, ermittelt mit der Reflexionsmethode, voneinander ab (siehe Kapitel 5.1, Abb. 5.5; hier werden die Ergebnisse diesbezüglich zusätzlich für die Daten dieses Experimentes vorgestellt.).

2.4. Analogie des molekularen Systems zum klassischen Doppelspalt

Das grundlegende Experiment des Doppelspalts wurde Anfang des 19. Jahrhunderts (zwischen 1801 und 1807) von Thomas Young mit Licht durchgeführt. Er entdeckte damit die Welleneigenschaften des Lichts. 1961 wurde dasselbe Ergebnis mit Elektronen von Claus Jönsson beobachtet [Joe61].

Um eine Interferenzstruktur am klassischen Doppelspalt zu erhalten, muss die Größenordnung des Spaltes der Wellenlänge des Lichts entsprechen. Es gilt: $\lambda \leq d$. Hierbei ist λ die Wellenlänge und d die Spaltbreite. Die Bedingung für eine konstruktive Überlagerung, also für das Auftreten eines Maximums lautet:

$$\begin{aligned}\cos(\alpha) &= \frac{n \cdot \lambda}{r} \\ \Rightarrow \frac{\lambda}{r} &\leq 1\end{aligned}$$

Entsprechend sieht die Bedingung für die destruktive Überlagerung folgendermaßen aus:

$$\begin{aligned}\cos(\alpha) &= \frac{(2n-1) \cdot \lambda}{2r} \\ \Rightarrow \frac{\lambda}{2r} &\leq 1\end{aligned}$$

Hierbei ist n die Ordnung des Maximums bzw. Minimums und r der Spaltabstand. α ist der Streuwinkel relativ zur Spaltachse. Die genaue Lage der Interferenzmaxima und -minima hängt somit von dem Spaltabstand r und der Wellenlänge λ ab. Je größer der Spaltabstand und je kleiner die Wellenlänge ist, desto enger rücken die Minima zusammen.

Interferenzen treten auch auf, wenn einzelne Elektronen auf einen Doppelspalt treffen. Es kommt also nicht zu der für Teilchen erwarteten Addition der aus den beiden einzelnen Spalten entstehenden Verteilungen, sondern es bilden sich, wie bei Wellen, Interferenzen. Die Interferenz, die sich nach der Photodoppelionisation des H_2 -Moleküls in der Photoelektronenemission zeigt, beruht auf der gleichzeitigen

Emission des Elektrons von zwei Zentren. Mathematisch lässt sich das Interferenzmuster hierbei durch folgenden Term beschreiben. Dieser ergibt sich aus dem Übergangsmatrixelement der Elektronen im Wasserstoffmolekül. (siehe (2.4.) Kapitel 2.5) [Wal00]:

$$\cos^2(\vec{R} \cdot \vec{k} / 2) \quad (2.3.)$$

Hierbei ist R (analog zum Spaltabstand) der Abstand der beiden Atome im Wasserstoffmolekül und $k = h / \lambda$ der Impuls der Elektronen.

Ebenso wie für den klassischen Spalt muß auch hier die Wellenlänge der Elektronen der Größenordnung des internuklearen Abstandes entsprechen. Entscheidend ist also die kinetische Energie der Elektronen. Der Zusammenhang zwischen Energie und Wellenlänge lautet dabei:

$$E = h\nu = \frac{hc}{\lambda}$$

c ist hierbei die Lichtgeschwindigkeit.

2.5. Wechselwirkungen zwischen den Elektronen

Der Übergang vom ungestörten H_2 -Molekül in den Zustand des doppelionisierten H_2 -Moleküls hängt von den Wechselwirkungen der einzelnen Fragmente im Anfangs- und Endzustand des Moleküls ab. Die Dynamik des Prozesses und die sich daraus ergebende Struktur der Elektronenwinkelverteilung wird durch diese beeinflusst. Darüber hinaus haben wir in Kapitel 2.3. die Zweistufenprozesse in der Doppelionisation kennengelernt. Der TS1- Prozess beschreibt dabei die Doppelionisation durch die direkte Wechselwirkung zwischen den Elektronen, und auch für den SO-Prozess ist eine Korrelation der Anfangszustände der Elektronen nötig.

Die auftretenden Elektronenverteilungen resultieren demnach nicht ausschließlich aus der reinen Interferenz, die durch das Brechen einer Elektronenwelle entsteht. Der Winkelverteilung können zusätzlich Strukturen aufgeprägt werden, die eben durch die Wechselwirkungen zwischen den Elektronen auftreten.

Der unkorrelierte Endzustand und damit der Effekt des klassischen Doppelspalts wird durch wechselwirkungsfreie Endzustände beschrieben, die aus ebenen Wellen

konstruiert werden. Dass in unserem molekularen System allerdings ein korrelierter Endzustand zur Beschreibung nötig ist, sieht man schon bei der Betrachtung des elektronischen Übergangsmatrixelementes im H_2 -Molekül, bei dem die Impulse der einzelnen Elektronen durch einen sogenannten Relativ- und Summenimpuls ersetzt werden. (Herleitung: siehe Anhang 1) [Wal00]:

$$T^{el} \propto \hat{\varepsilon} \cdot (\vec{k}_a + \vec{k}_b) \cos\left(\frac{1}{2}(\vec{k}_a - \vec{k}_b) \cdot \vec{R}\right) \quad (2.4.)$$

Dabei ist $(\vec{k}_a + \vec{k}_b)$ der Summenimpuls der Elektronen und $\frac{1}{2}(\vec{k}_a - \vec{k}_b)$ der Relativimpuls der Elektronen. Der elektronische Übergang lässt sich also nicht durch ein Produkt aus Faktoren, welche die einzelnen Elektronenimpulse enthalten, darstellen.

Der erste Faktor des Matrixelementes beschreibt die Aufnahme des Photons durch das elektronische Massezentrum, mittelt sich aber in unserem Experiment heraus, da es aufgrund der Messung mit zirkularem Licht eine Polarisations Ebene und keinen festen Polarisationsvektor $\hat{\varepsilon}$ gibt. Die durch eine lineare Polarisation entstehende Dipolstruktur in der Elektronenwinkelverteilung, welche dann die Interferenzstruktur überlagern würde, tritt somit nicht in Erscheinung, sobald man die Reaktion nur innerhalb der Polarisations Ebene des Lichtes betrachtet.

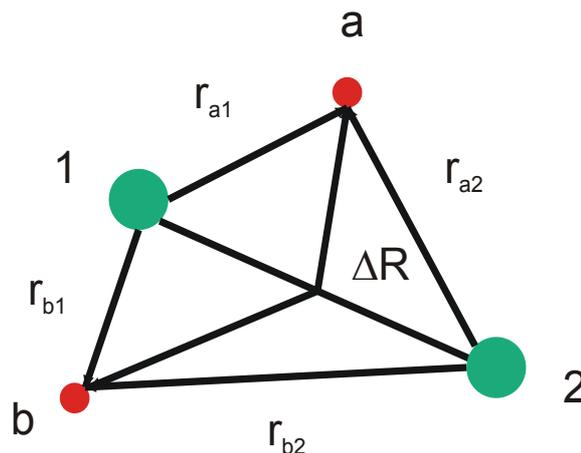


Abb. 2.7: Die Ortskoordinaten eines diatomaren Moleküls mit den Kernen 1 und 2 sowie den Elektronen a und b.

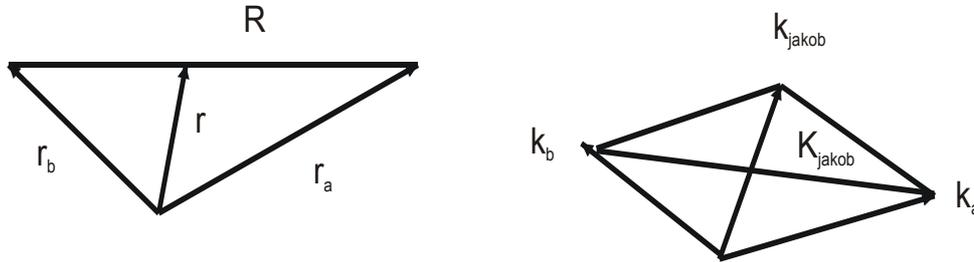


Abb. 2.8: Abbildung der Transformation der Orts- (r_a und r_b) und Impulskoordinaten (k_a und k_b) der Elektronen in Jacobi-Koordinaten. r und k_{jacob} stellen den Ortsschwerpunkt und den Schwerpunktsimpuls dar, R und K_{jacob} repräsentieren die Relativbewegung und den Relativimpuls. Die Koordinaten r_a und r_b sowie k_a und k_b gehen vom Schwerpunkt der Kerne aus.

Der zweite Faktor repräsentiert die Interferenzen, d.h. die Oszillationen in den Elektronverteilungen. Der Interferenzterm wird bestimmt durch den Relativimpuls \vec{k} der Elektronen und den Kernabstand \vec{R} . Hier gilt die Bedingung: $k > \frac{1}{R}$, welche der Interferenzbedingung $\lambda < R$ für den klassischen Doppelspalt entspricht. Gleichung (2.4.) gilt nur für den Heitler-London-Anfangszustand der Elektronen. Demnach wird die Coulombwechselwirkung schon im Anfangszustand berücksichtigt. Der Endzustand ist also abhängig von der Coulombwechselwirkung und der Energieaufteilung zwischen den Elektronen. In den Grenzfällen $\vec{k}_a \rightarrow 0$ oder $\vec{k}_b \rightarrow 0$ erhält man die Winkelverteilung eines einzelnen Elektrons.

Die Stärke der Coulombwechselwirkung hängt davon ab, in welchem Abstand sich die Elektronen voneinander befinden und ist proportional zu $1/R$:

$$V_{\text{coul}} \propto \frac{1}{R}$$

Auf das Elektron wirkt aber neben der Coulombkraft des anderen Elektrons, auch die Coulombkraft der restlichen Teilchen des fragmentierten Wasserstoffmoleküls. Eine Theorie, die alle Coulombkräfte berücksichtigt, welche auf die Elektronen wirken, ist die sog. „5C-Theorie“. Die Wechselwirkung zwischen den Kernen spielt dabei für festgehaltenen Kernabstand keine Rolle und wird entsprechend vernachlässigt [Wal00].

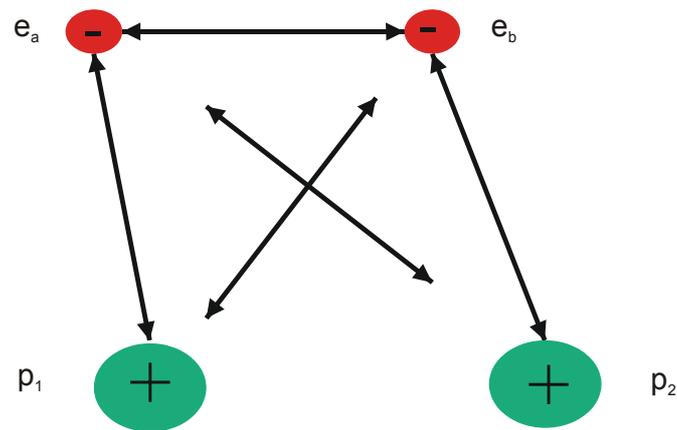


Abb. 2.9: Darstellung aller Coulomb-Wechselwirkungen zwischen den Teilchen des Wasserstoffmoleküls in einer 5C-Rechnung.

Die 5C-Wellenfunktion sieht dabei folgendermaßen aus [Wal00]:

$$\psi_{5C}(\vec{r}_a, \vec{r}_b, \vec{R}_N) = (2\pi)^{-3} e^{i\vec{k}_a \vec{r}_a + i\vec{k}_b \vec{r}_b} C_{aA} C_{aB} C_{bA} C_{bB} C_{ab}$$

Die Indizes a und b repräsentieren hier die zu den Kernen A und B gehörenden Elektronen. Der zusätzliche Wechselwirkungsterm C_{ab} zwischen den Elektronen bewirkt dabei oft völlig andere Winkelverteilungen als die, die eine 4C-Rechnung ($C_{aA}, C_{aB}, C_{bA}, C_{bB}$) liefert [siehe Wal00].

3. Die Realisierung des Experimentes

3.1. Die Reaktion

Die hier gemessene Reaktion ist die Doppelionisation des H_2 -Moleküls. Mit Photonen einer Energie von $h\nu = 240\text{eV}$ wird das Molekül in vier einzelne Teilchen fragmentiert, zwei Protonen und zwei Elektronen.



Nach Abzug der Doppelionisationsenergie von 31,6 eV und der mittleren kinetischen Energie der Ionen von ungefähr 19 eV, verbleibt eine gemeinsame kinetische Energie der Elektronen von ungefähr 190 eV, mit der sie aus dem Molekülverband austreten. Dabei kommt es zu verschiedenen Energieaufteilungen zwischen den Elektronen.

Die Interferenzen, die aufgrund der von beiden Kernen des H_2 -Moleküls gleichzeitig emittierten Elektronenwelle entstehen, treten in der Elektronenwinkelverteilung auf. Um sie zu beobachten muß somit im Experiment der Winkel bestimmt werden, unter dem die Elektronen relativ zur Molekülachse emittiert werden.

3.2. Die COLTRIMS-Technik

Die Doppelionisation des Wasserstoffmoleküls wurde mit der COLTRIMS-(**COL**d-**T**arget-**R**ecoil-**I**on-**M**omentum-**S**pectroscopy)-Technik gemessen. Dafür wird der Projektilstrahl (Photonen der Synchrotronanlage) und der Targetstrahl (H_2 -Molekülgasstrahl) in einem Spektrometer gekreuzt. Die dadurch in einer Photoreaktion entstehenden Elektronen und Ionen des doppelionisierten Moleküls werden dann mit einem am Spektrometer angelegten, elektrischen Feld auf zwei Detektoren an den Enden des Spektrometers geführt. Hierdurch werden die Reaktionsfragmente mit einer Raumwinkelakzeptanz von 4π detektiert [Abb. 3.1]. Da es sich bei Elektronen um Teilchen sehr geringer Masse ($m_e = 1$ a.u.) handelt, kann zusätzlich noch ein Magnetfeld angelegt werden, welches die Elektronen auf Spiralbahnen zwingt und so auch für höhere kinetische Energien ihr Entweichen aus dem Spektrometervolumen verhindert. Die schwereren Ionen ($m_p = 1836$ a.u.) werden

von dem Magnetfeld näherungsweise nicht beeinflusst. Das Magnetfeld wird durch zwei Helmholtzspulen, die rechts und links am Experiment angebracht sind, realisiert.

Bei der Detektion der einzelnen Fragmente werden nun ihre jeweiligen Flugzeiten und Auftrefforte gemessen. Durch die Rekonstruktion der Trajektorien der Teilchen aus diesen Messgrößen, werden die Startimpulse der Teilchen bestimmt. Das bedeutet, aus den gemessenen Daten können die Impulse der Teilchen nach der Fragmentation rekonstruiert werden. Aus diesen Impulsen, können dann alle abgeleiteten Größen berechnet werden, wie z.B. neben der Energie auch die Winkelverteilungen der Elektronen im körperfesten System, also die Verteilung des Emissionswinkels der Elektronen relativ zur Molekülachse. Ein entscheidender Aspekt der COLTRIMS-Methode ist das Arbeiten im sog. „listmode“-Verfahren. Nicht fertige Spektren, sondern die gemessenen Rohdaten werden für jedes Ionisationsereignis gespeichert. Durch die Auswertung der Daten nach Ablauf des Experimentes ist einerseits eine nachträgliche Eichung der Daten möglich. Andererseits können so auch Ereignisse, für die bestimmte physikalische Bedingungen während der Reaktion vorlagen, wie z.B. eine bestimmte Stellung der Molekülachse, oder Ereignisse nur eines bestimmten Energiebereiches, nachträglich am Computer herausgefiltert und separat dargestellt werden. Somit kann eine größere Anzahl physikalischer Zusammenhänge einer Reaktion beobachtet werden. COLTRIMS ist also eine sehr gute Methode, die anspruchsvolle Untersuchung von Molekülzuständen und -dynamik sowie die Wechselwirkungen der Teilchen untereinander zu realisieren.

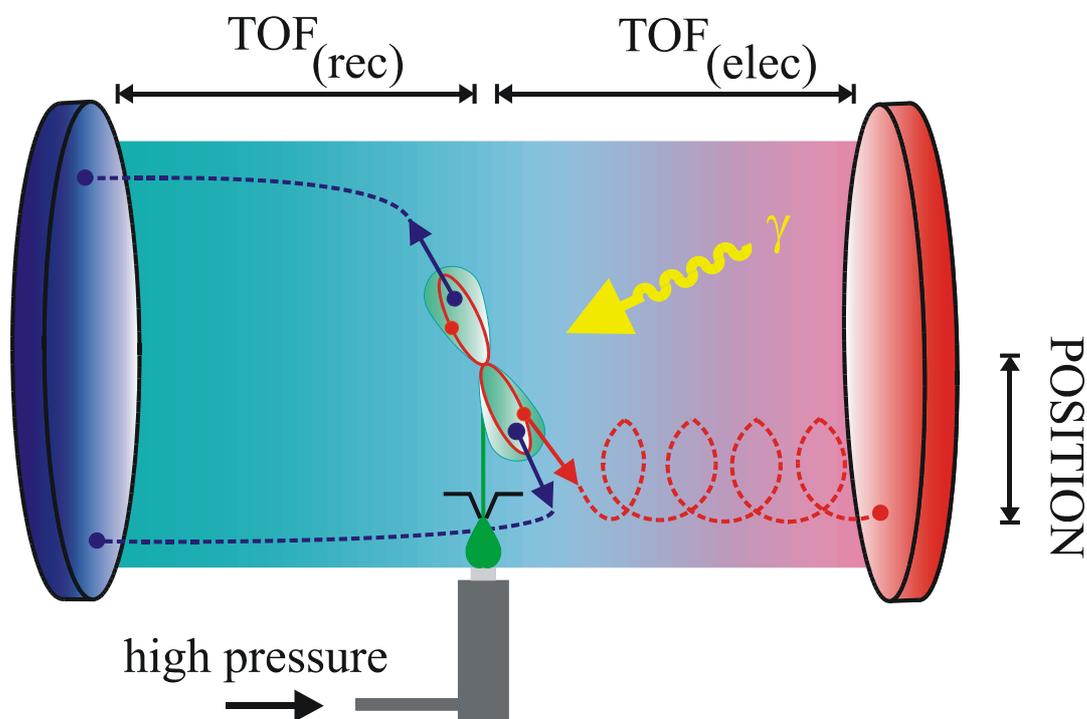


Abb. 3.1: Darstellung der Elektronen-(elec) und Ionenbahnen (rec) im Spektrometer unter dem Einfluß der elektrischen und magnetischen Felder. Die Elektronenbahnen sind hier rot eingezeichnet, die Trajektorien der Ionen sind blau, der gelbe Pfeil repräsentiert das Photon. TOF ("Time Of Flight") ist die Flugzeit der Fragmente. Außerdem wird die Position, also der Auftreffort der Teilchen auf dem Detektor, bestimmt [Web03]-

3.3. Das Target

Aus den gemessenen Flugzeiten und Orten des doppelionisierten H_2 -Moleküls werden die Startimpulse der einzelnen Fragmente, also die Impulse zum Zeitpunkt der Ionisation berechnet. Dabei ist es hier besonders wichtig, die Impulse der zwei Protonen und des Elektrons sehr genau bestimmen zu können, da aus ihnen unter Zuhilfenahme der Impulserhaltung später der Impuls des anderen, in der Regel viel schnelleren Elektrons berechnet wird. Hierfür will man also den Impuls messen, der durch den Rückstoß des Elektrons auf die Kerne des Moleküls entsteht. Dazu müssen die Trajektorien der Teilchen von jeglichen Störungen verschont bleiben. Abgesehen von der Notwendigkeit, das Experiment im Vakuum durchzuführen, ist es wichtig, Überlagerungen der Startimpulse mit der thermischen Bewegung der Targetteilchen auszuschalten bzw. stark zu verringern. Die thermische Impulsverteilung eines Gases ist dabei gegeben durch:

$$E = \frac{f}{2} kT, \text{ d.h. für } H_2: E = \frac{5}{2} kT$$

Wie man schon anhand dieser Formel erkennen kann, ist die Bewegung der Teilchen im Gas von ihrer Temperatur T abhängig. $k = 8,62 \cdot 10^{-5} \text{ eV/K}$ ist hierbei die Boltzmannkonstante und f repräsentiert die Anzahl der Freiheitsgrade. Für ein Gastarget aus Wasserstoff bei Zimmertemperatur würde das bedeuten, man hätte im Mittel eine kinetische Energie der Teilchen von ungefähr 43 meV und somit Impulse von 2.4 a.u.

In der zu untersuchenden Reaktion liegen die Rückstoßimpulse der Elektronen auf die Kerne des H_2 -Moleküls allerdings im Bereich von 2 a.u. und entsprechen somit der Größenordnung der Impulse, die aufgrund der thermischen Bewegung auftreten. Die Rückstoßimpulse würden daher von der thermischen Impulsverteilung des Gases verdeckt werden.

Durch eine Kühlung des Targets kann diese thermische Bewegung verringert werden. Hierzu macht man Gebrauch vom Prinzip des sogenannten „Überschallgasjets“.

3.3.1. Der Überschallgasjet

Wasserstoffgas strömt mit einem hohen Druck P_0 , welcher in diesem Experiment bei ca. 4 bar liegt, durch eine Düse mit einem Durchmesser von $30 \mu\text{m}$ in die „Quellkammer“. In der Quellkammer herrscht ein geringerer Druck P_1 . Dieser beträgt

hier 10^{-4} mbar. Ist der Druck P_0 des Gasstrahls mindestens doppelt so hoch wie der Druck in der Quellkammer, so erfährt der Gasstrahl eine adiabatisch isentrope Expansion. Isentrop bedeutet, die Entropie S des Systems ist eine Erhaltungsgröße. Mit $\delta Q = 0$ aufgrund der adiabatischen Expansion, gilt dann: $\delta Q = TdS = 0$. Ist nun im Idealfall der Restgasdruck $P_1 = 0$, so wird keine Arbeit des Gases geleistet, um in den Bereich der Quellkammer einzudringen. Die innere Energie des Gases ist somit Null:

$$dU = \delta Q + \delta A$$

Das Gas erfährt also mit einem richtigen Verhältnis P_0 / P_1 beim Eintritt in den Niederdruckbereich eine Überschall-expansion, bei der die thermische Energie in eine gerichtete Bewegungsenergie überführt wird [Mil88]. Die gerichtete Geschwindigkeit v_{jet} , die nahezu für alle Gasteilchen gleich ist, hat dabei folgende Form:

$$\begin{aligned} \frac{1}{2}mv_{jet}^2 &= \frac{5}{2}kT_0 \\ \Rightarrow v_{jet} &= \sqrt{\frac{5kT_0}{m}} \end{aligned} \quad (3.1)$$

Hierbei ist T_0 die Anfangstemperatur des Gases und m die Masse der Gasteilchen.

Die Umwandlung in die gerichtete Bewegungsenergie führt somit zu einer Kühlung des Gases, da die Relativgeschwindigkeit der Gasteilchen gegen Null geht. Hierbei ist die Stärke der Kühlung von dem Restgasdruck in der Quellkammer abhängig, da der Gasstrahl beim Eintritt in die Quellkammer mit dem in ihr befindlichen Restgas wechselwirkt. Dabei kommt es zur Ausbildung verschiedener Zonen [Abb. 3.2] Die durch die Wechselwirkung zwischen Kompressions- und Schockwellen begrenzte Zone, wird "zone-of-silence" genannt. Hierin bewegen sich die Gasteilchen ohne Stöße. Die Länge der "zone-of-silence" entspricht also der lokalen freien Weglänge und ist abhängig vom Restgasdruck. Je höher dieser ist, umso weniger verlieren die Teilchen ihre interne Bewegungsenergie [Schö02]:

$$l_z = \frac{2}{3}d_D \sqrt{\frac{P_0}{P_1}}$$

d_D ist hierbei der Düsendurchmesser. Die Länge der "zone-of-silence" beträgt in diesem Experiment ca. 1 cm.

Im Idealfall (d.h. $P_1 = 0$) müsste eine Endtemperatur von 0K erreicht werden. In der Realität weicht diese aber davon ab. Die Endtemperatur T lässt sich als Funktion des „Speedratios“ S beschreiben [Toe77]:

$$T(S) = \frac{5}{2} \frac{T_0}{S^2}$$

wobei:
$$S = \frac{v_{jet}}{\sqrt{\frac{2kT_0}{m}}}$$

Dabei ist S abhängig von dem Produkt aus dem Vordruck P_0 und dem Düsendurchmesser d_D . Das Speedratio beschreibt außerdem den Quotienten der mittleren Geschwindigkeit der Teilchen des Überschallgasstrahls und der Breite ihrer Geschwindigkeitsverteilung.

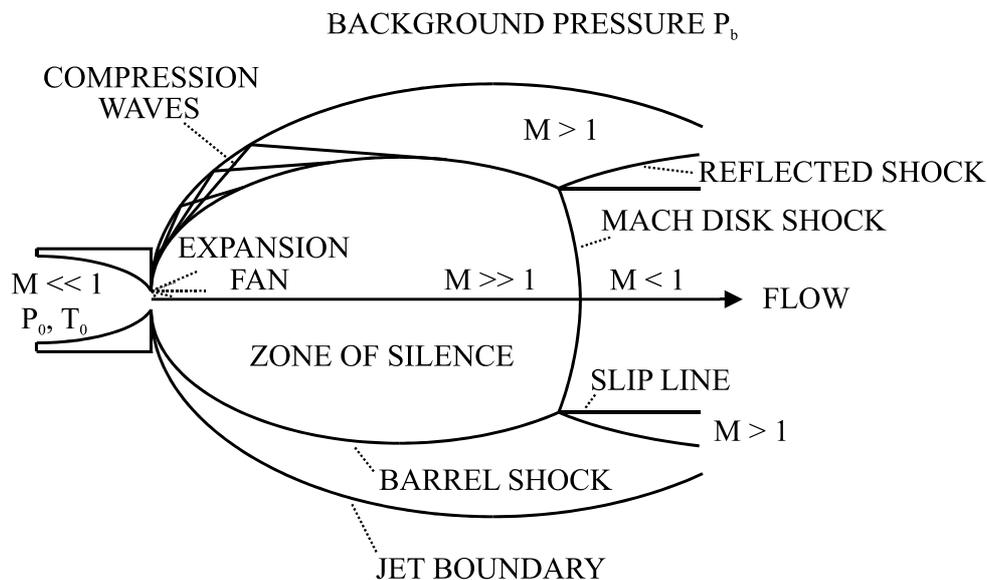


Abb.3.2: Schematische Zeichnung der Struktur einer Überschallexpansion [Mil88].

Aus dem breiten Überschallgasjet muß nun ein gut lokalisierter Strahl herausgeschält werden, welcher dann als Target dient. Dies geschieht durch einen Skimmer, der sich über der Düse befindet und in die "zone-of-silence" eintaucht [Abb. 3.3]. Sein Durchmesser beträgt 0,3 mm und er hat eine Länge von 9 mm. Der Targetstrahl wird anschließend mit einer Blende oder einem zweiten Skimmer (Durchmesser = 0,3 mm) nochmals kollimiert. Durch die Wahl eines geeigneten Abstandes von Düse und Skimmer bzw. 1. Skimmer und 2. Skimmer wird die Ausdehnung der späteren

Reaktionszone bestimmt: Der Abstand zwischen Düse und 1. Skimmer beträgt hier aufgrund der Länge der "zone-of-silence" höchstens 1 cm. Der Abstand zwischen dem 1. und dem 2. Skimmer liegt bei 12mm. Durch die hier gewählten Abstände definiert sich über den Strahlensatz ein Strahldurchmesser von 1-2 mm am Targetort.

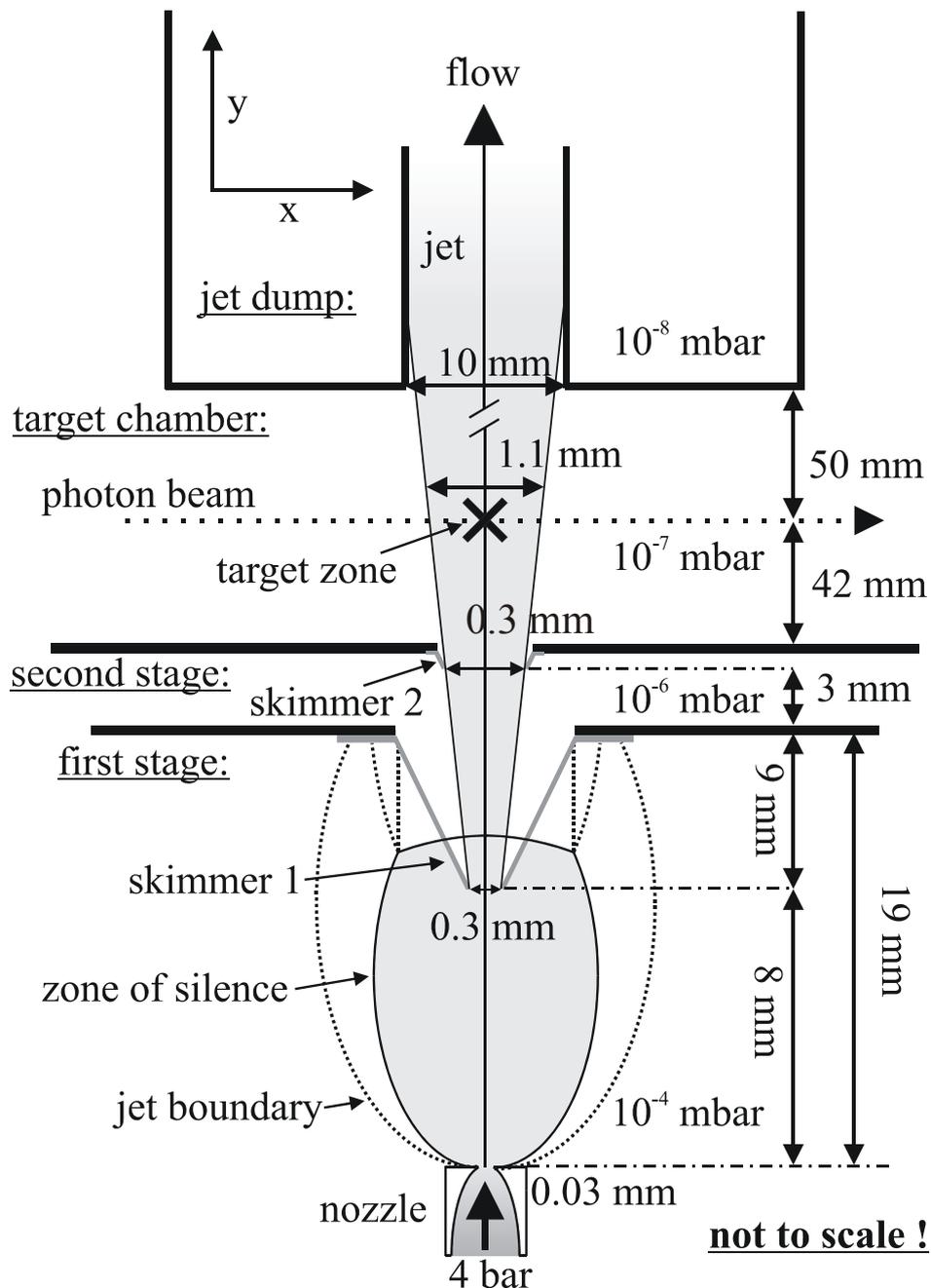


Abb.3.3: Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus. First und second stage (erste und zweite Jetstufe) bilden die Quellkammer, hier geschieht die Präparation des Überschallgasjets. In der "target chamber" (Experimentierkammer) findet die Reaktion statt. Das überschüssige Gas wird in den Jetdump abgesaugt [Web03].

3.4. Die Synchrotronstrahlung

In diesem Experiment werden als Projektile Photonen verwendet. Diese können auf verschiedene Art erzeugt werden. Die dabei auftretenden Spektren unterscheiden sich je nach der gewählten Erzeugungsart in ihrem Energiebereich, in der Art ihres Spektrums (kontinuierliches oder Linienspektrum) und in ihrer Photonenintensität. Eine besondere, inzwischen fast alltägliche Photonenquelle, ist der Laser. Er besitzt sehr intensives, kohärentes Licht und ist für zahlreiche Experimente der Physik unentbehrlich.

Weiterhin können Photonen in einer Synchrotronanlage erzeugt werden. Der Energiebereich, der mit der Synchrotronstrahlung abgedeckt wird, reicht vom Infraroten bis zur harten Röntgenstrahlung. Es steht dem Experimentator also ein sehr breites Energiespektrum zur Verfügung.

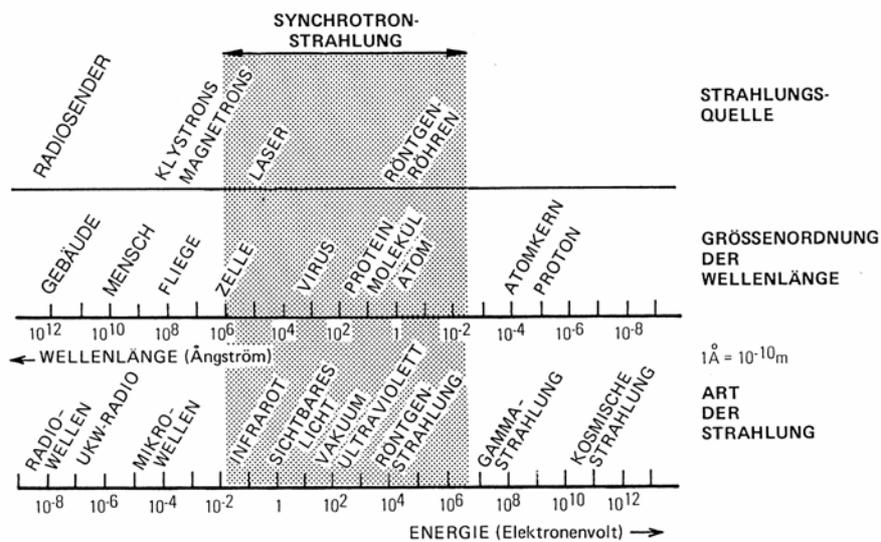


Abb.3.4: Visualisierung des Energiebereichs von Synchrotronstrahlung [Spi96].

Eine Synchrotronanlage ist ein Speicherring, in dem Elektronen beschleunigt werden, damit diese Energie abstrahlen. Der Speicherring der Advanced Light Source (ALS) in Berkeley, an dem dieses Experiment gemessen wurde, hat ungefähr einen Durchmesser von 60 m. Die Elektronen werden mit Hilfe von Ablenkmagneten A und Beschleunigungselementen auf die Kreisbahn des Speicherrings gezwungen [Abb. 3.5]. Bei der dadurch auftretenden Änderung ihrer Geschwindigkeit geben die Elektronen elektromagnetische Strahlung tangential zur Kreisbahn ab. Die Energie

dieser Bremsstrahlung E_B kann dabei nicht die kinetische Energie der Elektronen, die sie auslöst, überschreiten [Stö98].

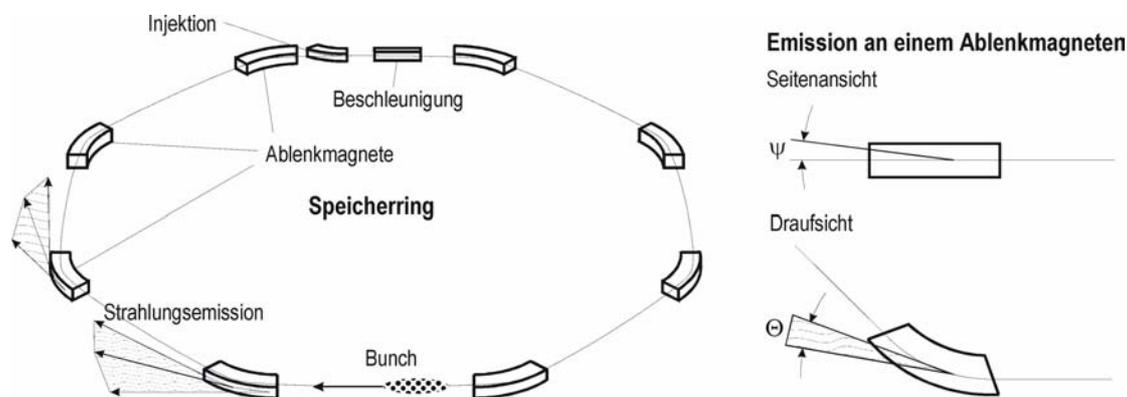


Abb. 3.5: Darstellung der Bahn der Elektronen im Speicherring und der Emission der elektromagnetischen Strahlung der Elektronen an einem Ablenkmagneten [Ach99].

Die Intensität der Strahlung kann allerdings durch sogenannte Wiggler und Undulatoren verstärkt werden. Wiggler sind Ablenkmagnete, welche die Elektronen, während sie auf der Kreisbahn laufen, zusätzlich oszillieren lassen. Aufgrund dieser kleineren Oszillationen kann Strahlung kürzerer Wellenlänge emittiert werden. Die Strahlung, die an den verschiedenen Oszillationspunkten der Elektronenbahn emittiert wird, überlagert sich dabei inkohärent. Durch den Einbau eines Wigglers W erreicht man aufgrund der $2N$ Magnetpolschuhe eine $2N$ mal höhere Strahlungsintensität I als an einem Ablenkmagneten [Abb. 3.6].

$$I(W) = 2N \cdot I(A)$$

Wiggler erzeugen allerdings aufgrund ihrer immernoch starken magnetischen Ablenkkräfte einen breiten Strahlungskegel. Mit Hilfe von Undulatoren, welche ein geringeres periodisches Magnetfeld aufweisen, werden die Auslenkungen der Oszillationen der Elektronen verringert, wodurch es teilweise zu einer kohärenten Überlagerung der entstehenden Strahlung kommen kann. Hierdurch wird eine N^2 -fache Verstärkung der Lichtintensität im Vergleich zu einem einfachen Ablenkmagneten erzeugt.

$$I(U) = N^2 \cdot I(A)$$

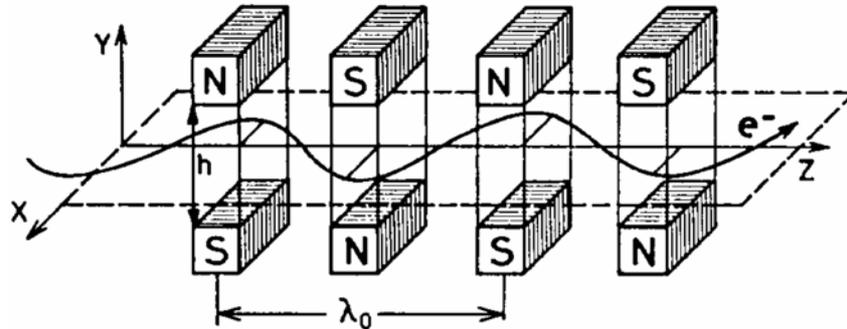


Abb. 3.6: Darstellung der Trajektorie der Elektronen in einem Wiggler des Speicherringes. h ist der Abstand zwischen den Polschuhen und λ_0 die Periodenlänge einer Oszillation [Ach99].

Die Realisierung der hohen Geschwindigkeit der Elektronen geschieht, indem die Elektronen zunächst einen 5m langen Linearbeschleuniger passieren, der die Teilchen auf eine Geschwindigkeit von 99,9% der Lichtgeschwindigkeit bringt. Aus dem Linearbeschleuniger werden sie dann über einen Kreisbeschleuniger mit einem Durchmesser von ungefähr 20 m in den Speicherring geführt.

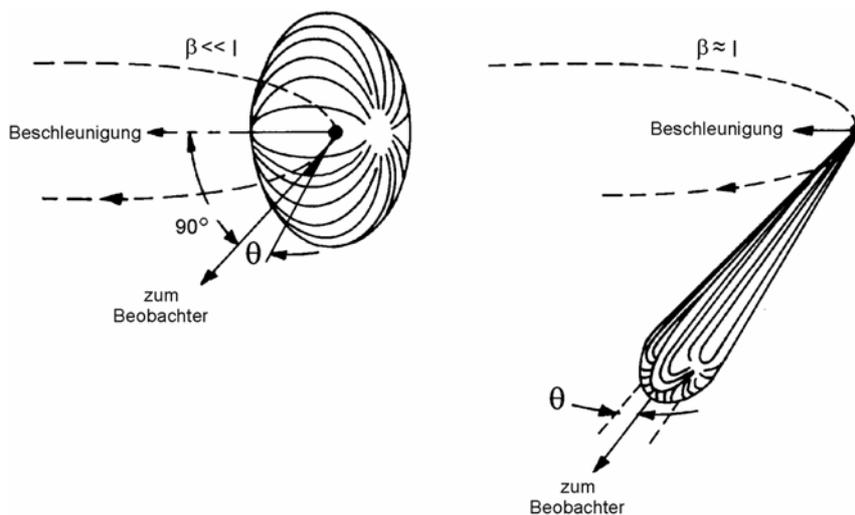


Abb.3.7: Zeichnung der Abstrahlcharakteristik der Elektronen für $\beta \ll 1$ (Geschwindigkeiten kleiner als die Lichtgeschwindigkeit) und $\beta \approx 1$ (im Bereich der Lichtgeschwindigkeit) [Ach99].

Die im Ring beschleunigten Elektronen erreichen eine Geschwindigkeit nahe der Lichtgeschwindigkeit c . Die Konsequenz aus dieser hohen Geschwindigkeit ist, dass die Teilchen ihre Energie im Laborsystem nicht isotrop, sondern gerichtet entlang ihrer Beschleunigung abstrahlen [Abb. 3.7].

Synchrotronstrahlung besitzt den großen Vorteil eines breiten Frequenzspektrums mit zugleich hoher Intensität und sehr gerichteter Emission. Ein weiterer Vorteil ist die Möglichkeit, die Polarisation des Lichts beliebig zu wählen. Die Polarisationrichtung der erzeugten Strahlung liegt in der Schwingungsebene der Elektronen im Ablenkmagnet, Wiggler und Undulator und ist linear. Durch das Hintereinanderschalten von Undulatoren unter verschiedenen Winkeln können sich die linearen Polarisationen des Lichts zu einer elliptischen bis zirkularen Lichtpolarisation überlagern.

3.4.1. Die verschiedenen Betriebsmodi der Synchrotronanlage

Die in dem Speicherring beschleunigten Elektronen verlieren bei der Abstrahlung einen geringen Teil ihrer kinetischen Energie. Um die Teilchen aber auf ihrer Bahn zu halten, wird ihnen durch hochfrequente elektromagnetische Strahlung die Energie wieder zugeführt.

Aufgrund dieser periodischen Energiezufuhr treten die Teilchen in dem Speicherring nur in Form von einzelnen Teilchenpaketen auf und sind nicht kontinuierlich entlang der Kreisbahn verteilt. Hierbei gibt es an der ALS in Berkeley des weiteren verschiedene Modi; den Multibunchmode, bei dem der zeitliche Abstand zwischen den vielen Paketen nur 2ns beträgt³, und den Twobunchmode. Im Twobunchmode befinden sich zwei Teilchenpakete im Speicherring in einem zeitlichen Abstand von 328 ns. Da ein Lichtblitz nur dann entsteht, wenn ein Elektronenpaket die lichterzeugende Struktur passiert, erhält man in diesem Modus Lichtblitze von etwa 50 ps Dauer, die in einem Abstand von 328 ns auftreten. Da eine genaue Bestimmung des Zeitpunktes der Reaktion zur Auswertung des Experimentes notwendig ist, verwendet man für die COLTRIMS-Experimente den Twobunchmode. Hierbei ist zwischen den eintreffenden Photonen ausreichend Zeit (328ns), um aufeinander folgende Ereignisse zu separieren.

³ Dieser Modus liefert einen quasi-kontinuierlichen Photonenstrahl.

3.5. Das Spektrometer

Die Aufgabe des Spektrometers ist es, die Teilchen, die in der Reaktion entstanden sind, einzufangen. Es besteht aus aneinander gereihten Kupferplatten, welche durch Widerstände miteinander verbunden sind. Die für das Experiment nötigen homogenen, elektrischen Felder können so durch Anlegen einer Spannung an den Enden des Spektrometers erzeugt werden.

Wichtig bei dem Entwurf des Spektrometers ist es, das Design an das jeweilige Experiment anzupassen. Das heisst, es muß darauf geachtet werden, welche Art von Teilchen detektiert werden soll, und welche Auflösung notwendig ist, um den gewünschten Effekt beobachten zu können.

Dabei muß man oft Kompromisse eingehen. Denn z.B. mit der Wahl eines hohen elektrischen Feldes kann man Teilchen höherer Energie einfangen. Andererseits wird dabei das Auflösungsvermögen für die Teilchenimpulse schlechter. Um die passenden Größen für das elektrische Feld sowie für das magnetische Feld und die Längen der Beschleunigungs- und Driftstrecken des Spektrometers zu finden, wurden Felder und resultierende Trajektorien mit dem Simulationsprogramm SimIon berechnet [Abb. 4.3].

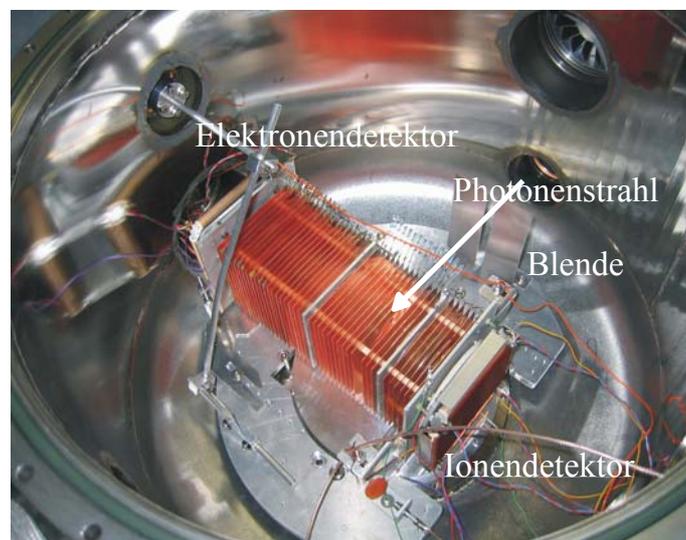


Abb.3.8: Bild des COLTRIMS-Spektrometers in der Targetkammer. Rechts befindet sich der Ionendetektor, links der Elektronendetektor. Der Photonenstrahl wird an der eingezeichneten Stelle mit dem von unten kommenden Gasjet gekreuzt.

Für dieses Experiment wurde ein magnetisches Feld von 10 G und ein elektrisches Feld von 40 V/cm gewählt. Mit diesen Feldern ist es möglich, Elektronen mit einer Energie bis zu 30 eV und Ionen bis zu 16 eV mit 4π -Raumwinkelakzeptanz zu detektieren. Damit werden nahezu alle ionischen Fragmente, die in der o. g. Reaktion entstehen können, eingefangen. Bei der gewählten Photonenenergie von 240 eV, verbleibt allerdings eine gesamte kinetische Energie der Elektronen von ungefähr 190 eV. Es genügt trotzdem Elektronen mit einer Energie bis zu 30 eV einzufangen, da die bei der Doppelionisation des Wasserstoffmoleküls entstehenden, beiden Elektronen bevorzugt eine ungleiche Energieaufteilung besitzen [Abb. 3.9]. Der Fall, dass die Energie des ersten Elektrons E_{e1} viel größer ist als die Energie des zweiten Elektrons E_{e2} tritt demnach viel häufiger ein als der Fall der symmetrischen Energieaufteilung. Diese Annahme findet ihre Begründung in bereits durchgeführten Messungen an Helium und wird durch diese Arbeit, wie sich im Folgenden zeigen wird, für Wasserstoff bestätigt.

Das Spektrometer wurde nun daher so konzipiert, dass bei der Photodoppelionisation des Wasserstoffmoleküls nahezu jedes Ereignis durch die Messung von drei Fragmenten mit dem vollen Raumwinkel registriert werden kann. Der Impuls des hochenergetischen Elektrons wird dann komponentenweise über die Impulserhaltung der Reaktion berechnet.

$$\begin{aligned}
 p_{ex1} &= -(p_{rx1} + p_{rx2}) - p_{ex2} \\
 p_{ey1} &= -(p_{ry1} + p_{ry2}) - p_{ey2} \\
 p_{ez1} &= -(p_{rz1} + p_{rz2}) - p_{ez2}
 \end{aligned}
 \tag{3.2}$$

p_{ex2} ist der Impuls des langsamen Elektrons in x-Richtung, p_{rx1} und p_{rx2} sind die Impulse der Recoils in x-Richtung und p_{ex1} ist der Impuls des schnellen Elektrons in x-Richtung. Die analoge Bezeichnung gilt für die Komponenten in y- und in z-Richtung. Der Impulsbetrag ergibt sich dann aus den drei Komponenten des schnellen Elektrons $e1$:

$$p_{e1} = \sqrt{p_{ex1}^2 + p_{ey1}^2 + p_{ez1}^2}$$

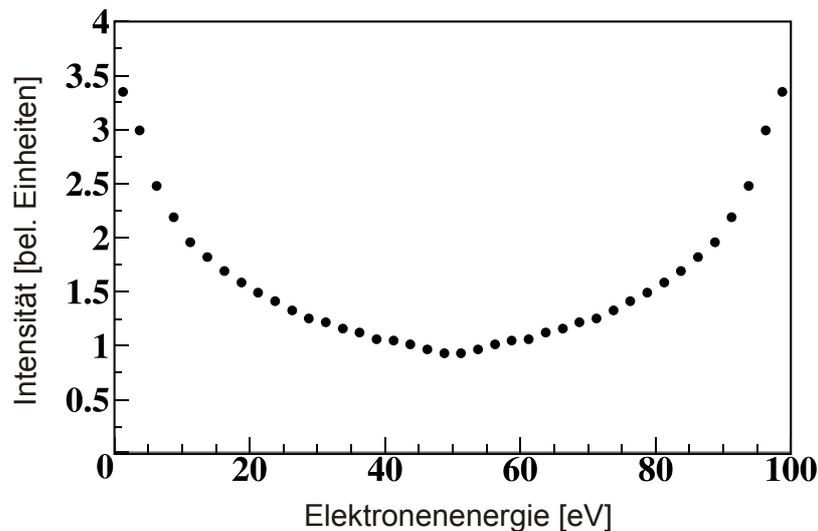


Abb. 3.9: Energieaufteilung (energy sharing) zwischen den beiden Elektronen bei der Photodoppelionisation von Helium [Kna02_1].

3.5.1. Die Flugzeitfokussierung

Die „Flugzeitfokussierung“ dient dazu, die endliche Breite des Jets in Flugzeitrichtung, d.h. die Unsicherheit im Startort, zu eliminieren, um dadurch auftretende Ungenauigkeiten in der Messung der Impulse der Teilchen zu vermeiden.

Die Flugzeitfokussierung wird durch eine bestimmte Geometrie des Spektrometers realisiert. Das bedeutet, die Spektrometerstrecke der jeweiligen Teilchenart, Elektron und Ion, wird in zwei Teile s_1 und s_2 unterteilt. $s_{1e} = 12,2\text{cm}$ und $s_{2e} = 6,1\text{cm}$ sind die Strecken der Elektronen und $s_{1i} = 4,2\text{cm}$ und $s_{2i} = 2,1\text{cm}$ die der Ionen. s_1 ist jeweils eine Beschleunigungsstrecke, an der das homogene elektrische Feld E anliegt, s_2 ist eine Driftstrecke. Die Driftstrecke wird durch einen elektrischen Kurzschluss der einzelnen Kupferplatten in diesem Bereich des Spektrometers realisiert. Voraussetzung für die Flugzeitfokussierung ist nun das Verhältnis von Beschleunigungs- zu Driftstrecke von 1:2 [Abb. 3.10].

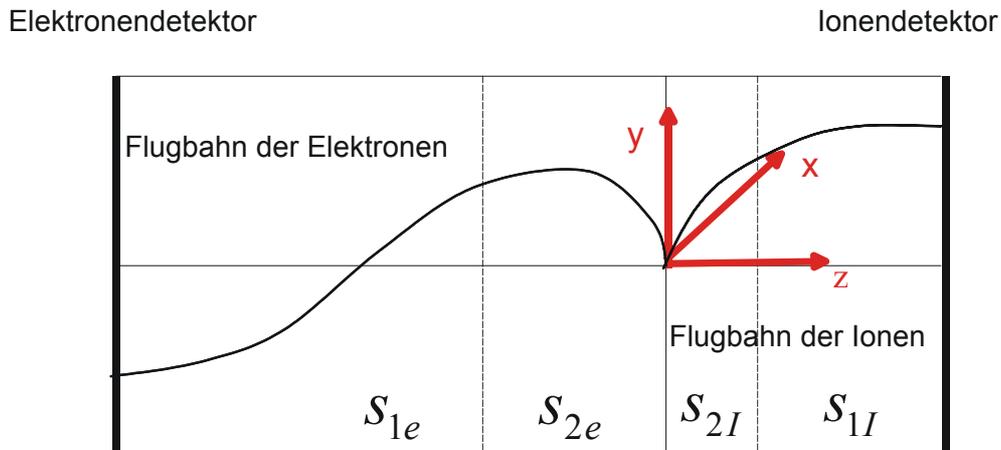


Abb.3.10: Flugbahnen der Teilchen im Spektrometer. Die x-Achse repräsentiert die Photonenstrahlrichtung, die yz-Ebene ist dementsprechend die Polarisations Ebene. Die Beschleunigungs- und die Driftstrecke der Elektronenseite des Spektrometers betragen $s_{1e} = 12,2$ cm $s_{2e} = 6,1$ cm, die der Ionenseite haben die Längen $s_{1I} = 4,2$ cm und $s_{2I} = 2,1$ cm. Die Trajektorien basieren auf einer Elektronenenergie von 30 eV und einer Ionenenergie von 16 eV, entsprechen in dieser Abbildung allerdings nicht exakt der in SimIon berechneten Trajektorien der Teilchen.

3.5.2. Bewegung im elektrischen Feld mit Flugzeitfokussierung

Befinden sich geladene Teilchen in einem elektrischen Feld, so erfahren sie die Coulombkraft \vec{F}_c . Es gilt:

$$\vec{F}_c = q \cdot \vec{E} = m \cdot \vec{a} \quad (3.3.)$$

Dabei ist q die Ladung, m die Masse und \vec{a} die Beschleunigung des Teilchens; \vec{E} repräsentiert das elektrische Feld.

In dem Abschnitt der Beschleunigungsstrecke s_1 bzw. der Driftstrecke s_2 des Spektrometers gelten somit folgende Bewegungsgleichungen:

$$s_1 = \frac{1}{2} a_1 t_1^2 + v_1 \cdot t_1$$

$$s_2 = v_2 \cdot t_2$$

Die Geschwindigkeit v_1 ist dabei die Startgeschwindigkeit direkt nach der Reaktion, v_2 ist die Geschwindigkeit, die das Teilchen nach dem Durchlaufen der Beschleunigungsstrecke hat, a_1 ist die Beschleunigung auf dieser Strecke. Die Größen t_1 und t_2 sind die jeweiligen Flugzeiten des Teilchens in der Beschleunigungs- bzw. in der Driftstrecke. Das elektrische Feld wirkt hierbei nur in Richtung der Spektrometerachse.

Für die gesamte Flugzeit des Teilchens ergibt sich so:

$$t_{ges} = t_1 + t_2, \quad \text{mit:}$$

$$t_1 = -\frac{v_1}{a_1} \pm \sqrt{\frac{v_1^2}{a_1^2} + \frac{2s_1}{a_1}}$$

$$t_2 = \frac{s_2}{v_2}$$

Um später die Impulse berechnen zu können, benötigt man die Geschwindigkeit v_1 in Abhängigkeit von der Gesamtflugzeit. Um diese zu berechnen muß eine kubische Gleichung für v_1 gelöst werden. Die Aufstellung sowie die Lösung dieser kubischen Gleichung ist im Anhang 2.1. und 2.2. nachzulesen.

Hat man die Geschwindigkeit für beide Kerne des Moleküls berechnet, lässt sich durch das ineinander Einsetzen der Gleichungen beider Kerne die Flugzeit des ersten Teilchens in Abhängigkeit von der Flugzeit des zweiten Teilchens berechnen. Dieser Zusammenhang ist in Anhang 2.3. nachzulesen.

3.5.3. Die Bewegung im magnetischen Feld

Die Bewegung von Elektronen im magnetischen Feld erfolgt auf Kreisbahnen um die Richtung des magnetischen Feldes. Der Gyrationradius r_g ihrer Kreisbahn ergibt sich aus dem Gleichgewicht von Lorentz- und Zentrifugalkraft:

$$\frac{m \cdot v_{\perp}^2}{r_g} = q \cdot v_{\perp} \cdot B$$

Hierbei ist v die Teilchengeschwindigkeit, wobei das Magnetfeld nur auf die Komponente der Geschwindigkeit senkrecht zu ihm wirkt. B beschreibt die Größe des Magnetfeldes, q die Ladung und m die Masse der Teilchen.

Aufgrund des elektrischen Feldes, welches die Elektronen parallel zum magnetischen Feld beschleunigt, werden die Kreisbahnen zu Spiralbahnen.

Wichtige Kenngrößen, die sich aus der Stärke und aus der Richtung des Magnetfeldes ergeben, sind der Gyrationradius r_g und die Zyklotronfrequenz ω_c bzw. die Umlaufdauer t_c .

$$r_g = \frac{m \cdot v_{\perp}}{q \cdot B}$$
$$t_c = 2\pi \frac{m}{q \cdot B}$$

Für Elektronen speziell ergibt sich:

$$r_g [mm] = 124,4 \cdot \frac{v_{\perp} [a.u.]}{B[G]}$$
$$t_c [ns] = 357,2 \cdot \frac{1}{B[G]}$$

Die Elektronen kehren also nach jeder Umlaufzeit t_c zur x/y-Koordinate ihres Startpunkts (x_0, y_0) zurück [siehe Abbildung 3.11].

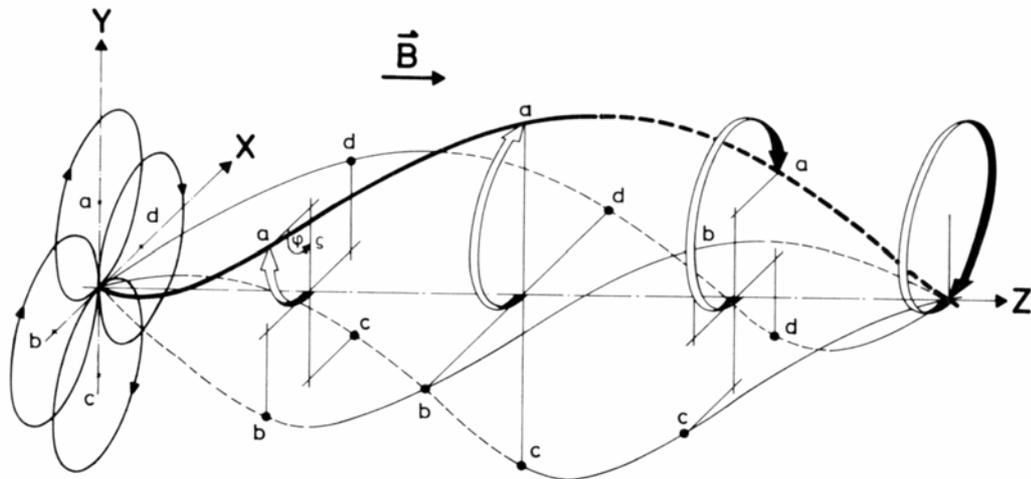


Abb. 3.11: Darstellung der Gyrationenperioden und -radien der Elektronen für verschiedene Startwinkel (a, b, c, oder d). z ist hier die Flugzeitrichtung, y die Richtung des Jets und x repräsentiert die Photonenstrahlrichtung [Bet90].

3.6. Die Auflösung

Das Auflösungsvermögen für auf dem Detektor auftreffende Teilchen ist zunächst abhängig von der verwendeten Elektronik. Mit dem hier eingesetzten Time-To-Digital-Converter (TDC), welcher zur Auslesung der Flugzeitsignale dient, ist eine Zeitauflösung von 0,5 ns möglich. Damit erreicht man bei den Größen der Felder und mit der Flugzeitfokussierung im Mittel eine Energieauflösung für die Elektronen von $\Delta E = 1/6$ und für die Ionen von $\Delta E = 1/160$ in Flugzeitrichtung. Für ein Elektron mit 30 eV kinetischer Energie bedeutet das eine Auflösung von 5 eV. Die Ionen haben eine maximale kinetische Energie von ungefähr 15 eV. Sie lassen sich also in Flugzeitrichtung mit einer Auflösung von 0,1 eV messen. In Ortsrichtung ergibt sich für die Elektronen eine Auflösung von 3 eV, für die Ionen erreicht man eine Auflösung von 1 eV.

Die sich daraus ergebende mittlere Impulsauflösung beträgt für die Elektronen 0,8 a.u. und für die Ionen 1,7 a.u..

3.7. Die Detektoren

Die Detektoren befinden sich an beiden Enden des Spektrometers. Sie dienen zur elektronischen Registrierung der in der Reaktion entstandenen, geladenen Teilchen. Die Detektoren erfassen dabei die Flugzeit der Teilchen nach der Ionisation sowie ihren Auftreffort auf dem Detektor.

Die Hauptbestandteile der Detektoren des COLTRIMS-Aufbaus sind das Multichannelplate (MCP) und die in x- und y-Richtung ortsauflösende Delayline-Anode. Die Anforderungen an die Detektoren sind hoch. Sie müssen für Hochvakuum geeignet sein und Ausheizen bis zu 200 Grad aushalten. Gleichzeitig ist eine hohe Empfindlichkeit der Detektoren wichtig, um alle auftreffenden Teilchen mit einer guten Auflösung und hoher Effizienz zu detektieren..

Im folgenden werden die einzelnen Komponenten des Detektors genauer beschrieben.

3.7.1. Das Multi-Channel-Plate

Das Multi-Channel-Plate (MCP) besteht aus einer Vielzahl Glaskapillaren, die zu einer etwa 1 mm dicken Platte mit einem Durchmesser von bis zu 120 cm zusammengefaßt sind [Abb. 3.12]. Die einzelnen Kapillaren haben einen Durchmesser von 5 bis 25 μm und sind mit einem Material beschichtet, das eine sehr geringe Austrittsarbeit für Elektronen besitzt. Am MCP liegt eine Spannung von ungefähr 1000 V an. Dadurch werden, wenn beim Auftreffen von Teilchen auf den Glaskapillarwänden Sekundärelektronen ausgelöst werden, diese beschleunigt. Durch diesen Prozeß entsteht eine Elektronenlawine an dem Ort, an dem das ursprünglich zu detektierende Teilchen aufgetroffen ist. Die Verstärkung, die erreicht werden kann liegt bei bis zu 10^3 . Durch das Hintereinanderlegen mehrerer MCPs erhält man Verstärkungsfaktoren von bis zu 10^8 .

Die nachzuweisenden Teilchen benötigen allerdings eine Mindestenergie, um ein Primärelektron auf dem MCP auszulösen. Damit diese auch erreicht wird, befindet sich zwischen dem Spektrometer und dem Detektor eine Nachbeschleunigungsstrecke.

Da die am MCP anliegende Spannung sehr hoch ist, kann es leicht zu Felddurchgiffen in die Driftregion des Spektrometers kommen. Um dem entgegenzuwirken, bringt man ein Gitter zwischen MCP und Spektrometerende an.

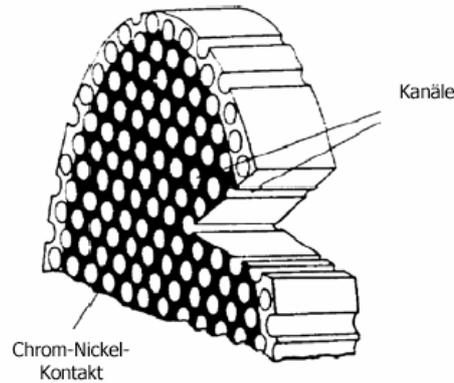


Abb. 3.12: Schematische Darstellung der Glaskapillaren des Micro-Channel-Plates [Sob88].

3.7.2. Die Delay-Line-Anode

Die Anode befindet sich hinter dem MCP und dient zur Registrierung der Auftrefforte der Teilchen. Es gibt verschiedene Arten von Anoden, z.B. der Widerstandsanode oder der Keil- und Streifen Anode, hier wird die in diesem Experiment verwendete Delay-Line-Anode vorgestellt. Diese ermittelt den Auftreffort eines Teilchens über eine relative Zeitmessung.

Die Anode besteht aus zwei zueinander um 90 Grad gedrehten Ebenen gewickelten Kupferdrahtes. Um einen Kurzschluß zu vermeiden, ist der Draht isoliert auf ein Keramikgerüst aufgewickelt. Die aus dem MCP kommende Elektronenwolke wird noch einmal beschleunigt, trifft auf die Anodendrähte und induziert dort einen Puls, der entlang der gewickelten Detektorspule zu beiden Seiten propagiert. Man misst nun an den beiden Drahtebenen die Zeit, zur der der induzierte Puls ankommt. Für jede Drahtebene lässt sich dann die Zeitdifferenz aus den Laufzeiten der Pulse zu den jeweiligen Drahtenden berechnen. Durch den linearen Zusammenhang zwischen der Laufzeit des Signals im Draht und dem Entstehungsort des Pulses kann nun der Auftreffort der Elektronenwolke auf der Anode bestimmt werden.

Eine wichtige Kenngröße der Anode ist die Gesamtlaufzeit der beiden Pulse auf einem Draht, welche eine Konstante ist. Man bezeichnet sie als Zeitsumme t_{sum} . Um elektronische Störungen zu eliminieren, besteht eine Drahtebene aus zwei parallel gewickelten Drähten, einem Signaldraht und einem Referenzdraht. Am Signaldraht ist eine etwas positivere Spannung angelegt, so dass die negative Elektronenwolke

bevorzugt in diesem den Puls induziert. Externe Störungen treten hingegen auf beiden Drähten gleichermaßen auf. Durch Differenzbildung von Signal- und Referenzdraht kürzt sich die Störung heraus und man erhält den reinen Signalpuls.

COLTRIMS-Experimente sind oft Multihitexperimente. Das heisst, ein zweites Teilchen trifft das MCP und somit auch die Anode nach einer kürzeren Zeit als der Laufzeit der Anodendrähte. Die Zeit, in der die Anode noch nicht bereit ist, dieses nächste Signal zu registrieren, bezeichnet man als Totzeit. Ein typischer Wert für die Totzeit einer einfachen, quadratischen Anode ist 12ns [Kna00].

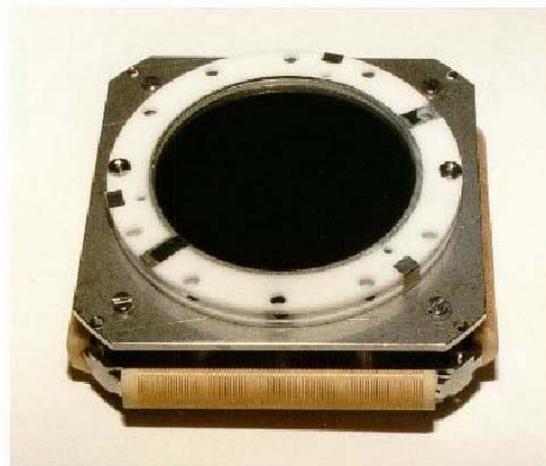


Abb. 3.13: Photo eines Detektors mit MCP und Anode [Roe02].

3.8. Elektronischer Aufbau und Datenaufnahme

Die detektierten Signale der Teilchen müssen nun so ausgelesen werden, dass es weder zu Verfälschungen kommt, noch dass die Auflösung der Signale darunter leidet. Das Zeitsignal des MCP's des Ionendetektors, sowie dessen vier ortsbestimmenden Anodensignale werden zunächst über einen Vorverstärker und einen Trigger mit "Constant Fraction Logik" in einen Standard NIM-Puls umgewandelt. Dieser Standard NIM-Puls kann mit einem TDC (Time to Digital Converter) ausgelesen werden. Die Signale der beiden Ionen und des Elektrons werden dabei in Koinzidenz aufgenommen [Abb. 3.14 und Abb. 3.15]. Das Zeitsignal des Ionendetektors wird dafür zusätzlich in eine Überlappkoinzidenzschaltung geleitet. Hierbei wird das Ionensignal nur weitergegeben, wenn beide Ionen in einem Zeitraum von $3 \mu s$ registriert werden. Die Summenflugzeit der beiden Ionen liegt bei

ungefähr 1350 ns. Werden nun zwei Ionen in diesem Zeitraum registriert, wird das Koinzidenzsignal als "Stop"-Signal in einen Time-to-Amplitude-Converter (TAC) geleitet. Als "Start"-Signal des TAC dient das Elektronensignal, welches in Koinzidenz mit dem Bunchsignal gemessen wurde [Abb. 3.15]. Das Eintreffen beider Signale innerhalb einer Zeitspanne von $10 \mu\text{s}$ veranlasst den TAC, den Puls weiterzuleiten. Der aus dem TAC kommende Puls wird schließlich mit dem TDC ausgelesen.

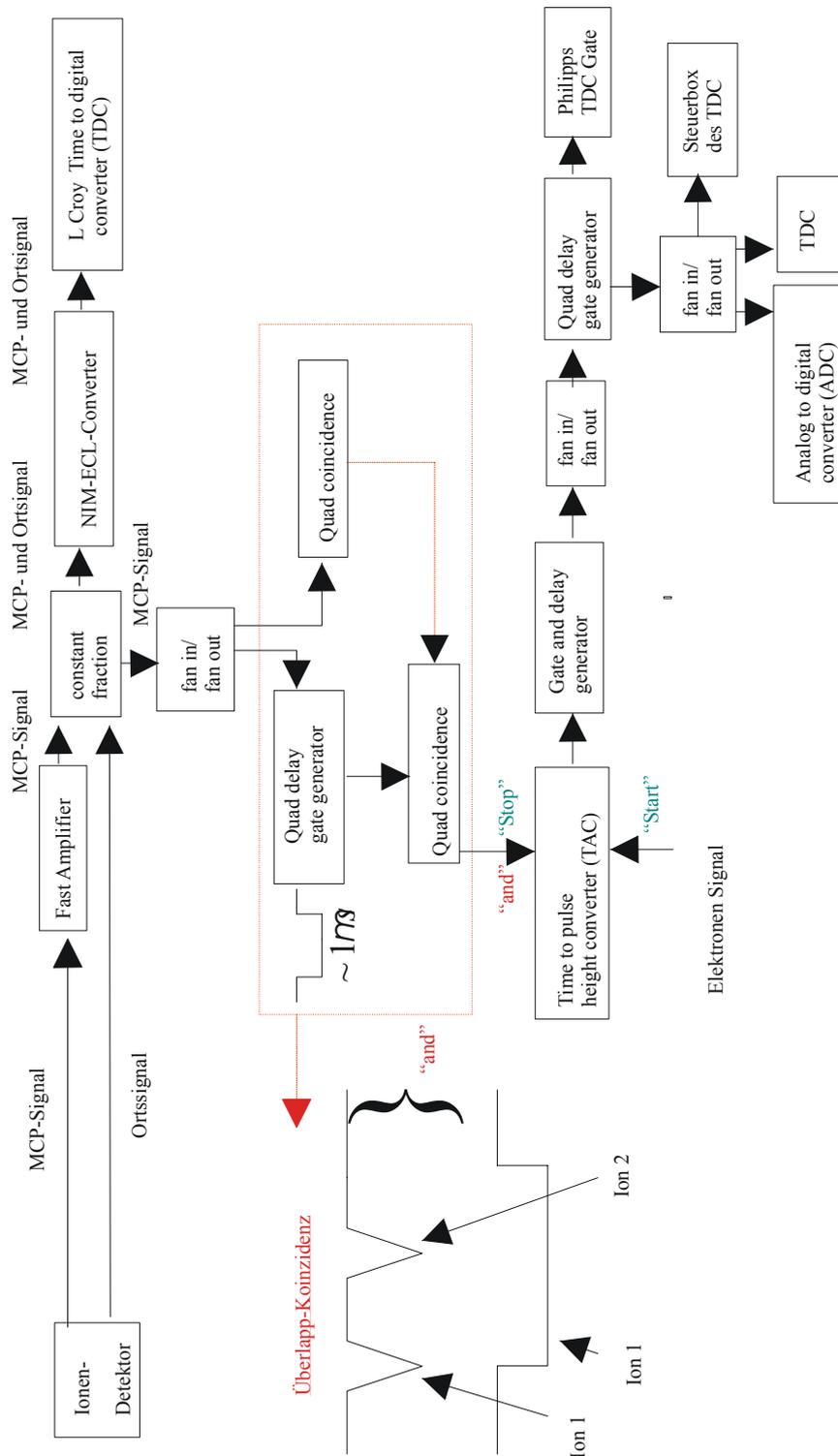


Abb. 3.14: Schaltplan für das elektronische Auslesen des Ionendetektors: die Signale der beiden Ionen wurden in einer Überlappkoinzidenz gemessen und mit einem LeCroy-Time-to-digital Converter (TDC) aufgenommen.

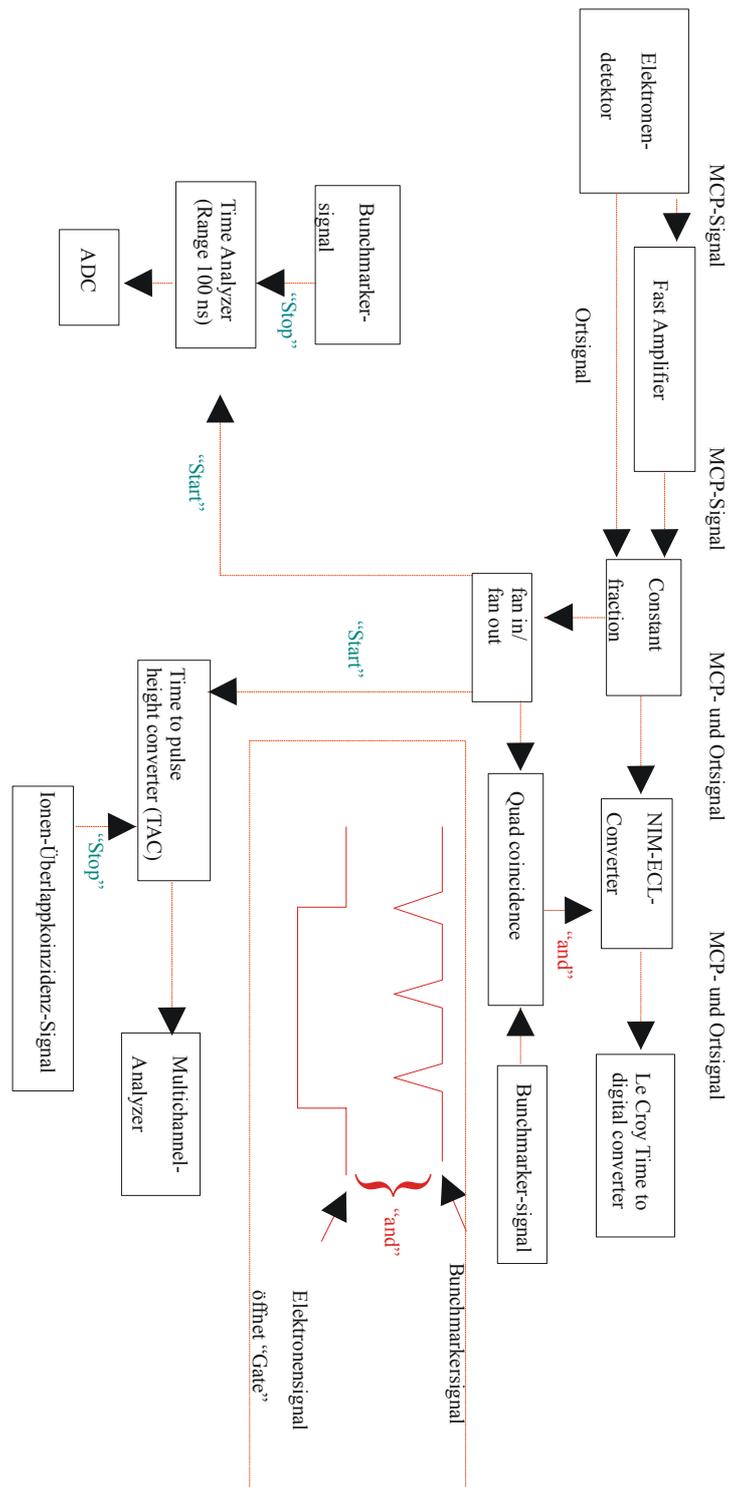


Abb. 3.15: Skizze des Schaltplans zur Auslese der Signale des Elektronendetektors. Hier wird eine Koinzidenz zwischen dem Bunchmarker und dem Elektronensignal durchgeführt, um nicht überflüssige Bunchsignale zu messen. Das Elektronen- und das Ionensignal werden beide in den TAC geleitet, dessen Startsignal das Elektronensignal und dessen Stoppsignal das Überlapp-Ionensignal ist.

3.9. Das Vakuumkammersystem

Um eine molekulare Reaktion messen zu können, muss das Experiment im Vakuum stattfinden. Die Trajektorien der fragmentierten Teilchen würden sonst durch Streuungen an Gasteilchen der Umgebung verfälscht werden, und auch die Delaylinedetektoren sind für den Betrieb bei Atmosphärendruck nicht geeignet.

Zur Realisierung des COLTRIMS-Experimentes dient das im Folgenden beschriebene Vakuumkammersystem [Abb. 3.18]. Dieser Aufbau besteht aus ferromagnetischen Materialien, um Störungen des angelegten magnetischen Feldes zu vermeiden.

Das Spektrometer befindet sich dabei in der sogenannten Experimentier- oder Targetkammer. Diese hat einen Durchmesser von ungefähr 60 cm und eine Höhe von ca. 40 cm. Unter der Targetkammer befindet sich die Quellkammer, in welcher der Überschallgasjet erzeugt wird. Die Quellkammer wird durch den zweiten Skimmer (siehe Kapitel 3.3.1.) in zwei Sektionen geteilt, die sogenannte erste und zweite Jetstufe. An jeder der Sektionen ist eine Hochvakuumpumpe angebracht, welche je durch eine Vorpumpe unterstützt wird. Hochvakuum Pumpen sind nur für Druckbereiche zwischen 10^{-3} mbar bis 10^{-11} mbar einsetzbar. Vorkumpen (hier: Membran- oder Scrollpumpen) übernehmen deshalb zunächst den Bereich von 1 bar bis 10^{-3} mbar . Die Hochvakuumpumpe der ersten Jetstufe hat eine Pumpleistung von 750 l/s. Diese hohe Leistung ist notwendig, um das nach der adiabatischen Expansion anfallende Gas abzusaugen zu können. Die Pumpleistung der Hochvakuumpumpe der zweiten Jetstufe liegt bei 200 l/s und man erreicht damit einen Vakuumdruck von 10^{-5} mbar bis 10^{-6} mbar . In der Experimentierkammer wird ein Druck von 10^{-7} mbar bis 10^{-8} mbar erreicht.

Bei der Kreuzung von Gas- (Target) und Lichtstrahl (Projektil) nimmt nur ein geringer Teil des Gases an der Reaktion teil. Um das übriggebliebene Gas abzusaugen und einzufangen, befindet sich über der Experimentierkammer der „Jetdump“. Dies ist ein Edelstahlzylinder, welcher direkt über dem Spektrometer justiert wird. Sein Durchmesser beläuft sich auf 95 mm. Die Öffnung des Jetdumps über dem Spektrometer hat allerdings nur einen Durchmesser von 10 mm.

Bei dem hier gewählten Vordruck des Gastargets von 4 bar ergab sich ein Druckanstieg ΔP im Jetdump von 10^{-7} bar. Die am Jetdump angebrachte Hochvakuumpumpe hat eine Leistung von $P_{\text{Pumpe}} = 200 \text{ l/s}$.

Daraus ergibt sich ein Teilchenanfall von [Web03]:

$$N = \Delta P \cdot P_{\text{Pumpe}} \cdot 6,022 \cdot 10^{23} / 22,4 \frac{1}{\text{l} \cdot \text{bar} \cdot \text{s}} = 5,4 \cdot 10^{14} \frac{1}{\text{s}}$$

Die Targetdichte n ergibt sich daraus wie folgt [Web03]:

$$n = \frac{N}{d_{\text{Target}} \cdot v_{\text{Jet}}} = 3 \cdot 10^{10} \frac{\text{Teilchen}}{\text{cm}^2}$$

Die Teilchengeschwindigkeit v_{Jet} erfolgt aus **(3.1.)** in Kapitel 3.3.1., d_{Target} ist der Targetdurchmesser, welcher sich auf ca. 1mm beläuft.

Die Druckanstiege beim Einschalten des Gasstrahles in den verschiedenen Sektionen des Vakuum-Kammersystems sind kritische Parameter der Targetpräparation. Man untersucht diese deshalb anhand von Druckkurven. Hierbei ist der Vordruck des Targetgases gegen den Druckanstieg der jeweiligen Sektion aufgetragen. [Abb. 3.16.] Die in Abb. 3.16. dargestellte Druckkurve wurde mit Heliumgas durchgeführt.

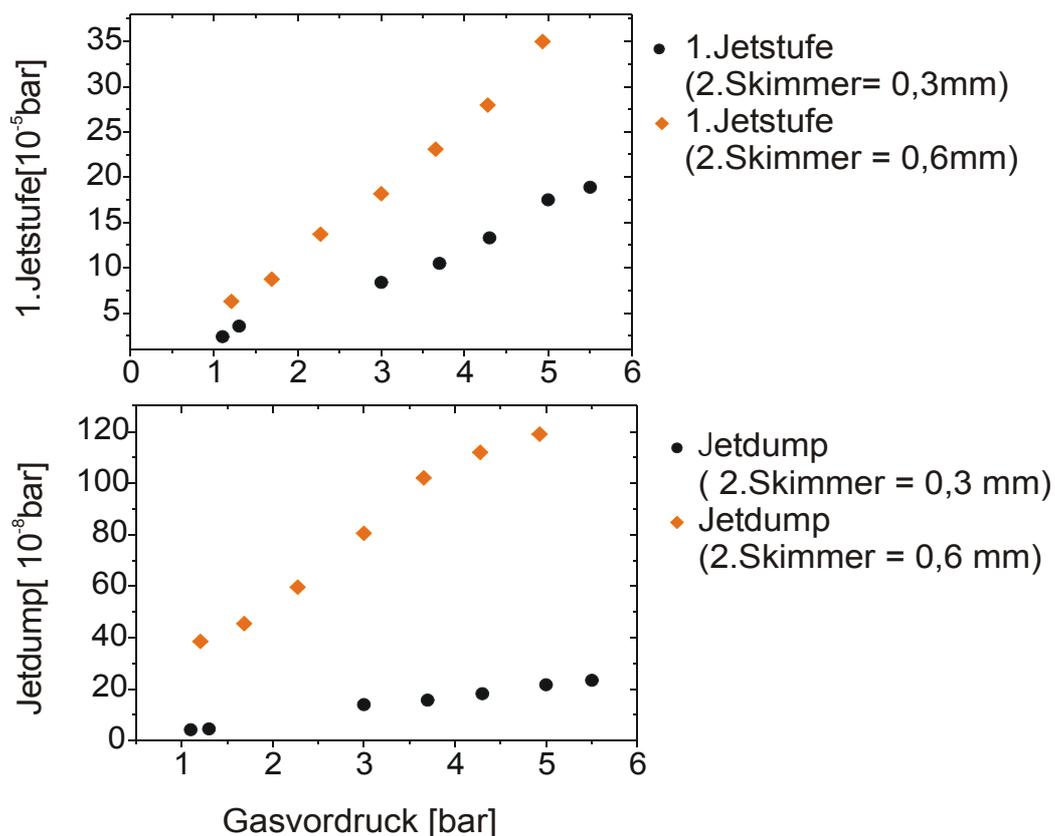


Abb. 3.16: Darstellung der Druckanstiege in der 1. Jetstufe und im Jetdump gegen den Vordruck von Heliumgas; die Druckkurve wird für einen Durchmesser des 2. Skimmers von 0,3mm (orangene Rauten) und von 0,6mm (schwarze Kreise) gemcht

In unserem experimentellen Aufbau wurde Gebrauch von einem Skimmer mit einem Durchmesser von 0,3 mm gemacht. Dadurch erhält man einen feineren Jet. Die Unsicherheit im Startort der Teilchen wird so verringert und man erreicht eine bessere Auflösung in Ortsrichtung. Diese ist in Abb. 3.17. dargestellt. Bei einer Unsicherheit im Startort von einem Millimeter (ungefährer Durchmesser des Jets), hat man je nach Emissionswinkel des Fragmentes für ein Spektrometer unseres Designs, eine Änderung in der Flugzeit von 0,2 ns (für einen Emissionswinkel relativ zur Flugzeitrichtung von 45°) bis 1,2 ns (für einen Emissionswinkel relativ zur Flugzeitrichtung von 90°) [Abb. 3.17.].

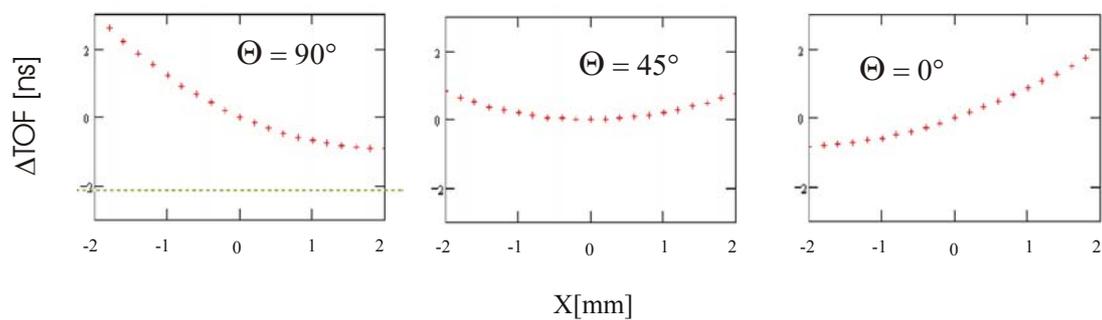


Abb. 3.17: Darstellung der Abweichung der Flugzeit aufgrund der Unsicherheit im Startort in einem Spektrometer unseren Designs. Die Unsicherheit tritt aufgrund der endlichen Breite des Jets in x-Richtung auf. Die Berechnung ist durchgeführt für ein Proton mit einer Energie von 16 eV für verschiedene Emissionswinkel Θ des Teilchens.

Der Kammeraufbau wird durch die Beamline, einem tangential vom Speicherring abgehenden Arm, mit dem Speicherring der Synchrotronanlage verbunden. Das Umgebungsvakuum des Speicherrings beträgt zwischen 10^{-9} und 10^{-11} bar. Da der Druck in dem experimentellen Aufbau meistens doch um etwa zwei Größenordnungen höher ist als der Druck im Speicherring, ist es nötig, zwischen dem Kammeraufbau und der Beamline, eine differentielle Pumpstufe einzubauen. Die differentielle Pumpstufe verhindert den Druckaustausch zwischen dem experimentellen Aufbau und dem Speicherring.

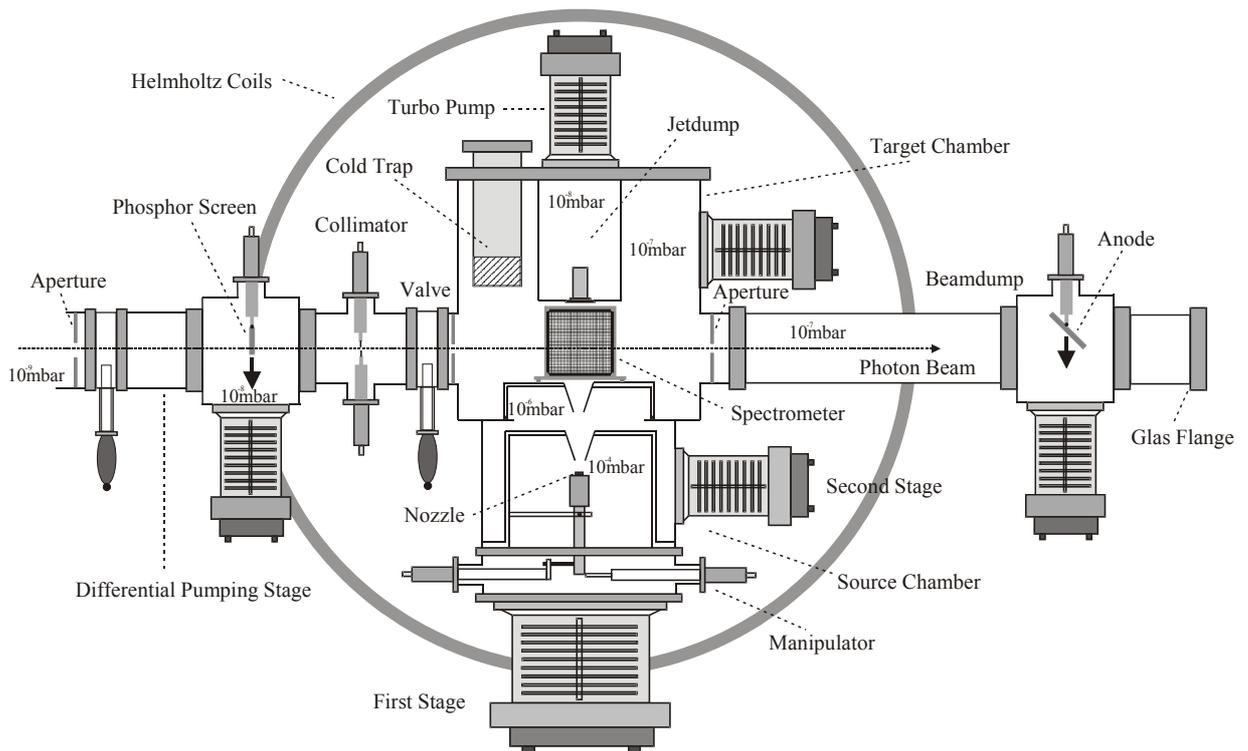


Abb.3.18: Darstellung der COLTRIMS-Vakuummkammer [Web00].

4. Die Datenauswertung

Mit Hilfe der COLTRIMS-Technik wurden die Rohdaten, d.h. die Orte und Flugzeiten der Fragmente des doppelionisierten Wasserstoffmoleküls aufgenommen. Durch diese Technik und durch Hinzunahme einiger physikalischer Grundlagen ist es nun möglich, die Impulse der ionisierten Fragmente über einfache Zusammenhänge aus den Rohdaten zu bestimmen. Aus den Impulsen lassen sich dann weitere physikalisch relevante Größen, wie die Emissionsrichtung und die Energien der nachgewiesenen Teilchen bestimmen.

4.1. Die Kalibration

In einem ersten Schritt der Auswertung der Daten, ist es nötig, einige Kalibrationen vorzunehmen, um die gemessenen Werte absolut einordnen und somit interpretieren zu können. Aufgrund des einfachen Zusammenhangs zwischen Messgröße und zugehörigem Impuls der Fragmente ist ihre Durchführung leicht zu verstehen. Bei der Kalibration muss die Laufzeit der elektrischen Signale des Delaylinedetektors in Orte umgerechnet werden. Um hierfür den richtigen Konversionsfaktor zu erhalten, kann entweder das Abbild einer Edelstahllochmaske, die vor dem Detektor plaziert ist und durch eine Alphaquelle bestrahlt wird, verwendet werden [Web03] oder die Daten eines Stoßprozesses eines schon untersuchten Atoms oder Moleküls - z.B. dem Heliumatom - kommen zur Anwendung. Man braucht zur Kalibration des weiteren die genaue Kenntnis über die Größe und Richtung der angelegten Felder sowie über die exakte Geometrie des Spektrometers. Außerdem benötigt man zur richtigen Analyse der Daten den absoluten Orts- und Zeitnullpunkt.

Die Kalibration der Photonenenergie ist nicht nötig, da diese schon durch die Gitter und Kristalle in der Beamline der ALS, welche als Monochromatoren dienen, in einem für dieses Experiment ausreichend guten Ausmaß geschieht.

4.1.1. Die Eichung des absoluten Zeitnullpunktes und der Stärke des B-Feldes

Der Zeitpunkt t_0 , an dem das Photon die Doppelionisation auslöst, muss nachträglich geeicht werden, da das Bunchsignal relativ zu dem Lichtblitz, welcher die Reaktion auslöst, zeitlich verschoben sein kann. Die Eichung geschieht über das sogenannte

„Wiggle-Spektrum“ [Abb.4.1]. In diesem Spektrum wird die Flugzeit gegen die radiale Auslenkung der Elektronen aufgetragen. Die Elektronen werden durch das Magnetfeld auf Spiralbahnen gezwungen. Dabei schneidet ihre Bahn, egal in welche Richtung sie ursprünglich emittiert wurden, jeweils nach der Dauer einer Umlaufperiode die Symmetrieachse des Spektrometers. Hierdurch ergibt sich im Wiggle-Spektrum eine Knotenstruktur. Die Knoten treten also bei einer Flugzeit, die dem Vielfachen der Gyrationperiode der Elektronen entspricht auf, so dass sich die Gyrationdauer an ihnen ablesen lässt. Durch die Kenntnis dieser und der gemessenen Flugzeit bei der ein Knoten auftritt, lässt sich der Zeitpunkt des „nullten Knotens“, d.h. der absolute Zeitnullpunkt t_0 extrapolieren. Die in diesem Experiment ermittelte Gyrationperiode beträgt 36,9 ns. Der Zeitnullpunkt liegt bei 103,2 ns. Aus der Gyrationperiode ergibt sich außerdem die genaue Stärke des Magnetfeldes von 9,86 G (siehe: Kap. 3.5.3.).

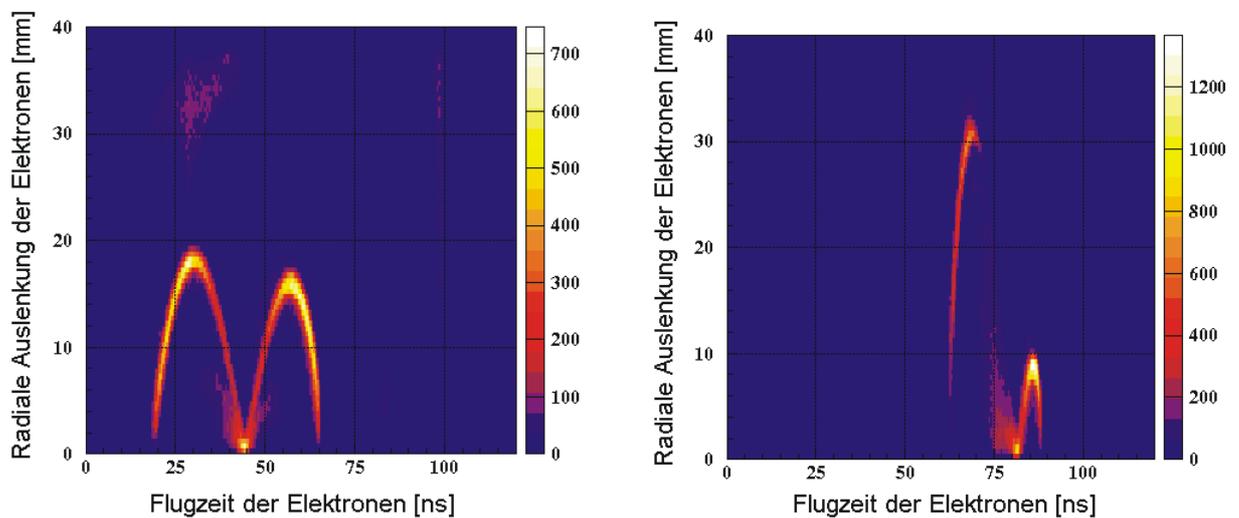


Abb. 4.1: Wigglespektrum zur Bestimmung der Gyrationperiode der Elektronen: auf der x-Achse ist die Flugzeit des Elektrons TOF_e in ns aufgetragen, die y-Achse zeigt die radiale Auslenkung der Elektronen r_e auf dem Detektor in mm. Links: Darstellung des zweiten Knotens bei 44,5 ns. Rechts: Darstellung des ersten Knotens bei 81,4 ns. Aus der Differenz lässt sich dann die Gyrationperiode von 36,9 ns sowie der absolute Zeitnullpunkt t_0 (Lage des nullten Knoten) berechnen

Durch eine Veränderung des elektrischen Feld wird eine Verschiebung der Flugzeitverteilung der Elektronen hervorgerufen. Bei der Aufnahme des Wigglespektrums wurde das elektrische Feld im Gegensatz zur Messung geändert, um mehrere Knoten ablesen zu können. Die Flugzeitverteilung der Elektronen mit dem Feld der Messung ($E = 40V/cm$) liegt zwischen 22 ns und 33 ns, d.h. zwischen dem nullten und dem ersten Knoten.

4.1.2. Die Eichung der Stärke des elektrischen Feldes

Die Eichung des elektrischen Feldes geschieht über die Betrachtung der Flugzeitverteilung der Ionen. Dafür wird die Flugzeit des ersten Ions gegen die Flugzeit des zweiten Ions aufgetragen. Dieses Spektrum nennt man PIPICO⁴-Spektrum. Die Gesamtflugzeit T_{1ges} , die ein Ion nach der Ionisation bis zum Erreichen des Detektors braucht, setzt sich aus den einzelnen Flugzeiten t_1 und t_2 innerhalb des Spektrometers zusammen. Dies sind die jeweiligen Flugzeiten, die das Ion benötigt, um die Beschleunigungsstrecke s_1 bzw. die Driftstrecke s_2 des Spektrometers zu passieren (siehe Kap 3.5.2.). Die Formeln für die Flugzeiten der Teilchen basieren auf den Newton'schen Bewegungsgleichungen [Herleitung: siehe Anhang 2.1.]:

$$T_{ges} = t_1 + t_2 = \frac{v}{a} \pm \sqrt{\frac{v^2}{a^2} + 2 \frac{s_1}{a}} + \frac{s_2}{v + at_1}$$

Die Ladung q und die Masse m der Ionen sowie die Größe des elektrischen Feldes \vec{E} sind in der Beschleunigung \vec{a} , die das Teilchen in der Beschleunigungsstrecke des Spektrometers erfährt (siehe Kap. 3.5., Gleichung 3.3.), enthalten. v repräsentiert die Startgeschwindigkeit, die das Fragment nach der Doppelionisation hat.

Trägt man nun jeweils die Flugzeit des ersten gegen die des zweiten Ions im PIPICO-Spektrum auf, so erwartet man eine Linie, auf der sich alle Ereignisse der H^+ -Ionen befinden. Das Auftreten einer H^+H^+ -Linie beruht auf der Impulserhaltung. Die Ionen r_1 und r_2 stehen sich nach der Ionisierung positiv geladen gegenüber und stoßen sich unter 180° voneinander ab. Dies gilt in der Näherung, bei welcher der Rückstoßimpuls des Elektrons vernachlässigt wird. Es gilt dabei:

$$\vec{p}_{r1} = -\vec{p}_{r2}$$

Betrachtet man Abbildung 4.2.b), so erkennt man allerdings den in der Realität von Null verschiedenen Rückstoßimpuls des Elektrons. Dieser äußert sich in der Doppellinie der Flugzeitkurve. Je nach der Richtung des Rückstoßimpulses auf die Ionen erhält man eine Verschiebung ihrer Flugzeit.

Das elektrische Feld wird nun bestimmt, indem die gemessene Flugzeitkurve $T_{2ges}(T_{1ges})$ (siehe Abb. 4.2.), an die berechnete Flugzeitkurve $T_{2ges}(T_{1ges})$ [Herleitung: siehe Anhang 2.3.] angepasst wird. T_{1ges} ist dabei die Flugzeit des ersten Ions und T_{2ges} ist die des zweiten Ions.

⁴ PIPICO ist die Abkürzung für „Photoion-Photoion-Coincidence“.

Was an dem PIPICO-Spektrum außerdem auffällt, ist, dass unterhalb der Geraden „ $y=x$ “ keine Ereignisse detektiert werden. Dies liegt an der Konvention für die Benennung der beiden Ionen. Das „erste“ Ion ist das, welches als erstes am Detektor ankommt, das „zweite“ ist somit das Ion, das als zweites den Detektor erreicht. Die Flugzeit des zweiten Ions, welche in Abb. 4.2. auf der y-Achse aufgetragen ist, ist somit immer größer als die des ersten Ions.

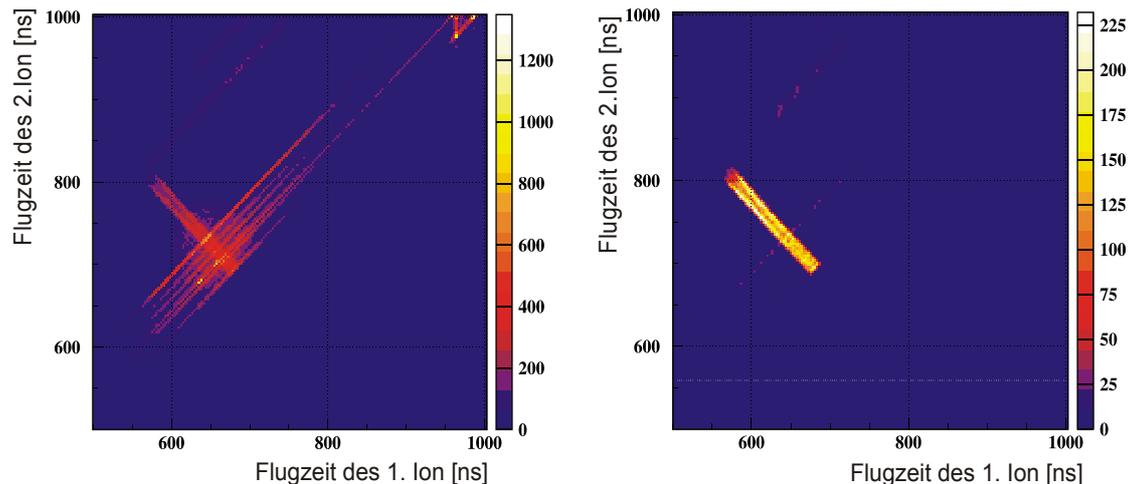


Abb. 4.2: Photoion-Photoion-Coincidence-Spektrum. Links: Rohdaten. Rechts: nahezu alle falschen Koinzidenzen sind bereits durch die Forderung der Impulserhaltung der Ionen in x- und y-Richtung entfernt.

4.2. Warum Photodoppelionisation?

Bei der in diesem Experiment gemessenen Doppelionisation des H_2 -Moleküls liegt das Augenmerk auf den Winkelverteilungen der Elektronen. Insbesondere interessiert man sich für die Frage, ob sich bei der hier vorhandenen kinetischen Energie der Elektronen Interferenzen beobachten lassen, welche entsprechend der Zweizentrenemission zu erwarten wären.

Für die Untersuchung des Interferenzeffekts würde offensichtlicherweise jedoch schon die Betrachtung der Einfachionisation des Moleküls ausreichen. Man misst dennoch die Doppelionisation des H_2 -Moleküls, da sich dies als technisch einfacher zu realisieren erweist als die Messung der Fragmente des einfachionisierten Moleküls: Bei der Doppelionisation ist es möglich, beide positiv geladenen Ionen zu detektieren, diese somit in Koinzidenz zu messen und so vom Untergrund zu separieren. Das Vorgehen im Rahmen dieser Messtechnik wird in Kapitel 4.3. genauer vorgestellt.

Außerdem ist bei der Messung der Doppelionisation die Untersuchung der kinetischen Energie beider Ionen möglich. Aus dieser Energie kann dann leicht der internukleare Abstand des Wasserstoffmoleküls abgeleitet werden [siehe Kap. 2.3.1.].

Die Doppelionisation hat den weiteren Vorteil, dass interessante, neue Effekte aufgrund der zwei emittierten Elektronen auftreten können. Die Beeinflussung der Interferenzstruktur durch die Bewegung des korrelierten Elektronenpaares kann so untersucht werden.

Aufgrund der von Ereignis zu Ereignis variierenden Energieaufteilung zwischen den Elektronen, betrachten wir für den Fall, in dem ein Effekt der Photoeinfachionisation zugeordnet werden kann, nur die Ereignisse, bei denen ein Elektron nahezu keine kinetische Energie besitzt. Dem anderen Elektron steht in diesen Fällen fast die gesamte kinetische Energie von 190 eV zur Verfügung und der Einfluss des zweiten Elektrons auf die Verteilungen des hochenergetischen Elektrons ist sehr gering.

4.3. Die Untergrundunterdrückung

Neben dem zu untersuchenden Gas, in unserem Fall das Wasserstoffmolekülgas, welches in Form eines Jets in die Kammer geleitet wird, befinden sich noch warmes Restgas (ebenfalls Wasserstoff, Stickstoff) oder andere Verunreinigungen in der Spektrometerkammer. Es ist deswegen wichtig, einen geeigneten Datenfilter einzusetzen, mit dem die eigentliche Reaktion vom Untergrund separiert werden kann. Die COLTRIMS-Technik bedient sich hierfür der Methode der Koinzidenzmessung. Dabei lassen sich die unerwünschten Ereignisse schon bei der Messung vom Untergrund separieren. Bei dieser Messtechnik macht man sich die bekannten Flugzeiten der ionischen Fragmente zu Nutze. Diese variieren mit der Masse und der Ladung der Ionen, sowie mit der Spektrometergeometrie und dem am Spektrometer angelegten elektrischen Feld.

Bei der hier angewandten Koinzidenzmessung wird verlangt, dass in einem bestimmten Zeitraum, welcher der Gesamtflugzeiten der ionisierten Fragmente entspricht, wenigstens zwei Ionen und ein Elektron detektiert werden. Werden Ereignisse außerhalb des festgelegten Zeitraums am Elektronen- bzw. Ionendetektor nachgewiesen, wird das Ereignis nicht registriert (siehe Kap. 3.8.).

Die Flugzeiten der jeweiligen ionischen Fragmente in der gewählten Spektrometergeometrie lassen sich mit Hilfe des Simulationsprogramms SimIon schon vor der Messung leicht bestimmen. Man hat so einen Überblick über die Flugzeitverteilung der Teilchen und kann so den geeigneten Zeitraum für die Koinzidenzmessung festlegen [Abb. 4.3].

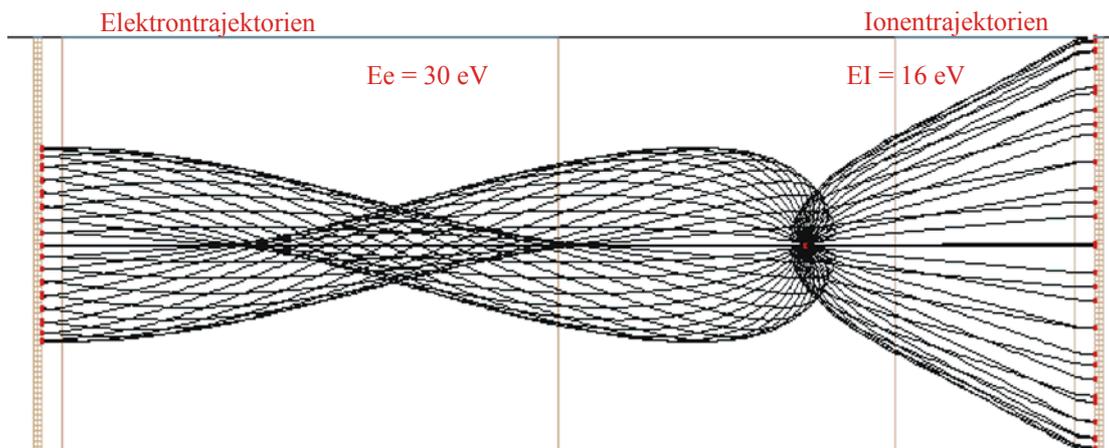


Abb. 4.3: Simulation der Flugbahnen der Ionen und Elektronen in dem verwendeten Spektrometer mit den im Experiment angelegten elektrischen und magnetischen Feldern mit Hilfe des Programms SimIon. Rechts befindet sich der Ionendetektor, links der Elektronendetektor. Die Simulation wurde für Elektronen einer Energie E_e von 30 eV und Ionen einer Energie E_i von 16 eV gemacht, das elektrische Feld beträgt 40 V/cm, das magnetische Feld hat eine Stärke von 10 G, die Streckenverhältnisse sind gemäß Abb. 3.10.

Neben der in Kapitel 4.1.2 beschriebenen H^+H^+ -Linie treten in der Messung trotzdem noch „falsche“ Koinzidenzen auf [Abb. 4.2.a)]. Dies sind Ereignisse, welche die Koinzidenzbedingung zufällig erfüllt haben, z.B. durch die Überlagerung oder Vermischung zweier Ionisationsereignisse des Restgases. Diese falschen Koinzidenzen werden dann in der nachträglichen Verarbeitung der Rohdaten nahezu eliminiert, indem die Gültigkeit der Impulserhaltung in x- und y-Richtung für das Ionisationsereignis überprüft wird. Anschließend kann die Flugzeitlinie durch die in Anhang 2.3. errechnete Flugzeitbedingung weiter optimiert werden. So bleiben am Schluß fast ausschließlich Ereignisse des doppelionisierten Wasserstoffmoleküls übrig.

4.4. Die Berechnung der Impulse der Fragmente

Im Folgenden wird gezeigt, wie die Impulse bzw. die Energien aller Teilchen nach der vollständigen Fragmentation des H_2 -Moleküls bei einer Photonenenergie von 240 eV berechnet werden.

Zur Orientierung ist in Abb. 4.4 das gewählte Koordinatensystem angegeben. Die Polarisations Ebene des zirkular polarisierten Lichtes wird durch die yz-Ebene repräsentiert. Die x-Richtung ist demnach die Richtung des Photonenstrahls. ε repräsentiert die Polarisation des Lichtes. Aufgrund der zirkularen Polarisation kann ε jede Stellung in der yz-Ebene annehmen.

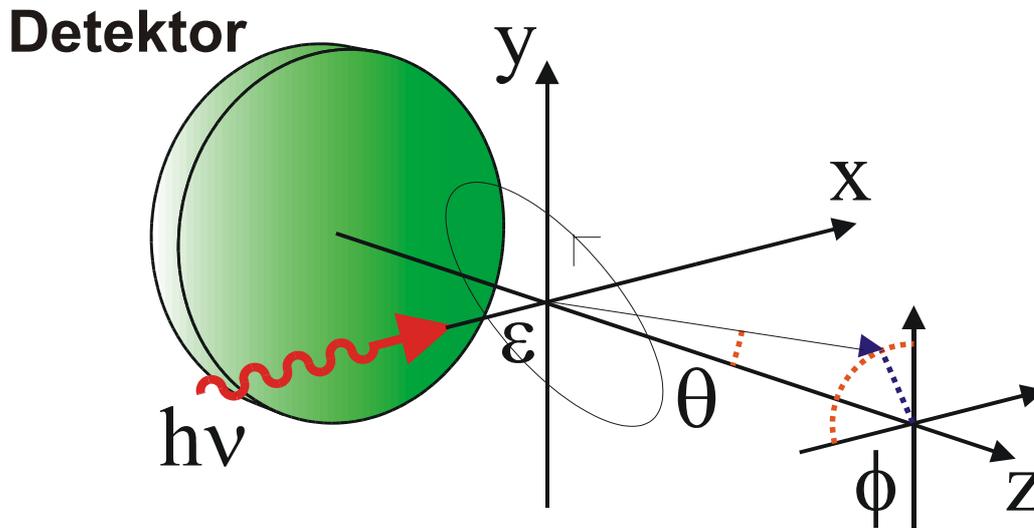


Abb. 4.4: Das Koordinatensystem: Θ ist hierbei der Polarwinkel zur yz -Ebene, ϕ ist der Azimutalwinkel in der yz -Ebene. Die x -Achse repräsentiert die Richtung des Photonenstrahls, z ist die „Flugzeitrichtung“. die Polarisationssebene des zirkular polarisierten Lichts ist die yz -Ebene [Web03].

Durch das Auflösen der Formel für die Gesamtflugzeit T_{ges} des Ions lässt sich die Startgeschwindigkeit v des jeweiligen Teilchens nach der Reaktion berechnen. Die Impulse in z -Richtung $p_{rz1,2}$ und p_{ez2} , welche die Fragmente nach dem Aufbruch haben, ermittelt sich aus der Startgeschwindigkeit v der Teilchen anhand der folgenden kubischen Gleichung [Herleitung siehe Anhang 2.1]:

$$v^3 + \left(\frac{1}{2} a T_{ges} - \frac{s_1 + s_2}{T_{ges}} \right) \cdot v^2 + 2 a s_1 v + a^2 s_1 T_{ges} - \frac{1}{2} \frac{a s_2^2}{T_{ges}} - 2 \frac{(s_1 + s_2) \cdot s_1 a}{T_{ges}} = 0$$

Die z -Komponente des Impulses des ersten und des zweiten Recoils sowie des langsamen Elektrons dementsprechend:

$$p_{rz1} = v_1 \cdot m_p$$

$$p_{rz2} = v_2 \cdot m_p$$

$$p_{ez2} = v_2 \cdot m_e$$

Die x-, und y-Komponente des Impulses beider Recoils berechnet sich mit Hilfe der Auftrefforte x und y der Fragmente wie folgt:

$$p_{rx1,2} = \frac{x_{1,2r} \cdot m}{T_{1,2ges}}$$

$$p_{ry1,2} = \frac{y_{1,2r} \cdot m}{T_{1,2ges}}$$

Bei der Berechnung der x-, und y-Impulskomponenten des langsamen Elektrons ist neben dem elektrischen Feld noch der Einfluss des magnetischen Feldes zu berücksichtigen. Das elektrische und das magnetische Feld liegen allerdings parallel zur z-Achse, so dass die Bewegungsgleichungen für die einzelnen Komponenten entkoppeln. Mit den Anfangsbedingungen $x(0) = y(0) = 0$ ergeben sich für die beiden Ortsrichtungen der Elektronen folgende Gleichungen:

$$m_e a_x = e v_y B_z$$

$$m_e a_y = e v_x B_z$$

Hier ist e die Ladung und m_e die Masse des Elektrons.

Daraus folgt für die Geschwindigkeit [Hat04]:

$$v_x = \frac{-xa - by}{a^2 + b^2}$$

$$v_y = \frac{xb - ay}{a^2 + b^2}$$

wobei gilt:

$$a = \frac{1 - \cos(\omega t)}{\omega}$$

$$b = \frac{\sin(\omega t)}{\omega}$$

mit: $\omega = \frac{q_e}{m_e} B$: Zyklotronfrequenz der Elektronen

Nach der Berechnung der Impulskomponenten des schnellen Elektrons aus der Impulserhaltung (siehe Kap. 3.5. Gleichung **3.2.**), hat man für jedes Teilchen seine drei Impulskomponenten bestimmt und hat so die gesamte kinematische Information des Reaktionsergebnisses gemessen.

5. Ergebnisse und Diskussion

Die vorherigen Kapitel erläuterten die Aufgabenstellung, sowie die Motivation zu diesem Experiment. Die physikalischen Überlegungen, sowie die Vorbereitungen zum Aufbau des COLTRIMS-Experimentes, wie z.B. die technische Realisierung der nötigen Impulsauflösung, wurden vorgestellt. In Kapitel 4 wurde dann die Verarbeitung der Rohdaten, sowie die Berechnung der Impulse der Fragmente beschrieben. In diesem Kapitel wollen wir nun über die Impuls- und Energieverteilung der Elektronen und Ionen auf die Winkelverteilung schließen, um hieraus physikalische Zusammenhänge, wie z.B. die verschiedenen Prozesse der Doppelionisation (siehe Kapitel 2.3.), sowie den Unterschied der atomaren zur molekularen Elektronenverteilung zu diskutieren.

5.1. Die Impuls- und Energieverteilung

Bevor wir nun zu den Ergebnissen der Elektronenwinkelverteilung nach der Doppelionisation des Wasserstoffmoleküls kommen, betrachten wir zunächst die Impulsverteilungen der Fragmente. Wir beginnen mit der Diskussion der Impulsverteilung der Elektronen. Die getrennte Betrachtungsweise von Elektronen und Ionen ist sinnvoll, da sich der Prozess der vollständigen Fragmentation des Moleküls nach der Born-Oppenheimer-Näherung in zwei zeitlich separierte Bewegungen aufteilt (siehe Kap. 2.1.).

In der Impulsverteilung spiegeln sich die Energien der einzelnen Fragmente wider. Ein fester Energiewert wird dabei durch eine Kugelschale im Impulsraum repräsentiert.

Die verschiedenen, sich ergebenden Verteilungen der Elektronenimpulse basieren auf der extrem asymmetrischen Energieaufteilung (siehe Abb. 3.9 und Abb 5.2). Die Verteilung des schnellen Elektrons weist aufgrund der größtenteils hohen Impulse (um etwa 3,5 a.u.) in der hier gewählten Darstellung die Form eines Ringes auf [Abb. 5.1.a)]. Diese Form entsteht durch die Projektion der hohlen Impulskugel auf die y/z -Ebene. Die Verteilung des langsamen Elektrons hingegen, ergibt einen in der Mitte des Ringes liegenden Kreis, repräsentativ für nahezu ausschließlich kleine Impulse (um 0 a.u.) [Abb. 5.1.b)]. In dem dazwischen liegenden Impulsbereich befinden sich aufgrund der asymmetrischen Energieaufteilung der Elektronen nahezu keine Ereignisse. Die Impulsverteilungen erlauben es also, von einer Unterteilung in ein primäres und ein sekundäres Elektron zu sprechen (vgl. [Kna02]). Die nicht ganz runde Form der Impulsverteilung in Abbildung 5.1. ist auf das Auflösungsvermögen des Spektrometers in Ortsrichtung zurückzuführen. Dieses ist schlechter als das in Flugzeitrichtung, da wir eine flugzeitfokussierende aber keine ortsfokussierende

Spektrometergeometrie verwendet haben. Der äußerste Ring der Elektronenimpulse hat einen Radius von 3.74 a.u. und stellt somit die höchst mögliche zur Verfügung stehende Energie von 190 eV dar.

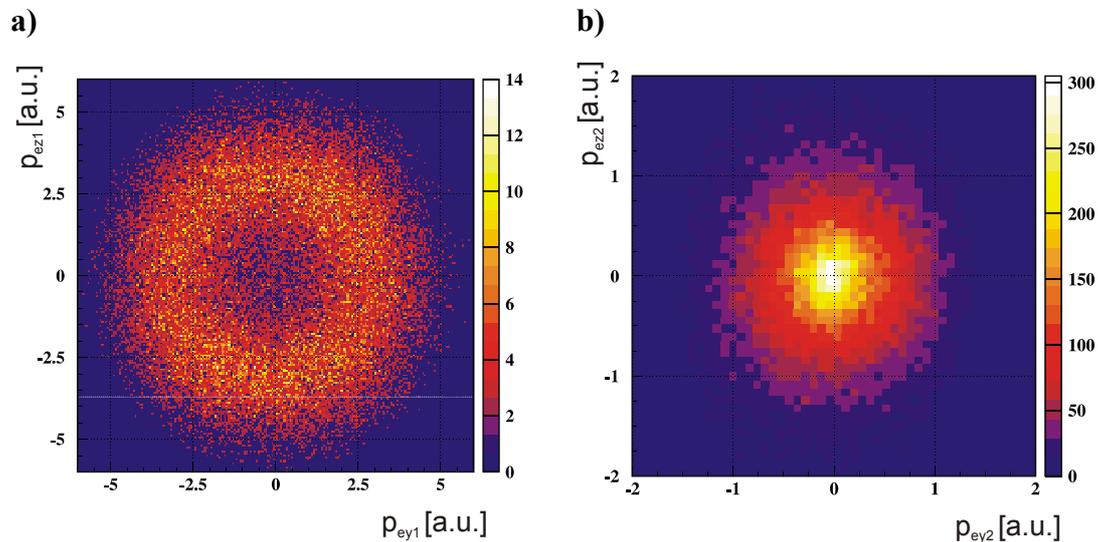


Abb. 5.1: Impulsverteilung der Elektronen in y- und z-Richtung a) des schnellen Elektrons e_1 und b) des langsamen Elektrons e_2 in atomaren Einheiten.

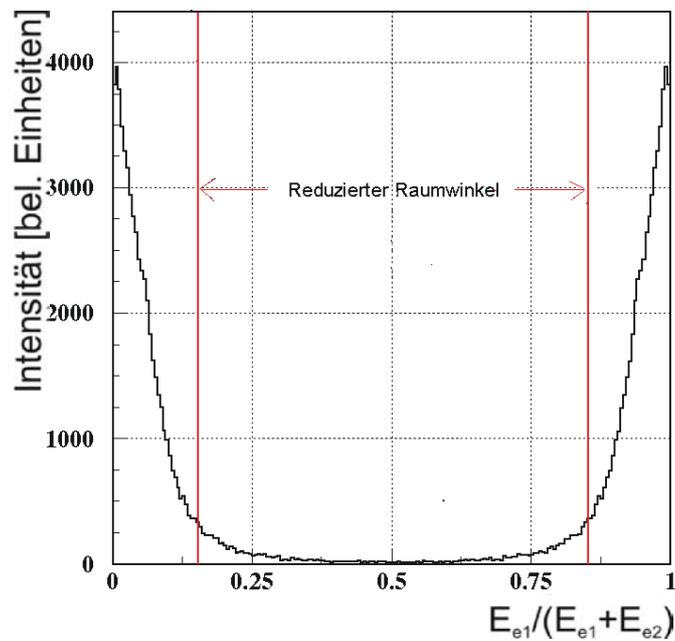


Abb. 5.2: Gemessene Energieaufteilung (energy sharing) zwischen den beiden Elektronen. Der Bereich zwischen den roten Linien repräsentiert die Energieaufteilung, bei der das langsame Elektron mehr als 30 eV besitzt, in diesem Bereich ist aufgrund der zu hohen kinetischen Energie nur ein reduzierter Raumwinkel zur Detektion der Elektronen gegeben.

Die Impulse der Ionen ergeben eine Kugel im Impulsraum und weisen somit die Form eines Kreises auf, wenn man sie komponentenweise gegeneinander aufträgt. Aufgetragen ist wie bei den Elektronen die y-Komponente gegen die z-Komponente des Impulses [Abb.5.3].

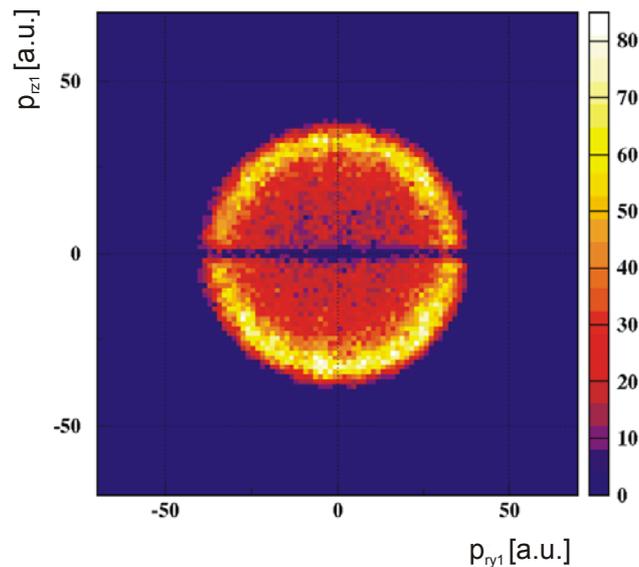


Abb. 5.3: Impulskugel eines Ions. Aufgetragen ist der Impuls in y- gegen den Impuls in z-Richtung in atomaren Einheiten.

In den Impulsen der Ionen lässt sich ihr Aufbruch unter 180° erkennen. Dazu trägt man komponentenweise den Impuls des ersten gegen den Impuls des zweiten gemessenen Ions auf [siehe Abb.5.4]. Zu sehen ist, dass die Impulse beider Ionen gleich groß, aber entgegengesetzt gerichtet sind. In den Impulsspektren der Ionen spiegelt sich also die Coulomb-Explosion des ionisierten Moleküls wider (siehe Kapitel 2.3.1.). Auch in diesem Spektrum [Abb. 5.4] erkennt man wie in Abbildung 4.2. die zweigeteilte Struktur in den Impulsbalken aufgrund des Rückstoßimpulses, den der Schwerpunkt der ionischen Fragmente durch die Elektronen erfährt, wenn diese den Molekülverband verlassen. Die gesamte kinetische Energie der Elektronen von 190 eV entspricht einem Rückstoßimpuls auf das Molekül von 3.74 a.u.

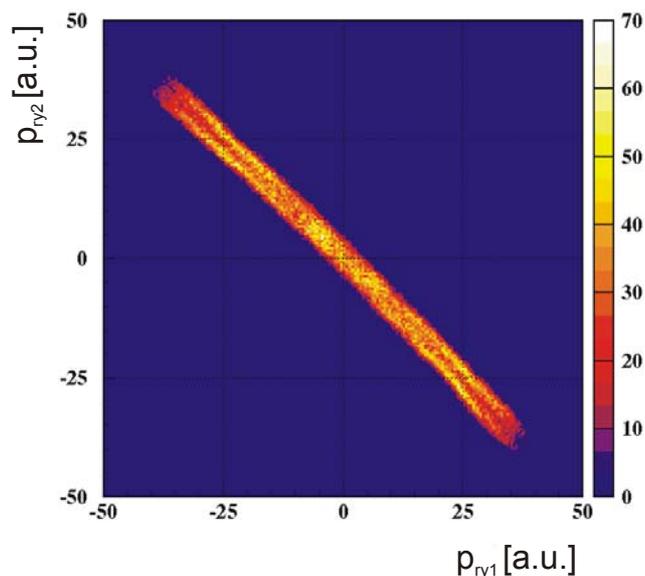


Abb. 5.4: Visualisierung der Coulomb-Explosion des ionisierten Moleküls. Aufgetragen ist die y-Impulskomponente des ersten Recoils gegen die des zweiten Recoils in atomaren Einheiten.

Die Impulse der Ionen sind aufgrund der Coulomb-Explosionsenergie deutlich größer als die der Elektronen. Der äußerste Rand der Impulskugel der Ionen hat einen Radius von 40 a.u..

Aufgrund der Impulserhaltung, die für die Coulomb-explodierenden Ionen gilt, nehmen die Ionen im Gegensatz zu der kontinuierlichen Energieaufteilung der Elektronen im Mittel einen festen Betrag E_C ein. Die ionische Energieverteilung ist dabei um diesen festen Wert nahezu normalverteilt. Multipliziert mit zwei ergibt sich daraus die gesamte kinetische Energie der Ionen, der KER (Kinetic Energy Release) [Abb. 5.5]. Der KER ist eine Funktion des internuklearen Abstandes [siehe: Kap.2.3.1. Abb.2.6]. Für einen Kernabstand von 1,44 a.u. erhält man einen KER der Ionen von 18,8 eV. Jedes Ion besitzt also im Mittel eine Energie von ca. 9,4 eV. Der sich aus den experimentellen Daten ergebende mittlere KER beträgt ca. 18,75 eV [Abb. 5.5]. Dies entspricht einem Impuls von ungefähr 36 a.u., welcher durch den intensiven äußeren Ring der Impulse der Ionen repräsentiert wird [siehe: Abb.:5.3]. Nähert man das Potential des Wasserstoffmoleküls durch das Potential des harmonischen Oszillators an und berechnet dann den KER aus der Grundzustandswellenfunktion des harmonischen Oszillators, so ist dieser ca. um 1 eV niedriger im Vergleich zu den gemessenen Daten. Das Morse-Potential gibt, aufgrund seiner Asymmetrie, die KER-Verteilung der doppelionisierten Wasserstoffionen über die Reflexionsmethode (siehe Abb. 2.6.) sehr viel genauer wieder als das Potential des harmonischen Oszillators [Abb.5.5]. K.E. McCulloh und H.M. Rosenstock fanden dies 1968 bei der Messung der kinetischen Energie der Ionen nach der Doppelionisation des Wasserstoffmoleküls heraus [Cul68].

Wir sehen in der KER-Verteilung unserer experimentellen Daten die Variationen des internuklearen Abstandes und somit der Abstandsverteilung der Atome des Moleküls in seinem Grundzustand. Es ist demnach möglich, den internuklearen Abstand und den Anfangszustand durch die Messung des KER des Wasserstoffmoleküls zu

visualisieren, wobei die Messung der hier vorgestellten Art mit einer solchen Genauigkeit möglich ist, dass dabei sogar die verschiedenen Potenzialansätze unterschieden werden können. Dies war auch Th. Weber et al bei der Doppelionisation von Deuteriummolekülen gelungen [Web04].

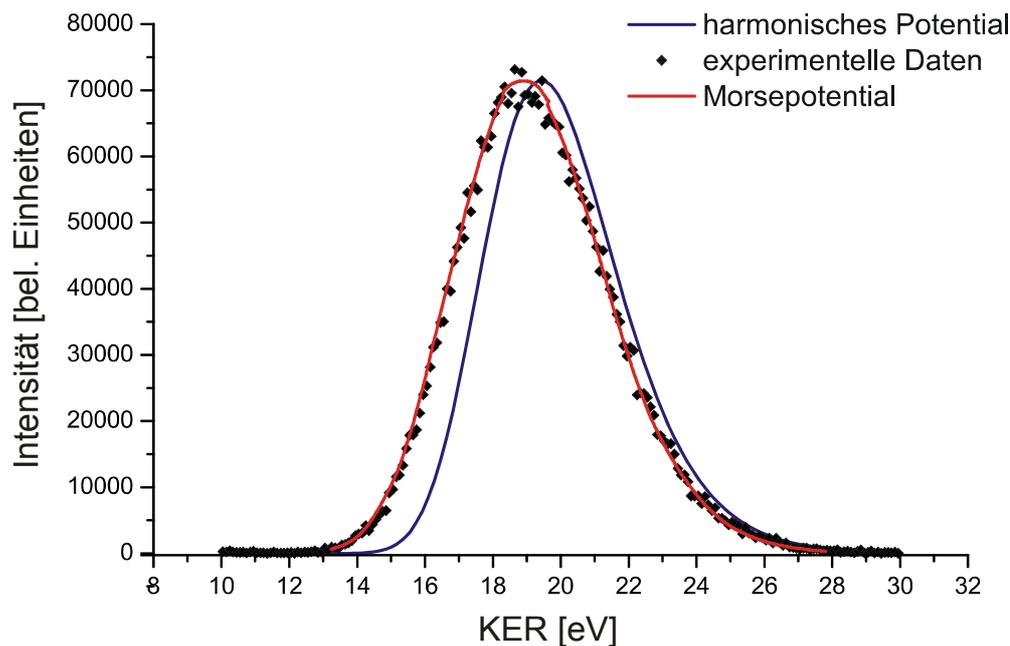


Abb.5.5: Darstellung der KER-Verteilung der experimentellen Daten (Rauten). Verglichen wurde diese mit den KER-Verteilungen, welche sich aus dem Potential des harmonischen Oszillators (schwarze Kurve) und dem Morsepotential (rote Kurve) ergeben.

5.2. Die Winkelverteilung

Das Ziel des Experimentes ist es, die Analogie zwischen dem Interferenzeffekt des klassischen Doppelspaltes und dem Interferenzeffekt, der durch die Dynamik und Wechselwirkungen im molekularen Wasserstoffsystem entsteht, zu untersuchen. Dafür betrachtet man die Winkelverteilungen der Elektronen nach der Doppelionisation des Moleküls. Die Winkelverteilung stellt die Häufigkeit dar, mit der die

Elektronen nach der Ionisation in eine bestimmte Richtung emittiert werden und lässt sich über die Impulse der Fragmente bestimmen.

Die Messung wurde unter Verwendung von zirkular polarisiertem Licht bei einer Photonenenergie von 240 eV durchgeführt. Die Winkelverteilung wird nur für die Fälle, bei denen sowohl das Elektron als auch die Molekülachse in der Polarisationssebene, welche durch die y/z-Ebene gegeben ist, liegen (azimutale Winkelverteilung), dargestellt [Abb. 5.6]. In dieser Ebene ist eine bevorzugte Emissionsrichtung aufgrund der Polarisation eliminiert. Außerdem ist in dieser Ebene das Zweizentren-Coulombpotential, hervorgerufen durch die beiden Ionen, für die Elektronen voll sichtbar.

5.2.1. Das molekülfeste Koordinatensystem

In der weiteren Diskussion der Ergebnisse werden die Elektronenwinkelverteilungen im molekülfesten Koordinatensystem betrachtet. Hierbei wird die Emissionsrichtung der Elektronen, also die Elektronenwinkelverteilung, relativ zur Molekülachse beobachtet. Damit wird die Untersuchung der Dynamik in dem molekularen System ermöglicht.

Die Messung im molekülfesten Koordinatensystem gelang zum ersten Mal Shigemasa et al 1995. Betrachtet wurde dabei die Winkelverteilung von 1s-Photoelektronen von N₂-Molekülen [Shi95]. 1998 führte R. Dörner et al. die Messung der Elektronenwinkelverteilung nach der Doppelionisation von D₂ im körperfesten Koordinatensystem bei einer Photonenenergie von 58.8eV durch [Dör98].

Um nun dieses Koordinatensystem zu verwenden, benötigt man zunächst die Kenntnis über die Stellung der Molekülachse während der Fragmentation. Man gewinnt diese über die Impulse der Protonen aus der Coulombexplosion des doppelionisierten Wasserstoffs.[siehe Abb. 5.4.] Die Gültigkeit dieses Zusammenhangs basiert auf der Annahme der "Axial-Recoil-Approximation" [Web01]. Diese besagt, dass die Fragmentation des Moleküls schnell ist, verglichen mit der Rotation des Wasserstoffmoleküls. Man nimmt also an, dass die ionischen Fragmente entlang der Stellung der Molekülachse zum Zeitpunkt der Photodoppelionisation emittiert werden.

Zur Betrachtung der Daten filtert man dann bei der Auswertung die Ereignisse heraus, bei denen die Molekülachse eine bestimmte Stellung zur Polarisationssebene einnimmt und untersucht relativ zur Molekülachse die Elektronenwinkelverteilung.

5.2.2. Ergebnisse für den Fall der extrem asymmetrischer Energieaufteilung

Die Winkelverteilung der Elektronen kann also für verschiedene Stellungen der Molekülachse im Bezug zur Polarisationsrichtung des Lichtes untersucht werden. Ein weiterer Parameter, von dem die Winkelverteilung abhängt, ist die Energieaufteilung der Elektronen. Da im klassischen Bild die Interferenzstruktur von der Welle nur eines Elektrons erzeugt wird, werden wir zunächst den Fall untersuchen, bei dem einem Elektron nahezu keine kinetische Energie zukommt. Die gesamte kinetische Energie steckt somit im schnellen Elektron. Wir vermuten, dass dieser Fall einer "konstruierten" Einfachionisation entspricht, da das langsame Elektron das System nur wenig beeinflusst und, wie wir später sehen werden, offensichtlich nicht zu Dekohärenz führt.

In Abbildung 5.6 ist in einem Piktogramm der Winkel ϕ_{x1} dargestellt, in dem die Interferenzen beobachtet werden sollen. Die Interferenzstruktur bildet sich nach dieser Abbildung also nicht auf einem ebenen Schirm ab, wie beim klassischen Doppelspalt, sondern wird mit 360° um die Molekülachse herum aufgenommen.

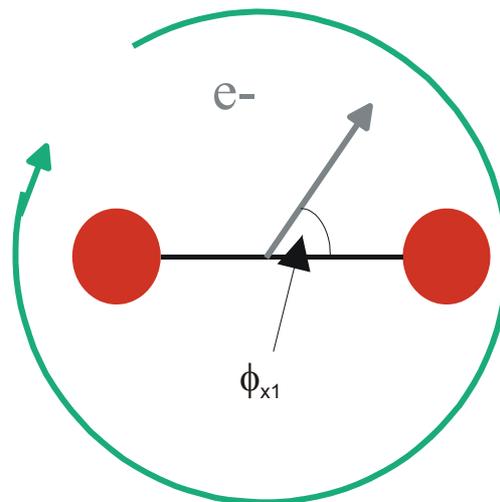


Abb.5.6: Körperfestes Koordinatensystem zur Betrachtung des Zwischenwinkels (ϕ_{x1}) von emittiertem Elektron und Molekülachse in der Polarisationsene (dargestellt durch grünen Pfeil), die Polarisationsene wird durch die Papierebene repräsentiert (vgl. Abb.: 4.5).

Der azimuthale Winkel ϕ_{x1} läuft von -180° bis $+180^\circ$. Die Spektren können neben ihrer gewöhnlichen Darstellung, bei welcher der Winkel ϕ_{x1} auf der Abszisse von -180° bis $+180^\circ$ läuft, gegen die Häufigkeit des Auftretens dieses Emissionswinkels, aufgetragen auf der Ordinate, auch in Polarform dargestellt werden. Hierbei laufen die Winkel von 0° bis 180° gegen den Uhrzeigersinn im ersten und zweiten Quadranten, die Winkel von 0° bis -180° laufen im Uhrzeigersinn entlang des dritten und vierten Quadranten. Die Häufigkeit, mit der ein bestimmter Winkel gemessen wurde, ist in

dieser Darstellung als der Abstand des Datenpunktes vom Mittelpunkt des Diagramms kodiert. In einer analogen Darstellung wird der Winkel von 0° bis 360° aufgetragen, wobei er die Quadranten 1 bis 4 gegen den Uhrzeigersinn durchläuft.

Die kinetische Energie des Elektrons e_1 von 190 eV entspricht einer Wellenlänge $\lambda = 0,08\text{nm} = 1,5a.u.$. Bei einem Gleichgewichtsabstand der Protonen des H_2 -Moleküls von $R = 0,074\text{nm} = 1,4a.u.$ genügt dies der Doppelspaltbedingung für ein Interferenzminimum: $\lambda \leq 2R$. Die theoretischen Voraussetzungen für eine Interferenz entsprechend des klassischen Doppelspalt sind demnach erfüllt. Die exakte Lage des Minimums befindet sich für diese Werte bei einem Winkel $\alpha = 52^\circ$. Der Winkel α des klassischen Doppelspalt entspricht in unserem Experiment dem Winkel ϕ_{x1} .

Die Spektren in Abbildung 5.7 zeigen die Elektronenwinkelverteilung des schnellen Elektrons um die festgehaltene Molekülachse, nach der Photodoppelionisation des Wasserstoffmoleküls. Um genügend Statistik zu erreichen, wurde für das langsame Elektron über eine Energie von 0 bis 5 eV integriert. Die Polarwinkel zur Polarisationssebene Θ_{Mol} der Molekülachse sowie Θ_{e1} des schnellen Elektrons betragen hierbei 20° . Das bedeutet, es werden nur Ereignisse berücksichtigt, bei denen sich die Fragmente in einem Bereich zwischen der Polarisationssebene und einem Öffnungswinkel relativ zu dieser von 20° befinden. Über den Winkel des langsamen Elektrons Θ_{e1} wurde integriert, da dieser, bedingt durch die sehr geringe kinetische Energie des Elektrons, nahezu keinen Einfluss auf die Winkelverteilung des schnellen Elektrons hat. Die Hauptmaxima liegen in Abbildung 5.7 entlang der Molekülachse, die Nebenmaxima liegen senkrecht dazu.

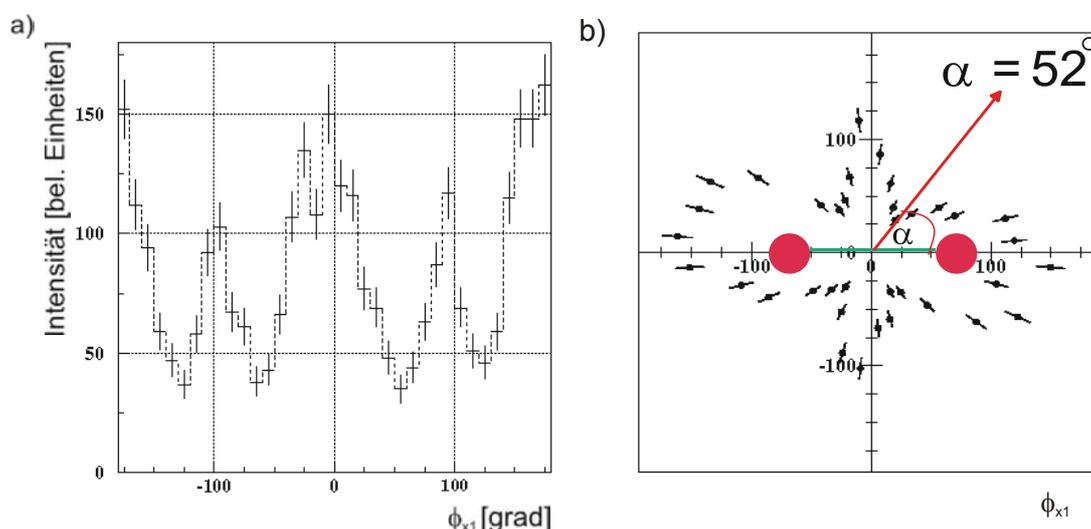


Abb.5.7: a) Spektrum des Zwischenwinkels von Elektron und Molekülachse in der Polarisationssebene gegen die Häufigkeit dieses Winkels. Abb. b) stellt den Polarplot des Spektrums aus a) dar. Die Molekülachse steht hier horizontal ($\phi_{x1} = 0^\circ, 180^\circ$), der aus der Bedingung des klassischen Doppelspalt ausgerechnete Winkel α für das Auftreten eines Interferenzminimums ist eingezeichnet.

Die Spektren a) und b) sind für eine Energie des langsamen Elektrons von 0 eV bis 5 eV dargestellt, über den gesamten Bereich des KER (siehe Abb. 5.5.) wurde integriert, der polare Öffnungswinkel zur Polarisationssebene beträgt für die Molekülachse und für das schnelle Elektron 20° , über alle Winkel des langsamen Elektrons wurde integriert.

In Analogie zum klassischen Doppelspalt hätte man eigentlich erwartet, dass das Hauptmaximum senkrecht zur Molekülachse, also bei $\pm 90^\circ$ liegt und das Nebenmaximum entlang dieser, also bei 0° und 180° . In Übereinstimmung mit dem klassischen Doppelspalt ist allerdings die Lage des Minimums bei ca. 52° [Abb. 5.7 b)].

5.3. Vergleich mit der Theorie

Die Elektronenwinkelverteilung des schnellen Elektrons weist nach obigen Bildern also die Gestalt der Interferenz aufgrund der von beiden Protonen gleichzeitig ausgehenden Elektronenwelle auf. In diesem Kapitel wird dieses Interferenzmuster der extrem asymmetrischen Energieaufteilung mit den Ergebnissen der Theorie sowie mit den Erwartungen aufgrund des wohl bekannten klassischen Doppelspaltes im Detail verglichen. Wir untersuchen zudem die Abhängigkeit der Winkelverteilungen von verschiedenen Werten des KERs bzw. verschiedenen „Spaltabständen“ in Experiment und Theorie.

5.3.1. Abhängigkeit zwischen dem KER und der Winkelverteilung der Elektronen

Zwischen der kinetischen Energie der Ionen (KER) und dem internuklearen Abstand existiert ein antiproportionaler Zusammenhang (siehe (2.2.)). Mit größerem Abstand zwischen den Kernen kommt es zu einer geringeren Coulombkraft zwischen ihnen, und die kinetische Energie der Ionen nach der Fragmentation wird somit kleiner. Dieser Zusammenhang wurde auch in [Web03] experimentell bestätigt. Um diesen Zusammenhang auch in diesem Experiment zu überprüfen, betrachten wir hier zunächst die Elektronenwinkelverteilung in Abhängigkeit des KER.

In Abb. 5.8 ist der Emissionswinkel des Elektrons relativ zur Molekülachse in Abhängigkeit vom KER dargestellt. Abbildung 5.8 b) zeigt dabei die experimentellen Daten, während Abbildung 5.8.a) das Vergleichsspektrum, wie es den Erwartungen des klassischen Doppelspaltes entspricht, darstellt. Betrachtet wird wieder der Fall, dass das schnelle Elektron die gesamte kinetische Energie besitzt. Auch hier wurde allerdings für das langsame Elektron über eine Energie von 0 bis 5 eV integriert, um

genügend Statistik zu erhalten. Die Öffnungswinkel bzgl. der Polarisations Ebene Θ_{Mol} , Θ_{e1} und Θ_{e2} sind wie in Abbildung 5.7 gewählt.

In Abbildung 5.8 lässt sich die Interferenzstruktur in der Elektronenwinkelverteilung entlang der x-Achse erkennen. Man sieht deutlich die Übereinstimmung der Lage der Maxima in Abb. 5.8.a) und 5.8.b). Die Maxima unter 0° und 180° sind wie in den klassischen Erwartungen breiter als die Maxima bei $\pm 90^\circ$.

Allerdings unterscheiden sich beide Spektren in der Größe (hier aufgetragen entlang der z-Achse, welche durch die Farbskalierung dargestellt ist) ihrer Maxima. In den experimentellen Daten sieht man zwei große Maxima bei 0° und 180° und zwei kleinere Maxima bei $\pm 90^\circ$, während das Größenverhältnis in den Erwartungen des klassischen Doppelspaltes umgekehrt ist. Hier liegen die Hauptmaxima bei $\pm 90^\circ$. Es soll zunächst in den experimentellen Daten noch nicht zwischen Haupt- und Nebenmaxima unterschieden werden, da aufgrund der unterschiedlichen Größenverhältnisse dieser in Theorie und Experiment nicht klar ist, welches das Haupt- und welches das Nebenmaximum darstellt. Es wäre möglich, dass die Maxima bei 0° und 180° nur aufgrund einer Überlagerung durch einen anderen Effekt ausgeprägter sind als die bei $\pm 90^\circ$.

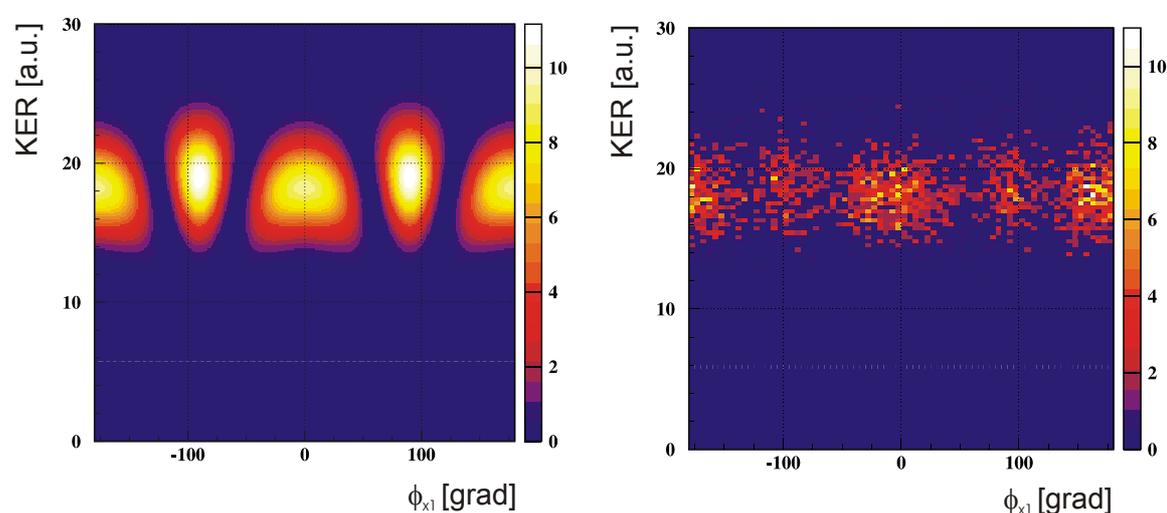


Abb. 5.8: Darstellung des Emissionswinkels ϕ_{x1} des schnellen Elektrons relativ zur Molekülachse in Abhängigkeit des KER (in a.u.). Verglichen werden hier die erwartete Verteilung des klassischen Doppelspaltes (a) mit den experimentellen Daten (b). In a) wurde eine feste Energie des schnellen Elektrons von 190 eV gewählt, der Spaltabstand R , hier repräsentiert durch den KER, wurde entsprechend variiert. In b) wurde über eine Energie des langsamen Elektrons von 0 eV bis 5 eV integriert, die Bedingungen für Θ_{Mol} , Θ_{e1} und Θ_{e2} sind entsprechend denen in Abbildung 5.7.

Um Abb. 5.8 zu verstehen, betrachten wir nun die Abhängigkeit der Größe der Maxima vom KER. Nach der Theorie des klassischen Doppelspaltes erwartet man kleinere Nebenmaxima für Ereignisse mit einem größeren KER. Ein größerer KER entspricht nämlich einem kleineren Spaltabstand (siehe **(2.2.)**). Das Interferenzmuster des klassischen Doppelspaltes weist für einen kleineren Spaltabstand ein Auseinanderrücken der Maxima auf. In der Form eines Polarplots erscheint dieser Effekt als eine Verkleinerung der Nebenmaxima.

Betrachtet man nun Schnitte entlang der x-Achse des in Abb. 5.8 dargestellten Spektrums, so erhält man die Elektronenwinkelverteilung für verschiedene Bereiche des KER. Abb. 5.9 a) zeigt einen Bereich des KER von 12 bis 16 eV, der sich aus **(2.2.)** ergebende Abstand R_{KER} beträgt 1,81 a.u.. Für einen KER von 16 bis 18 eV (Abb. 5.9 b)) ergibt sich $R_{\text{KER}} = 1,60$ a.u.. Die häufigsten Ereignisse treten bei einem KER zwischen 18 eV und 20 eV auf (siehe Abb. 5.9 c)). Daraus errechnet sich ein mittlerer internuklearer Abstand R_{KER} von 1,43 a.u.. Dieser Wert liegt sehr nah an dem theoretischen Gleichgewichtsabstand des H_2 -Moleküls von 1,44 a.u. Aus dem Bereich des KER von 20 eV bis 25 eV ergibt sich $R_{\text{KER}} = 1,24$ a.u.. Der Abstand wurde hierbei jeweils für den Mittelwert des KER-Bereiches berechnet.

Die mittleren Kernabstände zu dem jeweiligen Bereich des KER lassen sich auch mit Hilfe einer Fitfunktion des klassischen Doppelspaltes bestimmen. In dem Fit wird der Spaltabstand R variiert, die sich daraus ergebenden Spaltabstände R_{Fit} sind ebenfalls der Abbildung 5.9 zu entnehmen. Die Funktion, die an die Interferenzdaten angefitet wird, ist entsprechend Gleichung **(2.3.)**.

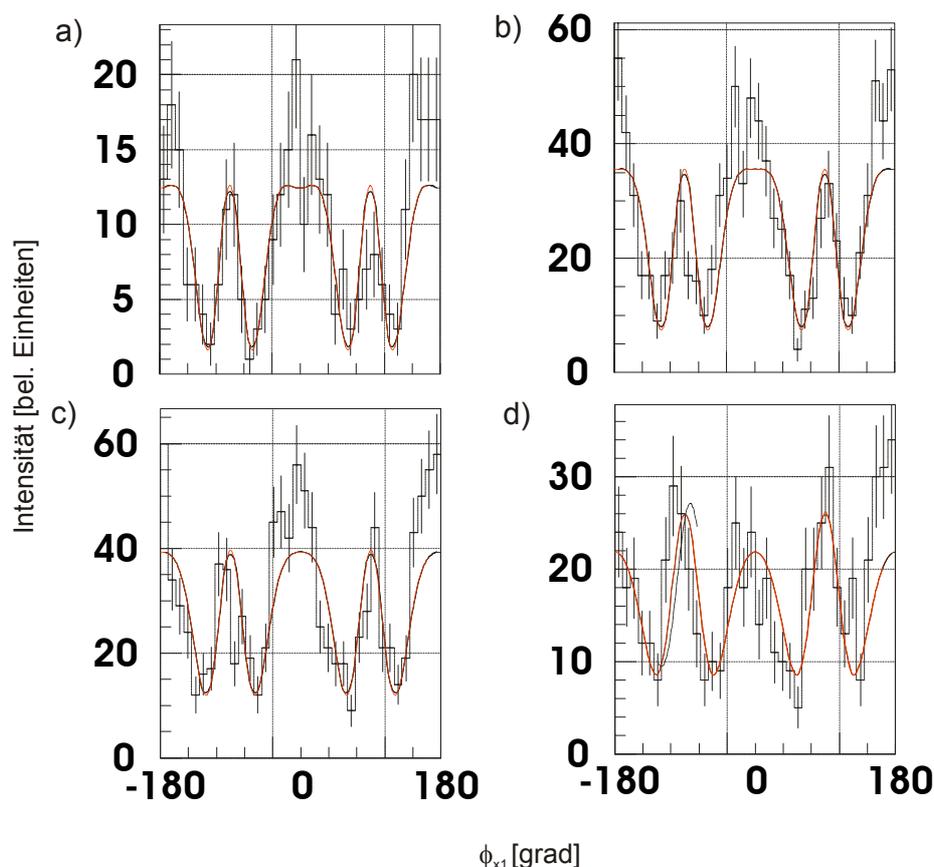


Abb. 5.9.: Die Elektronenwinkelverteilung (ϕ_{x1}) für verschiedenen Bereiche des KER. Der Fit (durchgezogene rote Linie) wurde für einen Impuls $k = 3,74$ a.u. gemacht. In den experimentellen Daten (schwarze Datenpunkte mit Fehlerbalken) wurde über eine Energie des langsamen Elektrons von 0 bis 5 eV integriert, die Winkel Θ_{Mol} , Θ_{e1} und Θ_{e2} sind wie in Abb. 5.7 gewählt. R_{Fit} bezeichnet den aus dem Fit errechneten Abstand, R_{KER} bezeichnet den aus Gleichung 2.2. errechneten Abstand.

a) KER = 12-16 eV, $R_{Fit} = 1,68$ a.u., $R_{KER} = 1,81$ a.u.; b) KER = 16-18 eV, $R_{Fit} = 1,63$ a.u., $R_{KER} = 1,60$ a.u.; c) KER = 18-20 eV, $R_{Fit} = 1,57$ a.u., $R_{KER} = 1,43$ a.u.; d) KER = 20-25 eV, $R_{Fit} = 1,36$ a.u., $R_{KER} = 1,24$ a.u.;

Der Fit ergibt also in Abbildung 5.9, wie klassisch erwartet, einen kleiner werdenden Kernabstand R_{Fit} für einen Bereich mit größerem KER. Generell kommt es allerdings zu Abweichungen zwischen R_{KER} und R_{Fit} . Dies ist auf die schlechte Anpassung des Doppelspaltfits an die Daten aufgrund der generell größeren Maxima unter 0° und 180° der experimentellen Daten zurückzuführen. Für den Mittelwert des Spaltabstandes aus allen KER-Bereichen ergibt sich daher ein vom Literaturwert (1.44 a.u.) abweichender Gleichgewichtsabstand des H_2 -Moleküls von 1,56 a.u..

Wir erhalten also den richtigen Trend zwischen dem KER und dem internuklearen Abstand, obwohl der Fit aufgrund der abweichenden Größen von Haupt- und Nebenmaximum im Experiment und in der Theorie des klassischen Doppelspalt, nicht optimal passt. Die experimentellen Daten müssten für einen größeren KER ein

relativ zum Hauptmaximum kleineres Nebenmaximum aufweisen. Dies ist der Fall, wenn man die Maxima bei 0° und 180° , wie beim klassischen Doppelspalt, als Nebenmaxima auffasst, obwohl sie in den Daten generell größer sind als die Maxima bei $\pm 90^\circ$ [Abb. 5.9.] [siehe auch Abb. 5.11]. Die Vertauschung der Größenverhältnisse von Haupt- und Nebenmaxima muss also durch einen weiteren physikalischen Effekt hervorgerufen werden, welcher dem Interferenzeffekt der von beiden Zentren gleichzeitig emittierten Elektronenwelle überlagert ist. Betrachtet man eine Elektronenwelle, die an einem Kern des Moleküls startet, so ist eine mögliche Ursache die Interferenz zwischen der direkten Elektronenwelle und einer am zweiten Kern gestreuten Welle [Abb. 5.10]. Dieser Streueffekt ist z.B. beim CO-Molekül sehr ausgeprägt, da der Streuquerschnitt proportional zur Kernladungszahl Z ist. Diese ist für Sauerstoff $Z = 8$, für Kohlenstoff $Z = 6$ und für Wasserstoff nur $Z = 1$.

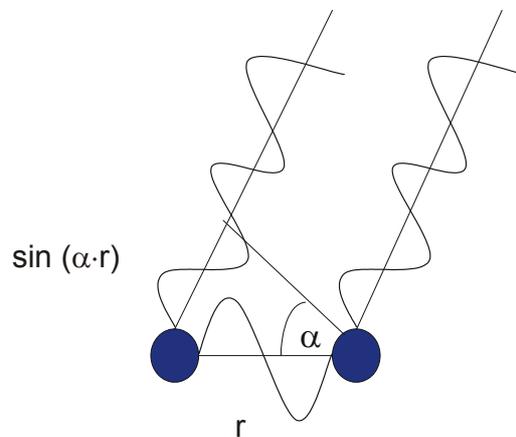


Abb. 5.10: Darstellung der Überlagerung der direkten von einem Zentrum ausgehenden Welle mit der am zweiten Zentrum gestreuten Welle.

Um zu untersuchen, ob dieser Streueffekt eine Rolle spielt, vergleichen wir nun die Ergebnisse zweier theoretischer Elektronenverteilungen mit den Daten unseres Experimentes. Abbildung 5.11 zeigt das Interferenzmuster des klassischen Doppelspalt in Polarform beruhend auf Gleichung (2.3.) für eine Energie von 190 eV und einen Spaltabstand von 1,2 a.u. und 1,4 a.u.. Im Vergleich dazu zeigt Abb. 5.11 auch die Elektronenwinkelverteilung der experimentellen Daten. Man erkennt ein Kleinerwerden der Nebenmaxima bei 0° und 180° für einen geringeren Abstand der Kerne. Das Verhältnis der 0° -Maxima zu den 90° -Maxima beträgt im Fall des internuklearen Abstandes von 1,2 a.u. 15:12, im Fall des internuklearen Abstandes von 1,4 a.u. ist ein Verhältnis der Maxima zueinander von 28:12 zu finden. Wir erkennen demnach, wie in Abbildung 5.9. den den klassischen Erwartungen des Doppelspalt entsprechenden Zusammenhang zwischen dem internuklearen Abstand und der Größe der Nebenminima bei 0° und 180° .

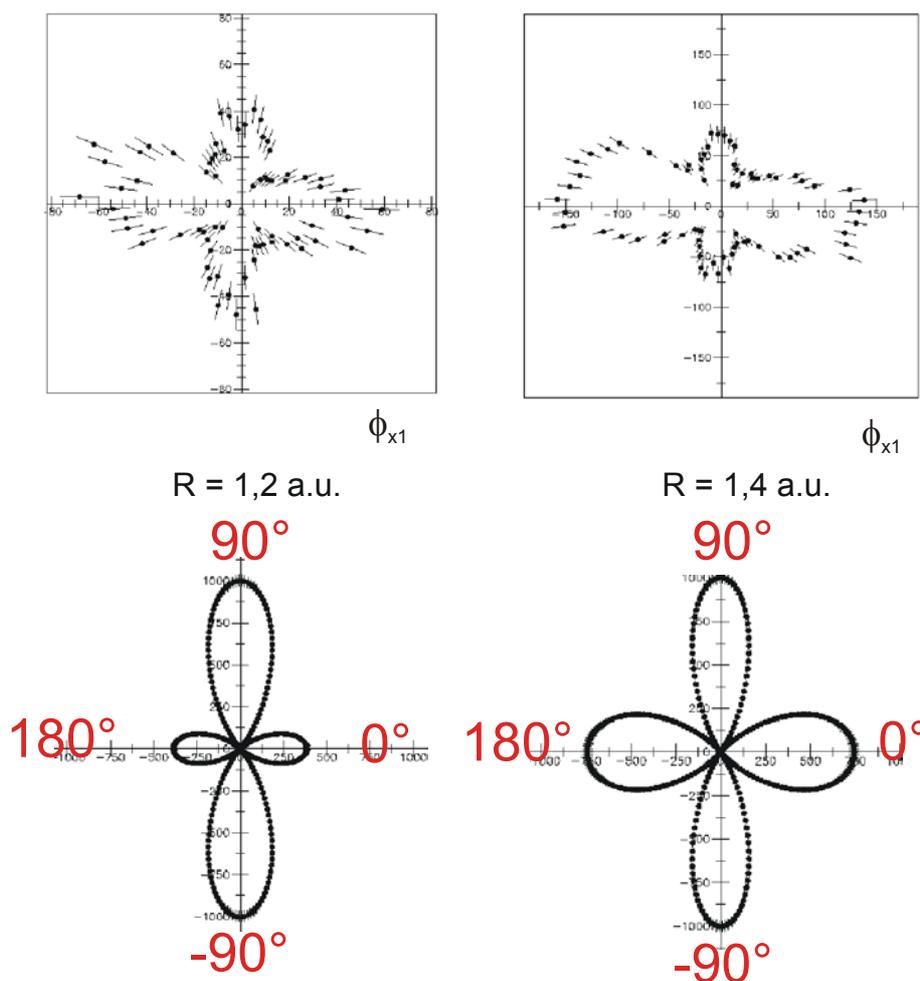


Abb. 5.11: Interferenzmuster des klassischen Doppelspalt (unten) für eine Energie von 190 eV für die Spaltabstände $R=1,2 \text{ a.u.}$ und $R=1,4 \text{ a.u.}$ im Vergleich mit den Elektronenwinkelverteilungen unseres Experimentes (oben). Die Achse liegt in beiden Fällen horizontal; im Fall des Experimentes wurden die Abstände $1,2 \pm 0,1 \text{ a.u.}$ und $1,45 \pm 0,1 \text{ a.u.}$ gewählt.. Außerdem wurde aus statistischen Gründen über eine Energie des langsamen Elektrons von $0 - 5 \text{ eV}$ integriert, die Polarwinkel der Molekülachse Θ_{Mol} , sowie der beiden Elektronen Θ_{e1} und Θ_{e2} sind gemäß Abbildung 5.7.

Abbildung 5.12 zeigt eine Verteilung, welche als Resultat einer Hartree-Fock-RPA-Rechnung von Nikolai Cherepov und Sergej Semenov herauskommt. Sie beschreibt die Einfachionisation des H_2 -Moleküls bei zirkular polarisiertem Licht und berücksichtigt sowohl den Interferenz- als auch den Streueffekt. Betrachtet man die Größenverhältnisse der Maxima, so ist die Übereinstimmung der Rechnung von Cherepov und Semenov mit den Ergebnissen der Elektronenwinkelverteilung der experimentellen Daten besser als die Übereinstimmung der Theorie des klassischen Doppelspalt mit dem Experiment. Die Maxima unter $\pm 90^\circ$ sind relativ zu den Maxima unter 0° und 180° kleiner geworden. Dennoch entspricht auch diese

theoretische Verteilung nicht exakt unseren experimentellen Daten. Eine weitere Verkleinerung der Maxima unter $\pm 90^\circ$ relativ zu den Maxima unter 0° und 180° wäre wünschenswert.

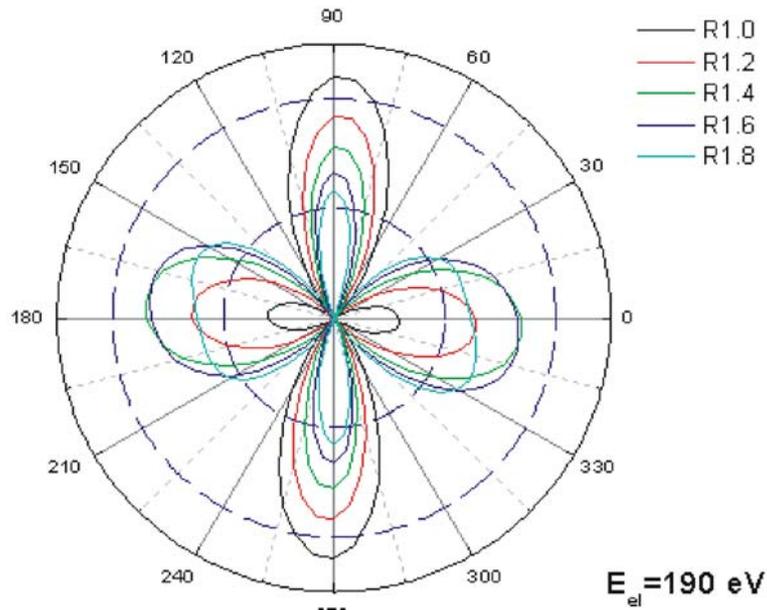


Abb. 5.12: Darstellung des Relativwinkels zwischen Elektron und Molekülachse basierend auf der Rechnung von Nikolai Cherepkov und Sergej Semenov für die Einfachionisation des H_2 -Moleküls bei einer Energie von 190 eV für verschiedene Kernabstände. In der Rechnung berücksichtigt sind sowohl der Interferenz- als auch der Streueffekt. Die Molekülachse liegt horizontal.

Allerdings wird eine weitere Übereinstimmung zwischen unseren Ergebnissen und der Rechnung von Cherepkov und Semenov durch die Berücksichtigung des zirkularen Lichts hervorgerufen. Dieses verursacht nämlich eine von der Richtung der zirkularen Polarisation abhängige Asymmetrie [Abb. 5.13]. Die durch links-polarisiertes Licht erzeugte Winkelverteilung entspricht dabei der mit rechts-polarisiertem Licht gemessenen Verteilung nach einer Rauminversion. Diese Abhängigkeit der Verteilung vom Rotationssinn des Photonenvektors nennt man „zirkularen Dichroismus“. In [Jah02] wird der zirkulare Dichroismus in der Winkelverteilung der Photoelektronen des CO - und des N_2 -Moleküls im körperfesten Koordinatensystem sehr detailliert gemessen.

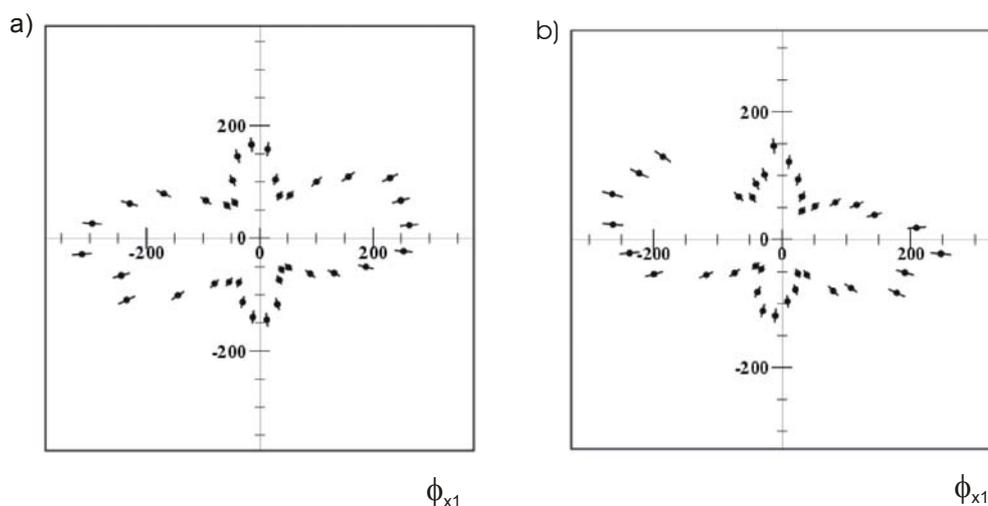


Abb. 5.13: Darstellung der Elektronenwinkelverteilung in Polarform für links-zirkular und rechts-zirkular polarisiertes Licht. Hierbei wurde über eine Energie E_{e2} des langsamen Elektrons von 0 bis 30 eV integriert. Die Molekülachse liegt horizontal, die Polarwinkel Θ_{Mol} , Θ_{e1} und Θ_{e2} sind entsprechend Abb. 5.7.

Da die Berücksichtigung des Streueffektes und des zirkularen Lichtes noch nicht ausreicht, um ein hinreichend gutes theoretisches Modell für die in diesem Experiment zu beobachtende Elektronenwinkelverteilung darzustellen, müssen weitere Effekte berücksichtigt werden, die bei der Doppelionisation des H_2 -Moleküls eine Rolle spielen könnten.

Bis jetzt haben wir den Fall der extrem asymmetrischen Energieaufteilung unsere Daten mit theoretischen Ergebnissen der Einfachionisation des H_2 -Moleküls verglichen. Was demnach bis jetzt in den theoretischen Modellen noch keine Rolle gespielt hat, sind die Wechselwirkungen der fragmentierten Teilchen, insbesondere der Elektronen, untereinander. Da die Fragmente elektrisch geladen sind, herrscht zwischen ihnen eine Coulomb-Kraft. Eine Theorie, die diese berücksichtigt, ist die 5C-Theorie. Die 5C-Theorie beinhaltet die Wechselwirkung jedes Elektrons mit jedem Ion sowie die Wechselwirkung zwischen den Elektronen untereinander. Die Wechselwirkung zwischen den Ionen kann allerdings hier vernachlässigt werden. Diese Approximation ist gerechtfertigt, da wir von der Born-Oppenheimer-Näherung (siehe Kap. 2.1.) ausgehen. Die Ergebnisse einer 5C-Rechnung von Michael Walter für die Doppelionisation des Wasserstoffmoleküls [Wal00] sind in Abb. 5.14 dargestellt. Die Rechnung wurde für eine Gesamtenergie der Elektronen von 190 eV gemacht, wobei dem schnellen Elektron 185 eV zukommen. Über den KER wurde hierbei integriert.

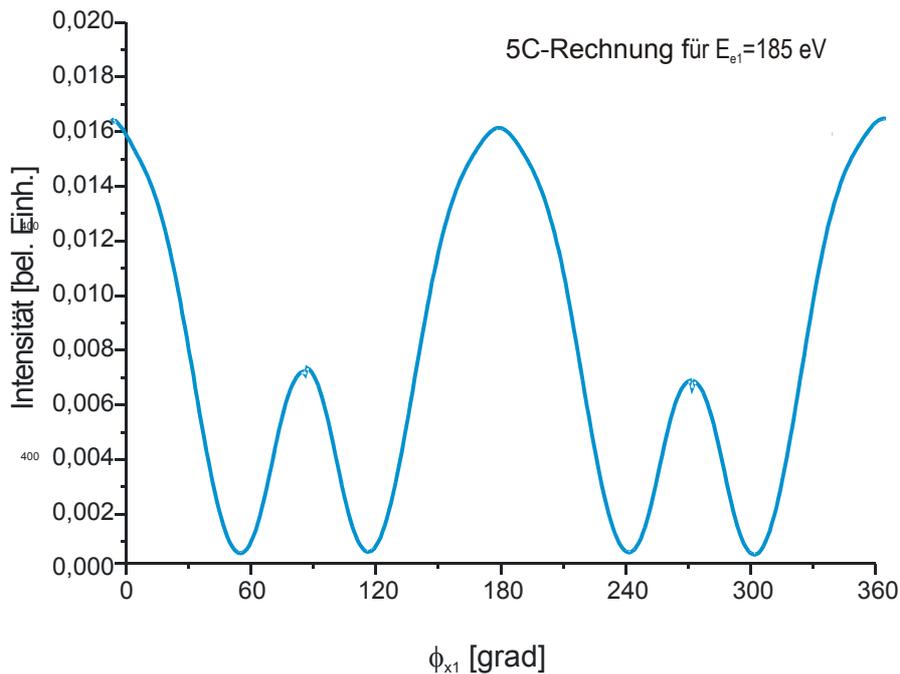


Abb. 5.14: Darstellung der 5C-Rechnung von Michael Walter für die Doppelionisation des H₂-Moleküls. Die Energie E_{e1} des schnellen Elektrons beträgt 185 eV, die des langsamen beträgt dementsprechend 5 eV. Über den KER wurde in dieser Rechnung integriert.

Man erkennt in Abb. 5.14, dass sich das Größenverhältnis der Maxima bei 0° und 180° zu den Maxima bei $\pm 90^\circ$ (in dieser Darstellung bei 90° und 270°), durch die Berücksichtigung der Elektronenwechselwirkung in der 5C-Rechnung, entsprechend den experimentellen Daten entwickelt.

Für einen direkten Vergleich der Theorien des klassischen Doppelspaltes, der Rechnung von Semenov und Cherepkov und der 5C-Rechnung von Michael Walter mit den experimentellen Daten, betrachten wir nun Abb. 5.15. Hierin erkennt man deutlich die Annäherung der Theorie an die Daten bei der Berücksichtigung des Streueffektes. Die Maxima unter 90° und 270° sind etwas kleiner im Gegensatz zu denen unter 0° und 180°. Die Kurve der 5C-Rechnung weist dieses Größenverhältnis weitaus extremer auf, so dass die Maxima unter 90° und 270° im Vergleich mit den experimentellen Daten, zu klein sind. Dennoch ist nach dem Vergleich dieser Kurven die Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Fragmenten scheinbar nicht vernachlässigbar. Wie in (2.4.) in Kapitel 2.4. gezeigt, fällt allein bei der Betrachtung des Übergangsmatrixelementes, bei welchem, anstatt der einzelnen Impulse, der Relativ- und der Summenimpuls der Elektronen eingeht, auf, dass insbesondere die Wechselwirkung zwischen den Elektronen eine Rolle spielt. Der Einfluss der Elektron-Elektron Wechselwirkung wird natürlich um so größer, je mehr sich die Energien und damit die Geschwindigkeiten der beiden Elektronen einander nähern. Wir wollen deshalb im nächsten Abschnitt die Fälle untersuchen, bei denen dem langsamen Elektron mehr kinetische Energie zukommt.

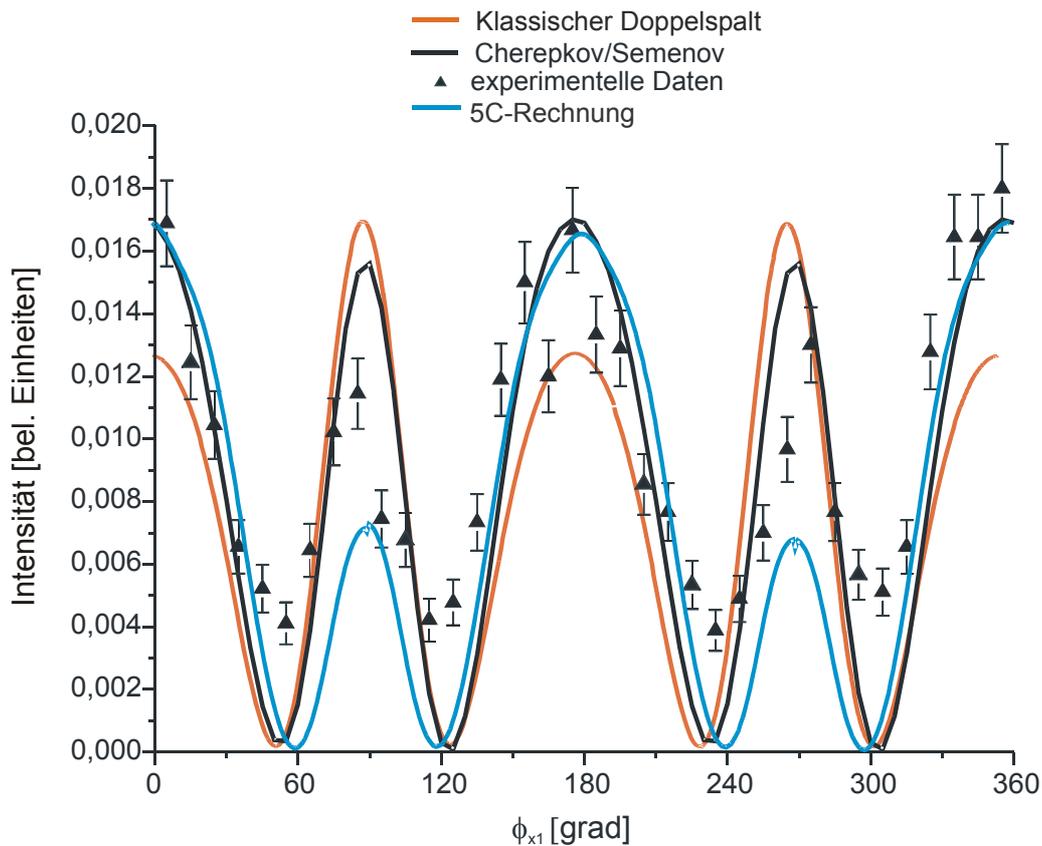


Abb.5.15: Darstellung zum Vergleich der theoretischen Modelle mit den experimentellen Daten.

Die Kurve des klassischen Doppelspalt basiert auf einer Energie von 190 eV und einem Spaltabstand von 1,4 a.u. (rote Kurve).

Die Rechnung von Cherepkov für die Einfachionisation des H_2 -Moleküls bei zirkular polarisiertem Licht wurde für eine Elektronenenergie von 190 eV durchgeführt, über den KER wurde integriert (schwarze Kurve).

Die 5C-Rechnung von Michael Walter für die Doppelionisation des H_2 -Moleküls basiert auf einer Energie des schnellen Elektrons von 185 eV, das langsame Elektron hat dabei eine Energie von 5 eV. Auch hier wurde über den KER integriert (blaue Kurve).

Die Kurve der experimentellen Daten beruht auf einer gesamten kinetischen Energie der Elektronen von 190 eV. Für das langsame Elektron wurde dabei über einen Energiebereich von 0 bis 5 eV integriert. Die Polarwinkel Θ_{Mol} der Molekülachse sowie Θ_{e1} und Θ_{e2} der Elektronen sind entsprechend Abb. 5.7.

5.4. Übergang zur Doppelionisation

In den vorhergehenden Kapiteln wurde die Doppelionisation des H_2 -Moleküls für die Fälle behandelt, bei denen einem Elektron kaum kinetische Energie zukommt. Die Interferenzstrukturen wurden mit den theoretischen Ergebnissen für die

Einfachionisation verglichen. Es wurde daran der Interferenzeffekt, der durch die Wirkung des Zwei-Zentren-Potentials auf die Wellenfunktion des Elektrons hervorgerufen wird, untersucht. Wir wollen nun die Fälle einer symmetrischeren Energieaufteilung untersuchen. Dabei ist interessant, inwiefern die Winkelverteilung des ersten Elektrons durch das zweite Elektron beeinflusst oder gestört wird. Wir werden hierzu Ereignisse für verschiedene Energien sowie für verschiedene Emissionsrichtungen des langsamen Elektrons betrachten.

5.4.1. Abhängigkeit der Interferenzstruktur von der Energie des zweiten Elektrons

Dieser Abschnitt behandelt die Wirkung, die das zweite Elektron e_2 auf die Winkelverteilung des ersten Elektrons e_1 hat. Dafür wird zunächst die kinetische Energie E_{e_2} variiert. Da die gesamte kinetische Energie unter beiden Elektronen aufgeteilt wird, ändert sich dadurch gleichzeitig auch die kinetische Energie $E_{e_1} = E_{\text{ges}} - E_{e_2}$ des ersten Elektrons. Die Winkelverteilung des ersten Elektrons in Abhängigkeit von der Energie des zweiten Elektrons ist in Abbildung 5.16 dargestellt.

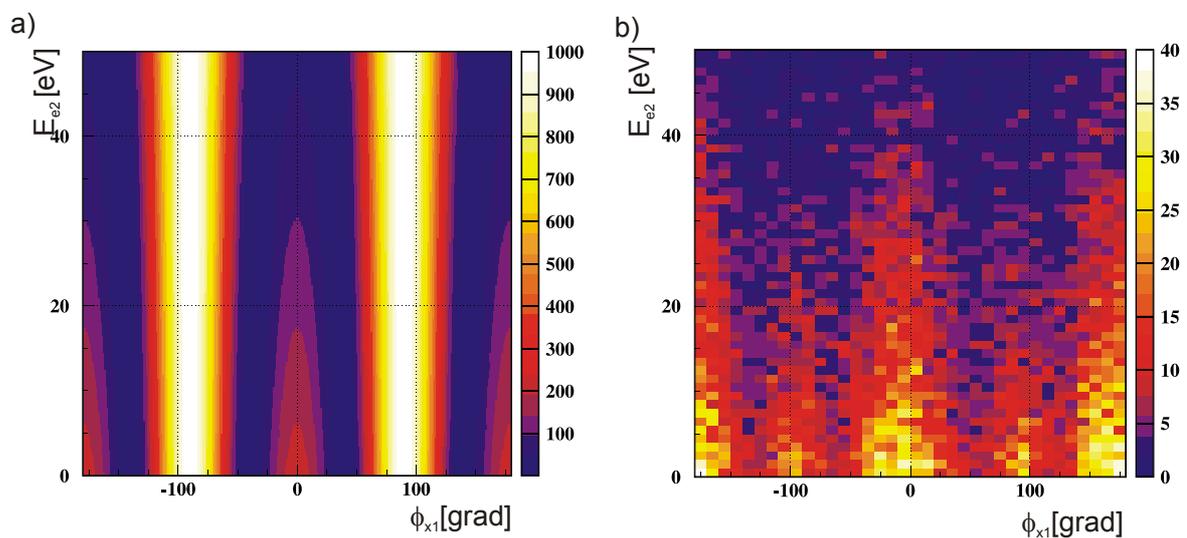


Abb. 5.16: Spektrum des Emissionswinkels ϕ_{x1} des hochenergetischen Elektrons, relativ zur Molekülachse, gegen die Energie des niederenergetischen Elektrons E_{e_2} . a) zeigt die Erwartungen gemäß des klassischen Doppelspaltes. Die Darstellung beruht auf einer gesamten kinetischen Energie von 190 eV. b) zeigt die experimentellen Daten. Über den KER wurde integriert. Die Polarwinkel der Molekülachse Θ_{Mol} sowie der beiden Elektronen Θ_{e_1} und Θ_{e_2} sind wie in Abb. 5.7. gewählt.

Auf der x-Achse ist die Winkelverteilung des schnellen Elektrons relativ zur Molekülachse, auf der y-Achse die Energie des zweiten Elektrons aufgetragen. Für Ereignisse in Spektrum 5.15 b), bei denen die Elektronenenergie E_{e2} 30 eV überschreitet, werden die Elektronen nicht mehr mit 4π -Raumwinkelakzeptanz detektiert. Der bekannte Interferenzeffekt zeigt sich in Abb. 5.16 entlang der x-Achse. Bei höher werdender Energie E_{e2} - bzw. kleiner werdender Energie E_{e1} - werden die Maxima sowohl in dem Spektrum der klassischen Erwartung als auch in den experimentellen Daten schwächer. Die Interferenz stirbt aus. Der Unterschied ist allerdings wieder in der relativen Größe der Maxima unter $\pm 90^\circ$ zu denen unter 0° und 180° zu finden. Dass die Maxima unter $\pm 90^\circ$ aus 5.16.a) ihre Intensität nicht so früh verlieren, wie die experimentellen Daten in 5.16.b), ist auf die asymmetrische Energieaufteilung der Elektronen zurückzuführen (siehe Kap. 5.1.). Hinzu kommt, dass in 5.16 b) die Elektronen mit mehr als 30 eV kinetischer Energie nicht mit vollem Raumwinkel gemessen werden. Die Anzahl der gemessenen Elektronen verringert sich also dementsprechend. In Abb. 5.17 sind Schnitte entlang der x-Achse aus Abb. 5.16 b) in Polarform dargestellt. Betrachtet man diese, so wird das Verschwinden der Maxima unter $\pm 90^\circ$ für eine Energie E_{e2} des langsamen Elektrons von 25 bis 30 eV deutlich. Für den Fall $E_{e2} = 0$ bis 5 eV sind diese dagegen ausgeprägter. Die nahezu unveränderte Größe der Maxima unter 0° und 180° ist auf die Überlagerung der Interferenzerscheinung mit Effekten der Coulomb-Wechselwirkung sowie Streuungen (vgl. Abb. 5.15.) zurückzuführen. Das schnelle Elektron hat im Fall 5.17 b) eine Energie von $E_{e1} = 190\text{eV} - E_{e2} = 160\text{eV}$ bis 165eV . Das entspricht einer Wellenlänge λ von 1,85 a.u. bis 1,81 a.u.. Die Interferenzerscheinungen vermindern sich also mit abnehmender Energie des ersten Elektrons. Dies lässt sich, aufgrund der vorhandenen Analogie der Interferenzstruktur der experimentellen Daten zu den Erwartungen des klassischen Doppelspaltes, anhand der Wellenlänge des schnellen Elektrons erklären, welche die Größe des Spaltabstandes von 1.4 a.u. immer weiter übersteigt.

Die zu beobachtende Winkelverteilung ist also, abgesehen von der Wahl der gesamten kinetischen Energie der Elektronen, abhängig von der Energieaufteilung zwischen ihnen. Da diese vorwiegend asymmetrisch ist, kommt bei nahezu allen Ereignissen einem Elektron genügend Energie zu, um Interferenzerscheinungen an gegebenem Kernabstand hervorzurufen. In unserem Fall, bei dem langsame Elektronen bis 30 eV zugelassen sind, verschwindet die Interferenz nie völlig, da die Interferenzbedingung für das erste Minimum nach der Theorie des klassischen Doppelspaltes:

$$\cos(\alpha) = \frac{\lambda}{2R} \text{ auch für eine Wellenlänge von 1,85 a.u. erfüllt ist.}$$

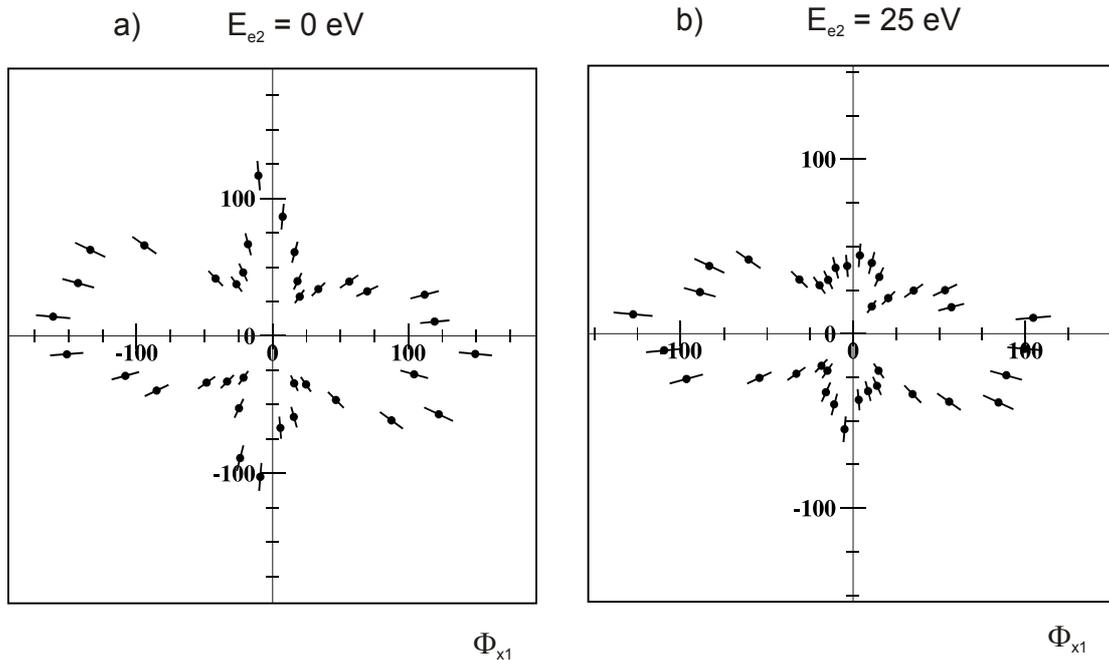


Abb. 5.17: Polarplots der Winkelverteilung des schnellen Elektrons e_1 um die Molekülachse für verschiedene Energien E_{e_2} des langsamen Elektrons. Über den KER wurde integriert. Die Polarwinkel der Molekülachse Θ_{Mol} sowie die der beiden Elektronen Θ_{e_1} und Θ_{e_2} sind entsprechend Abbildung 5.7. Aus Gründen der Statistik wurde in Abb. a) über eine Energie E_{e_2} von 0 bis 5 eV, in b) wurde über $E_{e_2} = 20$ bis 30 eV integriert.

Um den Einfluß des zweiten Elektrons auf die Verteilung des anderen zu untersuchen, betrachten wir in einem nächsten Schritt nun die Winkelverteilung des schnellen Elektrons für den Fall einer festen Emissionsrichtung des langsamen Elektrons.

Die Beeinflussung der Elektronen nach ihrer Ionisation geschieht dabei durch "Post Collision Interaction" (PCI). Diese beinhaltet die Coulombwechselwirkung nach der Ionisation der Elektronen. Anschaulich lässt sich die Stärke für das Auftreten von PCI-Effekten über die Zeitdauer erklären, die den Elektronen zur Verfügung steht, um miteinander in Wechselwirkung zu treten. Je geringer die Relativgeschwindigkeit zwischen den Elektronen ist, umso größer ist der Einfluss der Coulomb-Wechselwirkung zwischen ihnen. In Abb. 5.18 ist dieser Effekt sehr gut zu erkennen. Während die Winkelverteilung des schnellen Elektrons in Abb 5.18 a) kaum durch das langsame Elektron gestört wird, so ist die Veränderung der Verteilung für eine feste Emissionsrichtung des langsamen Elektrons in Abb. 5.18 b) deutlicher. Beide Abbildungen unterscheiden sich in der Energie des langsamen Elektrons und somit letztlich in der Relativgeschwindigkeit der beiden Elektronen. Das langsame Elektron wurde für die jeweilige Energie unter 0° und unter 90° relativ zur Molekülachse festgehalten. Um genügend Statistik zu erhalten wurde im Fall der 30 eV des langsamen Elektrons über einen Bereich von 20 bis 40 eV integriert. Im Fall „5eV“ wurde von 0 bis 10 eV integriert.

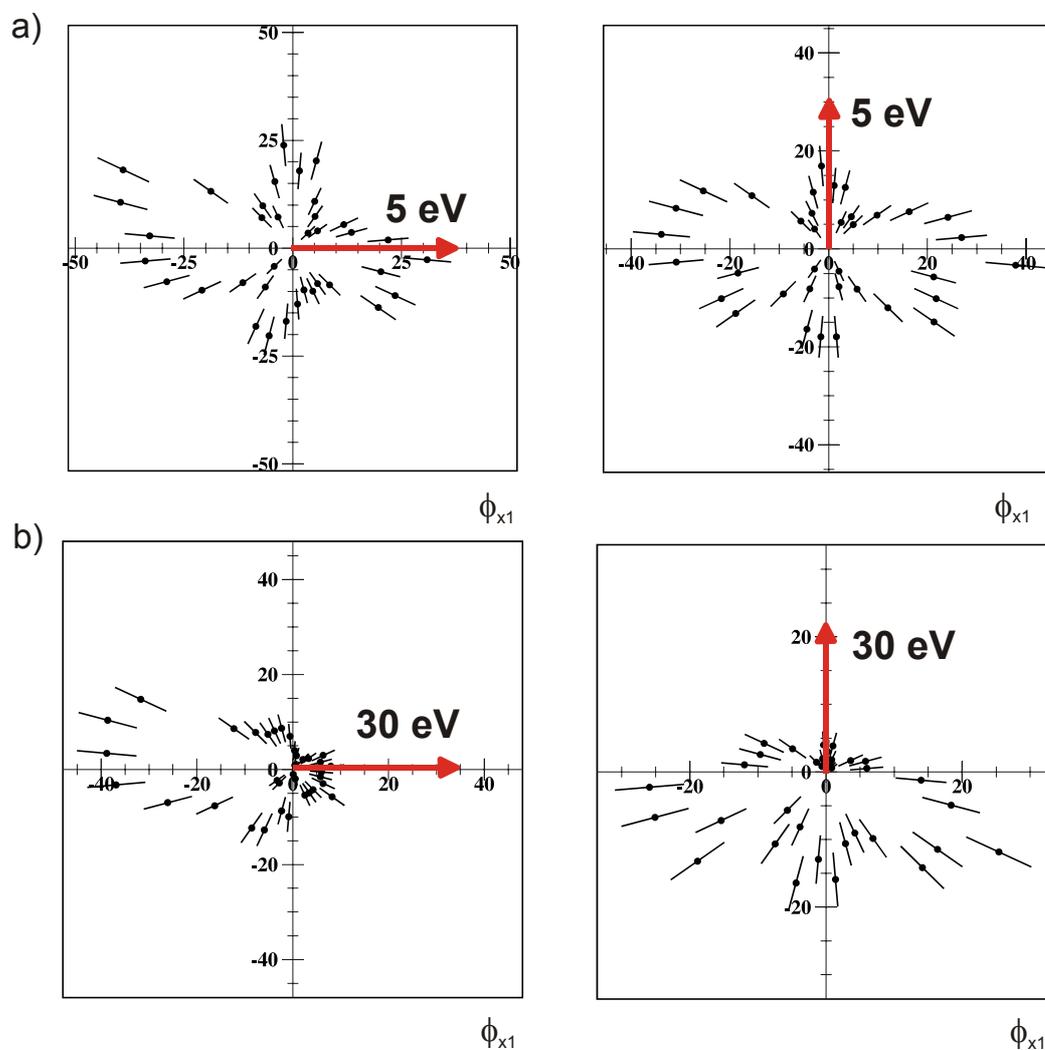


Abb. 5.18: Winkelverteilung des schnellen Elektrons für eine feste Emissionsrichtung des langsamen Elektrons (roter Pfeil), für a) $E_{e2} = 5 \text{ eV}$ und b) $E_{e2} = 30 \text{ eV}$. Die Elektronen wurden jeweils unter 0° und unter 90° relativ zur Molekülachse festgehalten. Die Polarwinkel Θ_{Mol} , Θ_{e1} und Θ_{e2} sind entsprechend Abbildung 5.7, über den KER wurde integriert.

Die Polarplots aus Abb. 5.18 wurden einem Spektrum entnommen, in dem die Winkelverteilung des langsamen Elektrons gegen die Winkelverteilung des schnellen Elektrons im Molekülsystem aufgetragen ist [Abb. 5.19]. Auch in diesen Spektren lässt sich die Coulomb-Abstoßung beobachten. Bei einer Energie des langsamen Elektrons von 30 eV treten entlang einer Diagonalen keine Ereignisse auf [Abb. 5.19 b)]. Diese Diagonale entspricht den Fällen, in denen beide Elektronen in

die selbe Richtung emittiert werden. Dies wird durch die Coulomb-Abstoßung verhindert. Betrachtet man dagegen dasselbe Spektrum für eine Energie des langsamen Elektrons von 5 eV [Abb. 5.19 a)], so erkennt man, dass die Diagonale stärker aufgefüllt ist. Die Coulomb-Wechselwirkung der Elektronen hat hier keinen großen Einfluss auf die Winkelverteilung.

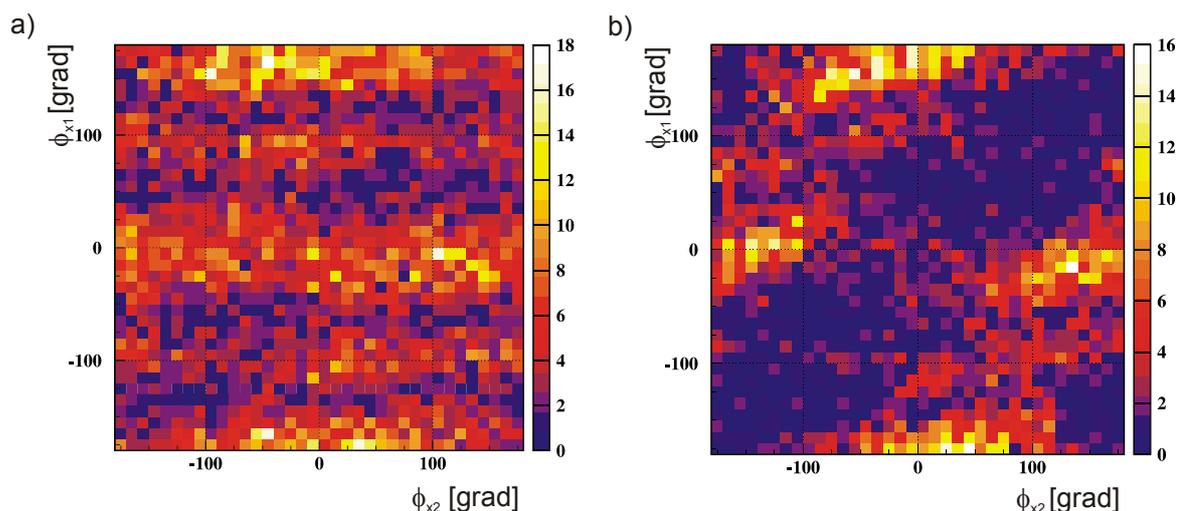


Abb. 5.19: Darstellung des Winkels des zweiten Elektrons zur Molekülachse (ϕ_{x2}) - aufgetragen auf der x-Achse - gegen den Winkel des ersten Elektrons zur Molekülachse (ϕ_{x1}) - aufgetragen auf der y-Achse. Abb. a) basiert auf einer Energie des langsamen Elektrons e_2 von 0-10 eV; b) basiert auf einer Energie des langsamen Elektrons e_2 von 20 - 40 eV. In beiden Fällen wurde über den KER integriert, die Polarwinkel Θ_{Mol} , Θ_{e1} und Θ_{e2} sind wie in Abb. 5.7 gewählt.

Man kann also aus diesen Spektren schließen, dass die Coulomb-Abstoßung zwischen den beiden Elektronen eine beeinflussende Rolle spielt. Die resultierende Winkelverteilung scheint sich aus einer Überlagerung dieser mit der Interferenzstruktur des schnellen Elektrons zusammensetzen.

Um nun nachzuprüfen, ob es sich wirklich ausschließlich um die Einflüsse dieser beiden Effekte handelt, oder ob weitere Wechselwirkungen für die Dynamik bei der Doppelionisation des Wasserstoffmoleküls eine Rolle spielen, versucht man die experimentell bestimmte Verteilung durch eine Faltung der einzelnen Wechselwirkungskomponenten zu rekonstruieren.

5.4.2. Rekonstruktion der Verteilung durch Faltung

Um nun Aufschluss darüber zu bekommen, welche Wechselwirkungen bei der Doppelionisation des Wasserstoffmoleküls eine Rolle spielen, betrachten wir die Faltung der in Kapitel 5.4.1. vorgestellten Komponenten, der Coulomb-Wechselwirkung und des reinen Interferenzeffektes.

Die reine Interferenzstruktur können wir betrachten, indem wir über alle Emissionsrichtungen des zweiten Elektrons integrieren. Mit einer Darstellung des Zwischenwinkels zwischen den beiden Elektronen bei einer Integration über die Molekülachsenstellung, wird der Einfluss der Molekülachse herausgemittelt und der Interferenzeffekt verschwindet. Zu beobachten ist dann nur die Wechselwirkung der beiden Elektronen, wie sie z.B. auch in einem Heliumatom stattfinden könnte. Es wird also angenommen, dass das System des H₂-Moleküls nach der Integration über die Molekülachse dem He-Atom entspricht.

Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.20 und 5.21 für verschiedene Energien des langsamen Elektrons dargestellt. Darstellung a) aus 5.20 und 5.21 zeigt jeweils den reinen Interferenzeffekt, die in b) gezeigte Verteilung ist die des Zwischenwinkels zwischen den beiden Elektronen nach der Integration über die Molekülachse, das langsame Elektron ist in Richtung des roten Pfeils festgehalten. Die Faltung von a) und b) durch eine Multiplikation beider Spektren ist dann jeweils in c) dargestellt.

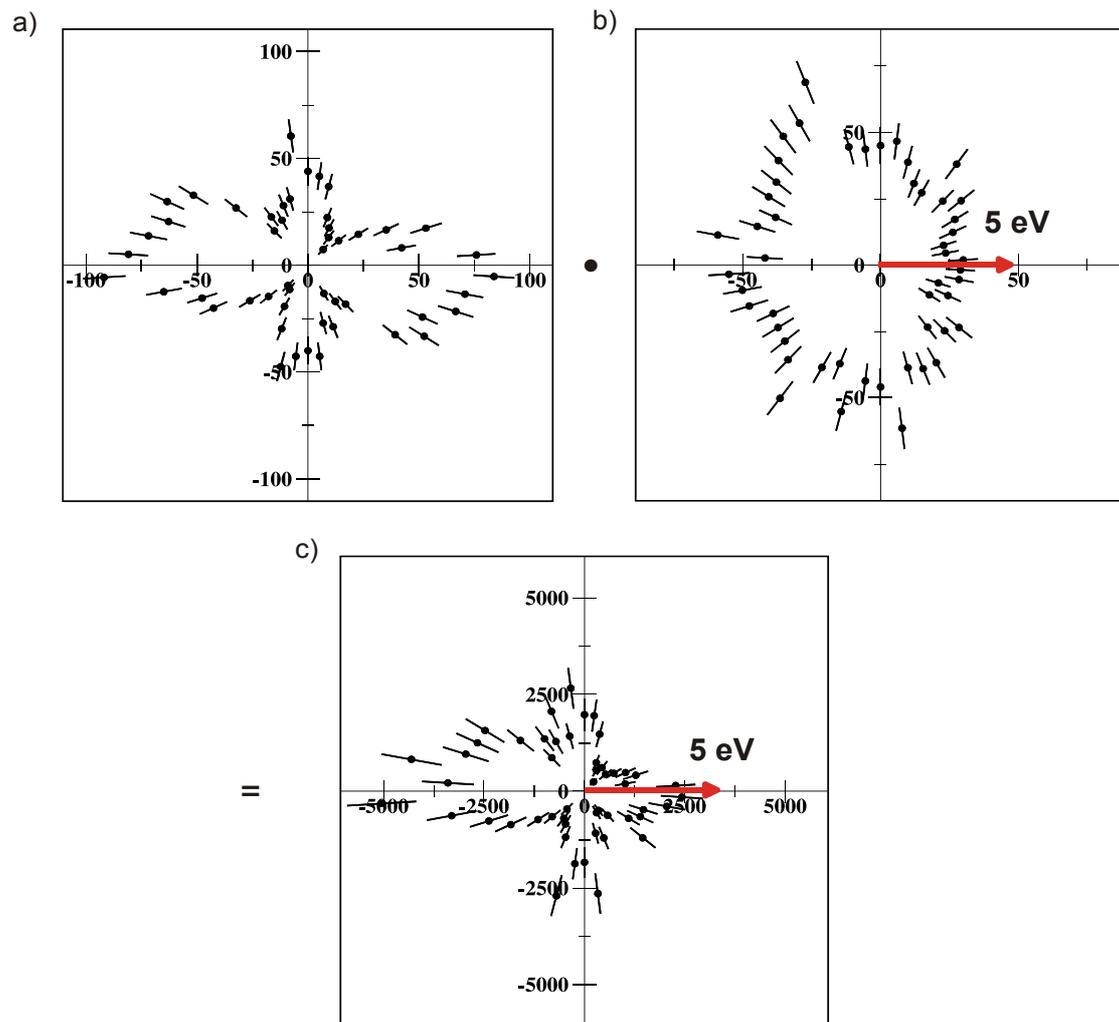


Abb.5.20: Darstellung der Faltung (c). Die Faltung wurde erzeugt durch die Multiplikation der Winkelverteilung des schnellen Elektrons nach der Integration über die Emissionsrichtung des langsamen Elektrons (a) mit der Winkelverteilung des schnellen Elektrons relativ zur festen Emissionsrichtung des langsamen Elektrons nach der Integration über die Molekülachse (b). Es wurde über eine Energie des langsamen Elektrons von 0-10 eV und über den KER integriert. Die Polarwinkel zur x-Achse Θ_{Mol} , Θ_{e1} und Θ_{e2} sind entsprechend Abb. 5.7 gewählt.

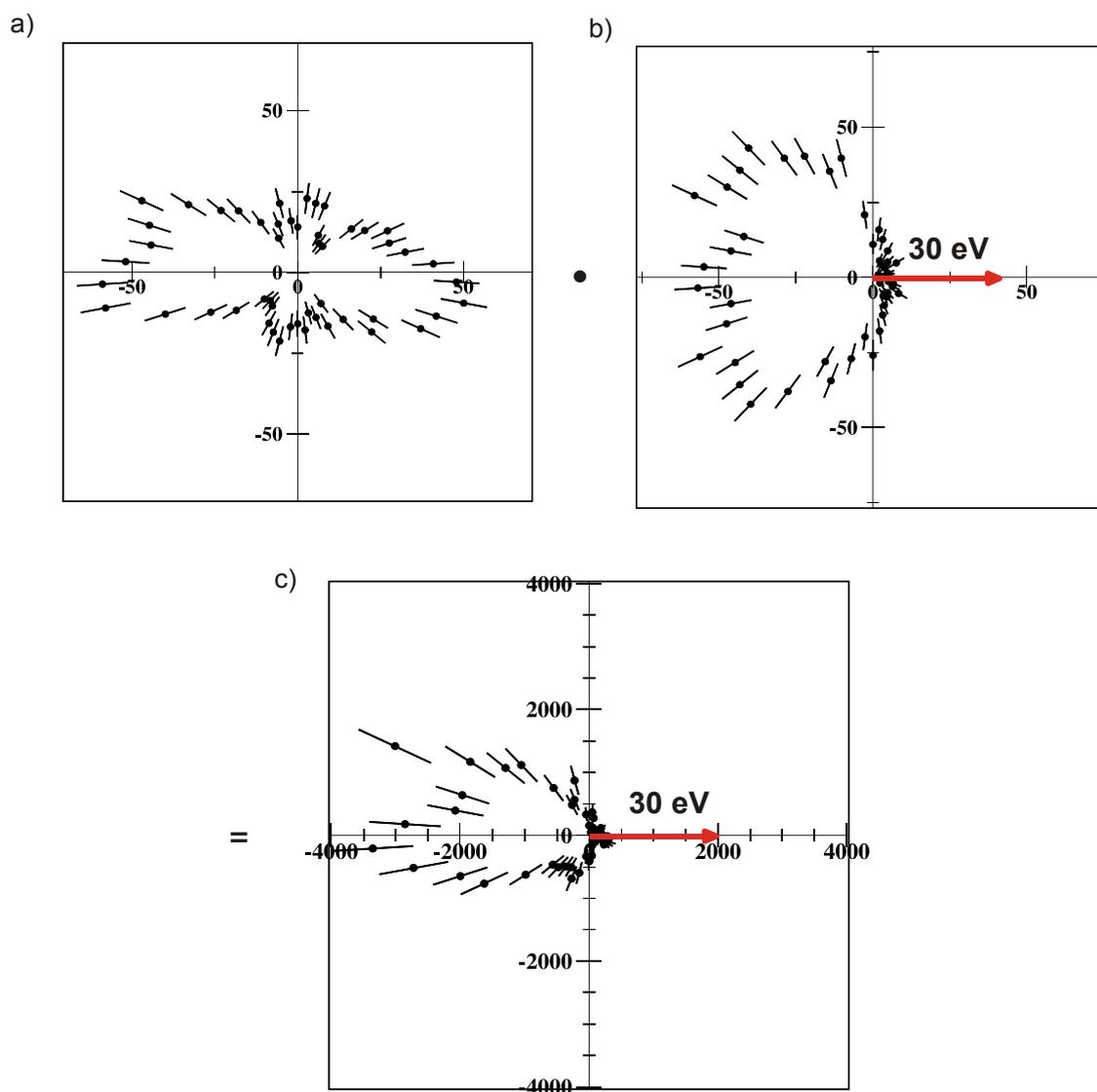


Abb.5.21. Darstellung der Faltung (c). Die Faltung wurde erzeugt durch die Multiplikation der Winkelverteilung des schnellen Elektrons nach der Integration die Emissionsrichtung des langsamen Elektrons (a) mit der Winkelverteilung des schnellen Elektrons relativ zur festen Emissionsrichtung des langsamen Elektrons nach der Integration über die Molekülachse (b). Es wurde über eine Energie des langsamen Elektrons von 20-40 eV und über den KER integriert. Die Polarwinkel zur x-Achse Θ_{Mol} , Θ_{e1} und Θ_{e2} sind entsprechend Abb. 5.7. gewählt

Vergleicht man nun die durch die Faltung erzeugten Spektren aus Abbildung 5.20 c) und 5.21c) mit den experimentellen Daten aus Abbildung 5.18, so erkennt man deutlich die Gleichartigkeit dieser. Daraus lässt sich ableiten, dass sich die experimentelle Elektronenwinkelverteilung aus der Überlagerung des Interferenzeffektes, erzeugt durch die festgehaltene Molekülachse und der aus der Coulombkraft resultierenden Elektronenabstoßung in dem Helium-ähnlichen System ergibt.

Bevor wir die Rekonstruktion des Ergebnisses durch die Faltung näher diskutieren, wollen wir anhand von Abb. 5.22 untersuchen, inwieweit die Annahme gerechtfertigt

ist, die Winkelverteilung des Wasserstoffmoleküls - integriert über die Molekülachse - mit der Winkelverteilung des Heliumatoms zu vergleichen. Dazu betrachten wir die Doppelionisation des Heliumatoms für eine gesamte kinetische Energie der Elektronen von 100 eV, 160 eV und 450 eV. Die Daten für 100 eV und 450 eV [Abb. 5.22 a), b), e), f)] stammen dabei aus der Arbeit von A. Knapp [Kna05], die Daten für 160 eV stammen aus der gleichen Messung wie die in dieser Arbeit behandelten Daten des Wasserstoffmoleküls.

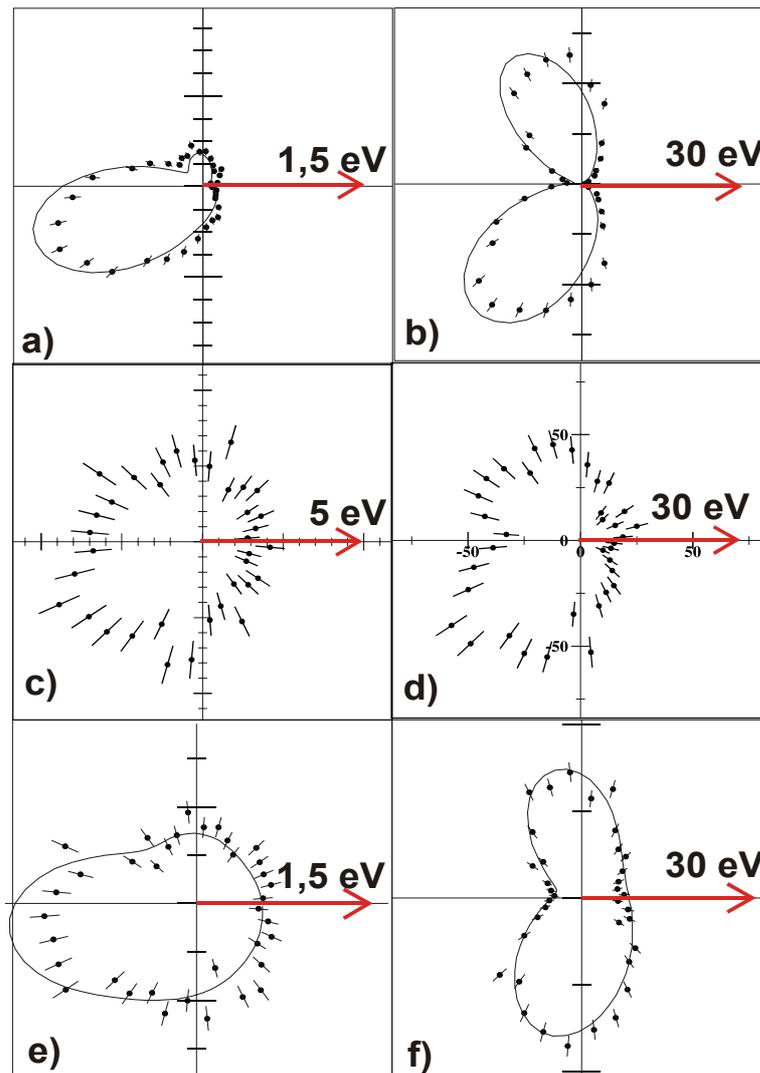


Abb. 5.22: Darstellung des Zwischenwinkels der Elektronen nach der Doppelionisation des Heliumatoms. Der Pfeil repräsentiert die Emissionsrichtung des langsamen Elektrons. Alle Abbildungen sind hier für zirkular polarisiertes Licht dargestellt. In Abb. a) und b) haben die Elektronen eine Gesamtenergie von 100 eV [Kna05]. In c) und d) beträgt die Gesamtenergie der Elektronen 160 eV (diese Arbeit). Die Polarwinkel der beiden Elektronen zur Polarisationsebene betragen 5° . Es wurde in c) über eine Elektronenenergie von 0 bis 10 eV, in d) über eine Energie von 20 bis 100 eV integriert. In Abb. e) und f) teilen sich die Elektronen eine Energie von 450 eV [Kna05]; Abb. a), c), e) zeigen die Winkelverteilung des schnellen Elektrons für eine niedrige Energie des langsamen Elektrons. In Abb. b), d), f) kommt dem langsamen Elektron eine Energie von 30 eV zu.

Die Prozesse, die sich hier in der Doppelionisation des Heliumatoms [Abb. 5.22.] widerspiegeln, sind der SO-Prozess sowie der TS1-Prozess (siehe Kap. 2.3.). Um eine Vorstellung des Energietransfers während der Doppelionisation zu bekommen, werden die Prozesse hier noch einmal kurz erläutert. Der Shake-Off-Prozess erlaubt nur die Wechselwirkung zwischen Projektil und Target. Die Tatsache, dass zwei Elektronen emittiert werden, basiert auf der Korrelation der Elektronen im Anfangszustand. Das zweite Elektron wird sozusagen aufgrund des stark veränderten Potentials des Molekülsystems abgeschüttelt ("shake off"). Der Two-Step-One-Prozess beinhaltet dagegen eine zusätzliche Wechselwirkung zwischen den Elektronen. Das hochenergetische Elektron stößt mit dem zweiten Elektron und schlägt es damit aus dem Molekülverband. Dieser Vorstellung entsprechend sollte das zweite Elektron, das durch den SO-Prozess in das Kontinuum gelangt, eine sehr geringe kinetische Energie besitzen, während der TS1-Prozess einen Energieübertrag vom ersten auf das zweite Elektron erlaubt. Folglich sollte der TS1-Prozess Elektronen hervorrufen, deren Energie höher als die der SO-Elektronen ist. Abb. 5.22.a), c), e) zeigen somit den SO-Prozess, Abb. 5.22.b), d), f), zeigen den TS1-Prozess. Auch hier sieht man wie im Wasserstoffmolekül die durch die zirkulare Polarisation des Lichtes hervorgerufene Asymmetrie der Elektronenverteilung.

Vergleicht man nun die Elektronenwinkelverteilung nach der Photodoppelionisation des Heliumatoms aus Abb. 5.22. mit der Elektronenwinkelverteilung im H₂-Molekül bei einer Integration über die Molekülachse (Abb.5.20 b) und 5.21 b)), entdeckt man Übereinstimmungen. Die Asymmetrie in der Verteilung des Heliumatoms, hervorgerufen durch die zirkulare Polarisation des Lichts, ist allerdings in den Verteilungen des Wasserstoffmoleküls nicht wiederzufinden. Dies ist wahrscheinlich auf die unterschiedlichen Öffnungswinkel zurückzuführen. Aus statistischen Gründen musste für die Betrachtung der Elektronenwinkelverteilung des Wasserstoffmoleküls ein größerer Polarwinkel relativ zur Polarisationssebene (20°) gewählt werden als beim Heliumatom in Abb. 5.22.c), d) (6°). Durch die Vergrößerung dieses Öffnungswinkels wird aber gerade der Einfluß der Polarisationsrichtung vermindert. Um die Asymmetrie in der Verteilung des Wasserstoffmoleküls dennoch anzudeuten, wird in Abb. 5.23. das Spektrum der Elektronenwinkelverteilung des Wasserstoffmoleküls bei einem Polarwinkel von 6° relativ zur Polarisationssebene dargestellt und mit der Elektronenverteilung des Heliumatoms aus Abb. 5.22.d) verglichen.

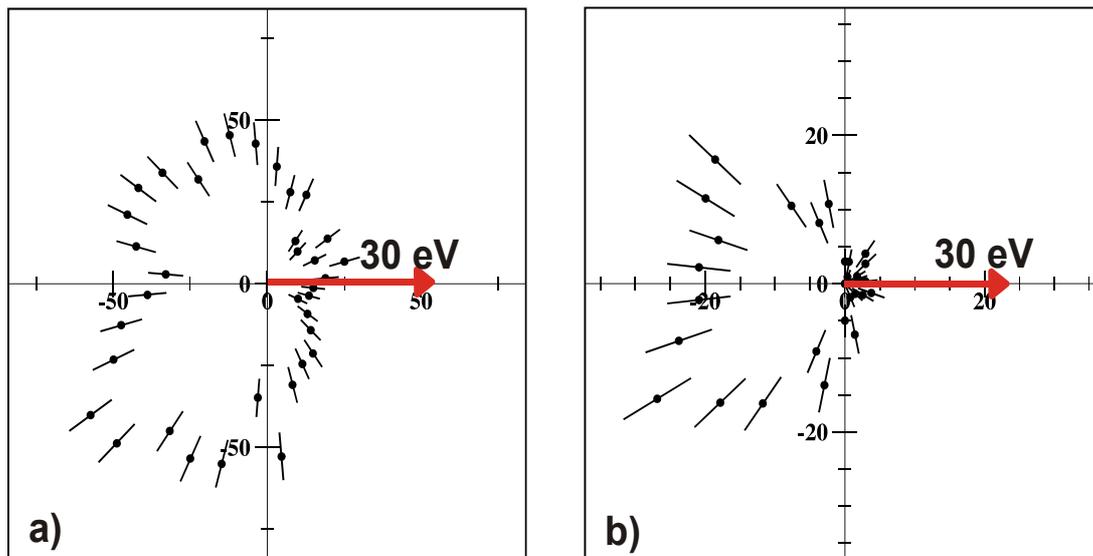


Abb. 5.23. Darstellung der Winkelverteilung des schnellen Elektrons relativ zu der festen Emissionsrichtung des langsamen Elektrons. Abb. a) und b) sind Verteilungen für einen Polarwinkel relativ zur Polarisations Ebene von 6° . Abb.5.23.a) ist entsprechend Abb. 5.22.d). Abb. 5.23.b) entspricht Abb. 5.21.b), wobei der Polarisationswinkel von 20° auf 6° relativ zur Polarisations Ebene verringert wurde.

Nun wollen wir die Resultate der Rekonstruktion der Elektronenwinkelverteilung durch die Faltung erläutern. Aufgrund der Ähnlichkeit des Wasserstoffmoleküls, nach der Integration über die Molekülachsenstellung, mit dem Heliumatom, kann man die Elektronenwinkelverteilung des doppelionisierten Wasserstoffmoleküls als eine Überlagerung der Wechselwirkung der Elektronen in einem Helium-ähnlichen System mit der Interferenzstruktur, hervorgerufen durch die feststehende Molekülachse, beschreiben.

Da die Rekonstruktion der Verteilung durch eine Faltung dieser Komponenten möglich ist, kann man darauf schließen, dass die Emission der Elektronen unabhängig voneinander geschieht. Unabhängig soll hier bedeuten, dass die Elektronen kein verschränktes Elektronenpaar darstellen, sondern nur über die Coulombkraft miteinander wechselwirken. Da das langsame Elektron bei der Doppelionisation des H_2 -Moleküls demnach nicht zur Dekohärenz führt, ist es des weiteren anscheinend erlaubt, den Fall der extrem asymmetrischen Energieaufteilung näherungsweise mit der Einfachionisation gleichzusetzen.

6. Zusammenfassung und Ausblick

6.1. Zusammenfassung

Das Ziel dieser Arbeit war die Untersuchung der Photodoppelionisation des H₂-Moleküls mit zirkular polarisiertem Licht. Dabei sollte nach Anzeichen von Doppelspaltinterferenzen in den Photoelektronenwinkelverteilungen gesucht werden.

Die Erscheinungen im klassischen Doppelspaltexperiment basieren auf der Interferenz der nach dem Huygenschen Prinzip gebeugten ebenen Wellen. In Analogie dazu stellen nun im molekularen System die beiden Kerne die Emissionszentren der Elektronenwelle dar. Die Interferenzerscheinung wird dabei durch die von beiden Kernen gleichzeitig emittierte Elektronenwelle hervorgerufen.

Die Photodoppelionisation des H₂-Moleküls wurde mit einer Photonenenergie von 240 eV durchgeführt, um eine Wellenlänge der ionisierten Elektronen in der Größenordnung des Gleichgewichtsabstands der Kerne von 1.4 a.u. zu erreichen. Zur Erzeugung des Interferenzeffektes hätte eigentlich die Einfachionisation des Moleküls ausgereicht, da die Welle eines Elektrons *gleichzeitig* von beiden Protonen ausläuft. Es wurde trotzdem die Doppelionisation durchgeführt, da so die Ionen in Koinzidenz gemessen werden können und die Impulserhaltung in der Coulomb-Explosion des Moleküls zur Identifikation von H₂-Ionisationsereignissen verwendet werden kann. Weitere Vorteile sind die Beobachtung der Elektronenkorrelation für verschiedene Energieaufteilungen der Elektronen, sowie die Möglichkeit der Bestimmung des internuklearen Abstandes aus der kinetischen Energie der Ionen (KER).

Zunächst wurde die Winkelverteilung der Photoelektronen für eine extrem asymmetrische Energieaufteilung untersucht. Die Lage und Größe der Interferenzmaxima und -minima in der Elektronenwinkelverteilung wurde dann mit der im klassischen Doppelspaltexperiment auftretenden Interferenzstruktur verglichen. Es konnte gezeigt werden, dass das Interferenzminimum sich wie im Falle des klassischen Doppelspaltes unter einem Winkel von ca. 52° relativ zur Spalt- bzw. Molekülachse befindet. Die Größenverhältnisse von Haupt- zu Nebenmaximum wichen dagegen von den klassischen Erwartungen ab. Während beim Doppelspalt das Hauptmaximum bei 90° relativ zur Spaltachse liegt, lag in diesem Experiment das ausgeprägteste Maximum unter 0°, d.h. entlang der Molekülachse.

Die experimentellen Ergebnisse wurden daraufhin mit einigen Theorien verglichen. Die Theorie von Cherepkov und Semenov, welche die Einfachionisation des Wasserstoffmoleküls für zirkular polarisiertes Licht behandelt, berechnet die Elektronenwinkelverteilung durch die Hinzunahme der Streuung der Photo-

elektronenwelle am benachbarten Proton. Die Berücksichtigung dieses Effektes führt zu einer deutlich besseren Beschreibung der Daten.

Da es sich in diesem Experiment um die Doppelionisation des Moleküls handelt, auch für Fälle bei denen einem Elektron nahezu keine kinetische Energie zukommt, muss die Wechselwirkung zwischen allen Fragmenten, insbesondere zwischen den Elektronen berücksichtigt werden. Die 5C-Theorie [Wal00] berücksichtigt die Coulomb-Wechselwirkung zwischen allen Fragmenten des Wasserstoffmoleküls. Die Wechselwirkung zwischen den Ionen kann allerdings im Rahmen der Born-Oppenheimer-Näherung vernachlässigt werden. Der 5C-Rechnung zeigt, wie die experimentellen Daten, verstärkte Maxima entlang der Molekülachse, jedoch ist hier die Änderung des Größenverhältnisses zu extrem im Vergleich zu den experimentellen Daten. Um die experimentell gefundene Elektronenwinkelverteilung zu rekonstruieren, dürfen dennoch anscheinend weder Streueffekte noch die Coulomb-Wechselwirkung der Fragmente vernachlässigt werden.

Im weiteren Verlauf der Arbeit wurde die Energieaufteilung der Elektronen variiert. Die Interferenzstruktur wurde für verschiedene Energien des langsamen Elektrons untersucht. Je höher die Energie des langsamen Elektrons war, umso schwächer wurde das Maximum 0. Ordnung (senkrecht zur Molekülachse) der Interferenzen des schnellen Elektrons. Die unveränderte Größe des Maximums 1. Ordnung (entlang der Molekülachse) wurde auf die Überlagerung der Streueffekte sowie der Coulomb-Wechselwirkung mit der Interferenzstruktur zurückgeführt.

Über die Energie der Protonen wurde im Experiment zudem der internukleare Abstand zum Zeitpunkt der Photoabsorption bestimmt. Es zeigt sich eine deutliche Abhängigkeit des Interferenzmusters vom internuklearen Abstand. Die experimentell gefundene Abhängigkeit entspricht dabei der des klassischen Doppelspalts.

Schließlich wurde die Elektronenwinkelverteilung für eine feste Emissionsrichtung des langsamen Elektrons untersucht. In den experimentellen Daten konnte deutlich die Unterdrückung der Emissionswahrscheinlichkeit des schnellen Elektrons entlang der Emissionsrichtung des langsamen Elektrons beobachtet werden. Diese Elektronenwinkelverteilung konnte durch eine Faltung der reinen Interferenz – erzeugt durch die Integration über den Zwischenwinkel der Elektronen - mit der reinen Elektronenwechselwirkung - erzeugt durch die Integration über die Stellung der Molekülachse - rekonstruiert werden. Die Verteilung nach der Integration über die Molekülachse ähnelte dabei der Struktur der Elektronenwinkelverteilung nach der Doppelionisation des Heliumatoms. Daraus lässt sich schlussfolgern, dass die gemessene Winkelverteilung der Photoelektronen des doppelionisierten Wasserstoffmoleküls aus einer Überlagerung der Coulomb-Wechselwirkung der Elektronen des heliumähnlichen Systems mit der Interferenzstruktur besteht.

Das bedeutet, die Elektron-Elektron-Korrelation und die Doppelspaltinterferenz sind zwei separate Prozesse. Die Elektronen verlassen den Molekülverband wie im Heliumatom über den SO- bzw. den TS1-Prozess und das langsame Elektron führt nicht zur Dekohärenz.

6.2. Ausblick

Der Ausblick am Ende dieser Arbeit soll erläutern, welche Experimente noch gemacht werden müssen, um einen besseren Aufschluss über die Dynamik im H₂-Molekül und die Wechselwirkungen der einzelnen Fragmente in diesem Molekül zu bekommen.

Der erste, naheliegende Schritt wäre, das Experiment mit einer höheren Photonenenergie durchzuführen. So wäre es möglich, deutlichere bzw. mehr Interferenzmaxima und -minima zu sehen. Durch die deutlichere Struktur könnte der Anteil des Effektes der Teilchenstreuung relativ zum Interferenzeffekt besser erkannt werden. Es könnte somit aufgeklärt werden, ob die Verstärkung des Maximums entlang der Molekülachse relativ zu dem Maximum senkrecht zur Molekülachse wie bei der 5C-Rechnung durch die Zunahme der Coulombwechselwirkung zwischen den Teilchen erklärt werden kann, oder ob diese Struktur durch Streueffekte hervorgerufen wird.

Um ein zusätzliches Interferenzminimum ($n = 2$) in der Elektronenwinkelverteilung bei einem Gleichgewichtsabstand des H₂-Moleküls von 1,4 a.u zu sehen, wäre eine Photonenenergie von 621,5 eV nötig:

$$\begin{aligned}\cos \alpha &= \frac{(2n-1)\lambda}{2R} \\ \Rightarrow \lambda &\leq 0,93a.u. \Rightarrow p = \frac{h}{\lambda} = 6,76a.u. \\ \Rightarrow E &= 6,76a.u. \equiv 621,5eV\end{aligned}$$

Es stellt sich dabei die Frage, ob der totale Wirkungsquerschnitt der Photodoppelionisation des Wasserstoffmoleküls noch ausreichend groß ist, da der absolute Wirkungsquerschnitt mit steigender Photonenenergie stark abfällt [Web03].

Wünschenswert wäre des weiteren ein entsprechendes Experiment zur „wirklichen“ Einfachionisation. Die sich daraus ergebenden Elektronwinkelverteilungen könnten dann mit den hier erworbenen experimentellen Daten der extrem asymmetrischen Energieaufteilung der Elektronen verglichen werden.

Anhang

1. Herleitung der Gleichung für die Interferenzstruktur des klassischen Doppelspaltes:

$$\cos\left(\frac{1}{2}(\vec{k}_a - \vec{k}_b) \cdot \vec{R}\right)$$

Definitionen:

\vec{R} = Relativvektor der Kernachse

\vec{r}_1 = Ortsvektor des ersten Elektrons

\vec{r}_2 = Ortsvektor des zweiten Elektrons

$\vec{r}_{1a} = \vec{r}_1 - \frac{\vec{R}}{2}$ = Relativvektor von Kern a zu Elektron 1

$\vec{r}_{1b} = \vec{r}_1 + \frac{\vec{R}}{2}$ = Relativvektor von Kern b zu Elektron 1

$\vec{r}_{2a} = \vec{r}_2 - \frac{\vec{R}}{2}$ = Relativvektor von Kern a zu Elektron 2

$\vec{r}_{2b} = \vec{r}_2 + \frac{\vec{R}}{2}$ = Relativvektor von Kern b zu Elektron 2

Anfangszustand nach dem Heitler-London-Ansatz:

$$\phi = \phi_{1s}(r_{1a}) \cdot \phi_{1s}(r_{2b}) + \phi_{1s}(r_{2a}) \cdot \phi_{1s}(r_{1b})$$

Endzustand:

$$\psi = e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1} \cdot e^{i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2}$$

mit dem Dipoloperator $D = \vec{\varepsilon} \cdot (\vec{\nabla}_1 + \vec{\nabla}_2)$.

Das Matrixelement T sieht dann folgendermaßen aus:

$$T = \langle \phi | D | \psi \rangle = i \cdot \vec{\varepsilon} \cdot (\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \langle \phi | \psi \rangle, \text{ da gilt:}$$

$$\vec{\nabla}_1 e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1} = i\vec{k}_1 \cdot e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1} \langle \phi | \psi \rangle$$

Fourier-Transformation des 1s-Zustands: $\int_{\vec{r}_1} e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1} \cdot \phi_{1s}(r_1) \equiv \phi_{1s}(k_1)$

Dabei gilt z.B.:

$$e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1} = e^{i\vec{k}_1 \cdot r_{1a}} \cdot e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{R}/2}$$

Daraus folgt:

$$\langle \phi | \psi \rangle = \phi_{1s}(r_{1a}) \cdot \phi_{1s}(r_{2b}) \cdot e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1} \cdot e^{i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2} + \phi_{1s}(r_{2a}) \cdot \phi_{1s}(r_{1b}) \cdot e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1} \cdot e^{i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2}$$

$$\begin{aligned}
&= \phi_{1s}(k_1) \cdot e^{-i\vec{k}_1 \cdot \vec{R}/2} \cdot \phi_{1s}(k_2) \cdot e^{i\vec{k}_2 \cdot \vec{R}/2} + \phi_{1s}(k_2) \cdot e^{-i\vec{k}_2 \cdot \vec{R}/2} \cdot \phi_{1s}(k_1) \cdot e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{R}/2} \\
&= \phi_{1s}(k_1) \cdot \phi_{1s}(k_2) \cdot (e^{-i\vec{k}_1 \cdot \vec{R}/2} \cdot e^{i\vec{k}_2 \cdot \vec{R}/2} + e^{-i\vec{k}_2 \cdot \vec{R}/2} \cdot e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{R}/2}) \\
&= \phi_{1s}(k_1) \cdot \phi_{1s}(k_2) \cdot (e^{-i(\vec{k}_1 \vec{R}/2 - \vec{k}_2 \cdot \vec{R}/2)} + e^{i(\vec{k}_1 \vec{R}/2 - \vec{k}_2 \cdot \vec{R}/2)}) \\
&= 2 \cdot \phi_{1s}(k_1) \cdot \phi_{1s}(k_2) \cdot \cos\left(\frac{1}{2}(\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \cdot \vec{R}\right)
\end{aligned}$$

2.1. Herleitung der kubischen Gleichung für die Geschwindigkeit

s_1 : Beschleunigungsstrecke

s_2 : Driftstrecke

t_1 : Flugzeit des Ions in der Beschleunigungsstrecke

t_2 : Flugzeit des Ions in der Driftstrecke

v_1 : Anfangsgeschwindigkeit des Ions

a : Beschleunigung des Ions

$T_{1,2ges}$: Gesamtflugzeit des ersten bzw. des zweiten Ions

$$1) \quad s_1 = v_1 t_1 + \frac{1}{2} a t_1^2; \quad s_2 = t_2 (v_1 + a t_1)$$

$$2) \quad \Rightarrow s_1 + s_2 = T_{1,2ges} v_1 + \frac{1}{2} a (t_1^2 + 2 t_1 t_2) = T_{1,2ges} v_1 + \frac{1}{2} a [(t_1 + t_2)^2 - t_2^2]$$

mit:

$$3) \quad t_2^2 = \frac{s_2^2}{(v_1 + a t_1)^2}$$

$$4) \quad \Rightarrow (v_1 + a t_1)^2 = v_1^2 + 2 v_1 a t_1 + a^2 t_1^2$$

mit:

$$5) \quad t_1^2 = 2 \frac{s_1 - v_1 t_1}{a}$$

$$6) \quad \Rightarrow (v_1 + a t_1)^2 = v_1^2 + 2 v_1 a t_1 + 2 a (s_1 - v_1 t_1) = v_1^2 + 2 s_1 a$$

$$7) \quad \Rightarrow s_1 + s_2 = T_{1,2\text{ges}} v_1 + \frac{1}{2} a \left(T_{1,2\text{ges}}^2 - \frac{s_2^2}{v_1^2 + 2s_1 a} \right)$$

$$8) \quad \Rightarrow 0 = T_{1,2\text{ges}} v_1 (v_1^2 + 2s_1 a) + \frac{1}{2} a T_{1,2\text{ges}}^2 (v_1^2 + 2s_1 a) - \frac{1}{2} a s_2^2 - (s_1 + s_2)(v_1^2 + 2s_1 a)$$

$$9) \\ = v_1^3 + \left[\frac{1}{2} a T_{1,2\text{ges}} - \frac{s_1 + s_2}{T_{1,2\text{ges}}} \right] v_1^2 + 2s_1 a v_1 + a^2 T_{1,2\text{ges}} s_1 - \frac{1}{2} \frac{a s_2^2}{T_{1,2\text{ges}}} - 2 \frac{(s_1 + s_2) s_1 a}{T_{1,2\text{ges}}}$$

2.2. Lösung der kubischen Gleichung für die Geschwindigkeit

allgemeine Form der kubischen Gleichung:

$$10) \quad v_1^3 + b v_1^2 + c v_1 + d = 0$$

mit:

$$11) \quad b = \frac{1}{2} a T_{1,2\text{ges}} - \frac{s_1 + s_2}{T_{1,2\text{ges}}}$$

$$12) \quad c = 2s_1 a$$

$$13) \quad d = a^2 T_{1,2\text{ges}} s_1 - \frac{1}{2} \frac{a s_2^2}{T_{1,2\text{ges}}} - 2 \frac{(s_1 + s_2) s_1 a}{T_{1,2\text{ges}}}$$

Substitution:

$$14) \quad v_1 = y + \frac{1}{3} b$$

Lösung der kubischen Gleichung für y:

$$15) \quad y = A + B$$

$$16) \quad A = \sqrt[3]{u + w}$$

$$B = -\sqrt[3]{u - w}$$

mit:

$$17) \quad u = -\frac{p}{2}$$

$$18) \quad w = \sqrt{\left(\frac{p}{2}\right)^2 + \left(\frac{q}{3}\right)^3}$$

mit:

$$19) \quad p = \frac{1}{27} \cdot (2b^3 - 9bc + 27d)$$

$$20) \quad q = c - \frac{1}{3}b^2$$

2.3. Herleitung der Gleichung für die Flugzeit des zweiten Ions in Abhängigkeit von der Flugzeit des ersten Ions

Aus der Gleichungen in 1) folgt für t_2 :

$$21) \quad t_2 = \frac{s_2}{v_1 + at_1}; \quad t_1 = -\frac{v_1}{a} \pm \sqrt{\frac{v_1^2}{a^2} + \frac{2s_1}{a}}$$

Durch Einsetzen der Gleichung für t_1 ergibt sich dann:

$$22) \quad t_2 = \frac{s_2}{\sqrt{v_1^2 + 2s_1a}}$$

Die Gesamtflugzeit des ersten Ions T_{1ges} sieht dann folgendermaßen aus:

$$23) \quad T_{1ges} = t_1 + t_2 = \frac{1}{a} \left(v + \sqrt{v^2 + 2s_1a} \right) + \frac{s_2}{\sqrt{v_1^2 + 2s_1a}}$$

Die anderen Lösungen für T_{1ges} sind hierbei physikalisch nicht geeignet.

Aus der Impulserhaltung:

$$24) \quad m_1 v_1 = m_2 v_2$$

mit: $m_1 v_1$ = Impuls des ersten Ions

$m_2 v_2$ = Impuls des zweiten Ions

lässt sich dann die Gesamtflugzeit des zweiten Ions T_{2ges} in Abhängigkeit der Gesamtflugzeit des ersten Ions bestimmen:

$$25) \quad T_{2ges} = \frac{1}{a} \left(\frac{m_1}{m_2} v_1 + \sqrt{\frac{m_1^2}{m_2^2} v_1^2 + 2s_1a} \right) + \frac{s_2}{\sqrt{\frac{m_1^2}{m_2^2} v_1^2 + 2s_1a}}$$

3. Atomare Einheiten

Da in der Atomphysik die Größenordnungen um einiges kleiner sind als in unserer makroskopischen Welt, werden zur Beschreibung der atomaren Welt spezielle sogenannte "atomare Einheiten" [a.u.] definiert. Das Maßsystem dieser Einheiten basiert auf den Größen des Elektrons im Grundzustand des Wasserstoffatoms. Daraus ergeben sich für einige Naturkonstanten folgende einfache Zahlenwerte:

Die atomare Einheit der Masse entspricht der Masse m_e des Elektrons:

$$1 \text{ a.u.} = m_e = 9.1094 \cdot 10^{-31} \text{ kg}.$$

Die atomare Einheit des Drehimpulses:

$$1 \text{ a.u.} = \hbar = \frac{h}{2\pi} = 1.05 \cdot 10^{-34} \frac{\text{kg} \cdot \text{m}^2}{\text{s}}$$

Die atomare Einheit der Ladung entspricht der Ladung e des Elektrons:

$$1 \text{ a.u.} = e = 1.6022 \cdot 10^{-19} \text{ As}$$

Die atomare Einheit der Länge entspricht der ersten Bohrschen Bahn r_e im Wasserstoff:

$$1 \text{ a.u.} = r_e = 5.2918 \cdot 10^{-11} \text{ m}$$

Die atomare Einheit der Geschwindigkeit entspricht der Geschwindigkeit des Elektrons v_e auf der Bohrschen Atomhülle:

$$1 \text{ a.u.} = v_e = 2.1877 \cdot 10^6 \text{ m/s}$$

Weitere nützliche Umrechnungsfaktoren von SI-Einheiten zu atomaren Einheiten [a.u.] werden im Folgenden angegeben. Sie lassen sich aus den obigen Zusammenhängen ableiten:

Die atomare Einheit der Zeit:

$$1 \text{ a.u.} = 2.4189 \cdot 10^{-17} \text{ s}$$

Die atomare Einheit der Spannung:

$$1 \text{ a.u.} = 27.212 \text{ V}$$

Die atomare Einheit der Energie:

$$1 \text{ a.u.} = 4.36 \cdot 10^{-18} \text{ J}$$

Die atomare Einheit des Impulses:

$$1 \text{ a.u.} = 1.992798 \cdot 10^{-24} \text{ kg} \cdot \text{m/s}$$

Danksagung

Wenn ein Student, theoretisch durch die Vorlesungen gut vorbereitet auf die Physik, aber ohne experimentelle Erfahrung, in einer Arbeitsgruppe für Experimentalphysik anfängt, dann ist es ohne Hilfe Anderer sehr schwierig auf einem speziellen Gebiet der Physik eine experimentelle Arbeit wie diese hier durchzuführen.

Deswegen möchte ich mich hier nochmal bei allen bedanken, die mich bei meiner Diplomarbeit unterstützt haben.

Mein erstes Dankeschön geht an Professor Reinhard Dörner für die Aufnahme in seiner Arbeitsgruppe und für die großartige Möglichkeit, mein Experiment am Lawrence Berkeley National Laboratory durchzuführen. Außerdem danke ich ihm und Professor Horst Schmidt-Böcking dafür, dass sie es so gut verstehen, ihre Motivation und ihre Begeisterung für die Physik auf andere zu übertragen, und dafür, dass sie mir beigebracht haben, die Forschung in der Physik mit Spaß zu verbinden, auch wenn Manches nicht auf Anhieb klappt.

Danken möchte ich auch Thorsten Weber und Mike Prior, die mich während meines dreimonatigen Aufenthalts in Berkeley als ihre Mitarbeiterin aufgenommen haben. Dank ihrer Hilfe konnte ich dabei sehr viele praktische Erfahrungen für die Vorbereitung und den Aufbau des physikalischen Experimentes sammeln. Sie haben sich sehr viel Zeit für mich genommen und mir alles erklärt und gezeigt.

Da für das Experiment meiner Diplomarbeit an der Advanced Light Source in Berkeley nur zwei Wochen Strahlzeit zur Verfügung standen, war ein großes Team für den schnellen Auf- und Abbau sowie für die 24 Stunden Beobachtung des Experimentes während dieser zwei Wochen nötig. Für die tatkräftige Hilfe in dieser Zeit möchte ich Mike Prior, Thorsten Weber, Till Jahnke, Andre Staudte, Timor Osipov, Alan Landers, Ali Alnaser, C. Maharjan und P. Ranitovic danken.

Für alle Probleme, die während meiner Auswertung der experimentellen Daten aufkamen, sei es die Programmiersprache, andere Schwierigkeiten mit der "Computertechnik" oder Fragen zum physikalischen Verständnis, hatte ich eine sehr große Unterstützung. Dafür möchte ich besonders Till Jahnke danken. Er hat sich immer Zeit genommen, um mir geduldig alles beizubringen und zu erklären, was man für die Auswertung eines COLTRIMS-Experimentes eben so wissen muss.

Der ganzen Arbeitsgruppe des Instituts für Kernphysik möchte ich für die tolle Arbeitsatmosphäre danken. Ich habe mich sehr wohl gefühlt und hatte während meiner Zeit als Diplomandin in dieser Arbeitsgruppe viel Spaß.

Literaturverzeichnis

A

[Ach99]

M. Achler, Dissertation, „*Untersuchung von Symmetrieeffekten in der Photodoppelionisation von Helium bei zirkular polarisiertem Licht*“, (1999): Logos-Verlag Berlin, ISBN 3-89722-218-3, IKF D-687/ Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt am Main

B

[Bet90]

K. Bethge und G. Gruber, „*Physik der Atome und Moleküle*“, VCH-Verlagsgesellschaft Weinheim, (1990), ISBN 3-527-26933-9

C

[Cap98]

Dal Cappello et al, *Physical Review A*, **57**, Issue 2, (Feb. 1998)

[Coh66]

H.D. Cohen und U. Fano, *Phys. Rev.*, **150**, 30, (1966)

[Cul68]

K.E. McCulloh und H.M. Rosenstock, *J. Chem. Phys.*, **48**, Number 5, (März 1968)

D

[Dör98]

R. Dörner, H. Bräuning, O. Jagutzki, V. Mergel, M. Achler, R. Mooshammer, J.M. Feagin, T. Osipov, A. Bräuning-Demian, L. Spielberger, J.H. McGuire, M.H. Prior, M. Berrah, J.D. Bozek, C.L. Cocke und H. Schmidt-Böcking, *Phys. Rev Lett.*, **81**, (1998), S. 5776-5779

[Duj87]

G. Dujardin et al, *Phys. Rev. Lett.*, **35**, 5012-5019, (1987)

H

[Hak87]

H. Haken und H.C. Wolf, „*Atom- und Quantenphysik*“, Springer-Verlag Berlin, (1987, dritte Auflage), ISBN 3-540-17921-6

[Hak94]

H. Haken und H.C. Wolf, „*Molekülphysik und Quatenchemie*“, Springer-Verlag Berlin, (1994, zweite Auflage), ISBN 3-540-54269-8

[Hat04]

M. Hattaß, Dissertation, „*Koinzidenz-Spektroskopie an Oberflächen: Zwei-Elektronen-Photoemission von Cu(111)*“, (2004), IKF, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt am Main

[Hos03]

S. Hossain et al, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research section B – Beam Interactions with materials and atoms, 205: 484-487, (Mai 2003)

J

[Jah02]

Till Jahnke et al, *Phys. Rev. Let.*, **88**, Number 7, (Februar 2002)

[joe61]

[joensson](#) Aus dem Institut für angewandte Physik der Universität Tübingen; Zeitschrift für Physik – 161, S.: 454 – 474 (1961)

K

[Kap69]

I.G. Kaplan and A.P. Markin, *Doklady Akademii Nauk SSSR*, 184 (1): 66-& (1969)

[Kna00]

A. Knapp, Diplomarbeit, „*Heliumdoppelionisation durch Elektronenstoß: Aufbau einer (e,3e)-Apparatur*“, (2000), IKF D-716/ Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt am Main

[Kna02]

A. Knapp et al, *Phys. Rev. Let.*, **89**, Number 3, (Juli 2002)

[Kna02_1]

A. Knapp et al, *J. Phys. B.:At. Mol. Phys.*, **35**, (2002), L521-L526

[Kna05]

A. Knapp et al, *J. Phys. B.:At. Mol. Phys.* noch nicht veröffentlicht, aber akzeptiert.

[Kos89]

H. Kossmann et al, *Phys. Rev. Lett.*, **63**, 2040-2042, (1989)

[kov]

<http://www.guidobauersachs.de/allgemeine/KOVALENT.html>

L

[Lan04]

A. Landers et al, *Phys. Rev. A*, **70** (4), Art. No. 04702, (Okt. 2004)

[Lev84]

V.G. Levin et al, *J. Phys. B.At. Mol. Phys.*, **17** (8), 1525-1536, (1984)

M

[Mil88]

D.R. Miller, "Free Jet Sources" in *Atomic and Molecular Beam Methods*, Editor: G. Scoles, Oxford University Press, Oxford/ New York, (1988), S. 14ff

P

[Popov94]

Yu V Popov et al, *Journal of Physics B, At. Mol. Opt. Phys.*, **27**, (1994), 1599-1612

R

[Red97]

T.J. Reddish et al, *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 2438-2441, (1997)

[Red99]

T.J. Reddish und J.M. Feagin, *J. Phys. B.*, **32**, 2473-2486 (1999)

[Roe02]

Produktinformation der Firma Roentdek, „Delayline Anode for MCP-Readout, (2002), www.roentdek.de

S

[Schö02]

M. Schöffler, Diplomarbeit, "Entwicklung und Aufbau eines Abbildungssystems zur Messung von Elektronen jenseits niedriger Energien", (2002), IKF, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt am Main

[science]

science@home.de

[Sec02]

D.P. Seccombe et al, *J. Phys. B.*, **35**, 3767-3780, (2002)

[Shi95]

Shigemasa et al., *Phys. Rev. Lett.*, **74**, Number3, (Januar 1995)

[Sob88]

S.E. Sobottka und M.B. Williams, „Delay Line Readout of Microchannel Plates“, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **35**, (1988), S. 348

[Spi96]

L. Spielberger, Dissertation, „Erforschung von Korrelationseffekten in atomaren Mehrteilchensystemen: Doppel- und Einfachionisation von Helium induziert durch hochenergetische Photonen“, (1996), Shaker Verlag, ISBN 3-8265-2607-4, IKF D-640/ Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt am Main

[Sto87]

N. Stolterfoht et al., *Phys. Rev. Lett.*, **87**, 023201 (2001)

[Stö98]

Stöcker, *"Taschenbuch der Physik"*, Verlag Harri Deutsch, (1998, dritte Auflage), ISBN 3-8171-1556-3

T

[Toe77]

J.P. Toennies und K. Winkelmann, *J. Chem. Phys.*, **66**, (1977), S.3965

W

[Wal99]

M. Walter und J.S. Briggs, *J. Phys. B.*, **32**, 2487 (1999)

[Wal00]

M. Walter, Dissertation, „*Photo(doppel)ionisation von Helium und einfachen Molekülen*“, (2000), Fakultät der Physik der Albert-Ludwig-Universität Freiburg im Breisgau

[Web01]

T. Weber et al, *Journal of Physics B: At. Mol. Opt. Phys.*, **34**, (2001), 3669-3678

[Web03]

T. Weber, Dissertation, „*Untersuchung der verschränkten Bewegung freier Elektronenpaare emittiert aus Ein- und Zweizentren Coulomb-Potentialen in Photoabsorptionsprozessen*“, (2003), Johann Wolfgang Goethe-Universität in Frankfurt am Main

[Web04]

T. Weber et al, *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 163001-1-163001-4, (2004)

[Woo77]

R.M. Wood, A.K. Edwards, M.F. Steuer, *Phys. Rev. A*, **4**, (1977), S. 1433