

Transferionisation in schnellen D^+ - H_2 -Stößen

Markus Waitz

Master-Arbeit



Fachbereich Physik

Institut für Kernphysik

Mai 2011

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Vorangegangene Experimente	2
2	Physikalische Hintergründe	7
2.1	Das Stoßsystem	7
2.2	Quantenmechanische Theorie der Stoßprozesse	9
2.3	Klassisch-mechanische Theorie der Stoßprozesse	12
2.4	Theoretische Modelle	14
2.5	Das Wasserstoffmolekül	19
3	Das COLTRIMS-Experiment	27
3.1	Das Koordinatensystem	28
3.2	Das Gastarget	28
3.3	Das Vakuumsystem	30
3.4	Die Strahlführung	31
3.5	Das Spektrometer	31
3.6	Die Detektoren	33
3.7	Die Datenauslese	36
4	Auswertung der Messdaten	39
4.1	Analyse der Rohdaten	39
4.2	Unterdrückung von Untergrund	41
4.3	Berechnung und Eichung der Impulse	43
5	Diskussion der Ergebnisse	55
5.1	Experimentelle Auflösung	55
5.2	Die KER-Verteilung	57
5.3	Impuls- und Energieverteilungen	59
5.4	Winkelabhängigkeiten	64
5.5	Abhängigkeiten vom Kernabstand	69
6	Zusammenfassung und Ausblick	75
A	Atomare Einheiten	77
B	Experimentelle Parameter	79
	Literaturverzeichnis	81

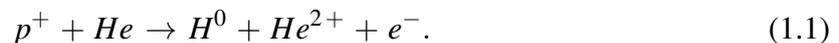
Abbildungsverzeichnis**85****Danksagung****91**

Kapitel 1

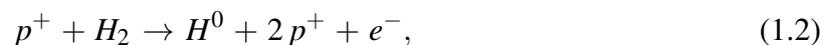
Einleitung

In der experimentellen Atomphysik haben sich im Laufe der Zeit drei Hauptarbeitsgebiete ausgebildet. Sie unterscheiden sich hauptsächlich in der Natur der Sonden, mit denen die Untersuchungen bewerkstelligt werden. In der Laser- und in der Synchrotronphysik werden photonische Projektile verwendet, um die zu erforschenden Reaktionen auszulösen, während bei Kollisionsexperimenten Atome und/ oder Moleküle in Stößen untereinander wechselwirken.

Das hier vorgestellte Experiment ist der letztgenannten Kategorie zuzuordnen. Es werden Stöße von Ionen mit kinetischen Energien im Bereich von einigen hundert keV mit Wasserstoffmolekülen untersucht. Im Fokus dieser Arbeit steht dabei die Transferionisation. Durch die Wechselwirkung mit dem Projektil werden bei diesem Prozess zwei Elektronen aus dem Targetatom oder -molekül entfernt. Im einfachsten atomaren Stoßsystem mit einem Proton als Projektil und einem Heliumatom als Target lautet die zugehörige Reaktionsgleichung



Für das einfachste molekulare Stoßsystem, in dem eine Transferionisation stattfinden kann, lautet die Reaktionsgleichung



erneut mit einem Proton als Projektil und einem H_2 -Molekül als Target. Eines der Targetelektronen verbleibt also nach der Reaktion im Kontinuum, das zweite wird in einen gebundenen Zustand im Projektil eingefangen. Aufgrund dieses Elektroneneinfangs kann die Transferionisation nur in Stößen mit ionischen Projektilen untersucht werden und ist mit anderen Herangehensweisen nicht zugänglich.

Ziel dieser Arbeit ist es, den Prozess der Transferionisation zum ersten Mal vollständig differentiell an einem Molekül zu untersuchen. Die Motivation hierzu ist die Folgende: Zum Einen zeigen bisherige Messungen zur Transferionisation an Atomen, dass dieser Prozess sehr sensitiv auf die elektronische Korrelation im Anfangszustand des Targets ist [Mer96, MDA⁺97, MDA⁺99, MDK⁺01, Sch02, SGW⁺05, Sch06, SMD⁺99, SMS⁺03, SMD⁺03a, SMD⁺03b, SSJ⁺05]. Zum Anderen haben Experimente zur Ionisation durch Photonen gezeigt, dass molekulare Photoionisation und insbesondere Zweielektroneneffekte sehr sensitiv auf die Orientierung und erstaunlicherweise auch auf den Abstand der Kerne im Molekül sind [WCJ⁺04,

VMRM05, JFT⁺04]. Vor diesem Hintergrund erscheint es besonders vielversprechend, die Transferionisation an H_2 -Molekülen sowohl in Abhängigkeit von der Molekülorientierung als auch vom Bindungsabstand zu untersuchen.

1.1 Vorangegangene Experimente

Der überwiegende Teil der bisher durchgeführten Experimente untersuchte die Transferionisation an atomaren Systemen. Definitionsgemäß ist ein Target mit mindestens zwei Elektronen nötig, um die Reaktion beobachten zu können. Somit stellt Helium das einfachste atomare System dar, in dem eine Transferionisation stattfinden kann.

Im Rahmen der ersten differentiellen Messungen auf dem Gebiet wurden die Emissionswinkelverteilung der freigesetzten Elektronen [PSCG89] und die Streuwinkelabhängigkeit der Reaktion ([HJN86], theoretische Behandlung in [GS91]) untersucht. Vollständig differentielle Messungen wurden mit der *COLTRIMS*-Messtechnik möglich. Die Experimente von Wu et al. [WWM⁺97] und Kambara et al. [KTA⁺95] untersuchten mit Hilfe dieser Technik die Impulsverteilung der Recoilionen bei der Transferionisation. Erste kinematisch vollständige Messungen folgten von Mergel et al. [Mer96, MDA⁺97, MDA⁺99, MDK⁺01] und Schöffler et al. [Sch02, SGW⁺05, Sch06]. Weitere Literatur zum Thema findet sich unter [SMD⁺99, SMS⁺03, SMD⁺03a, SMD⁺03b, SSJ⁺05].

Mergel et al. untersuchten in ihrer Messung die Transferionisation in Proton-Helium-Stößen im Energiebereich von 0,15 bis 1,4 MeV Projektilenergie. Mit der verwendeten *COLTRIMS*-Messtechnik konnten alle drei Teilchen im Endzustand kinematisch vollständig untersucht werden. Dabei wurden die Impulse des umgeladenen Projektils und des entstandenen Heliumions direkt gemessen und der Impuls des Elektrons mit Hilfe der Erhaltungssätze rechnerisch bestimmt.

Es gelang den Autoren, im Elektronen-Impulsraum den *Elektron-Elektron-Thomas-Prozess* von Zwei-Stufen-Prozessen zu trennen [Mer96]. Bei letzteren laufen Elektroneneinfang ins Projektil und Ionisation des Targets voneinander unabhängig ab, beim *Elektron-Elektron-Thomas-Prozess* wird durch zwei binäre Stöße zwischen Projektil und Targetelektronen eine Transferionisation herbeigeführt (zu den einzelnen Prozessen siehe Kapitel 2.4 - Theoretische Modelle). Ferner zeigen die gewonnenen Daten, dass ein Großteil der emittierten Elektronen in Rückwärtsrichtung freigesetzt wird [MDK⁺01]. Zu diesem Zeitpunkt gängige Theorien, die von unabhängigen Elektronen ausgehen, konnten diesen Befund nicht erklären. Vielmehr unterstützte das Ergebnis der Messung Thesen, die von einer Korrelation zwischen den beiden beteiligten Elektronen im Helium-Grundzustand ausgehen. Die Autoren selbst sprechen von korrelierter Transferionisation. Hierbei sind die beiden Elektronen und der Targetkern im Anfangszustand verschränkt. Wird nun das erste Elektron durch Einfang ins Projektil aus dem Target entfernt, werden gemäß dem *velocity matching*-Prinzip aus dem Compton-Profil des Target stets Elektronen mit vorwärts gerichteten Impulsen ausgewählt [MC70]. Dies bedingt in verschränkten Zuständen wiederum Impulse in Rückwärtsrichtung für das zweite Targetelektron, welches dann via *Shake-Off* entgegen der Projektilflugrichtung ins Kontinuum emittiert wird. Bei diesem Prozess kann sich die Wellenfunktion des nach dem Transfer im Target verbliebenen Elektrons nicht ausreichend schnell an den neuen, nun einfach positiv geladenen Eigenzustand des Ions anpassen. Es wird daher mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit ins Kontinuum „abgeschüttelt“ (engl. „to shake off“).

Als Perspektive für zukünftige Experimente wurde von den Autoren schließlich die Möglichkeit

aufgezeigt, die Korrelationen der Elektronen im Helium-Grundzustand anhand ihrer Impulsverteilung nach einer Transferionisation gezielt zu untersuchen. Dazu wurde auf eine zu diesem Zeitpunkt bereits geplante, „echte“ 3-Teilchen-Koinzidenzmessung verwiesen, bei der alle Reaktionsprodukte direkt gemessen werden sollten.

Diese Messung wurde einige Jahre später von Schöffler et al. durchgeführt. Sie untersuchten die Transferionisation in Stöße von Protonen und Heliumionen (He^+ und He^{2+}) mit Heliumatomen im Energiebereich von 40 bis $630\text{ keV}/u$ [Sch06, SGW⁺05]. Ebenfalls unter Zuhilfenahme der COLTRIMS-Messtechnik wurden in diesem Experiment alle Reaktionsprodukte mit 4π Raumwinkelakzeptanz vermessen. Primäres Ziel der Autoren war es, in der elektronischen Grundzustandswellenfunktion von Helium theoretisch vorhergesagte Beimischungen von höheren Drehimpulsen nachzuweisen. Großes Interesse galt dabei der Winkelverteilung des Elektrons, welches im Rahmen der Transferionisation ins Kontinuum gelangt. Zusätzlich zu den Mechanismen der Transferionisation können Anhand der Emissionsrichtung dieses Elektrons Aussagen über den Helium-Grundzustand gemacht werden.

Mit den von Mergel et al. gewonnenen Erkenntnissen wurde eine Messapparatur konstruiert, die die Impulsauflösung im günstigsten Fall um den Faktor 10 verbesserte und gleichzeitig einen größeren Impulsbereich vermessen konnte. Die so erzielten Ergebnisse zeigen schließlich die vorausgesagten Drehimpulsbeimischungen und beziffern sie auf $1 - 2\%$ [Sch06]. Die Daten zeigen außerdem bei allen Stoßsystemem und allen Projektilgeschwindigkeiten eine Stoßionisation des Targets, hervorgerufen durch eine Wechselwirkung des herausgeschlagenen Elektrons mit dem Projektil (*binary encounter*). Die vom Projektil aufs Elektron übertragene Energie ist hierbei so groß, dass die Bindung desselben an den Kern überwunden werden und das Elektron ins Kontinuum gelangen kann. Um die Daten besser erklären zu können, wurde das *binary encounter*-Modell etwas erweitert: Unter der Annahme, dass das zu ionisierende Elektron die gesamte Energiebilanz ausgleichen, also neben den Bindungsenergien beider Elektronen auch die zur Beschleunigung des einzufangenden Elektrons nötige Energie bereitstellen muss, konnte eine bessere Übereinstimmung mit den Ergebnissen der Messung erzielt werden.

Außerdem wurde insbesondere für die höheren Projektilgeschwindigkeiten (als Grenzwert geben die Autoren $v \geq 3\text{ a.u.}$ an), gleichbedeutend mit einem sehr schnellen Elektroneneinfang ins Projektil, ein großer Anteil an *Shake-Off*-Elektronen gemessen. Die Impulse dieser *Shake-Off*-Elektronen sind, im Einklang mit den Ergebnissen von Mergel et al. fünf Jahre zuvor, in Rückwärtsrichtung orientiert, werden also in die dem Projektilstrahl entgegengesetzte Richtung freigesetzt. Abbildung 1.1 zeigt die von Schöffler et al. gemessene Elektronen-Impulsverteilung für 150 keV Protonen in der Streuebene. Die Projektile werden in dieser Darstellung aus negativer z -Richtung kommend jeweils nach rechts gestreut. Deutlich zu erkennen sind die *binary encounter*-Elektronen, die in Vorwärtsrichtung, also zu positiven z -Impulsen hin emittiert werden. Von dieser Verteilung klar separiert erscheinen die Elektronen, die aus *Shake-Off*-Prozessen stammen. Diese werden mit negativen z -Impulsen entgegen der Projektilstrahlrichtung freigesetzt.

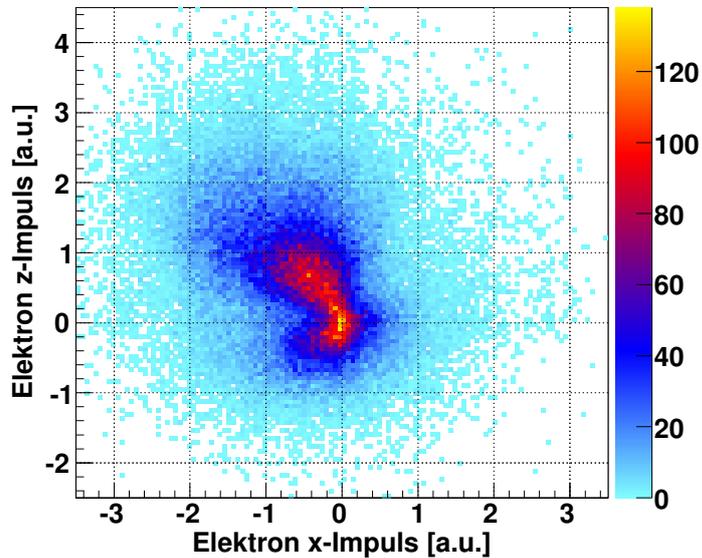


Abbildung 1.1: Von Schöffler et al. gemessene Elektronen-Impulsverteilung in der Streuebene; Projektilen jeweils nach rechts gestreut. Das betrachtete Stoßsystem ist $150\text{ keV } p^+ + He$. Klar voneinander getrennt die Elektronen aus den *binary encounter*- (links oben bei positiven z -Impulsen) und *Shake-Off*-Ereignissen (links unten, negative z -Impulse).

Mit der in dieser Arbeit beschriebenen Messung soll nun der Frage nachgegangen werden, welche Prozesse bei der Transferionisation nach dem Übergang zu molekularen Targets eine Rolle spielen. Es wäre zu diesem Zweck wünschenswert, die Elektronen-Impulsverteilung zu bestimmen und mit der von Schöffler et al. gemessenen zu vergleichen. Aus der Zusammensetzung dieser Verteilung erwartet man sich erneut vielfältige Informationen über die Geschehnisse während der Reaktion.

Neben dem Vergleich mit den Ergebnissen von Schöffler et al., die im selben Projektilenergie- und Störungsbereich gemessen wurden wie die hier präsentierten Daten, ist der Schritt zu höheren Projektilenergien und größeren Störungen interessant. In einer kinematisch vollständigen Messung zur Doppelionisation von Helium und Neon durch schnelle, hochgeladene Ionen ($3,6\text{ MeV}/u\text{ Se}^{28+}$) konnten Moshhammer et al. [MUK⁺96] zeigen, dass beide Elektronen im Rahmen eines *TS2*-Prozesses weitgehend unabhängig voneinander mit dem Projektil interagieren und nach Absorption eines virtuellen Photons ins Kontinuum gelangen. Die Stoßzeiten waren dabei extrem kurz, die Projektilgeschwindigkeit betrug etwa 12 a.u. , die Störung rund $2,3$). Im Gegensatz zur Transferionisation traten hier also nahezu ausschließlich vorwärts gerichtete Elektronenimpulse auf.

Neben diesen Aspekten ist der Hauptgedanke hinter dem Experiment, die Auswirkungen der zusätzlichen Freiheitsgrade im Vergleich zu atomaren Targets zu erkunden. Außer den Rotations- und Schwingungszuständen, die beim Übergang von Atomen zu Molekülen eine Rolle spielen können, wird insbesondere im Hinblick auf den Einfluss des Kernabstands das Auftreten interessanter Effekte vermutet.

Gestützt wird diese Annahme durch die Ergebnisse einer Photoionisationsmessung von Weber et al. aus dem Jahre 2004 [WCJ⁺04]. Die Autoren untersuchten dabei den Aufbruch eines Deuteriummoleküls in zwei Deuteronen (D^+) und zwei Elektronen nach erfolgter Absorption eines Photons. Für vorgegebene Teilchenmassen und -ladungen ist der einzige freie Parameter in der Coulombkraft der Abstand der beiden Wechselwirkungspartner. Wird also wie in diesem Versuch ein Molekül vollständig ionisiert, hängt die Bewegung der Kerne nur noch von deren Abstand ab. Die Energie, die die beiden Ionen bei der Abstoßung aufnehmen, wird *Kinetic Energy Release* genannt (kurz KER, siehe auch Kapitel 5.2 - Die KER-Verteilung) und spiegelt die Projektion der Kernwellenfunktion auf das Kernpotential wider.

Der KER gewährt dem Experimentator Zugang zum Kernabstand, denn dieser ist selbst keine Observable. Es besteht die Möglichkeit, durch Auswählen verschiedener KER-Intervalle unterschiedliche Kernabstände zu selektieren. Mit dieser Methode konnten die Autoren zeigen, dass die Emissionswinkelverteilung der beiden Elektronen stark abhängig ist vom Abstand der beiden Deuteronen zum Zeitpunkt der Ionisation. Weil sämtliches Verhalten von Elektronen und Kernen im Molekül durch die entsprechenden Wellenfunktionen bestimmt wird, erlaubt es dieser unerwartete Befund, Rückschlüsse auf die Wellenfunktion des Anfangszustands zu ziehen.

Unbeantwortet lassen musste das Experiment von Weber et al. systembedingt allerdings die Frage, ob die beobachteten Effekte möglicherweise in unterschiedlicher Energieaufteilung zwischen den Bewegungen von Elektronen und Kernen begründet sind. Das Photon muss in der Reaktion sowohl die Energie für die Elektronen- als auch die für die Kernbewegung bereitstellen. Wird wie in dieser Messung die Photonenenergie konstant gehalten, steht bei unterschiedlichem Kernabstand und somit verschiedenem KER den Elektronen also jeweils ein anderer Energiebetrag zur Verfügung. Betrachtet man die Kernabstände an den klassischen Wendepunkten der Vibrationswellenfunktion, beträgt dieser Unterschied in der Elektronenenergie etwa ein Fünftel des nominellen Werts.

In ihrer Veröffentlichung aus dem Jahre 2005 bestätigten Vanroose et al. anhand einer theoretischen Betrachtung der Photodoppelionisation von H_2 , dass die im Experiment beobachteten Effekte tatsächlich auf Korrelationen zwischen den Elektronen zurückzuführen sind [VMRM05]. Die Autoren ermittelten dazu numerisch die entsprechenden differentiellen Wirkungsquerschnitte. Die Winkelverteilungen wurden dabei für verschiedene Kernabstände berechnet, die Photonenenergie aber jeweils so angepasst, dass die beiden Elektronen in der Summe immer $24,5 eV$ zur Verfügung haben. Die Ergebnisse stimmen sehr gut mit den Befunden aus den Messungen von Weber et al. überein. Deren Daten zeigen also tatsächlich Korrelationen zwischen Elektronen, die nur in molekularen Systemen auftreten.

In einem weiteren Experiment zum Thema gelangten Reddish et al. zu ähnlichen Ergebnissen. Untersucht wurde wiederum die Photodoppelionisation von H_2 , die Photonenenergie lag rund $25 eV$ über der Schwelle. Erneut zeigt die Winkelverteilung der emittierten Elektronen eine deutliche Abhängigkeit vom Abstand der beiden Protonen [RCB⁺08].

Die Autoren stellten in ihrer Veröffentlichung neben diesen experimentellen Ergebnissen auch eine zeitabhängige Gekoppelte-Kanäle-Rechnung vor. Diese enthält alle für Ein-Photonen-Übergänge erlaubten Endzustände Σ mit magnetischer Quantenzahl $M = 0$ und Π mit $M = \pm 1$. Für jede mögliche magnetische Quantenzahl M des Endzustands wurde eine Übergangsamplitude berechnet und diese entsprechend der Molekülorientierung kohärent aufsummiert. Der differentielle Wirkungsquerschnitt ist dann das Quadrat dieser Summe.

Im Rahmen der beschriebenen Berechnung war es den Autoren auch möglich, das Verhalten der Π - und Σ -Beiträge sowie der entstehenden Mischterme in Bezug auf den Kernabstand im

Molekül aufzulösen. Dabei zeigte sich, dass der Π -Anteil monoton mit dem Kernabstand abfällt, während der Σ -Beitrag ein Minimum nahe dem Gleichgewichts-Kernabstand besitzt. Ein vergleichbares Verhalten war schon für die Photoionisation des H_2^+ -Moleküls bekannt. Auch die Drehimpulszusammensetzung der Endzustände wurde diskutiert. Während in der Π -Amplitude vornehmlich niedrige Drehimpulse auftreten, sind in der Σ -Amplitude höhere Drehimpulsbeiträge essentiell. Als Konsequenz daraus sind die besonders abstandssensitiven Σ -Zustände eher entlang der Molekülachse orientiert. Reddish et al. konnten nun zeigen, dass die Abhängigkeit der Σ -Anteile und dabei vor allem der dadurch in den Mischtermen induzierte Vorzeichenwechsel für die dramatischen Änderungen in der Elektronenwinkelverteilung verantwortlich ist.

Im Rahmen dieser Arbeit soll für den Fall eines molekularen Targets untersucht werden, ob sich hier ähnliche Effekte in der Elektronen-Winkelverteilung bemerkbar machen. Dabei fiel die Wahl auf H_2 , das einfachste existierende Molekül mit zwei Elektronen. Neben der bereits erwähnten Frage nach den der Transferionisation zu Grunde liegenden Prozessen ist dies der Hauptgegenstand dieser Ausarbeitung. Im nächsten Kapitel wird nun zunächst allgemein in Ion-Atom- und Ion-Molekülstöße eingeführt und eine Auswahl an physikalisch-theoretischen Erklärungsansätzen aufgezeigt, die bei der Beschreibung der Transferionisation zur Anwendung kommen können. Anschließend werden der zur Messung genutzte experimentelle Aufbau, das *COLTRIMS*-Messprinzip und die Datenverarbeitung beschrieben. Darüberhinaus werden die Auswertungsmethoden dargestellt, wobei auch eingegangen wird auf die mathematischen Zusammenhänge im Rahmen der Impulsrekonstruktion der nachgewiesenen Teilchen. Abschließend werden die erzielten Ergebnisse präsentiert und diskutiert. Im Anhang wird außerdem ein kurzer Überblick über atomare Einheiten vermittelt, dem in der Atom- und Molekülphysik überwiegend verwendeten Einheitensystem. Ferner werden wichtige experimentelle Parameter aufgeführt.

Kapitel 2

Physikalische Hintergründe

Bei Stößen zwischen einem Ion und einem neutralen Atom oder Molekül können verschiedene Reaktionen ablaufen. Die Reaktionsteilnehmer können elektronisch angeregt werden, Elektronen können aus gebundenen Zuständen herausgelöst oder in gebundene Zustände anderer Teilchen eingefangen werden. In diesem Kapitel sollen die gängigsten Modelle beschrieben werden, die den Ablauf solcher Reaktionen erklären können. Es werden sowohl klassisch-mechanische wie auch quantenmechanische Theorien vorgestellt.

Bei der Transferionisation geht die Ionisation des Targets einher mit dem Einfang eines zweiten Targetelektrons in einen gebundenen Projektilezustand. Die meisten Theorien stellen das dennoch nicht als einen einzelnen Vorgang dar, sondern beschreiben die Reaktion durch zwei voneinander weitgehend unabhängige Prozesse, einem Einfachelektroneneinfang plus zusätzlicher Targetionisation. Einheitliche Erklärungsansätze dafür sind selten, und die Frage nach dem „richtigen“ Modell ist, auch aufgrund von zum Teil großen Diskrepanzen zwischen Theorie und Experiment, nach wie vor umstritten.

Bevor diese Theorien jedoch im Einzelnen vorgestellt werden, soll zuerst auf das untersuchte Stoßsystem eingegangen werden.

2.1 Das Stoßsystem

2.1.1 Reaktionen in Ion-Atom- und Ion-Molekül-Stößen

Ausgangspunkt der folgenden Beschreibungen ist jeweils ein n -fach positiv geladenes Projektil p^{n+} sowie ein neutrales Targetatom oder -molekül, im Folgenden der Einfachheit halber schlicht als Target t bezeichnet.

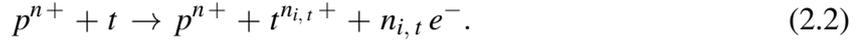
Werden im Laufe des Stoßprozesses ausschließlich ein oder beide Reaktionspartner angeregt, so führt dies nicht zu einer Änderung ihres Ladungszustandes und es ist



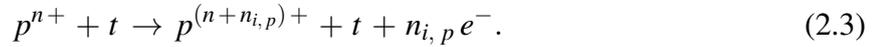
Die Reaktionsprodukte können deshalb mit den zur Verfügung stehenden Mitteln nicht unterschieden werden von Teilchen, die überhaupt nicht an einer Reaktion teilgenommen haben. Ein

Teilchennachweis und damit eine Untersuchung ihrer Eigenschaften ist mit dem hier verwendeten Messaufbau nicht möglich.

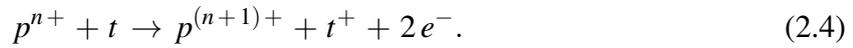
Bei der Ionisation des Targets werden ein oder mehrere Elektronen aus gebundenen Zuständen des Targets herausgeschlagen und gelangen in einen Kontinuumszustand. Werden $n_{i,t}$ Elektronen herausgelöst, so ist das Target nach der Reaktion $n_{i,t}$ -fach positiv geladen. Als Reaktionsgleichung formuliert erhält man



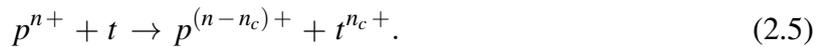
Umgekehrt kann auch das Projektil in der Reaktion Elektronen verlieren. Entsprechend der Zahl $n_{i,p}$ der Elektronen, die das Projektil dabei verlassen, erhöht sich sein Ladungszustand. Findet im Target keine Ionisation statt, bleibt es neutral und man kann schreiben



Auch die gleichzeitige Ionisation von Projektil und Target ist möglich. Beim so genannten *electron loss* verlieren beide jeweils ein Elektron. Demnach erhöht sich ihr Ladungszustand jeweils um eins und zwei Elektronen gelangen ins Kontinuum,



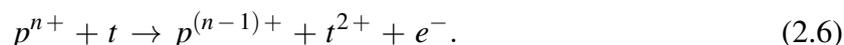
Aus gebundenen Targetzuständen herausgelösten Elektronen müssen aber nicht zwangsweise ins Kontinuum gelangen. Beim Einfachelektroneneinfang (engl. *single capture*) wird ein Targetelektron in einen gebundenen Zustand des Projektilions transferiert. Geschieht dies mit n_c Elektronen, so spricht man vom n_c -fachen Elektroneneinfang beziehungsweise *-capture* und schreibt



Der Elektroneneinfang ist also ein Prozess, der ausschließlich in Ion-Atom- oder Ion-Molekül-Stoßsystemen beobachtet werden kann. Das Einfangen von Elektronen ins Projektil ist in Synchrotron- und Laserexperimenten mit photonischen Projektilen genauso wenig realisierbar wie in Stößen mit neutralen atomaren oder molekularen Projektilen.

Eine derart strikte Trennung, wie sie hier bei der Beschreibung der Prozesse vorgenommen wurde, wird in der Realität nicht immer praktikabel sein. Einige Prozesse sind Kombinationen aus zwei oder mehr der oben genannten Vorgänge. Sehr häufig geht beispielsweise die Ionisation eines Stoßpartners mit einer zusätzlichen elektronischen Anregung einher. Ebenfalls gängig ist der Elektroneneinfang in angeregte Projektilzustände.

Auch die Transferionisation kann in zwei Teilschritten verstanden werden. Es werden insgesamt zwei Elektronen aus gebundenen Zuständen des Targetteilchens entfernt. Eines dieser Elektronen wird in einen gebundenen Zustand des Projektilions transferiert, das zweite Elektron gelangt in einen Kontinuumszustand. Somit stellt die Transferionisation eine Kombination aus einem Einfachelektroneneinfang und einer Einfachionisation des Targets dar. Die zugehörige Reaktionsgleichung lautet



Nach der Vorstellung der elementaren Stoßreaktionen soll nun auf die konkrete Einordnung des untersuchten Prozesses eingegangen werden.

2.1.2 Einordnung des Stoßsystems

Es ist üblich, Ion-Atom- und Ion-Molekül-Stöße nach der Geschwindigkeit des Projektils zu klassifizieren. Dabei wird die Geschwindigkeit des Projektils v_p verglichen mit der Orbitalgeschwindigkeit, die das Elektron dem Bohrschen Atommodell entsprechend besitzt. Ist das Projektil deutlich langsamer, liegt demzufolge ein „langsamer“ Stoß vor, bei deutlich höherer Projektilgeschwindigkeit wird hingegen von „schnellen“ Stößen gesprochen. Im vorliegenden Fall besitzt das Projektil, ein D^+ -Ion der Masse $m_p = 2 \cdot 1836 a.u.$ mit $E_{kin} = 300 keV$ kinetischer Energie, eine Geschwindigkeit von etwa

$$v = \sqrt{\frac{2E_{kin}}{2m_p}} \approx 2,45 a.u.. \quad (2.7)$$

Die Projektilionen sind somit deutlich schneller als das Elektron im Wasserstoff-Grundzustand ($v = 1 a.u.$), es handelt sich um schnelle Stöße.

Weiterhin sehr wichtig für die Klassifikation der Wechselwirkung ist die Stärke der Störung, die das einfliegende Projektil für das Target darstellt. Ein Maß hierfür ist der Quotient aus der Ladung q des Projektils und seiner Geschwindigkeit v_p ,

$$\eta = \frac{q}{v_p}. \quad (2.8)$$

Mit den im vorliegenden Fall verwendeten Deuteronen (D^+ -Ionen) mit Ladung $q = 1$ und der oben schon berechneten Projektilgeschwindigkeit erhält man $\eta \approx 0,4 \ll 1$. Das Projektil stellt also nur eine kleine Störung im System dar.

2.2 Quantenmechanische Theorie der Stoßprozesse

Nach der Vorstellung aller prinzipiell möglichen Reaktionen sowie der Einordnung des vorliegenden Prozesses als ein schneller Stoß mit kleiner Störung wird nun ein kurzer Überblick darüber gegeben, welche theoretischen Modelle auf diesem Fall anwendbar sind.

Als erstes soll dabei geklärt werden, welche quantenmechanischen Rechenmethoden prinzipiell geeignet sind, um Ion-Atom- oder Ion-Molekül-Stöße zu erklären. Der Abriss ist dabei recht allgemein gehalten und hat nicht unbedingt den Spezialfall der Transferionisation als Grundlage. Dennoch ist die Auswahl weitestgehend auf diejenigen Modelle beschränkt, die im vorliegenden Fall Gültigkeit besitzen. Ziel ist es, die Idee hinter dem jeweiligen Verfahren zu vermitteln. Für das Klären einzelner spezieller Sachverhalte wird an entsprechenden Stellen auf die Literatur verwiesen.

2.2.1 Störungstheoretische Beschreibung und Bornsche Näherung

Grundidee der Störungstheorie ist, die Wechselwirkung zwischen Projektil und Target als Interaktion des einlaufenden Teilchens mit dem vom Target generierten Potential zu erfassen. Die Wellenfunktion des Endzustands wird dabei in Potenzen des Wechselwirkungspotentials entwickelt. Ist die Störung durch das einlaufende Projektil klein (als Maß gilt wieder der Quotient aus Projektilladung und -geschwindigkeit $\eta \ll 1$), so konvergiert diese Reihe und Terme höherer Potenzen stellen nur noch geringfügige Korrekturen dar. Es lässt sich dann oft schon in erster Ordnung (*First Born Approximation*, kurz *FBA*) eine gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment herstellen. Aufgrund der Ähnlichkeit der zu Grunde liegenden Experimente orientiert sich die weitere Beschreibung dabei an der in [Web99] und [Sch06] gezeigten.

Das Gesamtsystem wird vor dem Stoß durch die Schrödingergleichung

$$H |\psi_i\rangle = E |\psi_i\rangle \quad (2.9)$$

beschrieben. Eine exakte Lösung dafür kann für die gängigen Stoßsysteme in der Regel nicht gefunden werden, weshalb man den Hamiltonoperator des Systems gemäß

$$H = H_0 + V. \quad (2.10)$$

zerlegt. Dabei müssen die Eigenwerte zu H_0 , dem Hamiltonoperator des ungestörten Targets, bekannt sein. In V manifestiert sich das durch das Projektil verursachte Störpotential.

Anschaulich gesprochen geht das Target durch die Wechselwirkung vom Anfangszustand $|\phi_i\rangle$ in den das Projektil mit einschließenden, zeitabhängigen Zustand $|\psi_i(t)\rangle$ über. Dieser ist aufgrund der einsetzenden Projektil-Target-Wechselwirkung nicht mehr Eigenzustand des ungestörten Target-Hamiltonoperators H_0 , sondern Eigenzustand des Hamiltonoperators des Gesamtsystems H . Der Endzustand des Gesamtsystems $|\psi_f\rangle$ ergibt sich aus $\lim_{t \rightarrow \infty} |\psi_i(t)\rangle$. Der für Vergleiche zwischen Theorie und Experiment bedeutsame Wirkungsquerschnitt σ dieser Reaktion ist dann proportional zum Quadrat des Übergangsmatrixelements $A_{i,f}$,

$$\sigma \propto A_{i,f}^2 = \lim_{t \rightarrow \infty} \langle \phi_f | \psi_i(t) \rangle^2 = -2\pi i T_{i,f} \delta(E_f - E_i). \quad (2.11)$$

Für die Transfermatrix $T_{i,f}$ gilt dabei

$$T_{i,f} = \langle \phi_f | V | \psi_i^a \rangle \quad (2.12)$$

mit der Störung V , dem Target-Endzustand $|\phi_f\rangle$ und dem Target und Projektil umfassenden Anfangszustand $|\psi_i^a\rangle$. Letzterer muss hierbei die Randbedingungen der auslaufenden Welle erfüllen, man spricht von der so genannten *post*-Form. Wird $T_{i,f}$ auf Basis der einlaufenden Wellen formuliert, die so genannte *prior*-Form, gilt

$$T_{i,f} = \langle \psi_i^e | V | \phi_i \rangle. \quad (2.13)$$

Das Störpotential V kann angegeben werden als

$$V = \frac{Z_p Z_t}{R} - \sum_j \frac{Z_p}{|\vec{r}_p - \vec{r}_{e,j}|} \quad (2.14)$$

mit der Kernladung von Projektil Z_p und Target Z_t sowie den Ortsvektoren \vec{r}_p des Projektils und $\vec{r}_{e,j}$ der Elektronen.

Um die Wellenfunktion $|\psi_i^{a,e}\rangle$ zu bestimmen, bedient man sich der *Lippman-Schwinger-Gleichung*

$$|\psi_i^{a,e}\rangle = |\phi\rangle + G^{a,e} V |\psi_i^{a,e}\rangle \quad (2.15)$$

mit der so genannten *freien Greenschen Funktion*

$$G^{a,e} = \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \frac{1}{E - H_0 \pm i\varepsilon}. \quad (2.16)$$

Der Term $i\varepsilon$ im Nenner wird für den auslaufenden Zustand $|\psi_i^a\rangle$ addiert, für den einlaufenden $|\psi_i^e\rangle$ von der Energiedifferenz subtrahiert. Für den Zustand des ungestörten Systems lässt sich schreiben

$$|\phi\rangle = 2\pi^{-3/2} \cdot e^{i\vec{p}_p \cdot \vec{r}_p} |\varphi\rangle \quad (2.17)$$

mit dem Targetelektronenzustand $|\varphi\rangle$ und dem Orts- bzw. Impulsvektor des Projektils \vec{r}_p und \vec{p}_p . Der gesuchte Zustand $|\psi_i^{a,e}\rangle$ des Gesamtsystems aus Projektil und Target wird dann durch die *Bornsche Reihe*

$$|\psi_i^{a,e}\rangle = |\phi\rangle + G^{a,e} V |\phi\rangle + G^{a,e} V G^{a,e} V |\phi\rangle + G^{a,e} V G^{a,e} V G^{a,e} V |\phi\rangle + \dots \quad (2.18)$$

approximiert. Die Zahl der Störpotential-Operatoren V pro Term kann dabei interpretiert werden als die Anzahl der während der Wechselwirkung ausgetauschten virtuellen Photonen und damit gewissermaßen als Anzahl der Wechselwirkungen. So kann beispielsweise in der ersten Näherung nur die direkte Wechselwirkung zwischen Projektil und Target ausgedrückt, also Prozesse wie Einfachionisation oder Einfachelektroneneinfang beschrieben werden. In zweiter Ordnung sind zusätzliche Wechselwirkungen, beispielsweise Elektron-Kern-Interaktion, und damit auch die Besetzung von Zwischenzustände berücksichtigt. Allgemein ist die Übereinstimmung in niedrigen Ordnungen (typischerweise werden nur der erste oder nur die ersten beiden Terme berücksichtigt) umso besser, je kleiner die Störung q/v_p ist.

2.2.2 Rechnung mit gestörten Wellen

In der Bornschen Näherung sind Anfangs- und Endzustände der Teilchen ungestört, d. h. insbesondere die Auswirkung der langreichweitigen Coulombkraft auf die Teilchen vor und nach der Wechselwirkung bleibt unberücksichtigt. Das ändert sich mit dem Übergang zur Rechnung mit gestörten Wellen, meist in Übereinstimmung mit dem Englischen als *Distorted Wave* Rechnungen bezeichnet. Diese Methode kann gewissermaßen als bedarfsweise Verfeinerung der Bornschen Störungsrechnung angesehen werden und soll im Folgenden kurz umrissen werden.

Im Grundprinzip ähnlich der Entwicklung der Bornschen Reihe wird hier das Wechselwirkungspotential aufgespalten in einen Anteil W , der die eigentliche Störung durch die Wechselwirkung beschreibt, und einen Anteil U , der die ein- und auslaufenden Wellen in Anfangs- beziehungsweise Endzustand beeinflusst,

$$H = H_0 + U + W. \quad (2.19)$$

Es wird nun entweder das Störpotential vorgegeben und daraus die gestörten Zustände abgeleitet oder aber direkt mit diesen gestartet und das Störpotential im Rahmen der Berechnungen bestimmt. Je nach Art und Weise, in der die Störung in die Anfangs- und Endzustände einbezogen wird, kann man die *Distorted Wave* Rechnungen weiter unterteilen. *Continuum Distorted Wave* Rechnungen beschreiben den Einfluss des Wechselwirkungspotentials mit einer Coulombwelle, während beim Rechnen mit Eikonalphasen (*Eikonal Distorted Wave*) die Auswirkung des Störpotentials auf die Anfangs- und Endzustände vornehmlich auf den Raumbereich um den Wechselwirkungspunkt beschränkt wird. Man endet hier wie dort mit einem reihenentwickelten Ausdruck für die Transfermatrix, aus dem letztendlich der Wirkungsquerschnitt der Reaktion ermittelt werden kann.

Allen störungstheoretischen Methoden ist gemein, dass sie targetinterne Elektron-Elektron-Wechselwirkungen nur mittels effektiver Potentiale wiedergeben können. Dieser Umstand ist umso problematischer, je kleiner die Störung durch das Projektil ist. Prozesse wie die Transferionisation werden durch Wahrscheinlichkeitsprodukte zweier unabhängiger Prozesse beschrieben, also Einfachelektroneneinfang und Einfachionisation. Die Komplexität dieser Rechnung steigt enorm mit der Zahl der beteiligten Teilchen, die Darstellung der Transferionisation am Wasserstoffmolekül, dem einfachsten aller in Frage kommenden molekularen Stoßsysteme, bedingt bereits die Berechnung eines Vier-Teilchen-Kontinuums.

2.3 Klassisch-mechanische Theorie der Stoßprozesse

Neben den vorgestellten quantenmechanischen Ansätzen gibt es auch Rechenmodelle, die Reaktionen in Ion-Atom- und Ion-Molekülstößen mit Hilfe klassischer Mechanik und Elektrodynamik erklären. Besonders geeignet zur Beschreibung des behandelten Stoßsystems sind *CTMC*-Rechnungen, in deren grundlegende Vorgehensweise hier ein Einblick vermittelt werden soll. Wiederum gilt dabei das Augenmerk nicht zwangsläufig dem Spezialfall der Transferionisation.

2.3.1 Classical Trajectory Monte Carlo Rechnungen

Diese ab den 60er Jahren praktizierte klassische Beschreibung von Ion-Atom- und Ion-Molekülstößen versucht, solche Reaktionen auf Basis von elektrodynamischen und kinematischen Überlegungen zu verstehen. Im Rahmen von *Monte-Carlo-Simulationen* wird darauf aufbauend die Wechselwirkung zwischen Projektil und Target simuliert. Dabei werden Anfangsbedingungen wie Stoßparameter oder Startimpuls stets zufällig ausgewählt und damit die klassischen Bewegungsgleichungen gelöst [AP66].

Das Target selbst wird als Atom oder Molekül mit sich auf klassischen Ellipsenbahnen bewegendenden Elektronen dargestellt. Der aufwendigste Teil ist hier die Formulierung der Elektron-Orts- und Impulsverteilungen. Es muss eine Übereinstimmung mit anderen, aus Experimenten oder Theorien bekannten Verteilungen sichergestellt werden. Die Schwierigkeit besteht darin, dass quantenmechanische Symmetrien oder Quantisierungen in der klassischen Beschreibung nicht wiederzugeben sind. Zusätzlich muss der präparierte Anfangszustand zeitunabhängig sein, da sonst der Startzeitpunkt der Reaktion deren Ausgang beeinflussen würde.

Ein mikrokanonisches Ensemble beschreibt jedes Targetelektrons über die zur Verfügung stehenden sechs Phasenraumkoordinaten. So können beispielsweise die Bindungsenergie des Elektrons, die Exzentrizität seiner Ellipsenbahn, die drei Drehwinkel dieser Bahn im Raum sowie das Zeitintervall, in dem es auf seine Bahn startet, als Koordinaten herangezogen werden. Es gilt dann, die hamiltonschen Bewegungsgleichungen zu lösen,

$$\dot{q}_i = \frac{\partial H}{\partial p_i} \text{ und } \dot{p}_i = -\frac{\partial H}{\partial q_i}. \quad (2.20)$$

Die Hamiltonfunktion hat dabei die Gestalt

$$H = \frac{p_p^2}{2m_p} + \frac{p_t^2}{2m_t} + \frac{Z_p Z_t}{r_{p-t}} + \sum_i \frac{p_{e,i}^2}{2m_{e,i}} + \frac{Z_p Z_{e,i}}{r_{p-e,i}} + \frac{Z_t Z_{e,i}}{r_{t-e,i}} \quad (2.21)$$

mit den kinetischen Energien von Projektil (Index p), Target (Index t) und Elektronen i (Index e, i) sowie den entsprechenden Termen für Coulombanziehung beziehungsweise -abstoßung.

Obwohl auch hier teilweise Näherungen angewandt werden müssen, stimmen die erzielten Ergebnisse insbesondere für Mehrteilchenprozesse gut mit experimentellen Daten überein. Es ist leicht möglich, auch mehrfach differentielle Wirkungsquerschnitte zu berechnen [BB71, SF87]. Die wechselseitige Beeinflussung zwischen den geladenen Teilchen vor und nach der Kollision wird automatisch mit erfasst.

Diskrepanzen können meist auf nicht zu berücksichtigende quantenmechanische Effekte (beispielsweise das Pauli-Prinzip) oder Unzulänglichkeiten in der Konstruktion des Anfangszustandes zurückgeführt werden. So kann eine Wechselwirkung der Elektronen untereinander oft nur über ein effektives Kernpotential eingebunden werden.

2.4 Theoretische Modelle

Neben den oben beschriebenen klassisch- und quantenmechanisch-theoretischen Rechenmethoden existieren ferner konkrete Modelle, die den Ablauf eines Elektroneneinfangs in das Projektil beziehungsweise die Ionisation des Targets recht anschaulich erklären. In diesem Unterkapitel soll das Augenmerk auf solchen klassischen oder quantenmechanischen Modellvorstellungen liegen, wobei die Aufzählung nicht vollständig ist.

2.4.1 Der Thomas-Prozess

Der Thomas-Prozess ist sicher einer der ältesten Ansätze zur Beschreibung des Einfahelektroneneinfangs (*single capture*) in ein Ion [Tho27]. Auf Basis rein kinematischer Betrachtungen erklärt dieses Modell, wie durch Stöße der beteiligten Teilchen (Projektil einerseits sowie Elektronen und Kern des Targets auf der anderen Seite) eine Situation erzeugt wird, die einen Transfer eines Targetelektrons in einen gebundenen Zustand des Projektilions wahrscheinlich macht. Der Name Thomas-Prozess vereint dabei zwei deutlich abgrenzbare Teilprozesse, die zu unterschiedlichen Endzuständen der Partizipanten führen: Finden die angesprochenen Stöße ausschließlich zwischen Projektil und Target-Elektronen statt, so spricht man vom *Elektron-Elektron-Thomas-Prozess* (oft nur *EET*). Nimmt hingegen auch der Kern eines Targetteilchens an den Kollisionen teil, spricht man demzufolge vom *Elektron-Kern-Thomas-Prozess*, kurz *NET* (vom Englischen *Nucleus Electron Thomas process*).

Zu erwähnen ist, dass der Thomas Prozess erst bei höheren Projektilenergien (ab etwa $1 \text{ MeV}/u$) wesentlich zum Wirkungsquerschnitt der Reaktion beiträgt und daher im hier vermessenen Energiebereich nur eine untergeordnete Rolle spielt. Dabei fällt die Wahrscheinlichkeit für den Transfer dem ursprünglichen Modell und neueren quantenmechanischen Rechnungen mit v_p ¹¹ [Tho27, BT79] langsamer als bei den Prozessen erster Ordnung, die in den darauffolgenden Abschnitten beschrieben werden (strahlender Einfang, *velocity matching*, *ee*-Prozess).

Der Elektron-Elektron-Thomas-Prozess

Der *Elektron-Elektron-Thomas-Prozess* beginnt nach Annäherung des Projektils an das Targetteilchen mit einem binären Stoß zwischen Erstgenanntem und einem Targetelektron. Das Targetelektron geht dabei mit einem Geschwindigkeitsvektor aus der Reaktion hervor, für dessen Betrag

$$v = \sqrt{2} \cdot v_p \quad (2.22)$$

gilt. Der Stoßwinkel zwischen den beiden Teilchen ist für diesen Fall

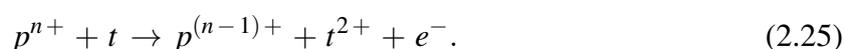
$$\theta_{coll} = 45^\circ. \quad (2.23)$$

Dieses Elektron nimmt im Anschluss an einer weiteren Kollision teil, Stoßpartner ist wiederum eines der Targetelektronen. Aus diesem Stoß gehen die beteiligten Elektronen jeweils mit dem Geschwindigkeitsbetrag

$$v = v_p \quad (2.24)$$

hervor. Der Winkel zwischen den Trajektorien dieser Elektronen beträgt 90° , so dass eines der Elektronen sich parallel zum Projektil bewegt, das zweite entfernt sich senkrecht dazu. Weil das erste Elektron nun denselben Geschwindigkeitsvektor wie das Projektil besitzt, kann es sehr leicht in einen gebundenen Zustand in selbigem eingefangen werden.

Als Reaktionsgleichung lässt sich der *Elektron-Elektron-Thomas-Prozess* folgendermaßen beschreiben:



Aufgrund der Ionisation des Targets und dem gleichzeitigen Einfang eines weiteren Targetelektrons ins Projektil beschreibt der *Elektron-Elektron-Thomas-Prozess* stets eine Transferionisation.

Der Elektron-Kern-Thomas-Prozess

Auch hier kommt es zunächst zu einem binären Stoß zwischen dem Projektil und einem Targetelektron. Das Elektron geht unter einem Streuwinkel von

$$\theta_{coll} = 60^\circ \quad (2.26)$$

daraus hervor, seine Geschwindigkeit ist betragsmäßig gleich der des Projektils,

$$v = v_p. \quad (2.27)$$

Das Elektron nimmt nun auch bei dieser Ausprägung des Thomas-Prozesses an einem zweiten Stoß teil, Stoßpartner ist aber hier der Kern des Targetatom (respektive ein Kern des Targetmoleküls). Der Streuwinkel beträgt wie schon im ersten Stoß 60° , diesmal allerdings in die entgegengesetzte Richtung. Somit bewegt sich das Elektron auch hier wieder mit gleicher Geschwindigkeit parallel zum Projektil und kann von diesem eingefangen werden.

Im Unterschied zum *Elektron-Elektron-Thomas-Prozess* verliert das Target hier nur ein Elektron. Es handelt sich demnach um einen reinen Einfelektroneneinfang, nicht um einen Transferionisationsprozess. Die Reaktionsgleichung hierfür lautet dann



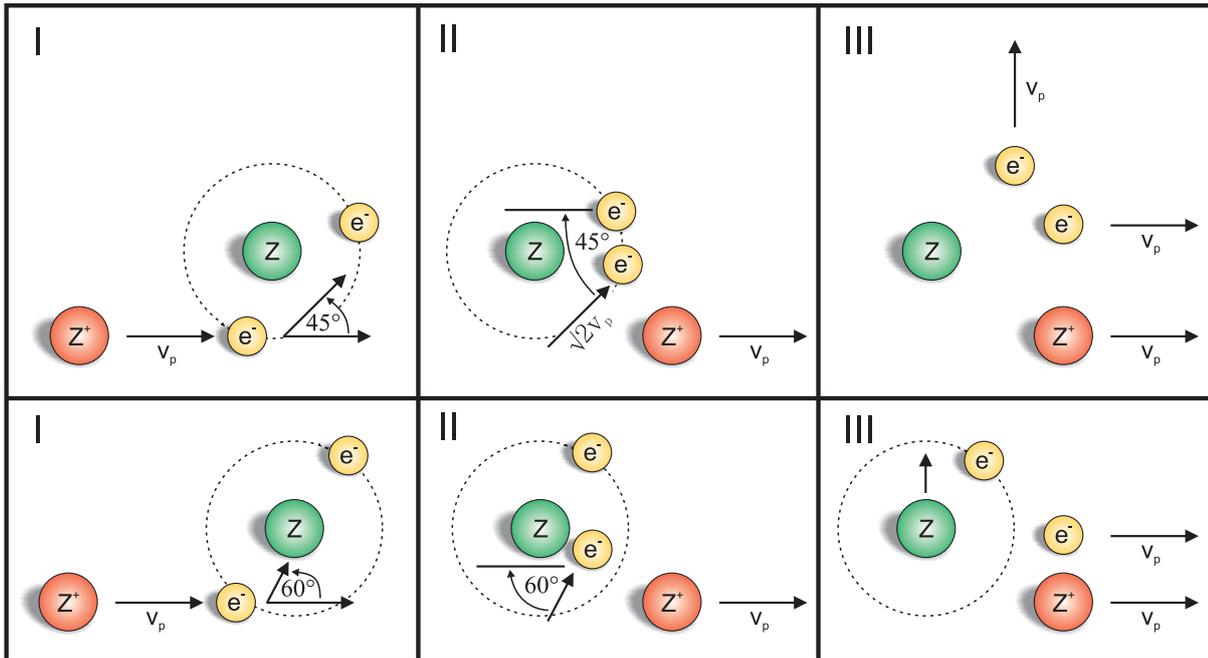


Abbildung 2.1: *Elektron-Elektron-* (oben) und *Elektron-Kern-Thomas-Prozess* (unten) in schematischer Darstellung; rot dargestellt das Projektilion, grün der Targetkern, gelb die beteiligten Elektronen. Nach jeweils einem binären Stoß mit dem Projektil und einem mit einem zweiten Targetelektron (*EET*) beziehungsweise dem Targetkern (*NET*) besitzt das einzufangende Elektron den gleichen Geschwindigkeitsvektor wie das Projektil. Ein Übergang in einen gebundenen Zustand in selbigem ist sehr wahrscheinlich.

2.4.2 Velocity matching

Auch quantenmechanische Modellvorstellungen erklären den Elektroneneinfang ins Projektilion bisweilen sehr anschaulich. Das *velocity matching* ist wesentlicher Bestandteil der *Oppenheimer-Brinkman-Kramers-Näherung*, welche als erste quantenmechanische Beschreibung des Elektroneneinfangs gelten kann. Der Einfachheit halber oft kurz als *OBK-Näherung* oder *OBK-Modell* bezeichnet, beschreibt sie den so genannten kinematischen Elektroneneinfang im Rahmen der störungstheoretischen Bornschen Näherung ([Opp28, BK30]).

Das englische Synonym *velocity matching* des kinematischen Einfangs verrät den Grundgedanken des Modells: Befindet sich im Comptonprofil des Targetteilchens ein Elektron, dessen Geschwindigkeitsvektor in Betrag und Richtung dem des sich annähernden Projektilions weitgehend gleicht, kann dieses Elektron sehr leicht in einen gebundenen Zustand im Projektilion übergehen. Die Wahrscheinlichkeit dafür wird maximal, wenn für die Geschwindigkeit des Elektrons

$$v = \frac{v_p}{2} \quad (2.29)$$

gilt, weil dann der für die Einfangswahrscheinlichkeit relevante Überlapp von Projektil- und Targetelektronen-Wellenfunktion am größten ist. Das *OBK-Modell* beschreibt dabei allein den

Elektroneneinfang ins Projektil, nicht aber den für eine Transferionisation zusätzlich erforderlichen Ionisationsprozess des Targets. Die Reaktionsgleichung ist also



2.4.3 Der strahlende Elektroneneinfang

Im Ruhesystem des Projektilions betrachtet bewegt sich das einzufangende Elektron zusammen mit dem Target mit $v = v_p$ auf das Projektil zu. Soll es zu einem Übertritt des betrachteten Elektrons aus dem gebundenen Zustand im Targets in einen gebundenen Zustand des Projektils kommen, muss das Elektron „abgebremst“ und seine überschüssige Energie abgeführt werden. Beim strahlenden Elektroneneinfang koppelt das Elektron an das umgebende Photonenfeld und gibt die Überschussenergie in Form eines Photons ab. Die Energie dieses Photons ist dabei proportional zu $v_p^2/2$, also zu seiner kinetischen Energie aufgrund der Relativbewegung von Projektil und Target.

Der Prozess beschreibt allein den Einfang eines Targetelektrons in einen gebundenen Projektilzustand. Es ist also erneut

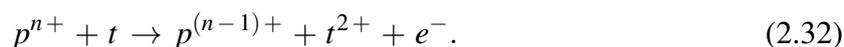


eine zusätzliche Ionisation des Targets, wie sie für einen Transferionisationsprozess nötig ist, findet nicht statt.

Strahlender Elektroneneinfang ist insbesondere für sehr hochenergetische Projektile von Bedeutung. Der Prozess ist also für das vorliegende Experiment nicht von großer Relevanz, erleichtert aber das Verständnis des ee -Prozesses, der nun beschrieben werden soll.

2.4.4 Der ee -Prozess

Auch in dem von Voitkiv et. al. entwickelten Modell des ee -Prozesses [VNU08, Voi08] muss das einzufangende Elektron überschüssige Energie abgeben, da es, aus dem Projektilsystem betrachtet, zum Einfang abgebremst werden muss. Statt aber ein Photon entsprechender Frequenz auszusenden, überträgt es die Energie an ein zweites Targetelektron, welches dann ebenfalls das Target verlässt. Damit ist dieser Prozess beschränkt auf Targets mit mindestens zwei Elektronen und führt zwangsweise zu einer Transferionisation.



Der Beobachter im projektilfesten System sieht das Target mitsamt seinen Elektronen auf sich zukommen. Soll nun ein Targetelektron entsprechend abgebremst werden, so dass es in einen Projektilzustand transferiert werden kann, kann die entsprechende Energie von einem zweiten Targetelektron aufgenommen werden. Diese Energiebeträge sind in der Regel so groß, dass daraus die Bindungsenergie dieses Elektrons aufgebracht werden kann und das Elektron das Target verlassen kann. Aus Gründen der Impulserhaltung ist offensichtlich, dass dieses Elektron

in Bewegungsrichtung des Targets emittiert wird, im Laborsystem also entgegen der Projektilstrahlrichtung.

Die Übergangswahrscheinlichkeit fällt bei diesem Prozess erster Ordnung mit v_p^{12} und damit schneller als zum Beispiel beim Thomas-Prozess (zweite Ordnung Störungstheorie, $\sigma \sim v_p^{-11}$).

Neben dem Einfang eines Targetelektrons ins Projektil gilt bei den zweistufigen Modellen der Ionisation des Targets besonderes Interesse. Das dabei freigewordene Elektron liefert wertvolle Informationen über die ablaufenden Prozesse. Das Augenmerk liegt hier insbesondere auf der zu erwartenden Emissionsrichtung. Es kommen dabei vor allem zwei Prozesse in Frage, die hier vorgestellt werden sollen.

2.4.5 Binary encounter

Als vermutlich einfachster aller Ansätze beschreibt der *binary encounter* (Englisch für binärer Stoß) die Targetionisation als einen harten, Billard-ähnlichen Stoß zwischen den beteiligten Teilchen ([Tho12]). Das einfliegende Projektil kickt dabei das als ruhend angenommene Elektron aus seinem gebundenen Targetzustand heraus, man erhält für die Einfachionisation die Reaktionsgleichung



Das klassisch-mechanische Modell vernachlässigt dabei jegliche quantenmechanischen Effekte sowie Wechselwirkungen mit dem Targetkern. Aufgrund dieser Einfachheit gibt es nicht unbedingt für alle Fälle den korrekten Wirkungsquerschnitt wieder, macht aber eine klare Aussage zur Emissionsrichtung des Elektrons. Dieses wird hier, ganz wie nach dem Billard-Vergleich zu erwarten, im Ruhesystem des Targets in Vorwärtsrichtung emittiert. Unter günstigsten Bedingungen kann das Elektron (Masse m_e) dabei die Energie

$$E = 2 m_e v_p^2 \quad (2.34)$$

aus dem Stoß mit dem Projektil (Geschwindigkeit v_p) erhalten. Umgeformt erhält man daraus eine Bedingung für den Gültigkeitsbereich der *binary encounter*-Näherung, es muss hier jeweils

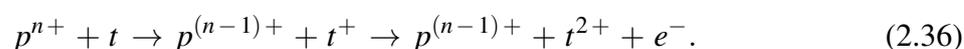
$$v_p > \sqrt{\frac{E_{Bind}}{2 m_e}} \quad (2.35)$$

gelten, wobei E_{Bind} für die Bindungsenergie des zu ionisierenden Elektrons steht. Die Ionisation im *binary encounter* kann also erst oberhalb einer gewissen Projektil-Mindestgeschwindigkeit stattfinden, im vorliegenden Fall ist das etwa $0,3 a.u.$ für eine Bindungsenergie von $4,73 eV$.

2.4.6 Shake-Off

Der zweite wichtige Ansatz zur Erklärung der Targetionisation ist der *Shake-Off*-Prozess. Dieser nur quantenmechanisch zu verstehende Vorgang resultiert aus Korrelationseffekten zwischen den Targetelektronen. Ist das erste davon durch Elektroneneinfang ins Projektil aus dem Target entfernt worden, ergibt sich für das zweite Targetelektron eine endliche Wahrscheinlichkeit, ebenfalls das Kernpotential zu verlassen.

Im Gegensatz zum *binary encounter*, der definitionsgemäß nur bei Ionenstoß-Experimenten vorkommen kann, ist beim *Shake-Off* die Art und Weise des ersten Ionisationsschrittes egal. So wurde dieser Prozess im Zusammenhang mit Photoionisation des Targets zum ersten Mal beschrieben [Car67]. Ausgangspunkt ist in jedem Fall ein bereits einfach ionisiertes Target, man erhält mit dem vorhergegangenen Einfang



Theoretisch formuliert begründet sich der *Shake-Off*-Vorgang in der Tatsache, dass die Wellenfunktion des verbliebenen Elektrons nach dem Entfernen des ersten einen Überlapp mit Kontinuumszuständen besitzt. Sie ist nicht mehr Eigenfunktion des nunmehr einfach ionisierten Targets, bei Projektion auf die (im vorliegenden Fall) H_2^+ -Basis ergibt sich eine nicht verschwindende Wahrscheinlichkeit für einen Übertritt ins Kontinuum.

Anders ausgedrückt ändert sich das Kernpotential durch den Einfang eines Targetelektrons in ein schnelles Projektilion sehr rasch. Kann sich dann die Wellenfunktion des zweiten Elektrons nicht schnell genug an das veränderte Potential anpassen, wird das Elektron „abgeschüttelt“ (Englisch „to shake off“).

Die Frage nach der Emissionsrichtung des *Shake-Off*-Elektrons ist eng verknüpft mit der Frage nach seinem Impuls. Aus Photoionisationsmessungen weiß man, dass bei sehr schnellen Photoelektronen das abgeschüttelte Elektron bevorzugt in die dem Photoelektron entgegengesetzte Richtung emittiert wird [KKB⁺02]. Aus Gründen der Energieerhaltung ist das *Shake-Off*-Elektron dann vergleichsweise langsam. Fängt ein schnelles Projektil eines der Targetelektronen ein, wird nach dem *velocity matching*-Prinzip dieses Elektron im Target auch vergleichsweise schnell gewesen sein. Demnach wird nach einem schnellen *capture* am Target mit einer Rückwärtsemission des abgeschüttelten Elektrons zu rechnen sein.

2.5 Das Wasserstoffmolekül

Nachdem im vorangegangenen Abschnitt einige theoretischen Modelle vorgestellt wurden, soll zum Abschluss der theoretischen Betrachtungen etwas näher auf das verwendete Targetmolekül eingegangen werden. Zur Untersuchung der Transferionisation wird definitionsgemäß ein Target mit mindestens zwei Elektronen benötigt. Molekularer Wasserstoff ist daher das einfachste aller in Frage kommenden Moleküle.

Mit insgesamt vier Teilchen lässt sich keine exakte Lösung für dieses Problem finden. Oft wird deshalb die Bewegung der beiden Protonen, die im Vergleich zu den Elektronen eine um drei Größenordnungen höhere Masse besitzen ($m_p = 1836 \cdot m_e$), im Rahmen der so genannten *Born-Oppenheimer*-Näherung vernachlässigt und die entsprechende Schrödingergleichung für zwei ortsfeste Protonen betrachtet.

Das Wasserstoffmolekül ist ein kovalent gebundenes Molekül. Bei diesem vor allem zwischen Atomen von Nichtmetallen vorherrschenden Bindungstyp wird durch Paarbildung von Valenzelektronen die Coulombabstoßung zwischen den gleichnamig geladenen Atomkernen überwunden. Beschrieben wird das Ausbilden solcher Molekülorbitale meist mit Hilfe der *LCAO*-Methode (Orbitalhybridisierung, nach der englischen Bezeichnung **L**inear **C**ombination of **A**tomic **O**r-bitals). Diese Vorgehensweise stellt das Zustandekommen der Molekülorbitale dar als Überlagerung von (bekannten) Ein-Elektron-Wellenfunktionen $|\phi\rangle$ der Valenzelektronen des jeweiligen Atoms.

In Anlehnung an [Dem05] soll dieses Verfahren nun zunächst für das einfachste Molekül, das H_2^+ -Molekülion, umrissen werden. Im nächsten Unterkapitel wird dann unter Zuhilfenahme eines weiteren gängigen Verfahrens (*Heitler-London-Verfahren*) die Beschreibung des neutralen H_2 -Moleküls behandelt.

2.5.1 Beschreibung nach dem LCAO-Verfahren

In der quantenmechanischen Theorie wird ein System durch die Lösungen der zugehörigen Schrödingergleichung charakterisiert. Es gilt

$$H|\psi\rangle = E|\psi\rangle \quad (2.37)$$

mit dem systemspezifischen Hamiltonoperator H , der entsprechenden Systemzuständen $|\psi\rangle$ und den Energieeigenwerten E des Hamiltonoperators. Für das Wasserstoff-Molekülion werden ein Wasserstoffatom im Grundzustand und ein Proton zusammengeführt. Da nicht unterschieden werden kann, bei welchem Proton sich das Elektron aufhält, werden zwei atomare Elektronen-Wellenfunktionen $|\phi_A\rangle$ und $|\phi_B\rangle$ mit entsprechenden Koeffizienten addiert und aus der Summe die Molekül-Wellenfunktion $|\psi\rangle$ gebildet,

$$|\psi\rangle = c_1 |\phi_A\rangle + c_2 |\phi_B\rangle. \quad (2.38)$$

Die normierten Molekülorbitale sind dann

$$\begin{aligned} |\psi_s\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2+2S_{AB}}} (|\phi_A\rangle + |\phi_B\rangle) \text{ und} \\ |\psi_a\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2-2S_{AB}}} (|\phi_A\rangle - |\phi_B\rangle) \end{aligned} \quad (2.39)$$

mit dem Überlappintegral der beiden Wellenfunktionen

$$S_{AB} = \text{Re} \int \phi_A \phi_B d\vec{r}. \quad (2.40)$$

Wie in Abbildung 2.2 ersichtlich, besitzt die im Ortsraum symmetrische ψ_s -Wellenfunktion eine erhöhte Elektronendichte zwischen beiden Atomkernen. Die Coulombabstoßung der beiden Protonen wird dadurch abgeschwächt, so dass für ein gewisses Kernabstandsintervall ein bindendes Molekülorbital vorliegt. Im Gegensatz dazu ist im Falle des ψ_a -Orbitals die Elektronendichte zwischen den Kernen herabgesetzt, das durch diese antisymmetrische Wellenfunktion beschriebene Molekülorbital ist dementsprechend nicht-bindend.

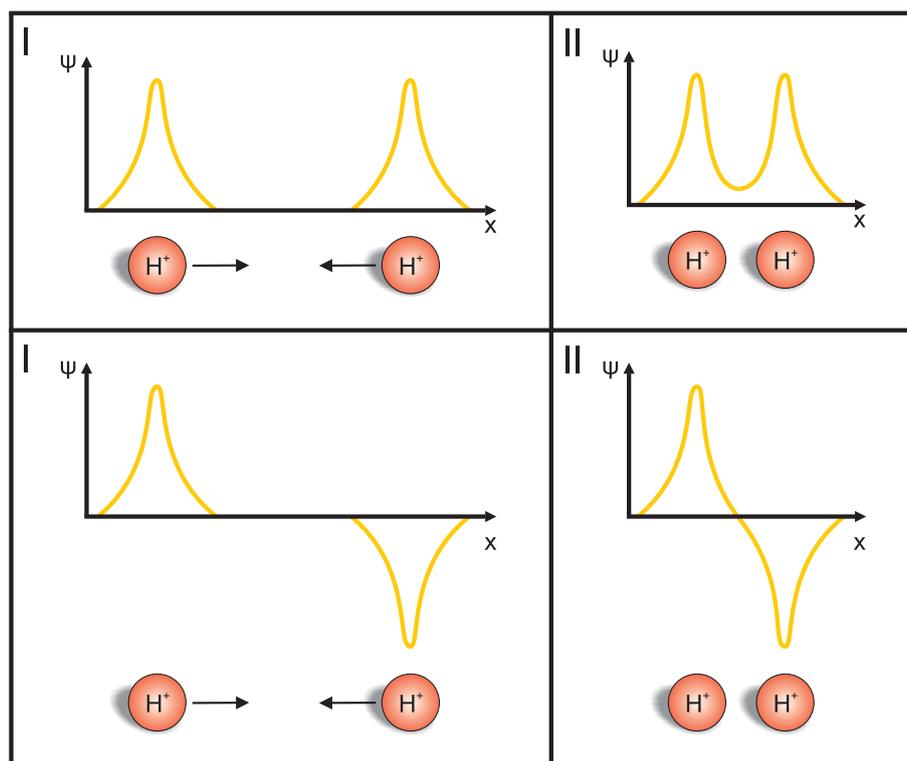


Abbildung 2.2: Zustandekommen der ψ_s und ψ_a -Molekülorbitale: Beim ψ_s -Orbital (obere Reihe) ist die Elektronendichte (entspricht etwa ψ^2) zwischen beiden Kernen erhöht, das Orbital ist bindend. Beim ψ_a -Orbital (untere Reihe) hingegen ist die Elektronendichte zwischen den Kernen Null, das Orbital ist nicht-bindend.

Die Energieeigenwerte der beiden Zustände ergeben sich aus dem Erwartungswert des Hamiltonoperators H zu

$$\begin{aligned} \langle E_s \rangle &= \langle \psi_s | H | \psi_s \rangle = \frac{H_{AA} + H_{AB}}{1 + S_{AB}} \text{ und} \\ \langle E_a \rangle &= \langle \psi_a | H | \psi_a \rangle = \frac{H_{AA} - H_{AB}}{1 - S_{AB}}. \end{aligned} \quad (2.41)$$

Dabei wurden die Abkürzungen

$$H_{AA} = \langle \phi_A | H | \phi_A \rangle \text{ und } H_{AB} = \langle \phi_A | H | \phi_B \rangle \quad (2.42)$$

verwendet. Abbildung 2.3 zeigt die Bindungsenergien der beiden möglichen Zustände als Funktion des Abstands der beiden Protonen im Molekül.

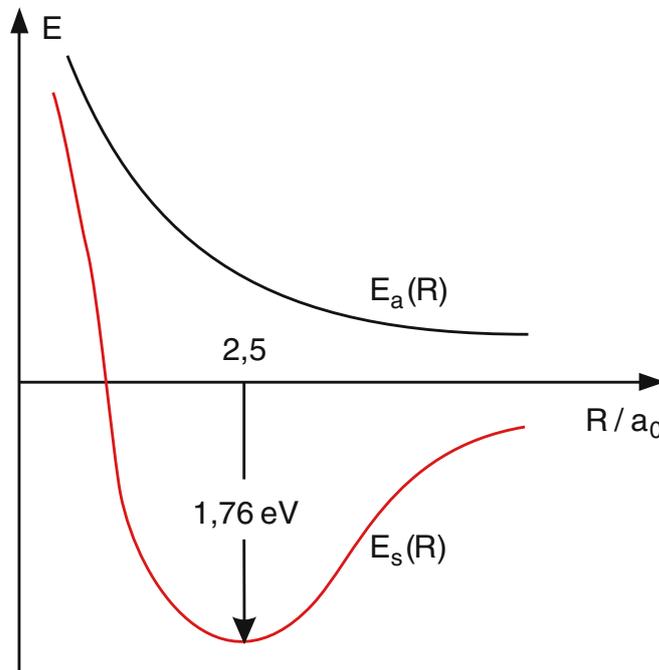


Abbildung 2.3: Potentialkurven der symmetrischen und der antisymmetrischen Elektronendichteverteilungen $|\psi_s|^2$ bzw. $|\psi_a|^2$ als Funktion des Kernabstands für das H_2^+ -Molekül, berechnet nach dem *LCAO*-Verfahren (Grafik aus [Dem05]).

2.5.2 Beschreibung nach dem Heitler-London-Verfahren

Soll nun statt dem Molekülion H_2^+ das H_2 -Molekül beschrieben werden, muss das zweite Elektron in geeigneter Weise mit in den Formalismus einbezogen werden. Die im Folgenden geschilderte theoretische Beschreibung von molekularem Wasserstoff nach dem *Heitler-London*-Verfahren ist angelehnt an die in [Nol06]. Es wird hier kein Anspruch auf Vollständigkeit erhoben, vielmehr soll das prinzipielle Vorgehen bei besagter Berechnung umrissen werden. Aufgrund der Vorgehensweise beim *Heitler-London*-Verfahren ist es unumgänglich, dabei einen im Vergleich zum *LCAO*-Verfahren größeren Anteil der Beschreibung mathematisch zu formulieren.

Mit je zwei Elektronen und Protonen ist das Wasserstoffmolekül ein Vier-Teilchen-Problem und somit nicht exakt lösbar. Wie schon bei der Beschreibung des H_2^+ -Ions im vorigen Abschnitt wird auch hier die Bewegung der beiden Protonen vernachlässigt (*Born-Oppenheimer*-Näherung). Der Hamilton-Operator für das nun auf ein Zwei-Elektronen-Problem reduzierte System lautet

$$H = \sum_{i=1}^2 \left[\frac{\vec{p}_i^2}{2m} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \left(\frac{1}{r_{ia}} + \frac{1}{r_{ib}} \right) \right] + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \left(\frac{1}{r_{12}} + \frac{1}{R_{ab}} \right). \quad (2.43)$$

Der erste Term in eckigen Klammern steht für die kinetische Energie der beiden Elektronen, der zweite (in runden Klammern) für die Anziehung zwischen je einem Proton und einem Elektron. Es gilt hierbei

$$r_{ia,b} = \left| \vec{r}_i - \vec{R}_{a,b} \right|. \quad (2.44)$$

Der zweite Summand beschreibt die Abstoßung der Elektronen und der Protonen untereinander, hier ist analog zu oben

$$r_{12} = \left| \vec{r}_1 - \vec{r}_2 \right| \quad \text{bzw.} \quad R_{ab} = \left| \vec{R}_a - \vec{R}_b \right|. \quad (2.45)$$

Abbildung 2.4 stellt die zur Berechnung verwendeten Abstände und Bezeichnungen übersichtlich dar.

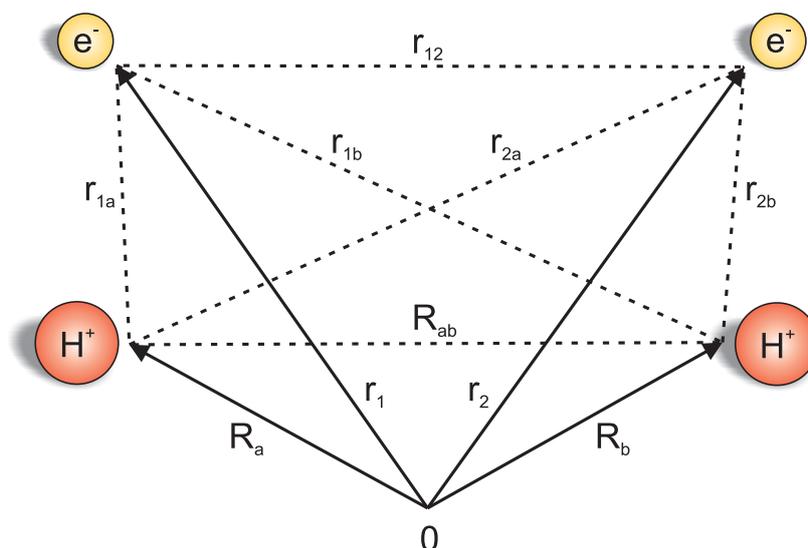


Abbildung 2.4: Skizzehafte Darstellung aller Ortsvektoren und Abstände im Molekül; rot die Protonen, gelb die Elektronen

Der in (2.2) genannte Hamiltonoperator berücksichtigt nur die Coulombkräfte zwischen den beteiligten Teilchen, jedoch keine spinbasierten Wechselwirkungen. Deshalb können die elektronischen Zustände geschrieben werden als Produkt aus einer Orts- und einer Spinwellenfunktion,

$$|\psi\rangle = |\phi_{Ort}\rangle |\phi_{Spin}\rangle. \quad (2.46)$$

Die Spinwellenfunktion ist dabei nur für die Symmetriebetrachtungen, nicht aber für die spätere Berechnung der Energieeigenwerte wichtig. Die zwei betrachteten Elektronen können in insgesamt vier möglichen Konstellationen entweder zu Gesamtspin 0 oder 1 koppeln. Gesamtspin 0 ist dabei ein Singulettzustand und antisymmetrisch,

$$|\phi_{Spin}\rangle = |S m_S\rangle = |0 0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(|\uparrow^{(1)}\rangle |\downarrow^{(2)}\rangle - |\downarrow^{(1)}\rangle |\uparrow^{(2)}\rangle \right). \quad (2.47)$$

Gesamtspin 1 kann durch drei mögliche Spinkombinationen erreicht werden, nämlich

$$\begin{aligned} |\phi_{Spin}\rangle = |S m_S\rangle = |1 -1\rangle &= |\downarrow^{(1)}\rangle |\downarrow^{(2)}\rangle, \\ |\phi_{Spin}\rangle = |S m_S\rangle = |1 0\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left(|\uparrow^{(1)}\rangle |\downarrow^{(2)}\rangle + |\downarrow^{(1)}\rangle |\uparrow^{(2)}\rangle \right) \text{ und} \\ |\phi_{Spin}\rangle = |S m_S\rangle = |1 1\rangle &= |\uparrow^{(1)}\rangle |\uparrow^{(2)}\rangle. \end{aligned} \quad (2.48)$$

Es handelt sich demnach um ein Triplettzustand mit gerader Symmetrie. Das Pauli-Prinzip fordert für Fermionen eine antisymmetrische Gesamtwellenfunktion, das Vorzeichen der Wellenfunktion muss sich also umkehren, wenn die Teilchen vertauscht werden. Somit gibt die Symmetrie der Spinwellenfunktion auch direkt die der Ortswellenfunktion vor. Die Ortswellenfunktion für den Singulettzustand muss daher symmetrisch, die des Triplettzustands antisymmetrisch sein. Man schreibt dafür auch

$$\begin{aligned} |\psi^{(S)}\rangle &= |\phi_{Ort}^{(+)}\rangle |0 0\rangle \text{ und} \\ |\psi^{(T)}\rangle &= |\phi_{Ort}^{(-)}\rangle |S m_S\rangle. \end{aligned} \quad (2.49)$$

Auch mit den bisher getätigten Annahmen kann die Ortswellenfunktion $|\phi_{Ort}\rangle$ der Elektronen noch nicht exakt bestimmt werden, weshalb eine weitere Näherung erforderlich wird. Während im *LCAO*-Verfahren bildlich gesprochen beide Elektronen nacheinander ins Kernpotential gesetzt werden, wird im *Heitler-London*-Verfahren der Umstand ausgenutzt, dass die Lösung der Schrödingergleichung für das Wasserstoffmolekül im Grenzfall unendlichen Kernabstands R_{ab} in die Lösung für zwei einzelne Wasserstoffatome übergehen muss. Diese haben die Form

$$\begin{aligned} \left(\frac{\vec{p}_1^2}{2m} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{1a}} \right) |\phi_a^{(1)}\rangle &= E_a |\phi_a^{(1)}\rangle \text{ bzw.} \\ \left(\frac{\vec{p}_2^2}{2m} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 r_{2b}} \right) |\phi_b^{(2)}\rangle &= E_b |\phi_b^{(2)}\rangle \end{aligned} \quad (2.50)$$

Mit Hilfe des Symmetrisierungsoperators $S_2^{(\pm)}$ (siehe hierzu erneut [Nol06]) lassen sich aus den Einteilchen-Eigenzuständen $|\phi_a\rangle$ und $|\phi_b\rangle$ Zweiteilchen-Zustände mit der gewünschten Symmetrie erzeugen,

$$|\phi_{Ort}^{(\pm)}\rangle = S_2^{(\pm)} |\phi_a \phi_b\rangle = \frac{1}{2} \left(|\phi_a^{(1)}\rangle |\phi_b^{(2)}\rangle \pm |\phi_a^{(2)}\rangle |\phi_b^{(1)}\rangle \right). \quad (2.51)$$

Diese sind gemäß der getätigten Annahme nur für $R_{ab} \rightarrow \infty$ Eigenzustände, werden jedoch im *Heitler-London-Verfahren* auch bei endlichen Kernabstand zur Abschätzung der Energie des Systems verwendet. Das Verfahren berücksichtigt dabei nicht Zustände, bei denen beide Elektronen sich beim gleichen Atomkern aufhalten.

Die Normierung der Elektronenzustände erfolgt gemäß

$$\langle \phi_{Ort}^{(\pm)} | \phi_{Ort}^{(\pm)} \rangle = \frac{1}{2} (1 \pm |L_{ab}|^2) \quad (2.52)$$

mit dem Überlappintegral

$$L_{ab} = \int d^3r \phi_a^*(\vec{r}) \phi_b(\vec{r}). \quad (2.53)$$

Man erhält für die Energie des Systems als Erwartungswert des Hamiltonoperators

$$E_{\pm} = \frac{\langle \phi_{Ort}^{(\pm)} | H | \phi_{Ort}^{(\pm)} \rangle}{\langle \phi_{Ort}^{(\pm)} | \phi_{Ort}^{(\pm)} \rangle} = E_a + E_b + \frac{C_{ab} \pm A_{ab}}{1 \pm |L_{ab}|^2}. \quad (2.54)$$

Dabei wurde das Coulomb-Integral abgekürzt, es ist

$$C_{ab} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \left[\frac{1}{R_{ab}} - \int d^3r_1 \frac{|\phi_a(\vec{r}_1)|^2}{|\vec{r}_1 - \vec{R}_b|} - \int d^3r_2 \frac{|\phi_b(\vec{r}_2)|^2}{|\vec{r}_2 - \vec{R}_a|} + \int \int d^3r_1 d^3r_2 \frac{|\phi_a(\vec{r}_1)|^2 |\phi_b(\vec{r}_2)|^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \right]. \quad (2.55)$$

Weiterhin steht die Abkürzung A_{ab} für das so genannte Austauschintegral, es gilt hierfür

$$A_{ab} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \left[\frac{1}{R_{ab}} |L_{ab}|^2 - \operatorname{Re} \left(L_{ab}^* \int d^3r_1 \frac{\phi_a^*(\vec{r}_1) \phi_b(\vec{r}_1)}{|\vec{r}_1 - \vec{R}_b|} + L_{ab} \int d^3r_2 \frac{\phi_b^*(\vec{r}_2) \phi_a(\vec{r}_2)}{|\vec{r}_2 - \vec{R}_a|} \right) + \operatorname{Re} \int \int d^3r_1 d^3r_2 \frac{\phi_a^*(\vec{r}_1) \phi_b^*(\vec{r}_2) \phi_a(\vec{r}_2) \phi_b(\vec{r}_1)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \right]. \quad (2.56)$$

Der Wert E_+ in Gleichung 2.54 entspricht der Energie des Singulettzustands $|\psi^{(S)}\rangle$, E_- steht für die Energie der Triplettzustände $|\psi^{(T)}\rangle$. Der Kernabstand R_{ab} ist maßgeblicher Parameter der Berechnungen und für nicht zu kleine Kernabstände gilt

$$E_+ < E_- . \quad (2.57)$$

Die Energie des Systems wird also für einen bestimmten Kernabstand minimal und das Molekül ist gebunden. Die Triplettzustände sind nicht-bindend. Setzt man die Grundzustandswellenfunktion des Wasserstoffatoms ein, so ergeben numerische Rechnungen für den Kernabstand und die Bindungsenergie

$$\begin{aligned} R_{ab} &= 0,869 \text{ \AA} \\ E &= -3,14 \text{ eV}. \end{aligned} \quad (2.58)$$

Die Übereinstimmung mit den experimentell bestimmten Werten ($0,74 \text{ \AA}$ bzw. $-4,73 \text{ eV}$) ist vergleichsweise gut. Abbildung 2.5 zeigt die errechnete Bindungsenergie als Funktion des Kernabstands.

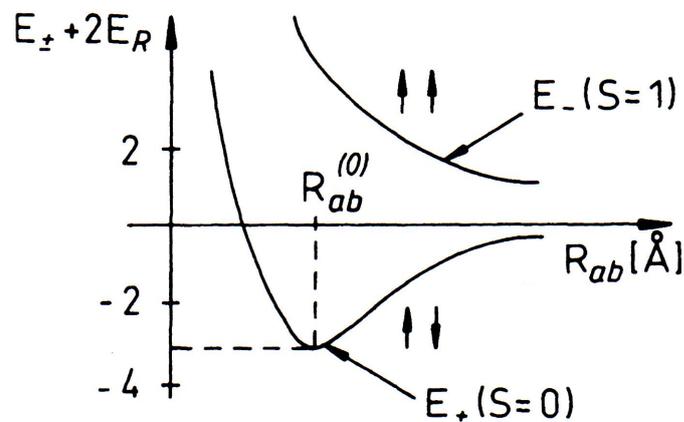


Abbildung 2.5: Berechnete Bindungsenergie des Wasserstoffmoleküls als Funktion des Kernabstands für Singulett- und Triplettzustand; Grafik entnommen aus [No106]

Kapitel 3

Das COLTRIMS-Experiment

Das Kernstück der *COLTRIMS*-Messtechnik (die Abkürzung stammt vom englischen **C**old **T**arget **R**ecoil **I**on **M**omentum **S**pectroscopy) ist der kalte Gasjet, der im Reaktionsvolumen mit einem Projektilstrahl zum Überlapp gebracht wird [UMD⁺⁹⁷, UMD⁺⁰³, DMS⁺⁹⁷]. Durch elektrische und magnetische Felder werden die entstandenen geladenen Reaktionsprodukte auf orts- und zeitsensitive Detektoren projiziert. Im Falle von ionischen Projektilstrahlen werden auch die an der Reaktion beteiligten Projektile nachgewiesen, so dass hier insgesamt drei verschiedene Detektoren zum Einsatz kommen.

Die Funktionsweise der *COLTRIMS*-Methode beruht darauf, dass aus der Messung der Auftrefforte der Teilchen deren Impulse in der jeweiligen Detektorebene bestimmt werden. Aus ihren Flugzeiten lassen sich die Impulskomponenten senkrecht dazu berechnen. Damit ermöglicht dieses Messverfahren kinematisch vollständige Koinzidenzmessungen von Teilchenkollisionen mit 4π Raumwinkelabdeckung. Auf die einzelnen Bestandteile des verwendeten experimentellen Aufbaus und seine verschiedenen Parameter soll in diesem Kapitel näher eingegangen werden.

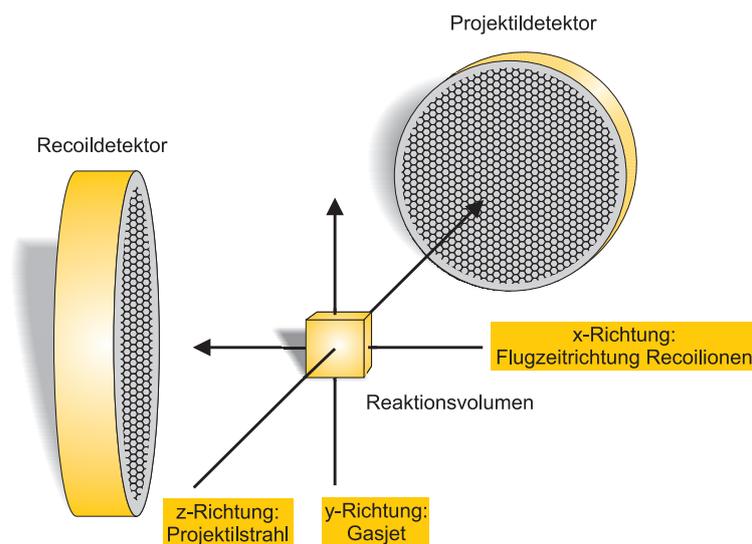


Abbildung 3.1: verwendetes Koordinatensystem; die x -Achse entspricht der Flugzeitrichtung der Recoilionen, die y -Achse gibt der Gasjet vor. Die z -Achse wird durch den einfallenden Projektilstrahl definiert.

3.1 Das Koordinatensystem

Die Reaktionszone im Spektrometer bildet den Ursprung eines rechtwinkligen, rechtshändigen Koordinatensystems. Die Spektrometerachse, genauer die Flugzeitrichtung der Recoilionen, definiert dabei die x -Achse, während der Gasjet die y -Achse vorgibt. Die z -Achse wird, wie bei Streuexperimenten üblich, durch den einfallenden Projektilionenstrahl beschrieben. Abbildung 3.1 zeigt das verwendete Koordinatensystem.

3.2 Das Gastarget

Bei Impulsspektroskopie-Experimenten wird stets großer Aufwand betrieben, um die Anfangsimpulse der spektroskopierten Teilchen genau zu bestimmen. Ein möglicher Ansatz ist es beispielsweise, die zu untersuchenden Teilchen derart zu präparieren, dass ihr Anfangsimpuls nahezu Null ist und so verglichen mit den zu erwartenden Impulsübertragen im Experiment vernachlässigt werden kann. Das COLTRIMS-Messprinzip verfolgt genau diesen Ansatz, indem es die Targetteilchen in einem kalten Gasstrahl zusammenfasst um die Impulsauflösung zu verbessern.

Im vorliegenden Fall strömt Wasserstoffgas durch eine kleine Düse (Durchmesser $d = 20 \mu\text{m}$) in die Expansionskammer. Der Vordruck des Gases p_0 ist dabei groß im Vergleich zum Restgasdruck p in der Kammer. Es findet eine so genannte Überschall-expansion statt, eine adiabatische Expansion, bei der die gesamte frei Enthalpie der Gasteilchen in gerichtete Bewegungsenergie umgewandelt wird. Dies führt dazu, dass in einem scharf begrenzten Bereich hinter der Düse die Impulsvektoren der Gasteilchen betragsmäßig annähernd gleich sind. Die Geschwindigkeit, mit der sie sich bewegen, lässt sich mittels

$$v = \sqrt{\frac{5k_B T}{m}} \quad (3.1)$$

berechnen. k_B ist dabei die Boltzmann-Konstante, m die Masse der Gasteilchen und T die Temperatur. Man erhält so für einen H_2 -Jet bei Raumtemperatur eine mittlere Jetgeschwindigkeit von fast 2460 m/s .

Unmittelbar nach der Expansion sind die Teilchenimpulse nicht nur betragsmäßig gleich, sondern auch annähernd parallel ausgerichtet. Das ist der Grund, weshalb in diesem *zone of silence* genannten Bereich keinerlei Stöße zwischen den einzelnen Gasteilchen stattfinden. Lediglich nach außen hin wird die *zone of silence* durch Stöße mit Restgasatomen in ihrer Ausdehnung begrenzt. Ihre Länge l kann mittels der Formel

$$l = \frac{2}{3}d \cdot \sqrt{\frac{p_0}{p}} \quad (3.2)$$

abgeschätzt werden und liegt üblicherweise im Bereich einiger Düsendurchmesser. In Abbildung 3.2 wird schematisch die Gasausbreitung hinter der Düse gezeigt.

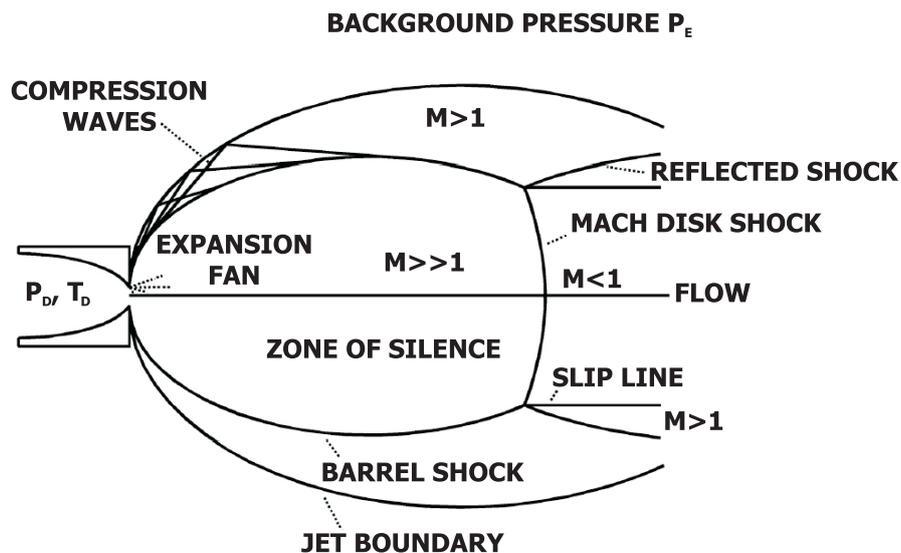


Abbildung 3.2: Ausbreitung des Targetgases hinter der Düse, mittig die *zone of silence* (entnommen aus [Mil88]).

Der beschriebenen scharfen Impulsverteilung wegen spricht man von einem kalten Gas. Die interne Temperatur des Targetgases beträgt, so aufbereitet, nur wenige Kelvin. Für weiterführende Informationen über die theoretische Behandlung von Überschallgasjets sei beispielsweise auf [Mil88, Web99] verwiesen.

Um einen derart präparierten Gasstrahl für das Experiment nutzbar zu machen, muss dieser ohne größere Vakuumeinbrüche ins Spektrometer geleitet werden. Man schält dazu mittels einer kegelförmigen Blende, dem *Skimmer*, die inneren Bereiche der *zone of silence* heraus und erhält so einen kaum divergenten Gasstrahl. In einigem Abstand treten die Gasteilchen dann durch einen zweiten *Skimmer* hindurch in die eigentliche Experimentierkammer und werden dort mit dem Projektilstrahl gekreuzt. Dieser Aufbau wird als zweistufiger Jet bezeichnet und verhindert wirkungsvoll einen Restgasfluss in die Targetkammer. Außerdem sorgt die starke Kollimation des Gasstrahls für ein entsprechend kleines Reaktionsvolumen im Spektrometer.

Der überwiegende Teil der Gasteilchen im Jet nimmt allerdings nicht an einer Reaktion mit Projektilionen teil und durchfliegt die Reaktionszone ungehindert. Über eine Blende von etwa 12 mm Durchmesser gelangen sie in eine weitere Vakuumkammer, den *Jetdump*. Der röhrenförmige Aufbau der Eintrittsblende verhindert dabei, dass das Gas wieder zurück in die Targetkammer gelangen kann und dort den Restgasdruck erhöht. Mit einer Turbomolekularpumpe wird das Gas im *Jetdump* abgepumpt. Abbildung 3.3 zeigt schematisch die Jeterzeugung und enthält zudem wichtige Abmessungen der beiden Expansionskammern.

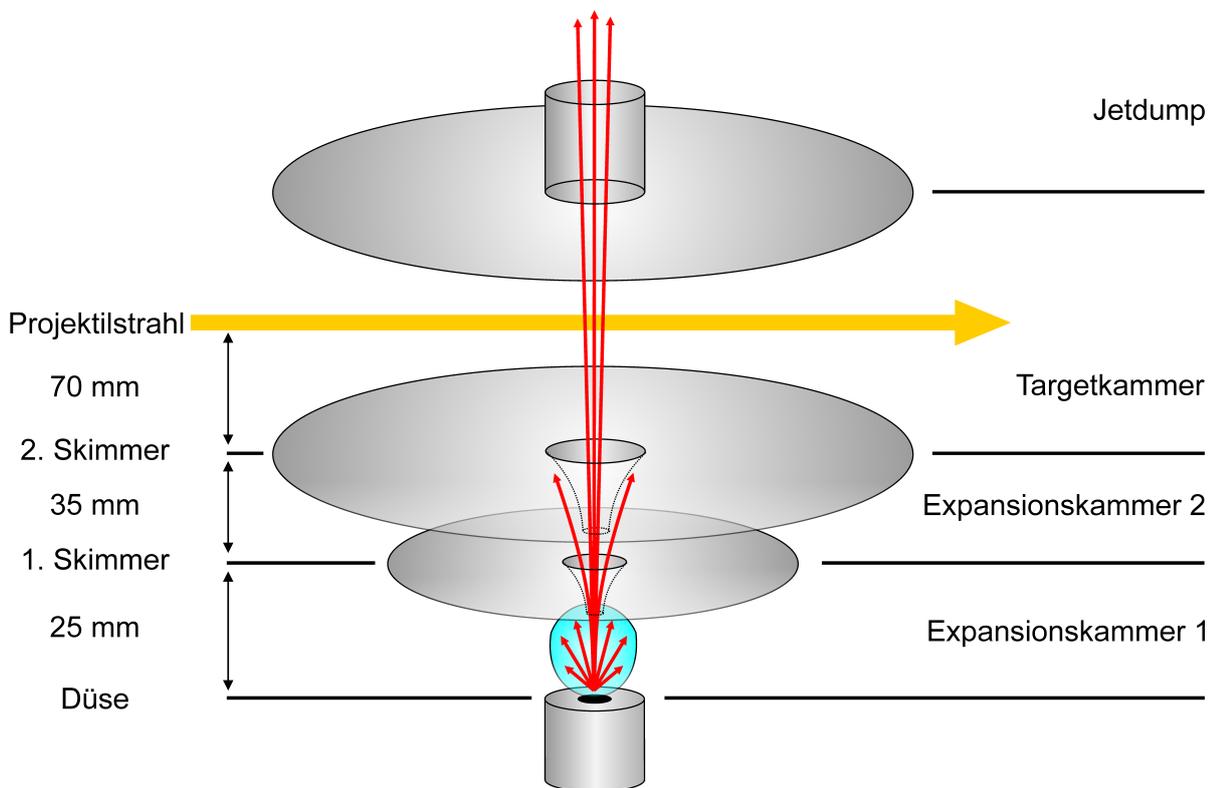


Abbildung 3.3: Erzeugung des Gasjets, schematisch; gezeigt sind die geometrischen Abmessungen der Expansionskammern 1 und 2. Die Höhe der *Skimmer* beträgt 21 mm für den 1. *Skimmer* und 4 mm für den zweiten *Skimmer*.

3.3 Das Vakuumsystem

Um eine ausreichende freie Weglänge aller an der Reaktion beteiligten Partikel zu gewährleisten und eine Jeterzeugung wie in Kapitel 3.2 - Das Gastarget beschrieben überhaupt erst möglich zu machen, muss in der gesamten Experimentierkammer Ultrahochvakuum (hier im Bereich von 10^{-9} mbar) erzeugt werden. An der Kammer selbst wie auch an den Strahlrohren kommen dazu verschiedene Vakuumpumpen zum Einsatz.

Die Erzeugung des Vorvakuums übernehmen zwei Drehschieberpumpen. Diese sind auf der Abgasseite der Hauptpumpen angeflanscht und erreichen im alleinigen Betrieb einen Enddruck im Bereich von 10^{-3} mbar. Im Bereich des Ultrahochvakuums werden hauptsächlich Turbomolekularpumpen verwendet. Deren Arbeitsprinzip beruht darauf, dass die Gasteilchen zufällig an den sich drehenden Rotorscheufeln haften bleiben. Lösen sie sich wieder ab, verleihen ihnen die Rotorblätter eine Impulskomponente in Förderrichtung, so dass sie die Apparatur verlassen können. An den Expansionskammern kommen jeweils eine, an der Targetkammer vier und am Jetdump eine Turbomolekularpumpe zum Einsatz. Deren Saugleistungen sind in Tabelle 3.1 aufgelistet.

Ferner wird der Restgasdruck in der Targetkammer durch eine Kühlfalle weiter reduziert. In der Kammer befinden sich fächerartig angeordnete Kupferbleche. Diese werden durch ein von außen zugängliches Edelstahlrohr mit flüssigem Stickstoff gekühlt. Restgasatome kondensieren an diesen kalten Flächen und werden so dem Kammervolumen entzogen. Die nachfolgende Tabelle 3.1 gibt einen Überblick über die üblichen Restgasdrücke in der Apparatur.

Das Vakuumsystem an den Strahlrohren steht größtenteils unter der Aufsicht der Beschleunigermannschaft und bedarf daher hier keiner Erwähnung.

	Saugleistung [l/s]	Restgasdruck [$mbar$]
Expansionskammer 1	1000	$1,1 \cdot 10^{-8}$
Expansionskammer 2	220	$2,1 \cdot 10^{-8}$
Targetkammer	$500 + 3 \times 220$	$6,3 \cdot 10^{-8}$
Jetdump	220	$1,0 \cdot 10^{-8}$

Tabelle 3.1: Saugleistungen der eingesetzten Turbomolekularpumpen und typische Restgasdrücke (ohne Jetbetrieb)

3.4 Die Strahlführung

Die für dieses Experiment verwendeten Projektile wurden vom institutseigenen $2,5\text{ MV}$ Van-de-Graaff-Beschleuniger bereitgestellt. Noch in der Strahlenschutzeinhausung wird der Ionenstrahl mit Umlenk- und Schaltmagneten in das Strahlrohr injiziert. Dort wird er anschließend von Kollimatorblenden in seiner Ausdehnung begrenzt. Die ersten beiden Blendenpaare definieren dabei die Strahlachse, der dritte Kollimator schirmt Sekundärelektronen ab, die von Projektionen aus den ersten beiden Blenden geschlagen wurden.

Wechselwirken die Projektionen auf ihrem Weg durchs Strahlrohr mit Restgasteilchen, können Umladungen stattfinden. Um den Ionenstrahl von Teilchen mit unerwünschten Ladungszuständen zu befreien, ist unmittelbar vor der Kammer ein Kondensatorplattenpaar installiert. Dieser so genannte *Beamcleaner* lenkt die verschiedenen Ladungszustände elektrostatisch ab. Er erlaubt es so, umgeladene Teilchen von denen mit Soll-Ladungszustand zu trennen. Ein zweites Kondensatorplattenpaar ist nach der Reaktionszone im Strahlrohr montiert. Seine Platten sind um 90° gegenüber denen des *Beamcleaners* verdreht. Dieser zweite Deflektor wird *Analysator* genannt und erlaubt es, Teilchen zu sondieren, die in der Reaktionszone umgeladen wurden. Die Strahlführung sowie einige charakteristische Abmessungen des Aufbaus zeigt Abbildung 3.4.

3.5 Das Spektrometer

Das verwendete Spektrometer besteht aus Kupferplatten von 16 cm Kantenlänge, die im Abstand von etwa $0,5\text{ cm}$ von vier Keramikstangen gehalten werden. In der Mitte jeder Platte befindet sich ein kreisrundes Loch von 13 cm Durchmesser, durch das die Reaktionsprodukte ungehindert zu den Detektoren gelangen können. Die Platten sind über $330\text{ k}\Omega$ -Widerstände miteinander verbunden. Durch Anlegen einer entsprechend hohen Spannung wird im Inneren des Spektrometers ein elektrisches Feld von etwa 40 V/cm erzeugt, das Elektronen und Recoilionen auf die jeweiligen Detektoren projiziert. Die Beschleunigungsstrecke beträgt $2,6\text{ cm}$ auf der Recoilionenseite und 20 cm auf der Elektronenseite. Daran schließen sich jeweils feldfreie Driftstrecken an, auf der Recoilionenseite $5,2\text{ cm}$ und auf der Elektronenseite 20 cm . Abbildung 3.5 zeigt einen Blick von oben auf die Experimentierkammer und das Spektrometer.

Die Reaktionszone besitzt in Abhängigkeit von Jetaufweitung und Querschnitt des Projektilestrahls eine kleine, aber nicht vernachlässigbare Ausdehnung. Die Reaktionsprodukte legen

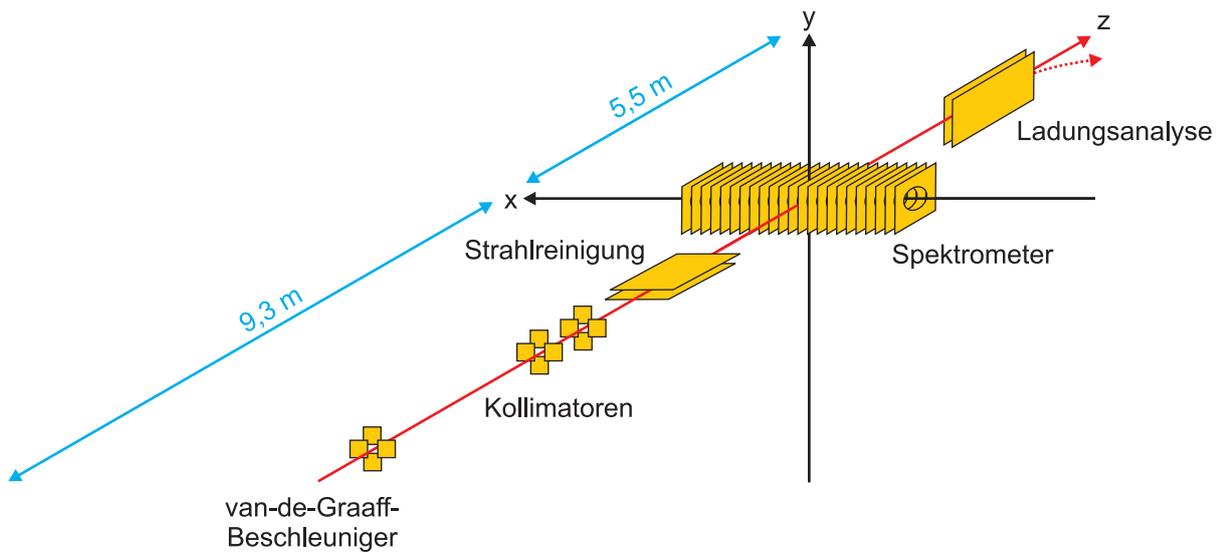


Abbildung 3.4: Strahlführung und Abmessungen am COLTRIMS-XXL-Aufbau, schematisch.

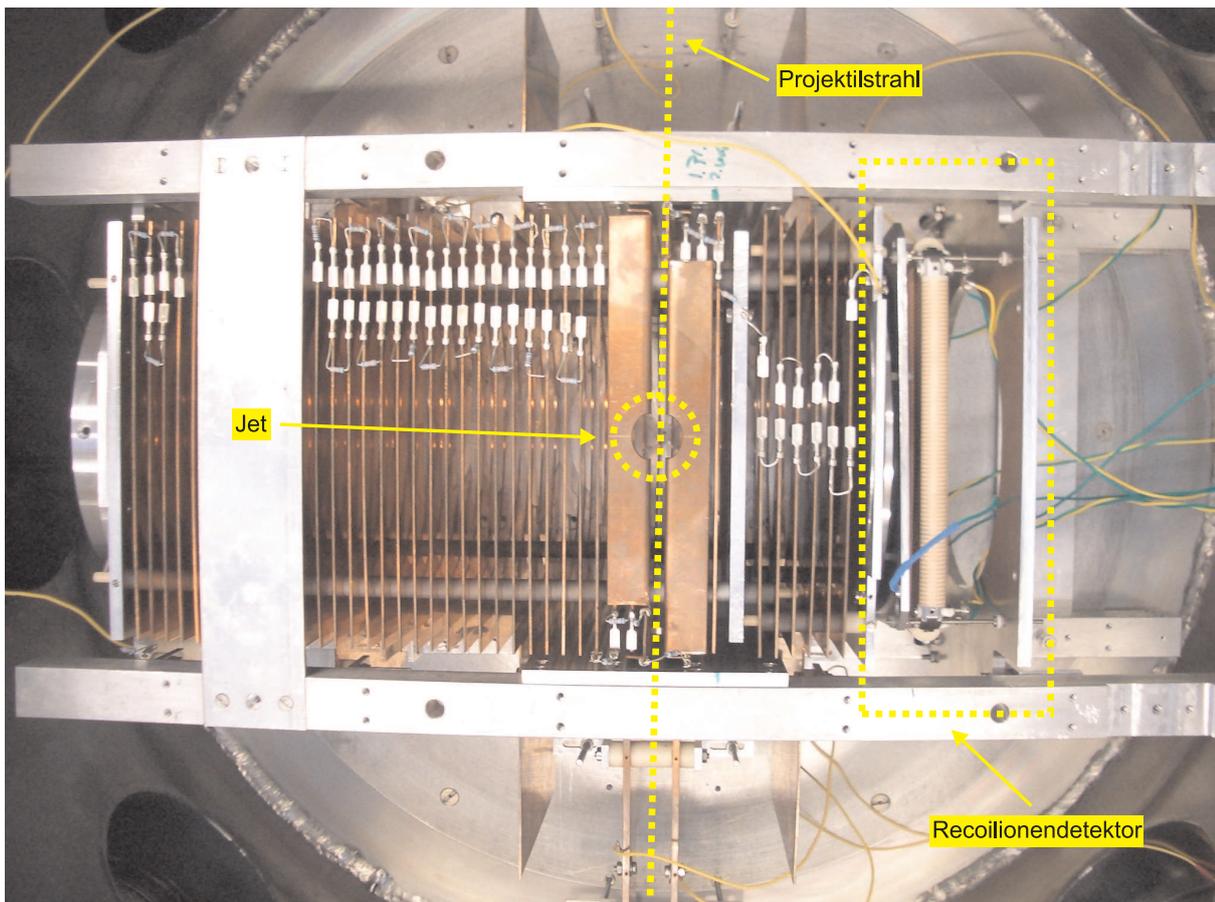


Abbildung 3.5: Blick von oben in die Experimentierkammer; der Jet verläuft dem Betrachter entgegen, der Projektionenstrahl von oben nach unten. Zu sehen am rechten Rand des Spektrometers der Recoilendetektor, linksseitig schließt sich die Elektronen-Driftröhre an (nicht im Bild).

deshalb je nach Entstehungsort unterschiedlich lange Wege im Spektrometer zurück. Teilchen, die große Strecken im elektrischen Feld zurücklegen, nehmen dabei mehr kinetische Energie auf und erreichen so höhere Driftgeschwindigkeiten. Damit zur gleichen Zeit entstandene Teilchen auch nach derselben Flugzeit nachgewiesen werden, wird eine Driftstrecke eingeführt. Die schnelleren Teilchen können im feldfreien Raum aufschließen. Somit werden systematische Fehler bei der Flugzeitmessung und darauf aufbauend bei der Berechnung der Impulse vermieden. Der längenmäßige Zusammenhang zwischen Beschleunigungs- und Driftstrecke wird in Abschnitt 4.3.1 - Bewegung im elektrischen Feld näher beschrieben.

Um bei gegebenem elektrischen Absaugfeld mehr Raumwinkelakzeptanz für den Elektronendetektor zu erhalten, wird dem elektrischen Feld ein homogenes Magnetfeld überlagert. Dieses zwingt die Elektronen auf Gyrationbahnen. Die mehrere tausend mal schwereren Ionen bleiben davon quasi unbeeinflusst. Zwei außen am Haltegestell der Kammer befestigte Helmholtz-Spulenpaare erzeugen das erforderliche Magnetfeld (zu sehen in Abbildung 3.6). Die Bewegung der Elektronen wird später im Unterkapitel 4.3.2 - Bewegung im magnetischen Feld noch ausführlich beschrieben.

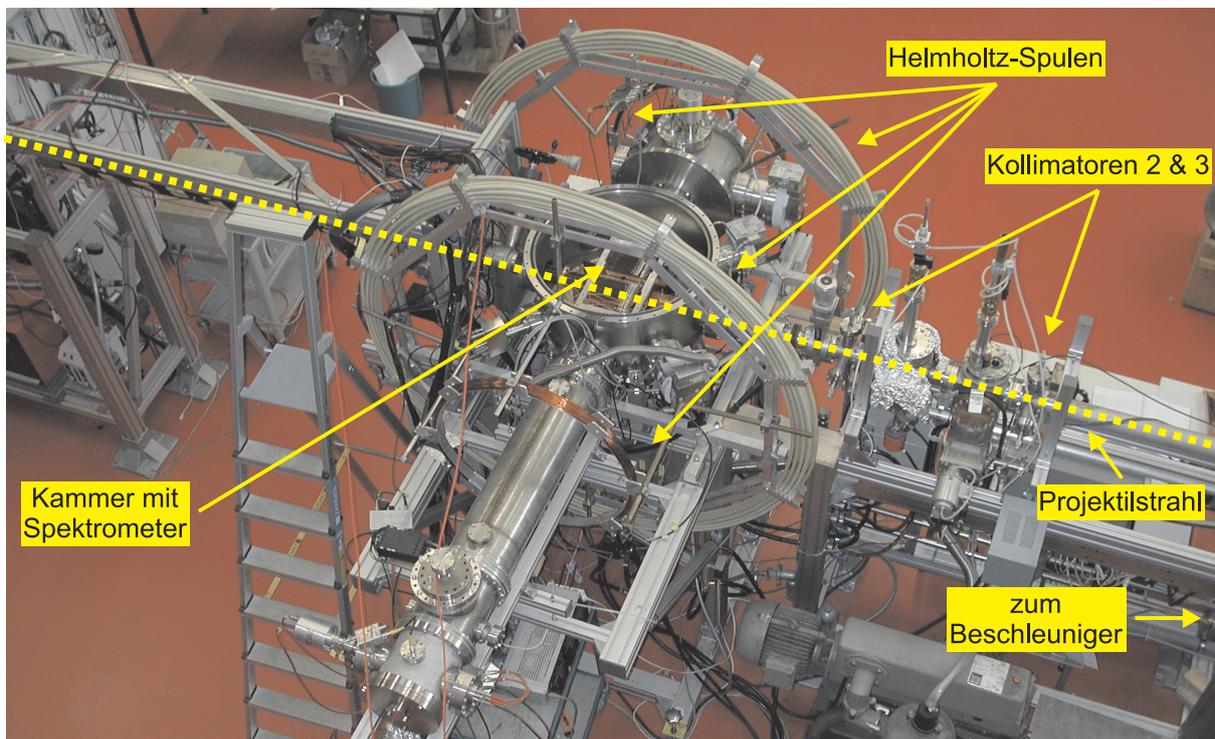


Abbildung 3.6: Kammer mit Spektrometer und Helmholtzspulen sowie Abschnitte des Projektionsrohrs.

3.6 Die Detektoren

Für den Teilchennachweis werden *Micro Channel Plates (MCP)* mit nachgeschalteten *Delay-line*-Anoden verwendet. *MCPs* sind kreisrunde Scheiben aus Bleiglas mit einer speziellen Beschichtung, die die Elektronen-Austrittsarbeit senkt. Die *MCPs* haben gewöhnlich Durchmesser im Bereich von 40 bis 120 *mm* und sind auf der gesamten aktiven Fläche von Kapillaren

durchzogen. Diese haben einen Durchmesser von $25\ \mu\text{m}$ und etwa $32\ \mu\text{m}$ Abstand voneinander, zusätzlich sind sie bis zu 15° gegen die Horizontale verkippt.

Trifft ein geladenes Teilchen auf die Kanalwand, so werden aus dieser Sekundärelektronen herausgeschlagen. Über ein von außen angelegtes Potentialgefälle (üblicherweise im Bereich von $1000\ \text{V}$) werden diese in Richtung *MCP*-Rückwand beschleunigt. Jedes dieser Elektronen setzt seinerseits wieder Sekundärelektronen frei, wenn es erneut auf die Kanalwand trifft (siehe dazu Abbildung 3.7). Auf diese Weise findet eine kaskadenartige Elektronenvervielfachung statt, wodurch pro *MCP* eine Verstärkung von etwa 10^3 erreicht wird. Limitierend sind Raumladungseffekte, die verhindern, dass die Elektronen genügend Energie aufnehmen, um ihrerseits weitere Sekundärelektronen auslösen zu können.

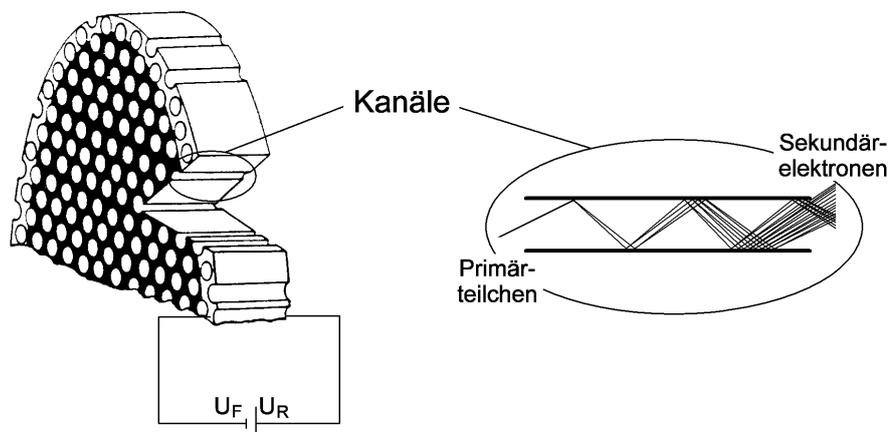


Abbildung 3.7: Funktionsprinzip eines *MCPs* (entnommen aus [Ach99]); das Primärteilchen setzt beim Auftreffen auf die Kanalwand Sekundärelektronen frei. Diese werden durch die angelegte Spannung beschleunigt und lösen bei erneutem Auftreffen auf die Kanalwand ihrerseits Sekundärelektronen aus. Die Verstärkung erreicht so Werte von etwa 10^3 .

Um die Verstärkung noch weiter zu steigern, werden meist zwei oder gar drei *MCPs* hintereinander geschaltet. Dabei werden die Platten um jeweils 180° gedreht angeordnet, so dass die Kanäle im Inneren im Zickzack verlaufen. Dadurch wird verhindert, dass Teilchen auf direktem Wege und ohne Wandkontakt einen Kanäle durchlaufen. Bei zwei *MCPs* spricht man hierbei von der *Chevron*-Anordnung, bei drei *MCPs* vom *z-Stack*.

Verlässt die Elektronenwolke das *MCP*, wird diesem Ladung entzogen und es fließt kurzzeitig ein Strom. Der damit verbundene kurze Spannungspuls wird kapazitiv ausgekoppelt und als Zeitsignal für die Messung verwendet.

Die eigentliche Ortsbestimmung wird erst mit der *Delayline*-Anode möglich. Es wird unterschieden zwischen den zweilagigen, quadratischen *Quad*-Anoden und den dreilagigen, sechseckigen *Hex*-Anoden. Jede Lage besteht aus dünnem Kupferdraht, der über Keramiken um einen speziellen Halter, oft *Holder* genannt, gewickelt wird. Bei *Quad*-Anoden stehen beide Drahtebenen im rechten Winkel zu einander, bei *Hex*-Anoden beträgt der Winkel 60° . Die Anode wird gegenüber dem hinteren *MCP* auf positives Potential gelegt und wirkt so attraktiv auf die Elektronen, die das *MCP* verlassen haben.

Die Größe bzw. der Durchmesser der Anoden und damit die Länge der Drähte wird so gewählt,

3.7 Die Datenauslese

Die Datenauslese dieses Experiments muss insgesamt 31 Signale verarbeiten. Jeder Detektor liefert dabei ein *MCP*-Signal sowie die Signale auf Signal- und Referenzdraht von beiden Drahtenden jedes *Layers*. Alle Signale werden kapazitiv ausgekoppelt. Pulstransformatoren übernehmen dabei die Differenzbildung zwischen Signal- und Referenzdraht und präparieren so ein störungsfreies Signal heraus. Die Anzahl der Signale reduziert sich dadurch auf jeweils fünf für die *Quad*-Anoden (Projektil- und Recoilionendetektor) beziehungsweise sieben für den *Hex*-Detektor (Elektronendetektor). *Fast Amplifier* verstärken danach die Signale, bevor *Constant Fraction Discriminator*-Module die Sinussignale durch verschiedene Rechenoperationen in NIM-Standard-Rechtecksignale überführen. Das *MCP*-Signal des Projektildetektors wird in einem *Linear Fan* dubliziert, um es zusätzlich als Triggersignal verwenden zu können. Mit einem *Time to Digital Converter* werden alle Signale an die Aufnahmesoftware *CoboldPC* übergeben [Roe08]. Abbildung 3.9 zeigt die Verschaltung der Datenaufnahme.

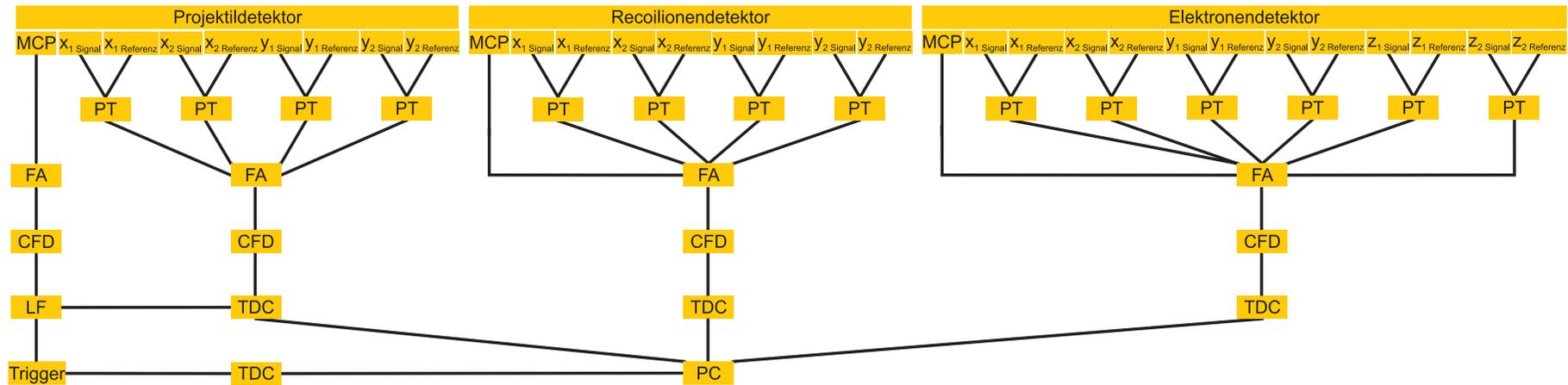


Abbildung 3.9: Verschaltung der Ausleselektronik; Pulstrafos (*PT*) sorgen für die Differenzbildung zwischen Signal- und Referenzdraht, *Fast Amplifier* (*FA*) verstärken die Signale im Anschluss. Anschließend erfolgt die Umwandlung in NIM-Standard-Rechtecksignale mit *Constant Fraction Discriminator*-Modulen (*CFD*). Die Datenübertragung an den PC übernehmen *Time to Digital Convertern* (*TDC*). Das *MCP*-Signal des Projektildetektors wird mit einem *Linear Fan* (*LF*) dubliziert und als Triggersignal für die Messung verwendet.

Kapitel 4

Auswertung der Messdaten

Üblicherweise werden die Rohdaten während der Messung als *listmode-files* (*.lmf) abgespeichert. Darin als Information enthalten sind die Eingangszeitpunkte der einzelnen Detektorsignale für jeden Kanal des *TDC*. Je nach Ausführung des Detektors sind das vier (*Quad-Anode*) bzw. sechs (*Hex-Anode*) Anodensignale und ein *MCP*-Signal. Werden die Rohdaten später zur Analyse wieder in den PC geladen, so läuft das gesamte Experiment virtuell „noch einmal ab“. Alle in Frage kommenden Messgrößen lassen sich anschließend, wie im Folgenden beschrieben, aus den gespeicherten Zeitinformationen berechnen.

4.1 Analyse der Rohdaten

Die Analyse der aufgenommenen Rohdaten beginnt damit, dass die gespeicherten Zeiten in ihre physikalische Entsprechung überführt werden. Der Prozess stützt sich im Wesentlichen auf die *lmf2root*-Routine [Cza11]. Dieses Programm automatisiert erste essentielle Schritte. Darunter fallen beispielsweise die Darstellung von Hitverteilungen der einzelnen *TDC*-Kanäle und die Berechnung der Zeitsummen für die verschiedenen Anodenlagen. Auch die Berechnung der Auftrefforte der Teilchen auf den Detektoren sowie darauf aufbauend die Erzeugung von Detektor-Ortsbildern geschieht mit *lmf2root*. Auf die fundamentalsten dieser Schritte soll hier etwas näher eingegangen werden:

4.1.1 Ortsberechnung

Der Auftreffort eines Teilchens in einer Dimension berechnet sich als Zeitdifferenz der Signale auf beiden Enden der jeweiligen Anoden-Drahtebene. Weil die Drahtlagen um den *holder* gewickelt sind, liefert jeder *layer* eine Ortsinformation für die senkrecht zur Wicklungsrichtung stehende Koordinate. Über die in *x*-Richtung verlaufende Drahtlage erhält man also den Auftreffort in *y*-Richtung und umgekehrt. Um Missverständnisse zu vermeiden, werden die Drahtlagen deshalb oft mit *u*, *v* und ggf. *w* bezeichnet. Der Auftreffort in *x*-Richtung ist dann beispielsweise

$$x \hat{=} c \cdot \Delta t_u = t_{u_1} - t_{u_2} \quad (4.1)$$

mit den Signallaufzeiten an beiden Enden des u -layers t_{u_1} und t_{u_2} . Dabei geschieht der Übergang von der Zeitdifferenz Δt_u zum eigentlichen Auftreffort x durch einen entsprechenden Umrechnungsfaktor c der Dimension $\frac{\text{mm}}{\text{ns}}$. Man passt diesen an die experimentellen Gegebenheiten an, so dass im Ortsbild der (vorher bekannte) aktive Durchmesser des Detektors richtig wiedergegeben wird. Der Fehler von c hängt also hauptsächlich von der Unsicherheit in der Bestimmung des aktiven Detektordurchmessers ab. Ein beispielhaftes Ortsbild zeigt Abbildung 4.1:

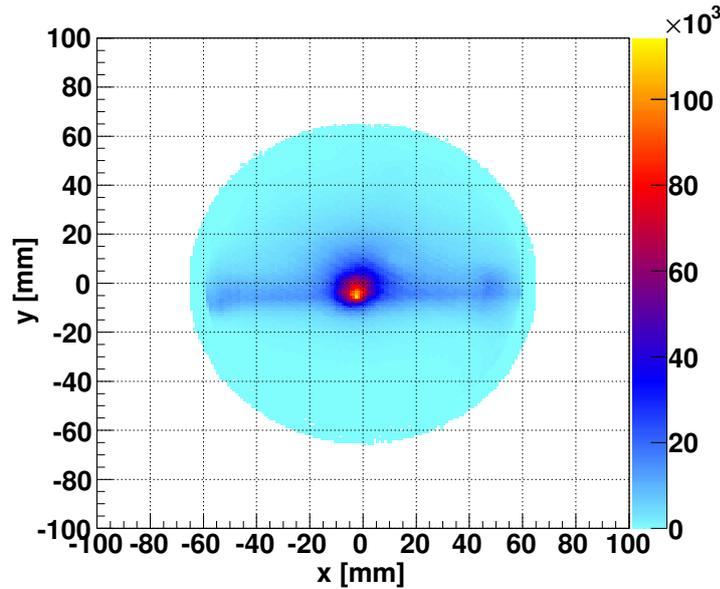


Abbildung 4.1: Beispielhaftes Ortsspektrum (Elektron-Detektor, Rohdaten)

4.1.2 Zeitsummenberechnung

Die reine Signallaufzeit auf einer Anoden-Drahtebene ist immer konstant. Somit dürfen Signale an zwei verschiedenen Drahtenden nur dann dem selben Ereignis zugeordnet werden, wenn die Summe ihrer Laufzeiten, die so genannte Zeitsumme t_{sum} , in einem entsprechenden Rahmen mit der für die Drahtlage typischen übereinstimmt. Es ist also beispielsweise

$$t_{sum\ u} = t_{u_1} + t_{u_2}. \quad (4.2)$$

Anhand der Zeitsumme ist es daher möglich, Untergrundereignisse von „echten“ Ereignissen zu unterscheiden. Außerdem können mit *lmf2root* fehlende Anodensignale unter Zuhilfenahme der Zeitsumme rekonstruiert werden. Anschließend werden die rekonstruierten Signale auf Plausibilität geprüft und solche Ereignisse verworfen, die außerhalb der aktiven Fläche des Detektors liegen. Der Rekonstruktionsvorgang an sich ist aber zu komplex, als dass er im Rahmen dieser Arbeit verständlich beschrieben werden könnte und soll nur der Vollständigkeit halber Erwähnung finden.

4.1.3 Ortsnullpunkte

Für fast alle denkbaren Messungen ist es unumgänglich, einen ausgezeichneten Bereich des Detektorbildes als Reaktionsnullpunkt zu definieren. In aller Regel ist das die Mitte der entsprechenden Ortsverteilung. Dies rührt daher, dass im *COLTRIMS*-Messprinzip die Impulse in Detektorebene üblicherweise nach dem Prinzip „Abstand im Ortsraum geteilt durch Flugzeit“ berechnet werden. Der x -Impuls eines Teilchens, dessen Auftreffort in dieser Richtung um eine gewisse Strecke Δx von der Mitte der Verteilung entfernt liegt, wäre demnach

$$p_x \sim \frac{\Delta x}{TOF}. \quad (4.3)$$

Teilchen, deren Auftreffort genau in der Mitte der entsprechenden Ortsverteilung liegt, wird in dieser Dimension Impuls Null zugeordnet. Liegt hingegen der Auftreffort in einer Koordinatenrichtung außerhalb der Mitte der Verteilung, so muss das Teilchen eine Anfangsgeschwindigkeit in diese Richtung besessen haben. Tieferen Einblick in die Berechnung der Teilchenimpulse gibt der entsprechende Abschnitt 4.3 - Berechnung und Eichung der Impulse.

4.1.4 Berechnung der Flugzeiten

In diesem Experiment ist die Flugzeit der Projektile zwischen Reaktionszone und Detektor nur abhängig von deren Geschwindigkeit und der zurückzulegenden Entfernung. Beides sind bekannte Größen, aus denen die Projektilflugzeit berechnet werden kann. Da im vorliegenden Fall das Signal des Projektil-*MCPs* $TOF_{proj, roh}$ als Triggersignal verwendet wurde, sind alle weiteren Flugzeiten um die Projektilflugzeit nach vorne (also zu kleineren Zeiten hin) verschoben. Die korrekten Flugzeiten berechnen sich am Beispiel der Recoil-Flugzeit gemäß

$$TOF_{rec} = TOF_{rec, roh} - TOF_{proj, roh} + TOF_0. \quad (4.4)$$

Dabei steht $TOF_{rec, roh}$ für das Recoil-*MCP*-Signal, TOF_0 ist der so genannte Flugzeitnullpunkt und gleich der Projektilflugzeit. Die Elektronenflugzeit berechnet sich entsprechend genauso.

4.2 Unterdrückung von Untergrund

Um eine weitere Bearbeitung der Daten zu beschleunigen, werden unerwünschte Untergrundergebnisse oder solche, die in der weiterführenden Auswertung nicht berücksichtigt werden sollen, so gut wie möglich aussortiert.

Im vorliegenden Fall wird hierbei der Umstand ausgenutzt, dass die Transferionisation immer mit einem Einfelelektroneneinfang einhergeht. Das Projektil, welches das Triggersignal liefert, ist elektrisch ungeladen und trifft so in einer eng begrenzten Region auf dem Projektildetektor auf, der *capture*-Verteilung. Eine Abfrageschleife im Auswertecode stellt sicher, dass nur Ereignisse weiter verwendet werden, für die der Trigger von einem solchen neutralen Projektil ausgelöst wurde. Die zwei Spektren in Abbildung 4.2 zeigen den zugehörigen Kreisschnitt im Projektil-Ortsbild.

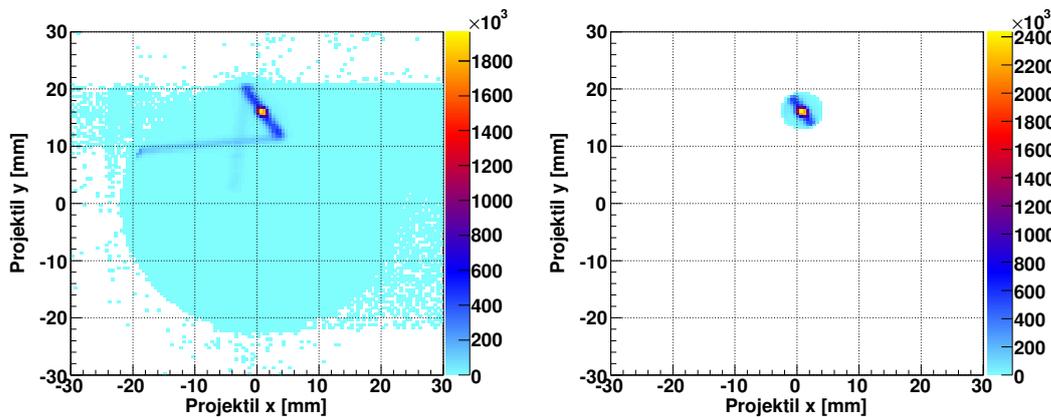


Abbildung 4.2: Projektildetektor Ortsverteilung; links ohne Schnitt, rechts mit Kreisschnitt auf die *capture*-Verteilung (neutrale Projektile). Der Kreisschnitt entspricht etwa 6 mrad maximalem Streuwinkel. Die Linien höherer Intensität resultieren aus Umladungen im Strahlrohr.

Untersucht werden soll der Aufbruch des Wasserstoffmoleküls in zwei Protonen. Es werden daher nur Ereignisse weiter analysiert, für die mindestens zwei Teilchen auf dem Recoilionsdetektor nachgewiesen werden konnten.

Trägt man weiterhin die Flugzeit des ersten Hits auf dem Recoilionsdetektor gegen die des zweiten auf, so erhält man das so genannte *PIPICO*-Spektrum (von **P**hoto-**I**on **P**hoto-**I**on **C**oincidence, ein Begriff aus der Laser- und Synchrotron-Physik). Stammen zwei Teilchen aus dem Aufbruch ein- und desselben Moleküls, so finden sich die entsprechenden Einträge auf einer Diagonalen im *PIPICO*. Dieser Umstand erklärt sich anschaulich wie folgt: Wenn das erste der beiden (in diesem Fall) Protonen einen Anfangsimpuls in Richtung des Recoilionsdetektors besitzt, hat es dementsprechend eine besonders kurze Flugzeit. Aus Gründen der Impulserhaltung bei der Coulombexplosion muss das zweite Proton zwangsläufig in die entgegengesetzte Richtung gestartet sein und es besitzt eine größere Flugzeit. Eine übliche Methode zur Untergrundunterdrückung ist es deshalb, eine Bedingung auf die *PIPICO*-Linie zu setzen, also nur Ereignisse weiter zu betrachten, die auf dieser Diagonalen liegen. In Abbildung 4.3 sind das ungeschnittene *PIPICO*-Spektrum sowie das mit Bedingung auf den H^+H^+ -Aufbruch zu sehen.

Bei der Transferionisation gelangt außerdem ein Elektron ins Kontinuum, weshalb auch in der Analyse der Nachweis eines Elektrons gefordert wird. Dessen Flugzeit muss in einem gewissen Fenster liegt, andernfalls wird das Ereignis nicht weiter analysiert.

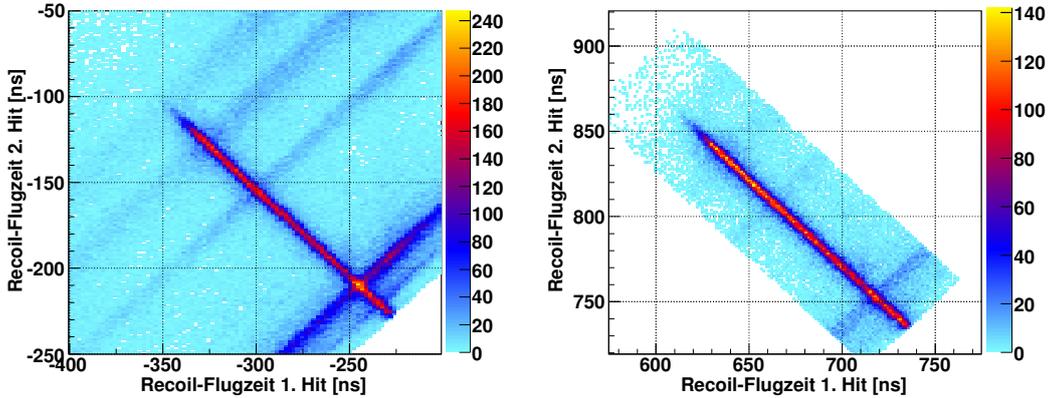


Abbildung 4.3: ungeschnittenes *PIPICO*-Spektrum mit H^+H^+ -Linie (unkorrigierte Flugzeiten) und mit Schnitt auf diese Linie (rechts, Flugzeiten korrigiert).

4.3 Berechnung und Eichung der Impulse

Nachdem durch die im vorigen Abschnitt beschriebenen Maßnahmen die zu verarbeitende Datenmenge signifikant reduziert werden konnte, geschieht nun der Übergang vom Orts- in den Impulsraum. Um die beschriebenen Schritte zur Berechnung der Impulse der einzelnen Teilchen nachvollziehbar zu machen, ist es unumgänglich, an dieser Stelle kurz auf die relevanten physikalischen Zusammenhänge einzugehen. Diese beschränken sich im Wesentlichen auf die Beschreibung der Teilcentrajektorien im elektrischen und magnetischen Feld des Spektrometers. Das elektrische Feld spielt dabei insbesondere eine Rolle bei der Berechnung der Recoilionen- und Elektronenimpulse entlang der Spektrometerachse (x -Richtung), während das magnetische Feld im Rahmen üblicher *COLTRIMS*-Messungen nur bei der Berechnung der Elektronenimpulse in den Ortsrichtungen (zy -Ebene) berücksichtigt werden muss.

4.3.1 Bewegung im elektrischen Feld

Im homogenen elektrischen Feld des Spektrometers sind alle geladenen Teilchen der Coulombkraft ausgesetzt. Die Beschleunigung a , die die Teilchen dadurch erfahren, ist proportional zu ihrer spezifischen Ladung q/m und zum Betrag der elektrischen Feldstärke E ,

$$a = E \cdot \frac{q}{m}. \quad (4.5)$$

Der von den Teilchen zurückgelegte Weg ergibt sich daraus durch zweimalige Integration, es ist

$$x_B = \frac{1}{2} a t_B^2 + v_x \cdot t_B. \quad (4.6)$$

t_B steht dabei für die Zeit, die die Teilchen mit Anfangsgeschwindigkeit v_x in x -Richtung brauchen, bis sie die Beschleunigungsstrecke x_B im Feld zurückgelegt haben. Umgeformt nach t_B ergibt sich

$$t_B = -\frac{v_x}{a} + \sqrt{\frac{v_x^2 + 2ax_B}{a^2}}, \quad (4.7)$$

und zusammen mit dem Geschwindigkeit-Zeit-Gesetz der beschleunigten Bewegung $v_B = at_B + v_x$ erhält man für die Geschwindigkeit der Teilchen nach der Beschleunigungsstrecke

$$v_B = a \cdot \left(-\frac{v_x}{a} + \sqrt{\frac{v_x^2 + 2ax_B}{a^2}} \right) + v_x = \sqrt{v_x^2 + 2ax_B}. \quad (4.8)$$

Im vorliegenden Fall besitzt das Spektrometer auch noch eine feldfreie Driftstrecke der Länge x_D , sowohl auf der Ionen-, wie auch auf der Elektronenseite. Diese schließt sich an die Beschleunigungsstrecke an, wird also von den Teilchen mit $v = v_B$ durchflogen. Da es sich um eine gleichförmige Bewegung handelt (ohne elektrisches Feld erfahren die Teilchen auch keine weitere Beschleunigung), ist die dafür benötigte Zeit $t_D = \frac{x_D}{v_B}$. Die Flugzeit der Teilchen ergibt sich dann als Summe der Flugzeiten durch Beschleunigungs- und Driftstrecke

$$TOF = t_B + t_D = -\frac{v_x}{a} + \sqrt{\frac{v_x^2 + 2ax_B}{a^2}} + \frac{x_D}{\sqrt{v_x^2 + 2ax_B}}. \quad (4.9)$$

oder umgeformt

$$TOF = -\frac{v_x}{a} + \sqrt{\frac{x_D}{a}} \cdot \left(\sqrt{\frac{v_x^2 + 2ax_B}{ax_D}} + \sqrt{\frac{ax_D}{v_x^2 + 2ax_B}} \right). \quad (4.10)$$

Die Driftröhre dient dazu, den Einfluss der Targetausdehnung in Flugzeitrichtung auszugleichen. Teilchen, die weiter entfernt vom Detektor erzeugt werden, legen einen längeren Weg im Feld zurück und nehmen daher mehr kinetische Energie auf. Die damit verbundene höhere Driftgeschwindigkeit erlaubt es ihnen, innerhalb der feldfreien Driftstrecke langsamere, in geringerer Entfernung vom Detektor gestartete Teilchen einzuholen. Ziel ist es nun, den Detektor genau in die Ebene zu stellen, in der alle zeitgleich (und mit gleichem Anfangsimpuls) gestarteten Teilchen gleichauf sind, sie also nach derselben Flugzeit nachgewiesen werden. Anders formuliert: Wann ist die Gesamtflugzeit TOF nahezu unabhängig von der exakten Länge der durchflogenen Beschleunigungsstrecke x_B ? Die Beantwortung dieser Frage kann durch Ableiten des Ausdruckes (4.10) geschehen (siehe dazu beispielsweise [Sch02]). Unter der Annahme, dass die im Feld aufgenommene kinetische Energie groß ist gegen die Anfangsenergie der Teilchen, erhält man als Ergebnis dieser Rechnung den Zusammenhang

$$x_D = 2x_B. \quad (4.11)$$

Die Driftstrecke muss also doppelt so lang sein wie die Beschleunigungsstrecke, um den Einfluss der Targetausdehnung in Flugzeitrichtung und damit die unterschiedlich lange Verweildauer der Teilchen im elektrischen Feld des Spektrometers zu korrigieren [WM55]. Mit dieser Bedingung sowie weiteren, aus oben zitierter Berechnung folgenden Vereinfachungen für den Fall kleiner Geschwindigkeiten berechnen sich die Flugzeiten der Teilchen durch

$$TOF = -\frac{v_x}{a} + \sqrt{\frac{x_D}{a}}. \quad (4.12)$$

Den Anfangsimpuls p_x in x -Richtung sowohl der Recoilionen als auch der Elektronen erhält man als Produkt ihrer Anfangsgeschwindigkeit v_x in dieser Richtung und ihrer Masse m ,

$$p_x = mv_x = m \cdot (2\sqrt{ax_D} - a \cdot TOF). \quad (4.13)$$

Mit Gleichung 4.5 erhält man letztendlich

$$p_x = m \cdot \left(2\sqrt{\frac{qE}{m} \cdot x_D} - \frac{qE}{m} \cdot TOF \right) = 2\sqrt{qEmx_D} - qE \cdot TOF. \quad (4.14)$$

Unter Ausnutzung der Rotationssymmetrie um die Projektionstrahlachse ergibt sich eine symmetrische Flugzeitverteilung um die Flugzeit für Impuls $p_x = 0$. Der Impuls des Teilchens ist dann proportional zum Abstand zum Mittelpunkt dieser Verteilung ΔTOF ,

$$p_x = qE \cdot \Delta TOF. \quad (4.15)$$

Die Recoil-Impulskomponenten in den Ortsrichtungen, also z (vertikal) und y (horizontal), sind wesentlich einfacher zu berechnen. Wie weiter oben im Abschnitt 2.1.3 - Ortsnullpunkte schon angedeutet, wird denjenigen Teilchen, die in der Mitte der Ortsraumverteilung auf dem Detektor landen, Anfangsimpuls Null zugeordnet. Landet ein Teilchen außerhalb der Mitte, muss es einen Anfangsimpuls in diese Richtung besessen haben. Da es sich hierbei um eine gleichförmige Bewegung senkrecht zum elektrischen Feld handelt, sind die damit verknüpfte Anfangsgeschwindigkeiten v_z und v_y gleich dem Quotienten aus den Ortsdifferenzen Δz bzw. Δy und der Flugzeit TOF . Man kann also für die beiden verbleibenden Impulskomponenten schreiben

$$\begin{aligned} p_z &= c_z \cdot m \cdot v_z = c_z \cdot m \cdot \frac{r_z}{TOF}, \\ p_y &= c_y \cdot m \cdot v_y = c_y \cdot m \cdot \frac{r_y}{TOF}. \end{aligned} \quad (4.16)$$

Hierbei stehen m für die Masse der Ionen (in diesem Fall also die Protonenmasse m_{H^+}), r_z und r_y für die z - beziehungsweise y -Komponenten des Auftrefforts auf dem Detektor und TOF für die Flugzeit der Teilchen. Alle Größen werden dabei in atomaren Einheiten (*a.u.*, mehr dazu auch im Anhang) angegeben. c_z und c_y sind Stretchfaktoren, mit denen die beiden Impulsrichtungen unabhängig voneinander gestreckt oder gestaucht werden können. Das ist für die Eichung der Impulse unumgänglich und wird an späterer Stelle noch eingehend beleuchtet.

Viel schwieriger als für die Ionen ist die Berechnung der z - und y -Impulse der Elektronen. Um bei vergleichsweise geringem elektrischen Feld trotzdem einen großen Raumwinkelbereich abdecken zu können, wird zusätzlich ein homogenes magnetisches Feld angelegt [MUS⁺96]. Dieses hat quasi keinen Einfluss auf die (im Vergleich mehrere tausend mal schwereren und damit auch langsameren) Ionen, zwingt aber die Elektronen in eine Gyrationbewegung (siehe Abbildung 4.4). Problematisch an dieser Gyration ist, dass jetzt nicht mehr ohne Weiteres vom Auftreffort eines Elektrons auf dem Detektor auf seinen Startimpuls geschlossen werden kann. Diese müssen vergleichsweise aufwändig aus ihren Trajektorien rekonstruiert werden, was im folgenden Abschnitt kurz erläutert werden soll.

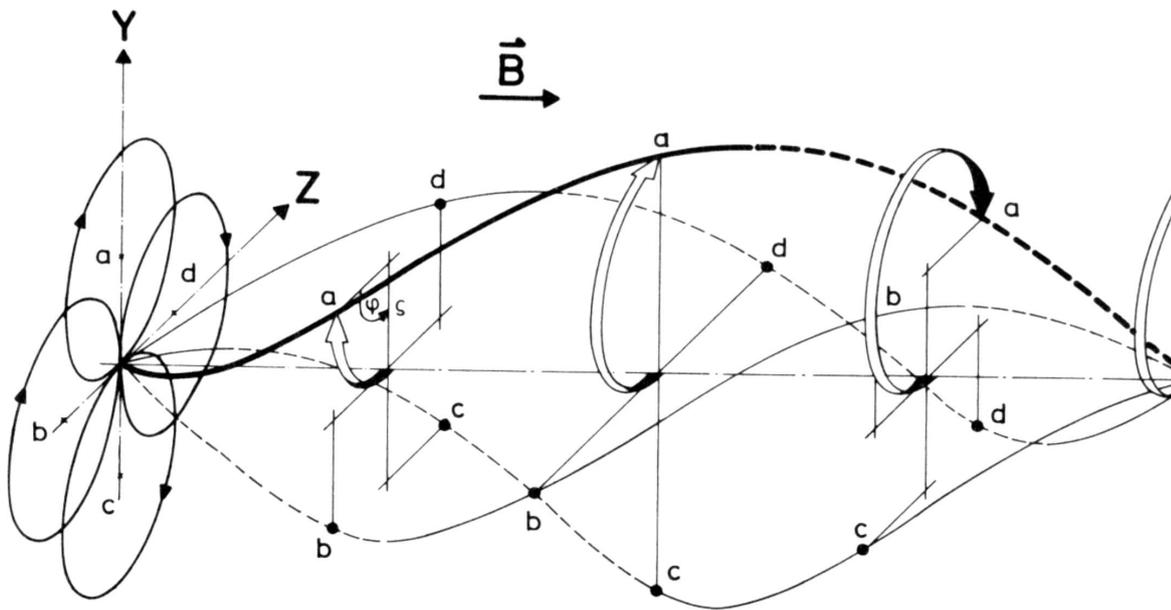


Abbildung 4.4: Veranschaulichung der Gyrationbewegung der Elektronen im Spektrometer; in Abhängigkeit von Richtung und Betrag ihres Anfangsimpulses starten die Elektronen auf unterschiedliche Spiralbahnen. Das homogene Magnetfeld zwingt sie dabei auf eine Kreisbewegung in der yz -Ebene, das elektrische Absaugfeld beschleunigt sie parallel zur Magnetfeldrichtung. Nach einer Gyrationperiode T befinden sich alle Elektronen in der yz -Ebene wieder am selben Punkt (entnommen aus [BG90]).

4.3.2 Bewegung im magnetischen Feld

Das angelegte homogene Magnetfeld der Stärke \vec{B} übt auf alle sich mit Geschwindigkeit \vec{v} bewegende Reaktionsprodukte mit Ladung q eine Kraft aus, die Lorentzkraft

$$\vec{F}_L = q \cdot \vec{v} \times \vec{B}. \quad (4.17)$$

Das Magnetfeld ist so ausgerichtet, dass dessen Feldlinien parallel zur Spektrometerachse liegen. So werden nur die Geschwindigkeitskomponenten der Teilchen in z - und y -Richtung (im Folgenden als v_{\perp} zusammengefasst) beeinflusst. Die Lorentzkraft wirkt als Zentripetalkraft und

zwingt insbesondere die Elektronen im Spektrometer auf eine Kreisbahn mit Radius r (siehe dazu erneut Abbildung 4.4). Beträgsmäßig gilt

$$\frac{mv_{\perp}^2}{r} = qv_{\perp}B. \quad (4.18)$$

Man erhält aus dieser Gleichung die Gyrationperiode T und den zugehörigen Gyrationradius r . Die Gyrationperiode hängt dabei nur von der magnetischen Feldstärke B ab,

$$T = \frac{2\pi r}{v_{\perp}} = \frac{2\pi m}{qB}, \quad (4.19)$$

während der Impuls der Elektronen ausschließlich den Radius der Kreisbahn beeinflusst,

$$r = \frac{mv_{\perp}}{qB} = \frac{p_{\perp}}{qB}. \quad (4.20)$$

Es zeigt sich, dass eine hohe Magnetfeldstärke B einen kleinen Gyrationradius und damit eine hohe Raumwinkelakzeptanz für den Elektronendetektor zu Folge hat. Beträgt die Flugzeit des Elektrons ein Vielfaches der Gyrationperiode T , gilt also

$$TOF = n \cdot T, \quad (4.21)$$

befindet sich das Elektron in der zy -Ebene wieder am selben Ort. Es entsteht ein so genannter Knoten in der Flugzeitverteilung, Elektronen jedweder Emissionsrichtung werden dann auf einem Punkt abgebildet.

Abbildung 4.5 veranschaulicht die Geometrie der Gyrationbewegung der Elektronen in der zy -Ebene, die gleichzeitig die Detektorebene darstellt. Man kann entnehmen, dass folgende Relationen gelten:

$$R^2 = z^2 + y^2, \quad (4.22)$$

$$\left| \sin\left(\frac{\alpha}{2}\right) \right| = \frac{R/2}{r}. \quad (4.23)$$

Die Betragsfunktion berücksichtigt dabei die negativen Funktionswerte des Sinus für Winkel größer als 180° . Für den Drehwinkel α gilt mit Gleichung 4.21

$$\alpha = \text{mod}\left(360 \cdot \frac{TOF}{T}, 360\right). \quad (4.24)$$

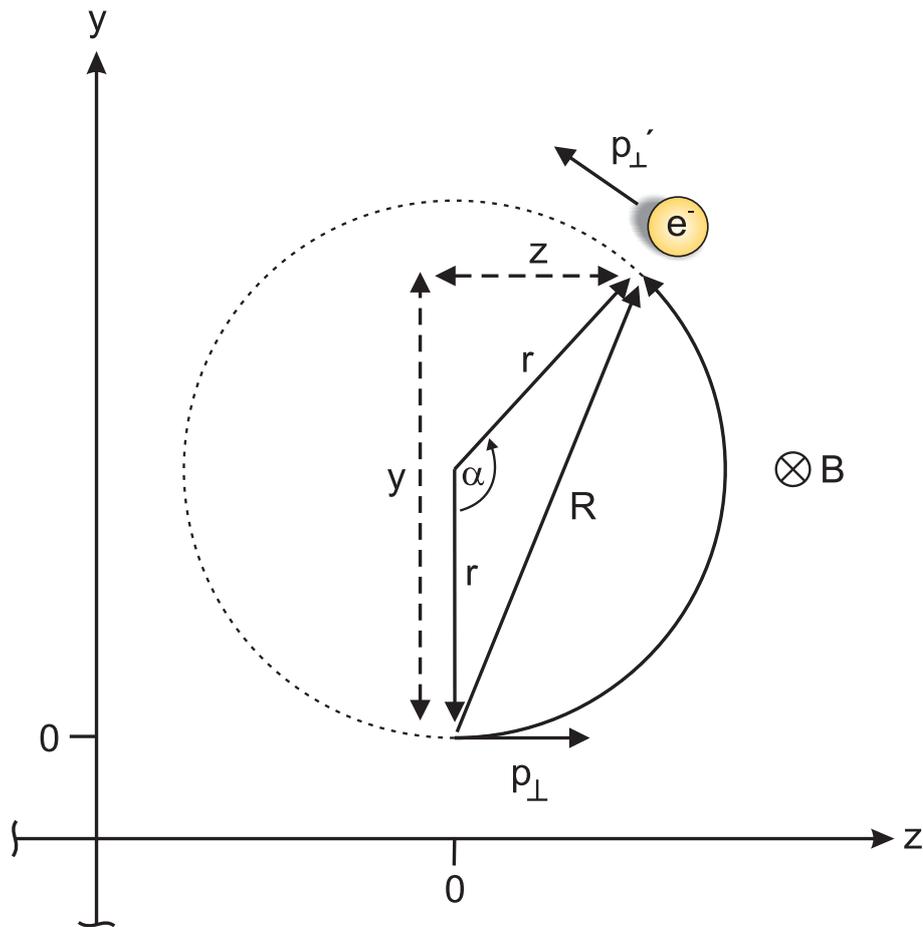


Abbildung 4.5: Geometrie der Gyrationbewegung der Elektronen (zy -Ebene); der Koordinatenursprung wird zur Beschreibung der Gyrationbewegung in den Startort des Elektrons gelegt. Das Elektron wird mit dem Impuls p_{\perp}' in der Detektorebene nachgewiesen, rekonstruiert werden soll der Startimpuls p_{\perp} in der gleichen Ebene.

Aus den Gleichungen 4.22 und 4.23 erhält man nun durch Umformen und Ersetzen der Sinusfunktion

$$r = \frac{R/2}{|\sin(\frac{\alpha}{2})|} = \frac{R/2}{\sqrt{\frac{1-\cos(\alpha)}{2}}} = \frac{R}{\sqrt{2-2\cos(\alpha)}} = \sqrt{\frac{z^2+y^2}{2-2\cos(\alpha)}}. \quad (4.25)$$

Dieser Ausdruck ergibt zusammen mit Gleichung 4.20 für den Impulsbetrag p_{\perp} in der zy -Ebene

$$p_{\perp} = rqB = qB \cdot \sqrt{\frac{z^2+y^2}{2-2\cos(\alpha)}}. \quad (4.26)$$

Nun ist für die genaue Rekonstruktion der Elektronenimpulse nicht nur deren Betrag, sondern vor allem deren Richtung von Interesse. Diese soll durch einen Einheitsvektor \vec{e} beschrieben werden. Dieser ist

$$\vec{e} = \frac{1}{\sqrt{z^2 + y^2}} \cdot \begin{pmatrix} \cos(\alpha/2) & -\sin(\alpha/2) \\ \sin(\alpha/2) & \cos(\alpha/2) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} z \\ y \end{pmatrix}. \quad (4.27)$$

Dann folgt mit $\vec{p}_\perp = p_\perp \cdot \vec{e}$

$$\vec{p}_\perp = \frac{qB}{\sqrt{2 - 2\cos(\alpha)}} \cdot \begin{pmatrix} \cos(\alpha/2) & -\sin(\alpha/2) \\ \sin(\alpha/2) & \cos(\alpha/2) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} z \\ y \end{pmatrix}. \quad (4.28)$$

Die Herleitung ist an dieser Stelle bewusst kurz gehalten, für detailliertere Informationen siehe beispielsweise [Sch06]. Viel wichtiger für das Verständnis des Rekonstruktionsvorgangs ist die Idee hinter diesem: Der gemessene Auftreffort eines Elektrons auf dem Detektor und sein Startort im Reaktionsvolumen definieren zwei fixe Punkte. Durch diese zwei Punkte wird die Kreisbahn der Gyrationbewegung festgelegt. Aus dieser wird dann wiederum mit den oben gefundenen Relationen der Anfangsimpuls des Elektrons rekonstruiert. Dabei ist der Abstand der Punkte auf dem Kreisbogen umso kleiner, je mehr sich das Elektron einer vollen Umdrehung (also dem Fall $TOF = n \cdot T$) annähert, die genaue Festlegung einer Kreisbahn und damit des Startimpulses verkompliziert sich. In einem Knoten fallen schließlich beide Punkte zusammen, es können beliebig viele Kreise hindurch gelegt werden und der Anfangsimpuls bleibt unbestimmt.

Zusammenfassend beinhaltet Tabelle 4.1 noch einmal alle Impulskomponenten für Recoilionen und Elektronen.

	Recoilion	Elektron
p_x	$2\sqrt{eEm_{H^+} \cdot x_D} - qE \cdot TOF$	$2\sqrt{eEm_e \cdot x_D} - eE \cdot TOF$
p_y	$c_y \cdot m_{H^+} \cdot \frac{r_y}{TOF}$	$\frac{qB}{\sqrt{2 - 2\cos(\alpha/2)}} \cdot (z \cdot \sin(\alpha/2) + y \cdot \cos(\alpha/2))$
p_z	$c_z \cdot m_{H^+} \cdot \frac{r_z}{TOF}$	$\frac{qB}{\sqrt{2 - 2\cos(\alpha/2)}} \cdot (z \cdot \cos(\alpha/2) - y \cdot \sin(\alpha/2))$

Tabelle 4.1: Dreidimensionale Impulskomponenten von Recoilion und Elektron

4.3.3 Eichung des elektrischen Feldes

Die Stärke des im Spektrometer anliegenden elektrischen Feldes muss mit sehr hoher Genauigkeit bekannt sein, da sie (wie in Abschnitt 4.3.1 - Bewegung im elektrischen Feld gezeigt) direkt in die Berechnung der Teilchenimpulse eingeht. Zu diesem Zweck werden in der Regel zusätzlich zur eigentlichen Messung Eichmessungen durchgeführt. Man vermisst gut bekannte Reaktionen und vergleicht die daraus gewonnenen Ergebnisse mit Werten aus theoretischen Rechnungen oder ähnlichen Experimenten.

Für diese Messung wurde eine Eichmessung mit molekularem Stickstoff (N_2) als Targetgas durchgeführt. In einem bestimmten Reaktionskanal werden dabei beide Stickstoffatome einfach ionisiert und fliegen als Folge einer *Coulombexplosion* mit entgegengesetzt gleichen Impulsen $\vec{p}_1 = -\vec{p}_2$ auseinander. Der *Kinetic Energy Release*, kurz KER, für diese beiden Ionen berechnet sich dann aus ihren Impulsen und ihrer reduzierten Masse μ gemäß

$$KER = \frac{(p_1 - p_2)^2}{2\mu} \quad (4.29)$$

und ist somit gleich der Summe ihrer kinetischen Energien. Weitere Informationen zum KER enthält auch Unterkapitel 5.2 - Die KER-Verteilung.

Der KER für diesen Reaktionskanal ist sehr genau bekannt, so dass es möglich ist, das anliegende elektrische Feld indirekt zu bestimmen und somit für die eigentliche Messung zu kalibrieren. Aus den nach Tabelle 4.1 berechneten Impulsen wurde dazu eine KER-Verteilung erzeugt und mit der von Lundqvist et al. gemessenen verglichen [LEBW96]. Der Stickstoff-KER zeigt zwei signifikante Peaks bei 7,584 und 10,316 eV. Durch Iteration der elektrischen Feldstärke wurden diese Peaks in der von Lundqvist et al. bestimmten Verteilung und in dem aus der Eichmessung erzeugten Spektrum bestmöglich zum Überlapp gebracht (siehe dazu Abbildung 4.6). Auf diese Weise wurde die elektrische Feldstärke $E = 40,2 \text{ V/cm}$ bestimmt und für die Analyse der eigentlichen Messung verwendet.

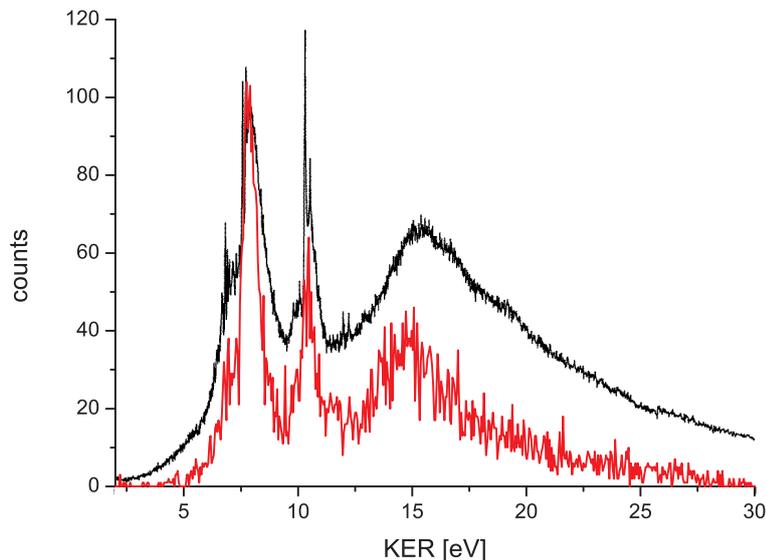


Abbildung 4.6: Vergleich der Stickstoff KER-Verteilungen; Eichmessung für dieses Experiment (rot), Daten von Lundqvist et al. [LEBW96] (schwarz). Die beiden Peaks bei 7,584 und 10,316 eV wurden durch Iteration der elektrischen Feldstärke bestmöglich zum Überlapp gebracht und so die tatsächliche Feldstärke im Spektrometer bestimmt. Der geschätzte systematische Fehler beträgt 1 %.

4.3.4 Eichung des magnetischen Feldes

Neben der elektrischen muss auch die magnetische Feldstärke sehr genau bekannt sein, hängt doch die Rekonstruktion der Elektronimpulse maßgeblich davon ab. Es werden auch hier Eichmessungen durchgeführt, um das anliegende Feld genau zu bestimmen. Das magnetische Feld wird dabei konstant gehalten, das elektrische Feld im Spektrometer jedoch mehrfach variiert. Ziel ist hier, durch Änderung der Flugzeit der Elektronen die Lage und den Abstand der Knoten in deren Flugzeitverteilung zu bestimmen. Mit Gleichung 4.19 kann dann aus dem zeitlichen

Abstand zweier Knoten in der Verteilung die Stärke des magnetischen Feldes bestimmt werden, im vorliegenden Fall betrug sie $B = 10,7 \text{ Gs}$.

Ferner muss im Rahmen der Eichmessung sichergestellt werden, dass magnetische und elektrische Felder zueinander passend gewählt sind und somit die erwartete Elektron-Flugzeitverteilung versetzt zwischen den Knoten liegt. Die übliche Herangehensweise ist hier die Aufnahme eines so genannten *wiggle*-Spektrums. Aufgetragen wird das Quadrat des Auftreffortes der Elektronen $z^2 + y^2$ gegen deren Flugzeit *TOF*. Abbildung 4.7 zeigt skizziert ein solches *wiggle*-Spektrum.

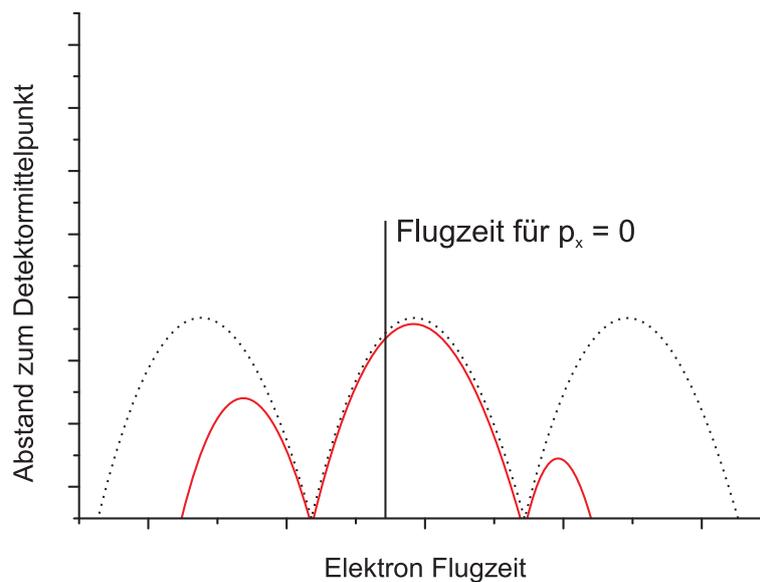


Abbildung 4.7: Beispielhaftes *wiggle*-Spektrum als Skizze; die Flugzeit von Elektronen mit Impuls $p_x = 0$ (rot) liegt asymmetrisch zwischen den Knoten, durch Spiegeln der Verteilung können hier die Nullstellen ausgeglichen werden.

Wie schon in Abschnitt 4.3.2 - Bewegung im magnetischen Feld erwähnt, geht in einem Knoten jegliche Information über den Anfangsimpuls der Elektronen verloren. Liegt die Flugzeitverteilung jedoch wie in Abbildung 4.7 asymmetrisch zwischen den Knoten, können die Nullstellen durch horizontales Spiegeln ausgeglichen und für alle Flugzeiten die Startimpulse rekonstruiert werden. Im optimalen Fall können die Felder so gewählt werden, dass die Flugzeitverteilung vollständig zwischen zwei Knoten passt.

4.3.5 Eichung der Impulse

Um die Fehler bei der Impulsberechnung weiter zu minimieren, werden die Impulse in dreidimensionalen Projektionen betrachtet. Bei nahezu jeder Messung gibt es zumindest einen Reaktionskanal, der eine isotrope, kugelsymmetrische Recoilionen-Impulsverteilung erzeugt. Im vorliegenden Fall ist dies der zu untersuchende Kanal, die *Coulombexplosion* der beiden Protonen. Die Projektionen zeigen dann kreisrunde Strukturen, wie in Abbildung 4.8 zu erkennen.

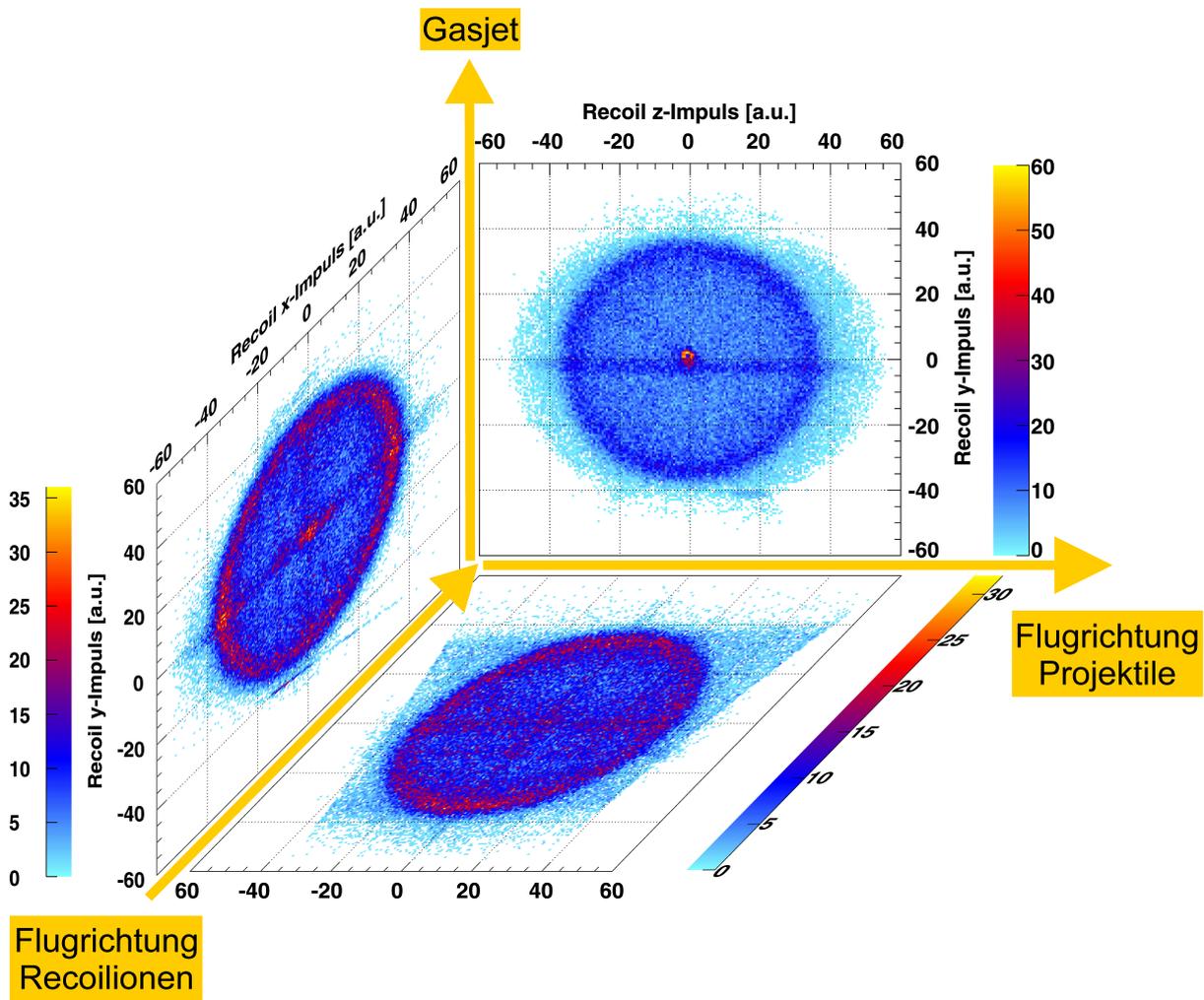


Abbildung 4.8: Projektionen der dreidimensionalen Recoilionen-Impuls-kugel; die Spektren zeigen xy -, zx - und zy -Ebene. Deutlich zu erkennen die kreisrunden Strukturen in allen drei Ebenen. Ursache hierfür ist der isotrope Aufbruch des H_2 -Moleküls in zwei Protonen im Rahmen einer *Coulombexplosion*.

Diese Impuls-kugel (beziehungsweise ihre drei zweidimensionalen Projektionen) ist sehr sensitiv auf Fehler in der Impulsberechnung (siehe Tabelle 4.1). Anhand von Projektionen auf die Koordinatenachsen können die beiden Ortsnullpunkte feinjustiert werden. Deformationen der Kugel deuten darauf hin, dass die einzelnen Koordinaten untereinander nicht im richtigen Verhältnis stehen, weil beispielsweise die Abmessungen der Anodenlagen nicht hinreichend genau bekannt sind.

Leicht einzusehen ist dies immer dann, wenn die Flugzeitrichtung der Recoilionen betroffen ist: Fehler bei der Bestimmung der Projekttilflugzeit (Gleichung 4.4) pflanzen sich in die Berechnung der x -Impulse fort. Die Projekttilflugzeit selbst kann allerdings nicht mit einer solchen Genauigkeit ermittelt werden, so dass man diese statt dessen anhand der Recoil- x -Impulse eicht. Auch bei den Impulsen in den Ortsrichtungen (also in der yz -Ebene) ist gewöhnlich eine Eichung nötig. Hier ist der Grund darin zu suchen, dass die Länge der Anodendrähte nicht beliebig genau bekannt ist. Mit dem Wissen, dass die entsprechende Projektion der Impuls-kugel

einwandfrei rund sein muss, wird eine der beiden Impulskomponenten durch einen multiplikativen Parameter (Gleichung 4.16) gegenüber der anderen gestreckt oder gestaucht.

Die Deformation der Impulskugel fällt in der Regel nur sehr gering aus, weshalb das Auge Schwierigkeiten hat, die Abweichungen zu erkennen. Aus diesem Grund werden oft neue Histogramme definiert, um die Stretchfaktoren leichter anpassen zu können. So wird zum Abgleich der Impulse in der Detektorebene der Betrag des Gesamtimpulses in Abhängigkeit des Winkels ϕ aufgetragen. Dabei ist ϕ definiert als

$$\phi = \arctan\left(\frac{p_z}{p_y}\right). \quad (4.30)$$

Ist nun die Projektion der Impulskugel auf die Detektorebene perfekt rund, so zeigt das entsprechende Histogramm eine gerade Linie. Eine bauchig verlaufende Linie deutet auf Fehler bei der Bestimmung von Ortsnullpunkten oder Stretchfaktoren hin. Abbildung 4.9 zeigt den ϕ -Winkelplot für die Recoilionen vor und nach erfolgter Anpassung der Ortsnullpunkte und Impuls-Stretchfaktoren

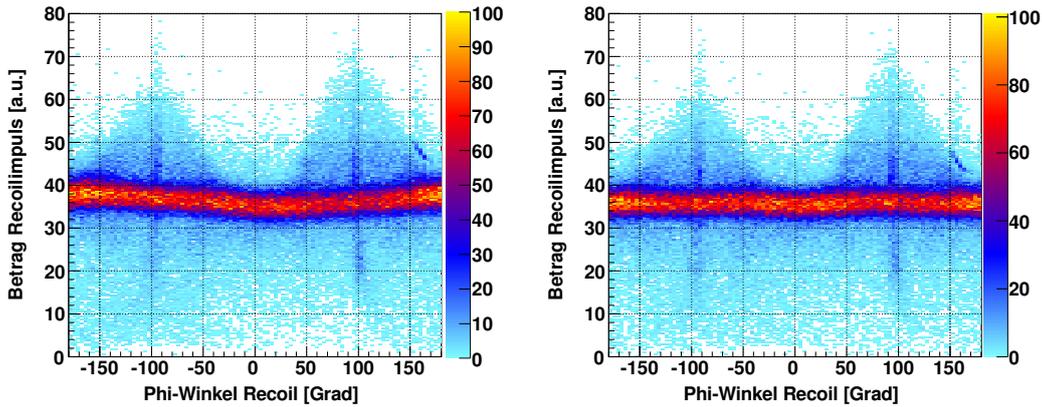


Abbildung 4.9: ϕ -Winkelplots für den Recoilionendetektor; links das unkorrigierte Spektrum mit deutlich nichtlinearem Verlauf, rechts nach Anpassung der Ortsnullpunkte und Impuls-Stretchfaktoren.

Das zweite wichtige Histogramm bei der Impulseeichung zeigt den Betrag des Gesamtimpulses in Abhängigkeit vom Kosinus des Winkels θ , wobei hierfür gilt

$$\cos(\theta) = \frac{p_x}{p}. \quad (4.31)$$

Auch hier ist es das Ziel, eine gerade Linie zu erzeugen. Der zu bestimmende Parameter ist hier der Flugzeitnullpunkt der Projektile. Abbildung 4.10 zeigt den $\cos(\theta)$ -Plot für die Recoilionen vor und nach dem Anpassen des Flugzeitnullpunkts.

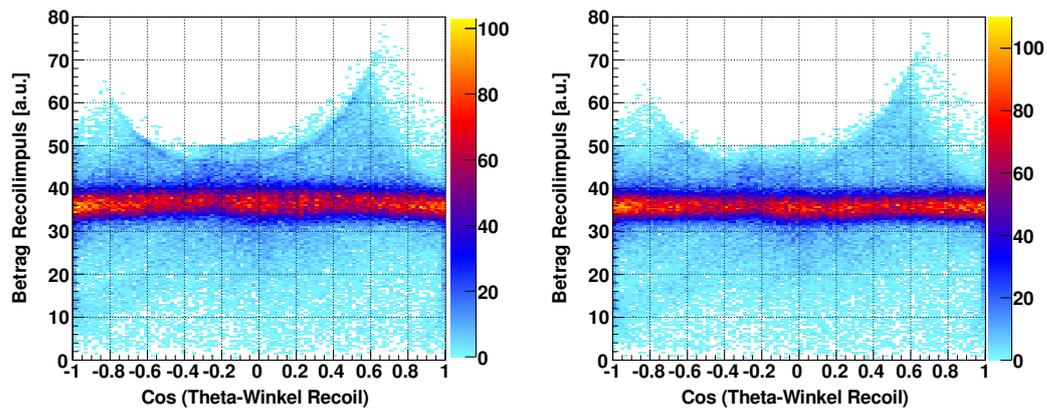


Abbildung 4.10: $\cos(\theta)$ -Plot für den Recoilionendetektor; das unkorrigierte Spektrum (links) zeigt deutliche Abweichungen von einer linearen Form, rechts das gleiche Spektrum nach Anpassung des Flugzeitnullpunkts.

Kapitel 5

Diskussion der Ergebnisse

In diesem Kapitel sollen die gewonnenen Messergebnisse entsprechend aufbereitet präsentiert und die daraus zu ziehenden Schlüsse diskutiert werden. Bevor damit begonnen wird, muss die erreichte Orts- und Impulsauflösung bestimmt werden. Die Kenntnis des Auflösungsvermögens des Spektrometers ist essentiell bei der Bewertung und Einschätzung der erzielten Ergebnisse.

5.1 Experimentelle Auflösung

Für die Projektile wird die erreichbare Impulsauflösung im Wesentlichen durch die Divergenz des Projektilstrahls vorgegeben. Aus der Größe der Öffnung $x = 1 \text{ mm}$ der beiden Kollimatorblenden im Strahlengang und ihrem Abstand $l = 7,7 \text{ m}$ errechnet man den entsprechenden Winkel

$$\varphi = 2 \cdot \arctan\left(\frac{x}{l}\right) \approx 0,26 \text{ mrad}. \quad (5.1)$$

Mit dem Longitudinalimpuls $p_z = 9000 \text{ a.u.}$ der Projektile folgt daraus eine transversale Impulsauflösung von

$$\Delta p^{Proj} = \varphi \cdot p_z \approx 2,34 \text{ a.u.} \quad (5.2)$$

Andere Größen haben darauf vergleichsweise wenig Einfluss, so dass sie in dieser Abschätzung vernachlässigt werden können.

Für den Recoilionendetektor ermittelt man in der Rohdatenanalyse den Umrechnungsfaktor $c^{Rec} \approx 0,6 \text{ mm/ns}$ (siehe dazu den entsprechenden Abschnitt 4.1.1 - Ortsberechnung). Zusammen mit der Zeitauflösung der verwendeten Ausleseelektronik $\Delta t \approx 1 \text{ ns}$ ist die mögliche Detektorauflösung $\Delta Det^{Rec} \approx 0,6 \text{ mm}$.

Weiterhin spielt für die Einzelteilchenimpulse die Ausdehnung der Targetzone $\Delta V_z \cdot \Delta V_y \approx 1,5 \cdot 1 \text{ mm}^2$ sowie allgemein die Maschenweite $\Delta G = 250 \mu\text{m}$ des Gitters, das die Teilchen im Spektrometer durchqueren müssen, eine Rolle. Damit erhält man als mögliche Ortsauflösung

$$\begin{aligned}\Delta Ort_z^{Rec} &= \sqrt{(\Delta Det)^2 + (\Delta V_z)^2 + (\Delta G)^2} \approx 1,63 \text{ mm und} \\ \Delta Ort_y^{Rec} &= \sqrt{(\Delta Det)^2 + (\Delta V_y)^2 + (\Delta G)^2} \approx 1,19 \text{ mm.}\end{aligned}\tag{5.3}$$

Die Umrechnungsfaktoren D zwischen Orts- und Impulskoordinaten können direkt aus den entsprechenden Verteilungen ermittelt werden. Man findet hier $D \approx 1,15 \text{ a.u./mm}$. Somit ist die Recoilionen-Impulsauflösung in den Ortsrichtungen

$$\Delta p_z^{Rec} \approx 1,87 \text{ a.u. und } \Delta p_y^{Rec} \approx 1,37 \text{ a.u..}\tag{5.4}$$

Ausgehend von der Formel für den x -Impuls (Gleichung 4.14) kann die Impulsauflösung in Flugzeitrichtung abgeschätzt werden. Es ergibt sich als Differenz Δt aus der Flugzeit $TOF = t_0$ für Teilchen mit Startimpuls $p = 0$ und der Flugzeit $TOF = t$ für Teilchen mit Startimpuls $p = \Delta p$

$$\Delta t = t_0 - t = 2\sqrt{\frac{mxD}{qE}} - 2\sqrt{\frac{mxD}{qE}} + \frac{\Delta p}{qE} = \frac{\Delta p}{qE}.\tag{5.5}$$

Es folgt für die Impulsauflösung

$$\Delta p_x^{Rec} = qE\Delta t\tag{5.6}$$

und man erhält mit einer Zeitauflösung von $\Delta t \approx 1 \text{ ns}$ und dem angelegten elektrischen Feld von $E = 40,2 \text{ V/cm}$ sowie der Ladung der Protonen $q = 1$

$$\Delta p_x^{Rec} \approx 0,32 \text{ a.u..}\tag{5.7}$$

Für den Elektronenzweig des Spektrometers wird die erreichte Energie- und Emissionswinkelauflösung mit Hilfe eines dafür entwickelten Programms aus den experimentellen Parametern bestimmt. Wie für den Recoilionenzweig wurde als Targetausdehnung $\Delta V_z \cdot \Delta V_y = 1,5 \cdot 1 \text{ mm}^2$ angenommen, außerdem eine Zeitauflösung von $\Delta t = 1 \text{ ns}$ und eine Detektorauflösung von $\Delta Det^{Elek} = 1 \text{ mm}$. Das angelegte Magnetfeld betrug $10,7 \text{ Gs}$. Abbildung 5.1 zeigt diese Graphen jeweils als Funktion der Elektronenergie und des Emissionswinkels (zur Verfügung gestellt von [Dör11]).

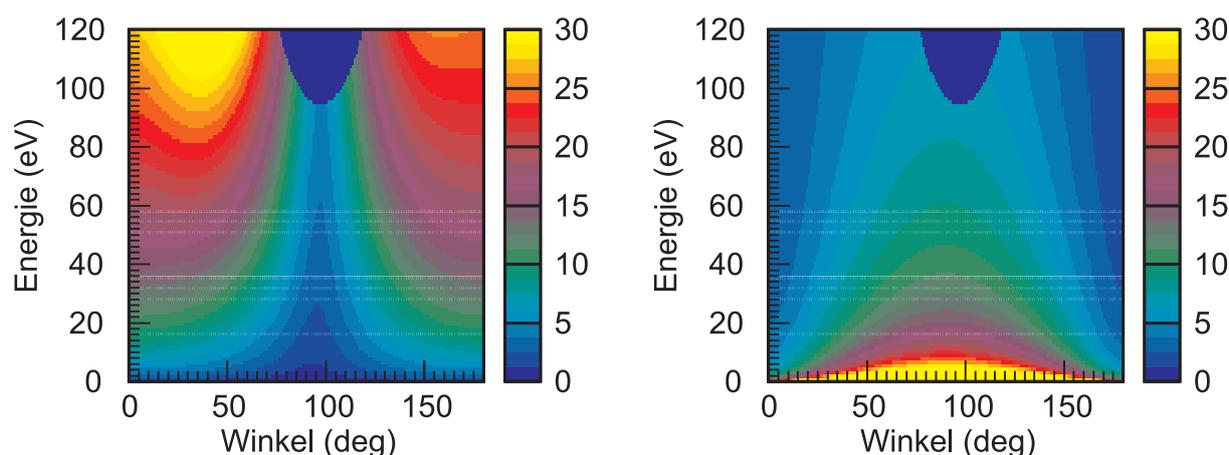


Abbildung 5.1: Farbcodiert dargestellt die Energie- (linkes Spektrum) und Emissionswinkelauflösung (rechtes Spektrum) im Elektronenzweig des Spektrometers, jeweils als Funktion der Elektronenergie und des Emissionswinkels; zur Verfügung gestellt von [Dör11]. Der U-förmige Einschnürung in beiden Spektren bei $\theta = 90^\circ$ entstehen durch Elektronen, die senkrecht zur Spektrometerachse starten und deshalb nicht auf den Detektor projiziert werden können.

5.2 Die KER-Verteilung

Der so genannte *Kinetic Energy Release*, kurz KER, spiegelt die kinetische Energie zweier oder mehr Ionen wieder, die aus dem Aufbruch eines Moleküls stammen.

Verliert ein Molekül in einer Reaktion zwei oder mehr Elektronen, zerfällt es in der Regel in mindestens zwei positiv geladene ionische Fragmente 1 und 2. Es kommt zu einer so genannten *Coulombexplosion*, bei der sich diese Ionen elektromagnetisch voneinander abstoßen. Sie fliegen dann in entgegengesetzte Richtungen auseinander und es gilt aufgrund der Impulserhaltung

$$\vec{p}_1 = -\vec{p}_2. \quad (5.8)$$

Der KER für diese beiden Ionen berechnet sich dann aus ihren gemessenen Impulsen und ihrer reduzierten Masse μ gemäß

$$KER = \frac{(p_1 - p_2)^2}{2\mu}. \quad (5.9)$$

Die kinetische Energie der Ionen stammt dabei vollständig aus ihrer potentiellen Energie zu Beginn des Aufbruchs. Der *Kinetic Energy Release* kann direkt in einen Kernabstand im Molekül übersetzt werden. Diese Energieerhaltung erlaubt es also zu schreiben

$$KER = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{q_1 q_2}{R} \quad (5.10)$$

mit den Ladungen q_1 und q_2 und dem Abstand R der beiden Ionen. Im vorliegenden Fall entstehen in der Reaktion zwei Protonen. Setzt man also $q_1 = q_2 = e = 1 \text{ a.u.}$ und $\epsilon_0 = \frac{1}{4\pi} \text{ a.u.}$ ein, erhält man direkt

$$KER = \frac{1}{R} [\text{a.u.}]. \quad (5.11)$$

Der KER ist hier also gleich dem inversen Kernabstand des Moleküls. Diese Relation ist auch anschaulich leicht zu verstehen: Sind die Ionen zu Beginn der *Coulombexplosion* nahe beisammen, so wirken stärkere repulsive Kräfte und somit ist auch die aus ihnen gewonnene kinetische Energie größer. Umgekehrt werden die Ionen nur wenig Geschwindigkeit und damit Energie aufnehmen, wenn sie sich zu Beginn des Aufbruchs in großem Abstand zueinander befinden.

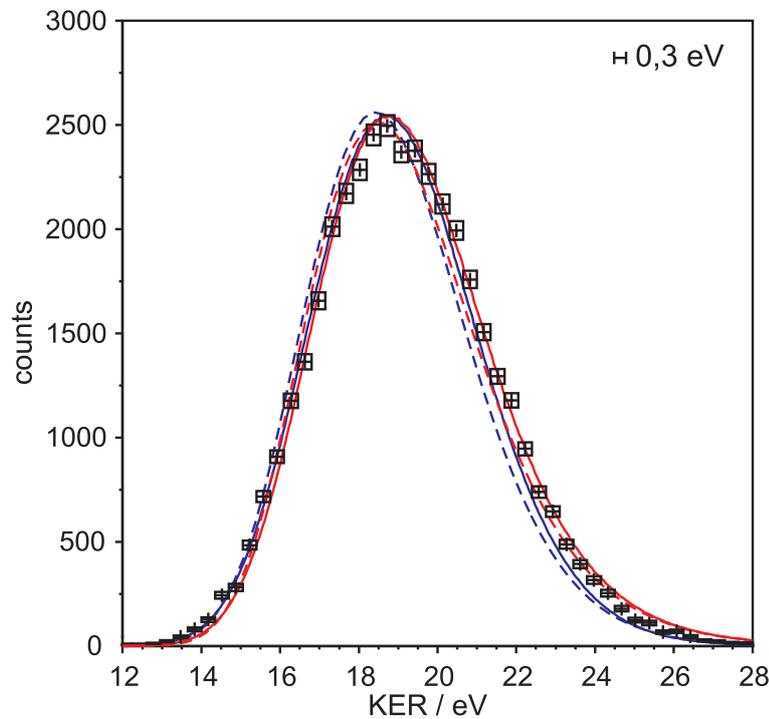


Abbildung 5.2: gemessene KER-Verteilung für H_2 , Maximum bei $19,04 \text{ eV}$; simulierte Verteilungen: *reflection approximation* für ein Morse-Potential (blau gestrichelt) und ein harmonisches Potential (rot gestrichelt), quantenmechanische Berechnungen für Morse-Potential (blau) und harmonisches Potential (rot) Maximum bei $18,68 \text{ eV}$; geschätzter systematischer Fehler 1 %

Abbildung 5.2 zeigt die H_2 -KER-Verteilung, die in diesem Experiment gemessen wurde (Rechteck-Symbole). Das Maximum der Verteilung liegt bei $19,04 \text{ eV}$, ermittelt durch Anfitzen einer Gaussverteilung. Den Messdaten überlagert sind vier simulierte KER-Verteilungen. Zwei davon wurden mit Hilfe einer analytische Lösung des Morse-Potentials berechnet (blaue Graphen), die beiden anderen entstanden auf Basis eines harmonischen Potentials (rot). Der Kernabstand wurde dabei auf die Umkehrpunkte des Vibrationsgrundzustands angepasst. Die gestrichelt gezeichneten Verteilungen wurden mit der klassischen *reflection approximation* erzeugt,

die Grundzustandswellenfunktion also an der repulsiven H^+H^+ -Kurve gespiegelt. Die Graphen mit durchgezogenen Linien zeigen das Überlappintegral des Wasserstoff-Grundzustands mit dem Kontinuumszustand [Sch11]. Man kann eine insgesamt sehr gute Übereinstimmung der simulierten Plots mit den Messdaten feststellen. Auch im Vergleich mit anderen Messungen kann nur eine geringe Abweichung konstatiert werden. Bei der Photodoppelionisation von H_2 konnten Kreidi et al. ein KER-Maximum bei $18,75\text{ eV}$ messen ([Kre05]).

5.3 Impuls- und Energieverteilungen

Als Erstes werden in Abbildung 5.3 die Recoilionenimpulse gezeigt. Diese Plots entstehen durch Projektion der dreidimensionalen Impulskugel auf die jeweilige Ebene, über die dritte Impulskomponente wird also integriert.

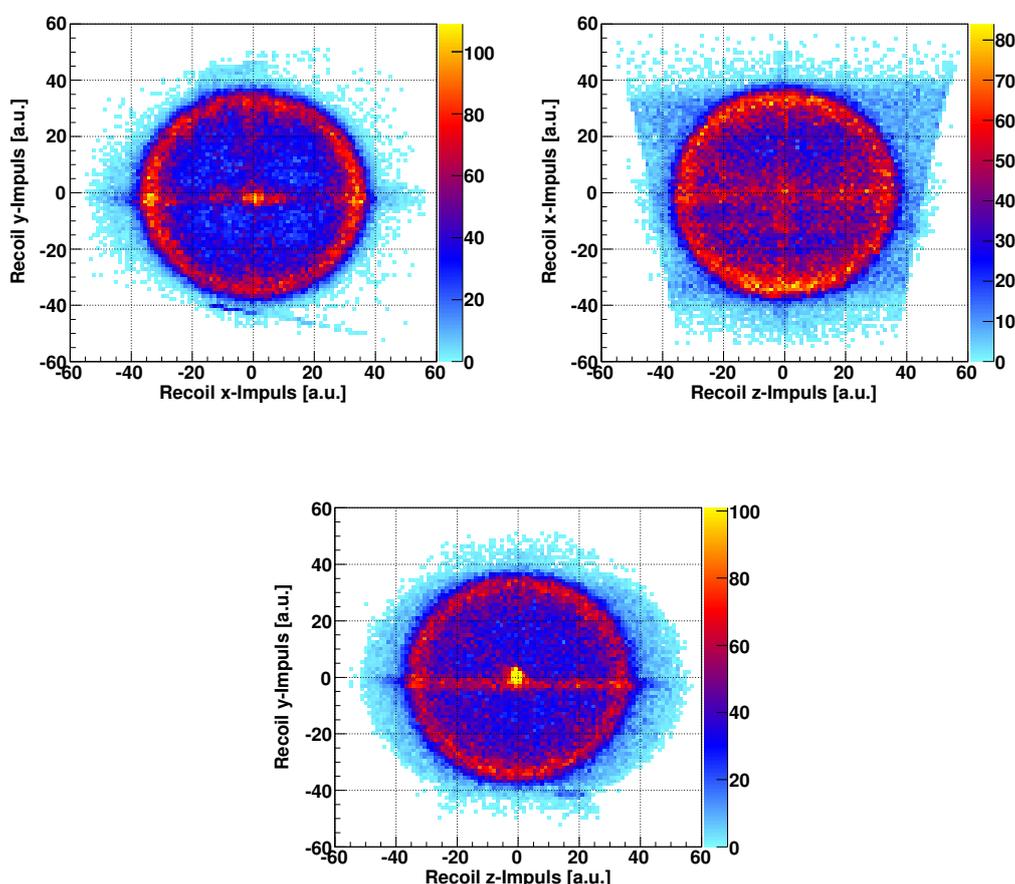


Abbildung 5.3: Projektionen der dreidimensionalen Recoilionen-Impulskugel; oben links die xy -Ebene, oben rechts die zx -Ebene, unten die zy -Ebene. Deutlich sichtbar die kreisförmige Signatur der *Coulombexplosion* der beiden Protonen, außerdem im Zentrum der Spektren die nicht dissoziierten H_2^+ -Ionen aus Ionisations- oder Elektroneneinfangsprozessen.

Man erkennt in allen drei Projektionen deutlich kreisförmige Strukturen bei etwa 30 a.u. Impuls, die von der *Coulombexplosion* der beiden Protonen herrühren. Jeweils bei sehr kleinen Impulsen

in der Mitte der Spektren landen die nicht dissoziierten H_2^+ -Ionen, die aus Ionisationsprozessen oder Elektroneneinfangsreaktionen stammen.

In Abbildung 5.4 sind in gleicher Weise wie oben die Projektionen der Elektronenimpulse gezeigt. Bei Betrachtung der zx - und zy -Ebene zeigt sich, dass die Elektronen bevorzugt in einem gewissen Winkelbereich um die z -Achse, also in oder entgegen der Flugrichtung der Projektile, emittiert werden.

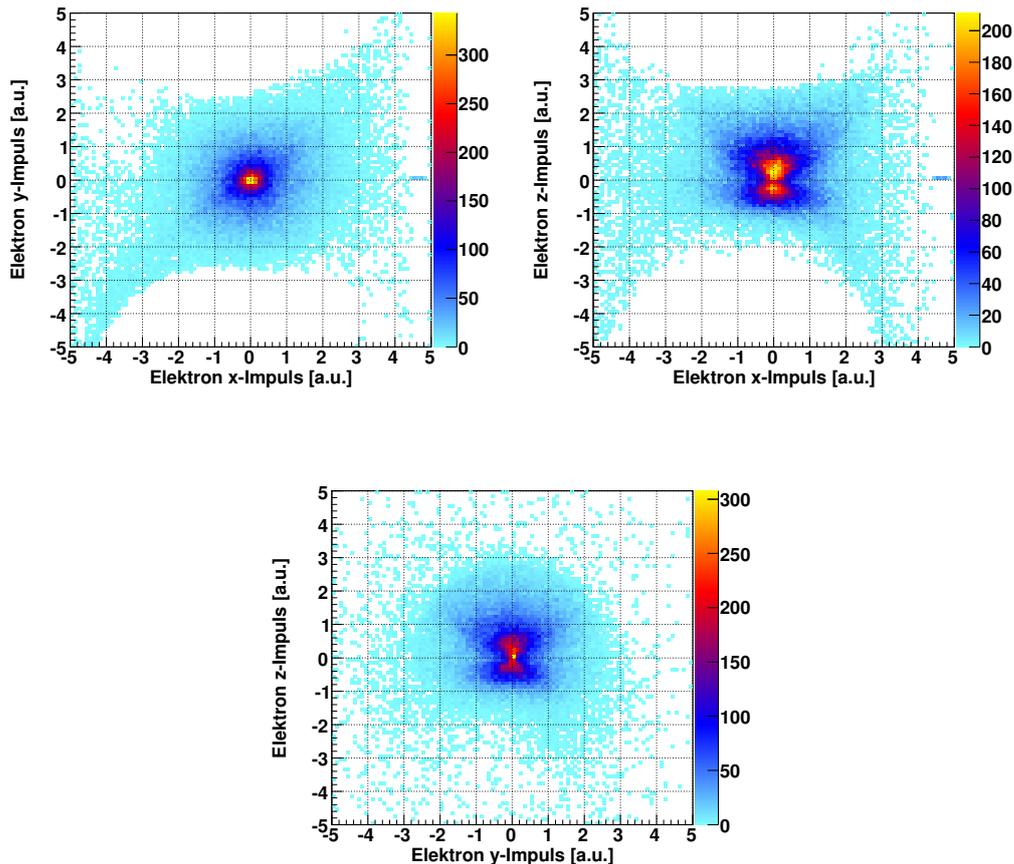


Abbildung 5.4: Projektionen der dreidimensionalen Elektronenimpulse; oben links die xy -Ebene, oben rechts die zx -Ebene, unten die zy -Ebene. Die Elektronen werden in einem gewissen Winkelintervall um die Projekttilstrahl-Richtung emittiert.

Um Erkenntnisse über die Transferionisation gewinnen zu können, ist insbesondere die Emissionsrichtung der Elektronen interessant. Deshalb wird neben den oben gezeigten Verteilungen häufig der Transversalimpuls des gemessenen Elektrons als Funktion seines Longitudinalimpulses aufgetragen. Wie in den vorangegangenen Messungen mit atomaren Targets (siehe dazu entsprechendes Unterkapitel 1.1 - Vorangegangene Experimente) können auch hier Vorwärts- und Rückwärtsemission des Elektrons einwandfrei getrennt werden. Die ermittelte Elektronenimpulsverteilung wird in Abbildung 5.5 der für ein atomares Target gegenübergestellt. Diese ist dabei im Gegensatz zu Abbildung 1.1 nicht in der Projektil-Steuebene dargestellt. Aufgrund der großen Ähnlichkeit der Impulsverteilungen in beiden Fällen kann davon ausgegangen werden, dass hier wie dort dieselben Prozesse zum Tragen kommen. Demzufolge wird der in Vorwärts-

richtung emittierte Teil der Elektronen in binären Stößen mit dem Projektil erzeugt (*binary encounter*, zu den Prozessen siehe Kapitel 2.4 - Theoretische Modelle). Die dazu theoretisch vorausgesagte Verteilung wird in beiden Spektren angedeutet, sie entspricht im Geschwindigkeitsraum der Emission des Elektrons auf die Oberfläche einer Kugel um v_p mit Radius v_p . Die Elektronen, die rückwärts gerichtete Impulse besitzen, gelangen in Folge eines *Shake-Off*-Prozesses ins Kontinuum.

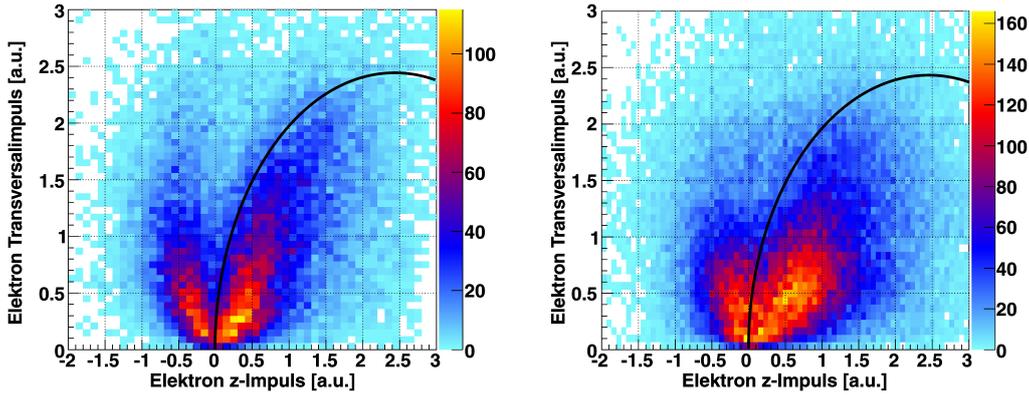


Abbildung 5.5: Elektronen-Transversalimpuls als Funktion des Longitudinalimpulses; links die in dieser Messung für das Stoßsystem $D^+ + H_2$ ermittelte Verteilung, rechts für $p^+ + He$ ([Sch06]). Vorwärts und rückwärts emittierte Elektronen sind klar getrennt. Elektronenimpulse in Projektilstrahlrichtung deuten dabei auf Ionisation durch *binary encounter* hin, Elektronen mit rückwärts gerichteten Impulsen stammen aus *Shake-Off*-Prozessen. Die schwarzen Linien kennzeichnen jeweils die theoretisch erwartete *binary encounter*-Verteilung. Diese entspricht einer Kugel im Geschwindigkeitsraum mit Radius v_p und Mittelpunkt bei v_p .

Der Transversalimpuls wurde dabei gemäß

$$p_{trans} = \sqrt{p_x^2 + p_y^2} \quad (5.12)$$

berechnet, der Longitudinalimpuls ist gleich dem Impuls in z -Richtung,

$$p_z = p_{long}. \quad (5.13)$$

Da der Longitudinalimpuls eine zweifelsfreie Unterscheidung zwischen *binary encounter* und *Shake-Off*-Elektronen zulässt, wird er in der weiteren Diskussion der Ergebnisse zu diesem Zwecke herangezogen.

Die Energieverteilung des freigesetzten Elektrons zeigt Abbildung 5.6. Das Spektrum zeigt dabei die erwartete Abnahme zu großen Elektronenenergien hin.

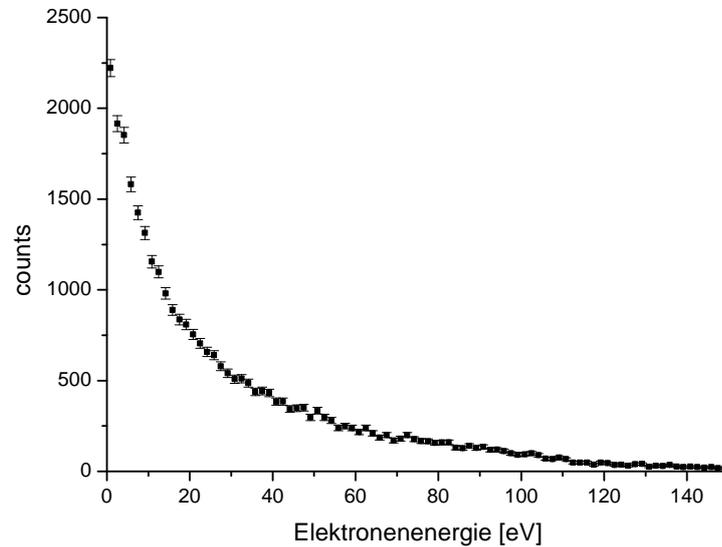


Abbildung 5.6: Elektronen-Energieverteilung; die Verteilung fällt erwartungsgemäß zu großen Elektronenenergien hin stark ab.

In Abbildung 5.7 wird für Elektronenenergien zwischen 0 und 2,5 eV, 2,5 und 7,5 eV sowie von 7,5 bis 12,5 eV und von 22,5 bis 27,5 eV jeweils der Emissionswinkel β zwischen Elektron-Longitudinalimpuls und dem Impulsvektor \vec{p}_e der Elektronen gezeigt. Die Graphen zeigen für alle Energieintervalle eine gute Übereinstimmung mit der Elektronen-Impulsverteilung (Abbildung 5.5).

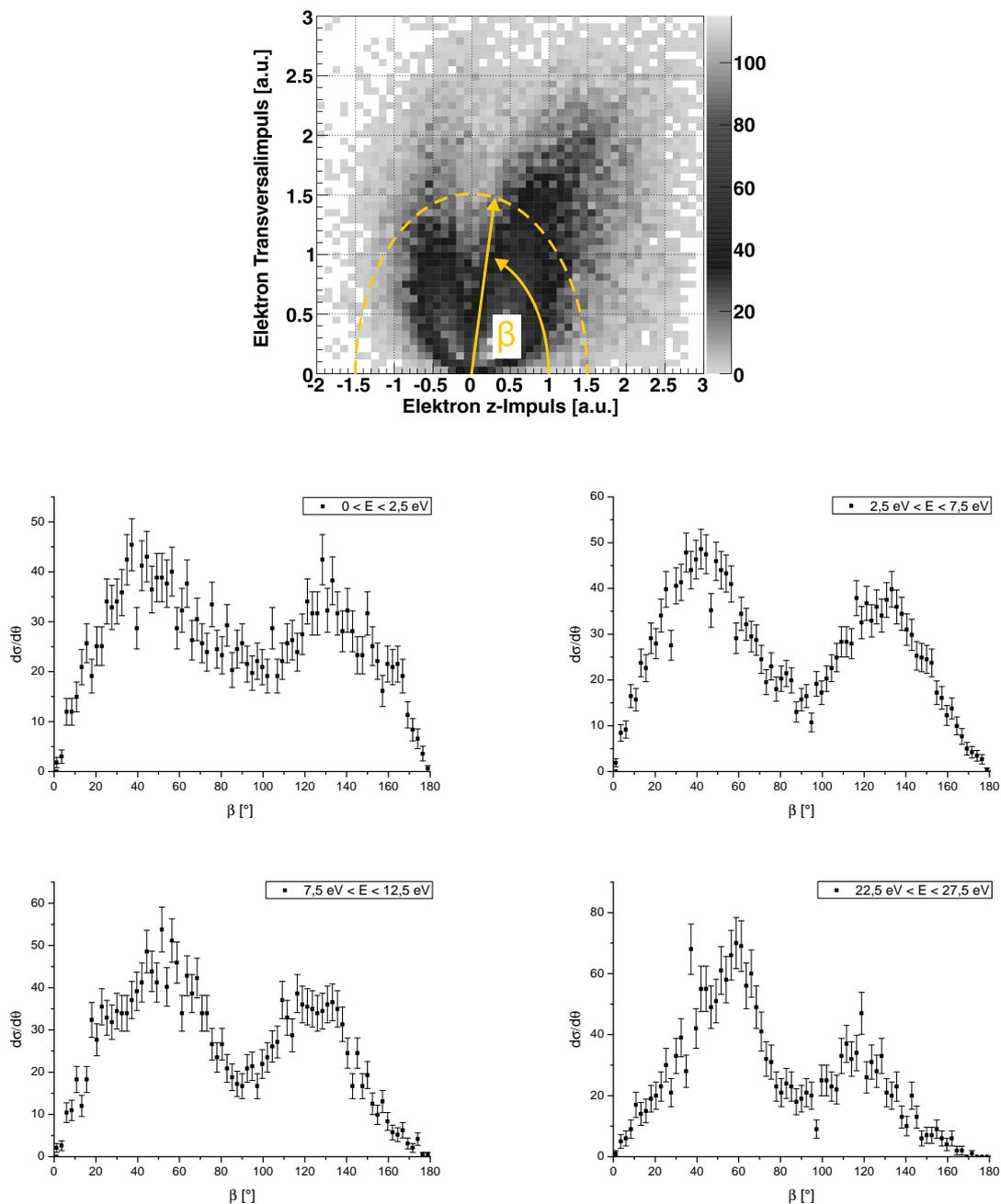


Abbildung 5.7: Emissionswinkel β zwischen Elektronenimpuls \vec{p}_e und Elektron-Longitudinalimpuls ($\frac{d\sigma}{d\theta}$) für verschiedene Elektronenenergie-Intervalle; oben die Visualisierung der aufgetragenen Größen: die konstanten Elektronenenergien entsprechen Kreisen in der Impulsverteilung, β ist der Azimutwinkel. Mitte links für Elektronenenergien zwischen 0 und 2,5 eV, Mitte rechts von 2,5 bis 7,5 eV, unten links zwischen 7,5 und 12,5 eV und unten rechts von 22,5 bis 27,5 eV. Die Spektren sind auf ihr Integral normiert. Die Winkelverteilungen stimmen für alle Elektronenenergien gut mit der Impulsverteilung in Abbildung 5.5 überein.

5.4 Winkelabhängigkeiten

In diesem Abschnitt sollen die relevanten Messgrößen auf etwaige Winkelabhängigkeiten untersucht werden. Betrachtet wird der Winkel α zwischen Molekülachse und Projektilstrahl. Bei $\alpha = 90^\circ$ und somit $\cos(\alpha) = 0$ stehen Molekülachse und Projektilstrahl senkrecht aufeinander, bei $\alpha = 0^\circ$ und $\alpha = 180^\circ$ bzw. $|\cos(\alpha)| = 1$ sind beide parallel orientiert. Abbildung 5.8 verdeutlicht die Definition dieses Winkels.

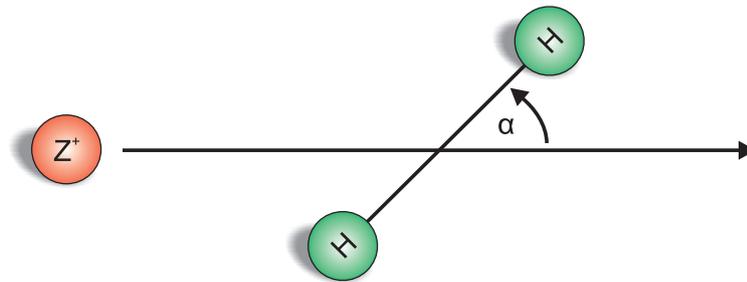


Abbildung 5.8: Der Winkel α wird eingeschlossen von Molekülachse und Projektilstrahl. Für $\alpha = 90^\circ$ steht das Molekül senkrecht zum Projektilstrahl, für $\alpha = 0^\circ$ oder $\alpha = 180^\circ$ entsprechend parallel.

Trägt man wie in Abbildung 5.9 den Elektron z -Impuls gegen $\cos(\alpha)$ auf, so lassen sich die beiden Prozesse *binary encounter* und *Shake-Off* eindeutig voneinander trennen. Während die *Shake-Off*-Unterverteilung (Elektron z -Impuls < 0) über den gesamten Winkelbereich flach verläuft, zeigt die *binary encounter*-Verteilung (Elektron z -Impuls > 0) eine leichte, plateauartige Überhöhung zwischen etwa $-0,6 a.u.$ und $0,6 a.u.$.

In Abbildung 5.10 sind zwei Projektionen der Verteilung für verschiedene Stellungen der Molekül- zur Projektilstrahlachse gezeigt. Zum einen der Elektron z -Impuls für Werte von $\cos(\alpha)$ zwischen $-0,2$ und $0,2$, also die annähernd senkrechte Ausrichtung von Molekül und Projektilstrahl. Zum anderen die Summe der als gleich angenommenen Projektionen von $\cos(\alpha) = -1$ bis $-0,8$ und $\cos(\alpha) = 0,8$ bis 1 , entsprechend einer annähernd parallelen Molekülorientierung. Beide Graphen sind auf ihr Integral normiert. Die Unterschiede in den Elektronenimpulsen zwischen beiden Molekülstellungen treten in dieser Auftragung weniger stark hervor.

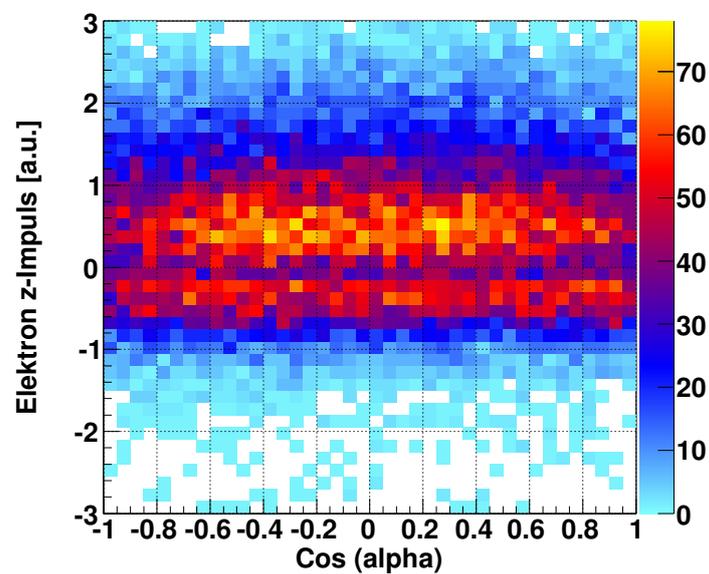


Abbildung 5.9: Elektron z -Impuls als Funktion von $\cos(\alpha)$; Trennung der *binary encounter* und der *Shake-Off*-Unterverteilung gut erkennbar. Die *binary encounter*-Unterverteilung bei positiven Elektronenimpulsen zeigt eine leichte Überhöhung der Intensität zwischen $\cos(\alpha) = -0,6$ und $0,6$, die *Shake-Off*-Unterverteilung verläuft vollständig flach.

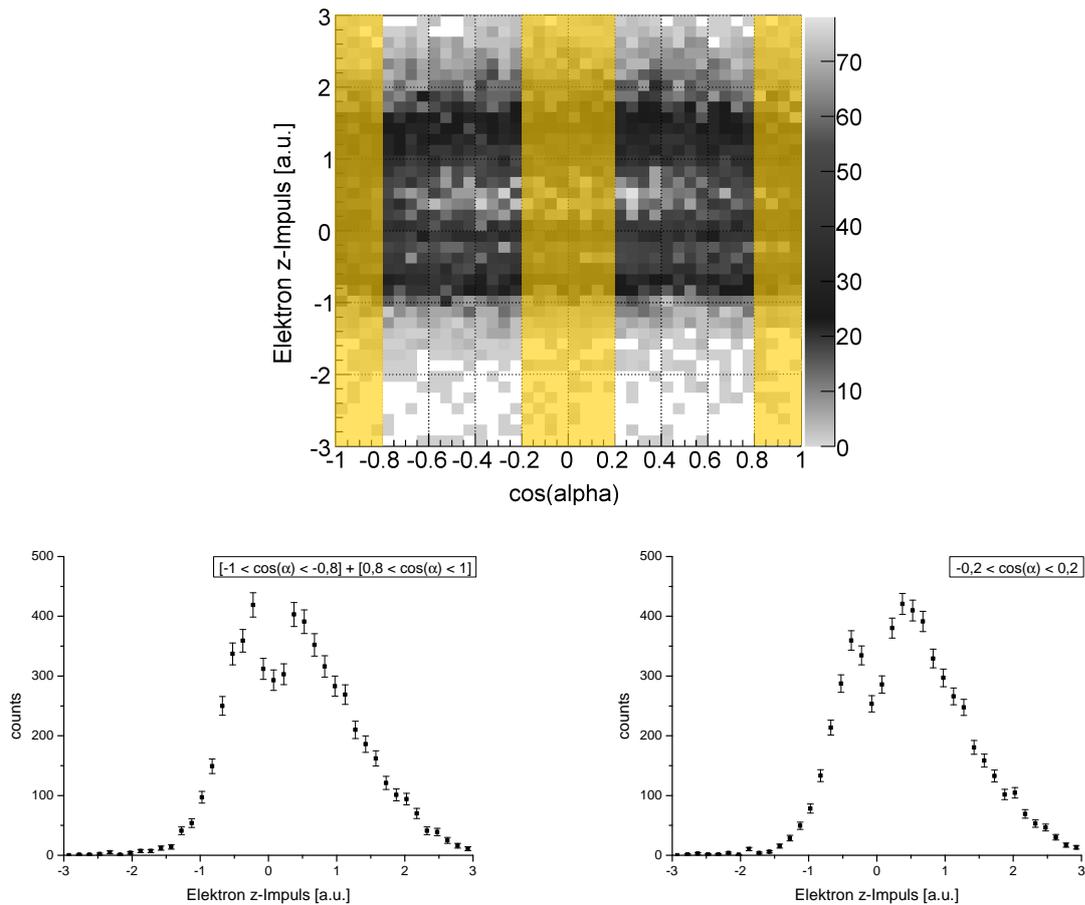


Abbildung 5.10: Elektron z -Impulse für verschiedene Moleküllorientierungen; oben die Visualisierung der projizierten Bereiche, unten links Summe der Projektionen von $\cos(\alpha) = -1$ bis $-0,8$ und von $\cos(\alpha) = 0,8$ bis 1 (Molekül annähernd parallel zum Projektilstrahl), unten rechts Projektion von $\cos(\alpha) = -0,2$ bis $0,2$ (Molekül und Projektilstrahl annähernd senkrecht zueinander).

In Abbildung 5.11 sind die beiden Projektionen deshalb übereinander gelegt, so dass die Unterschiede in den Verteilungen besser sichtbar sind. Während bei paralleler Ausrichtung Vorwärts- und Rückwärtsemission ungefähr gleiche Intensität besitzen und somit *binary encounter* und *Shake-Off* etwa gleich wahrscheinlich sind, übertrifft der *binary encounter*-Peak bei senkrechter Ausrichtung den *Shake-Off*-Peak um gut 15 %. Der Befund widerspricht der klassischen Erwartung, dass bei paralleler Molekülausrichtung und damit aus der Strahlperspektive kleinerem Kernabstand die Wahrscheinlichkeit dafür, dass das Projektil mit beiden Targetelektronen wechselwirkt, erhöht ist.

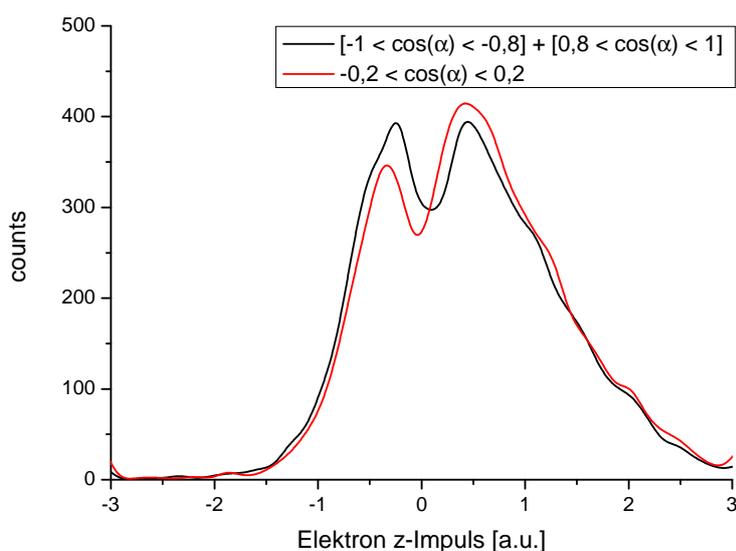


Abbildung 5.11: Elektron z-Impulse für verschiedene Molekülorientierungen; Überlagerung der beiden Spektren für parallele (schwarz) und senkrechte Molekülorientierung (rot). Im ersten Fall sind *binary encounter* und *Shake-Off* etwa gleich wahrscheinlich, im zweiten Fall überwiegt der *binary encounter* um gut 15 %.

Eine weitere Darstellungsweise ist in Abbildung 5.12 gezeigt. Anhand der longitudinalen Elektronenimpulse werden hier *binary encounter* und *Shake-Off* differenziert und für beide Prozesse der Winkel α zwischen Molekül- und Strahlachse als Polarplot dargestellt. Das für die *Shake-Off*-Verteilung projizierte z-Impulsintervall reicht dabei von $-1 a.u.$ bis 0, das der *binary encounter*-Verteilung entsprechende Intervall erstreckt sich von 0 bis $2,3 a.u.$. In Übereinstimmung mit den bisherigen Befunden verläuft die *Shake-Off*-Verteilung fast vollständig flach, die der Stoßionisation entsprechende Verteilung ist zwischen 45° und 135° deutlich überhöht.

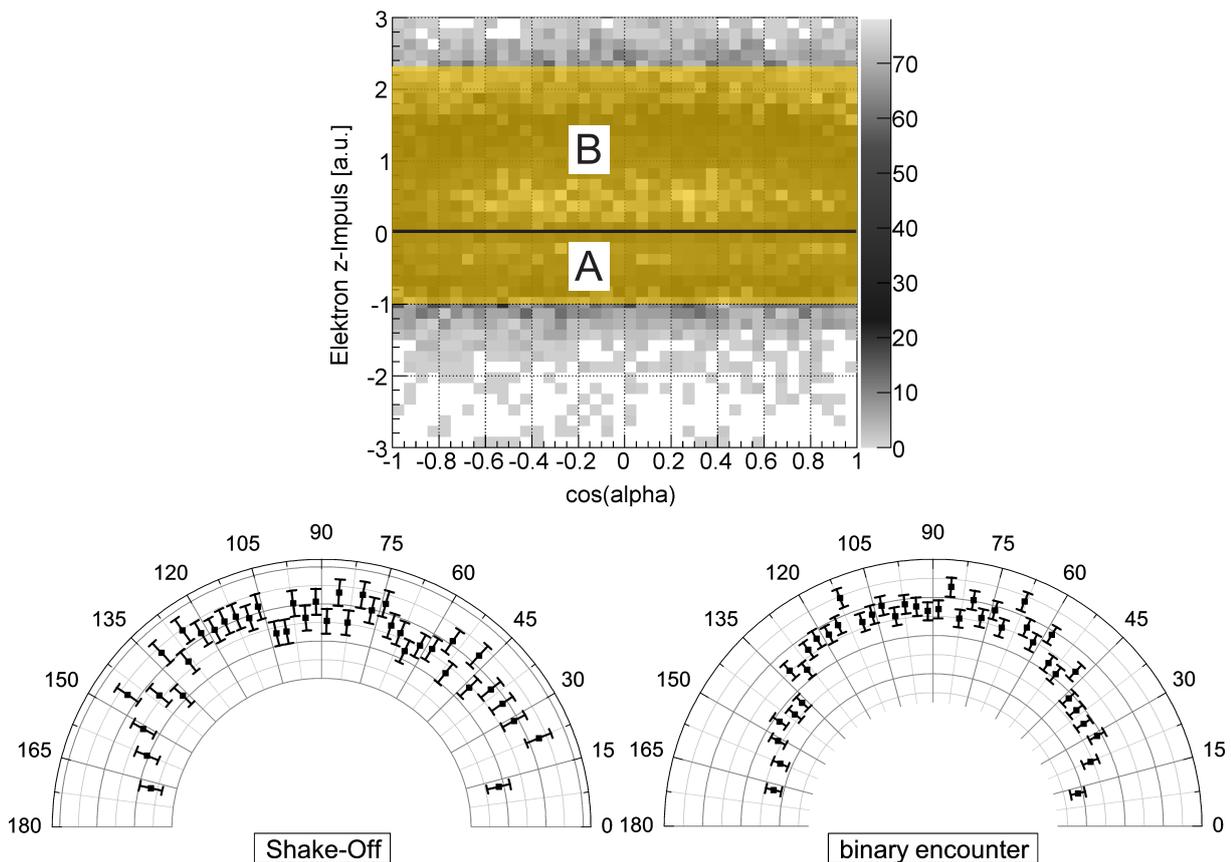


Abbildung 5.12: Winkel α zwischen Molekül- und Strahlachse in Polardarstellung, getrennt für Elektronen aus *binary encounter*- und *Shake-Off*-Prozessen. Oben Visualisierung der projizierten Bereiche: Elektronen mit z -Impulsen im Intervall von $-1 a.u.$ bis 0 werden *Shake-Off*-Prozessen zugeordnet (Bereich A), z -Impulse von 0 bis $2,3 a.u.$ führen zur Identifikation als *binary encounter*-Elektron (Bereich B). In Übereinstimmung mit den Erkenntnissen aus Abbildung 5.9 verläuft die *Shake-Off*-Unterverteilung (unten links) annähernd flach, während die *binary encounter*-Unterverteilung (unten rechts) zwischen etwa 45° und 135° eine plateauartige Überhöhung zeigt.

5.5 Abhängigkeiten vom Kernabstand

Wie bereits weiter oben in Abschnitt 5.2 - Die KER-Verteilung beschrieben, kann der KER direkt mit dem Abstand der beiden Atomkerne im Molekül in Verbindung gebracht werden. Nachdem nun schon die Abhängigkeiten von Elektronenimpulsen und KER von der Stellung des Moleküls zum Strahl untersucht wurden, liegt es auf der Hand, diese beiden Größen direkt zueinander in Beziehung zu setzen. Abbildung 5.13 zeigt daher den Elektronenimpuls in z -Richtung als Funktion des KER. Die rückwärts emittierten Elektronen erscheinen in diesem Plot als eine völlig symmetrische Verteilung. In der *binary encounter*-Verteilung ist hingegen eine leichte Verschiebung in Richtung höherer KER-Werte und damit gleichbedeutend kleinerer Kernabstände zu erkennen.

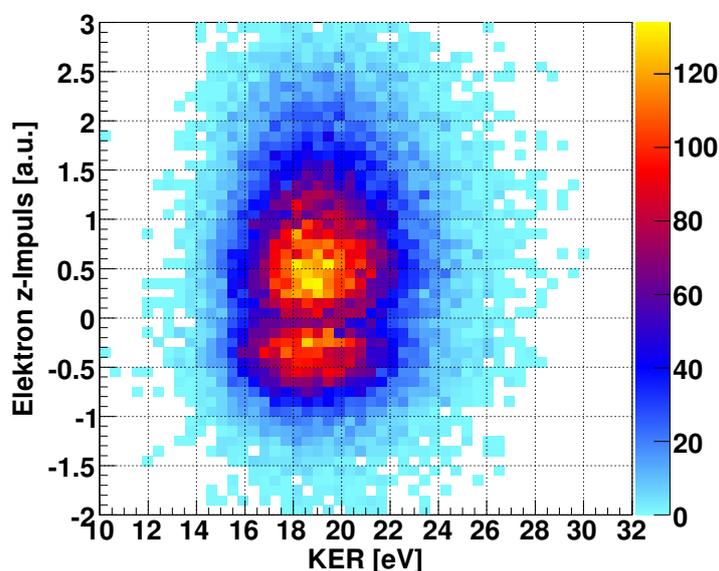


Abbildung 5.13: Elektron z -Impuls als Funktion des KER; erwartungsgemäß können auch hier *binary encounter* und *Shake-Off* deutlich getrennt werden. Während der *Shake-off*-Anteil der Verteilung symmetrisch ist, erscheint der vorwärts emittierte Teil der Elektronen in Richtung größere KER-Werte verschoben zu sein.

Um diesen Befund genauer untersuchen zu können, wurden für drei verschiedene KER-Bereiche Projektionen erstellt. Die erste davon überdeckt den Bereich von 15 bis 17 eV, die zweite reicht von 18 bis 20 eV und die dritte schließlich von 21 bis 23 eV. Um eine Vergleichbarkeit zu gewährleisten, sind die Graphen auf das jeweilige Integral normiert. Abbildung 5.14 zeigt nun diese drei Projektionen.

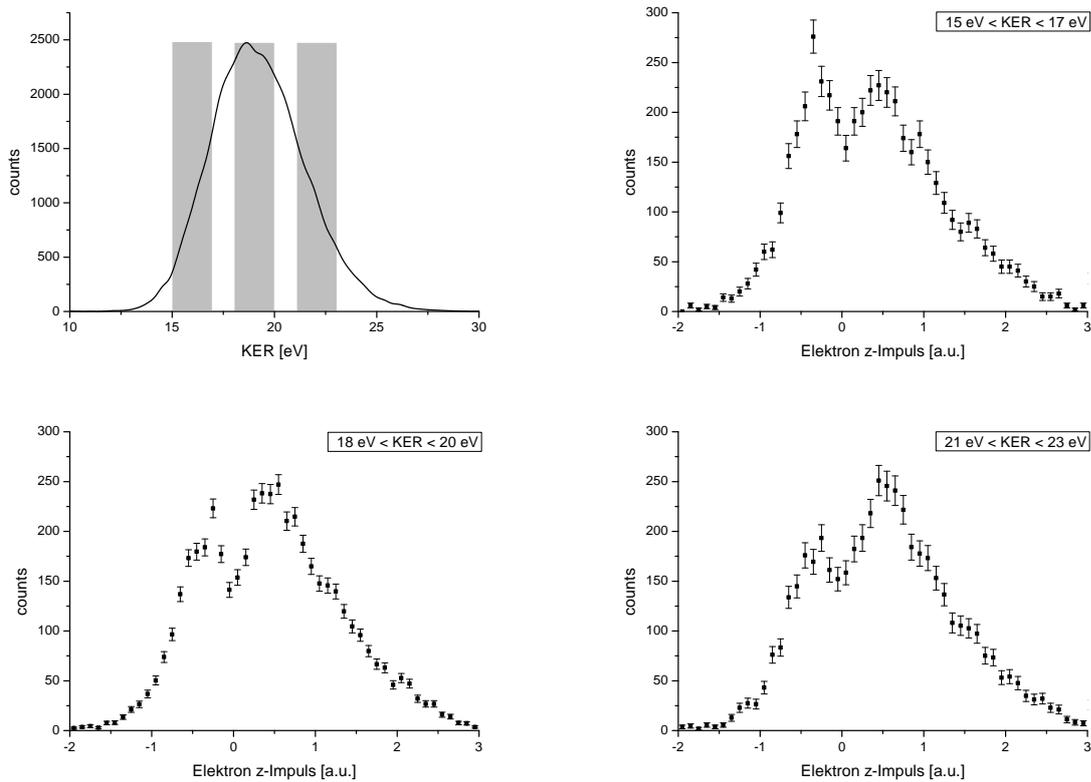


Abbildung 5.14: Elektron z-Impulse für verschiedene KER-Intervalle; oben links Visualisierung der betrachteten KER-Intervalle, oben rechts von 15 bis 17 eV, unten links von 18 bis 20 eV und unten rechts von 21 bis 23 eV. Das Verhältnis der Peaks von *binary encounter* und *Shake-Off* ändert sich deutlich mit steigendem KER.

Vergleicht man für die drei KER-Intervalle die Intensitäten der Peaks für *binary encounter* und *Shake-Off*, so fällt auf, dass diese sich mit wachsendem KER zusehends zu Gunsten des *binary encounter* verlagern. Sind im Intervall von 15 bis 17 eV beide Peaks noch etwa gleich hoch, weist der Peak der Vorwärtsemission im Intervall von 21 bis 23 eV eine relative Erhöhung von etwa 30 % auf. Um dieses Resultat noch deutlicher hervorzuheben, wurden in Grafik 5.15 wiederum alle drei Plots übereinander gelegt.

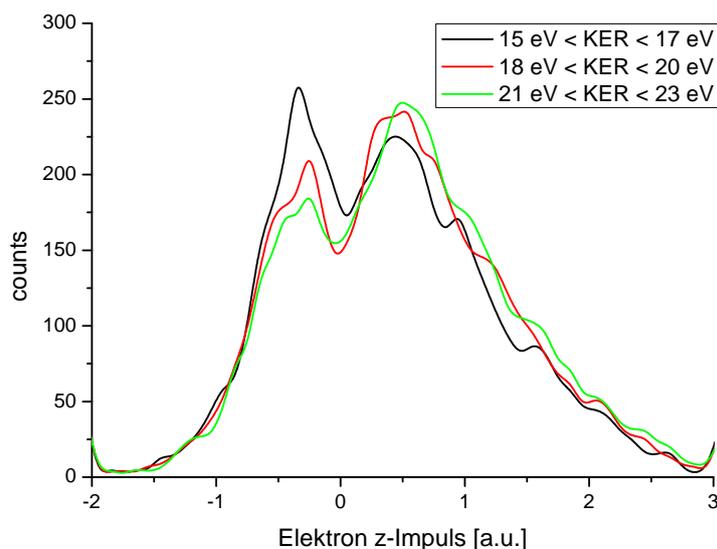


Abbildung 5.15: Elektron z-Impulse für verschiedene KER-Intervalle; Überlagerung von drei Spektren für die Intervalle von 15 bis 17 eV (schwarze Linie), von 18 bis 20 eV (rote Linie) und von 21 bis 23 eV (grüne Linie). Das Verhältnis der vorwärts und rückwärts emittierten Elektronen ändert sich von etwa gleichen Intensitäten bei kleinen KER-Werten zu etwa 30 % Überschuss der Vorwärtsemission im höchsten betrachteten Intervall.

Mit zunehmender kinetischer Energie der ionischen Fragmente und damit kleineren Kernabständen verschiebt sich also das Verhältnis der beiden Ionisationsprozesse zu Gunsten des *binary encounter*. Es kann mit den zur Verfügung stehenden Mitteln allerdings nicht geklärt werden, ob die Vorwärtsemission zunimmt oder die Rückwärtsemission unterdrückt wird.

Eine andere Möglichkeit der Darstellung dieses Sachverhalts wird in Abbildung 5.16 genutzt. Für die beschriebenen drei KER-Intervalle wird der Emissionswinkel β zwischen dem Elektronenimpuls \vec{p}_e und dem Longitudinalimpuls der Elektronen in Polarkoordinaten aufgetragen. Erneut deutlich zu erkennen die relative Intensitätsverschiebung von *Shake-Off*- hin zu *binary encounter*-Prozessen. Die Elektronenenergie wurde hier auf das Intervall zwischen 2 und 10 eV eingeschränkt.

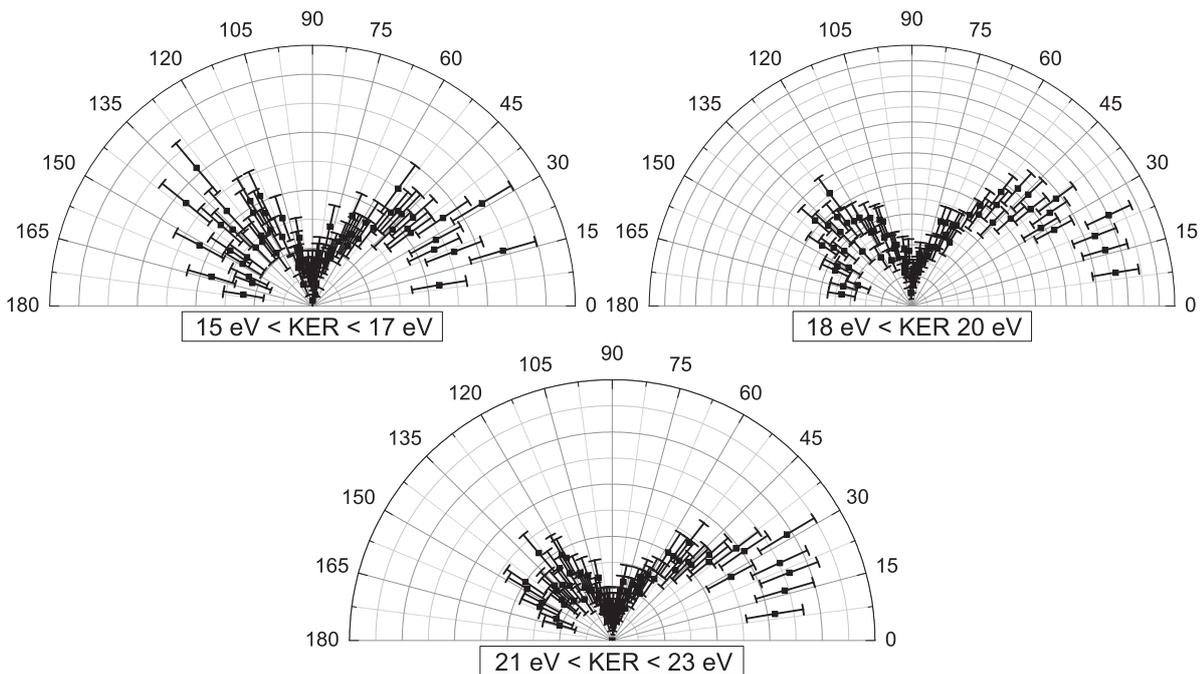


Abbildung 5.16: Emissionswinkel β ($\frac{d\sigma}{d\Omega}$) für KER-Intervalle zwischen 15 und 17 eV (oben links), 18 und 20 eV (oben rechts) sowie zwischen 21 und 23 eV (unten), dargestellt als Polarplot. Auch in dieser Auftragung ist eine relative Intensitätsverschiebung zu Gunsten der *binary encounter*-Unterverteilung klar zu erkennen.

Die relative Zunahme des *binary encounter* ist im Rahmen eines klassischen Bildes verständlich. Die Wahrscheinlichkeit, dass das Projektil mit beiden Elektronen wechselwirkt und somit sowohl ein Elektroneneinfang als auch eine Stoßionisation stattfindet, wird größer sein, wenn beide Elektronen nahe beisammen sind. Dies ist bei kleinen Kernabständen und damit großem KER der Fall, der Befund deckt sich also mit den Erwartungen.

Anders sieht es für die Abhängigkeit des *Shake-Off*-Prozesses aus. In der gängigen Meinung nimmt die Stärke der Elektronenkorrelation mit kleinerem Abstand zu. Man würde also erwarten, dass bei großen KER und damit kleinen Kernabständen im Molekül der auf Elektronenkorrelation basierende *Shake-Off* ebenfalls an Intensität gewinnt. Der Befund widerspricht also der Erwartung und kann zur Zeit in diesem Bild nicht erklärt werden.

Um den Unterschied zwischen beiden Ionisationsprozessen noch zu verdeutlichen werden im nächsten Schritt der *binary encounter*- und der *Shake-Off*-Prozess anhand der Elektron z -Impulse differenziert. Abbildung 5.17 zeigt die Selektion der beiden Ionisationsmechanismen für z -Impulse zwischen -1 a.u. und 0 (*binary encounter*, markiert mit A) sowie für z -Impulse zwischen 0 und 2,3 a.u. (*Shake-Off*, markiert mit B). Die jeweils projizierten KER-Verteilungen wurden zum Zwecke der Vergleichbarkeit auf ihr Integral normiert. Beide Verteilungen weisen in dieser Darstellung keine sichtbaren Unterschiede auf.

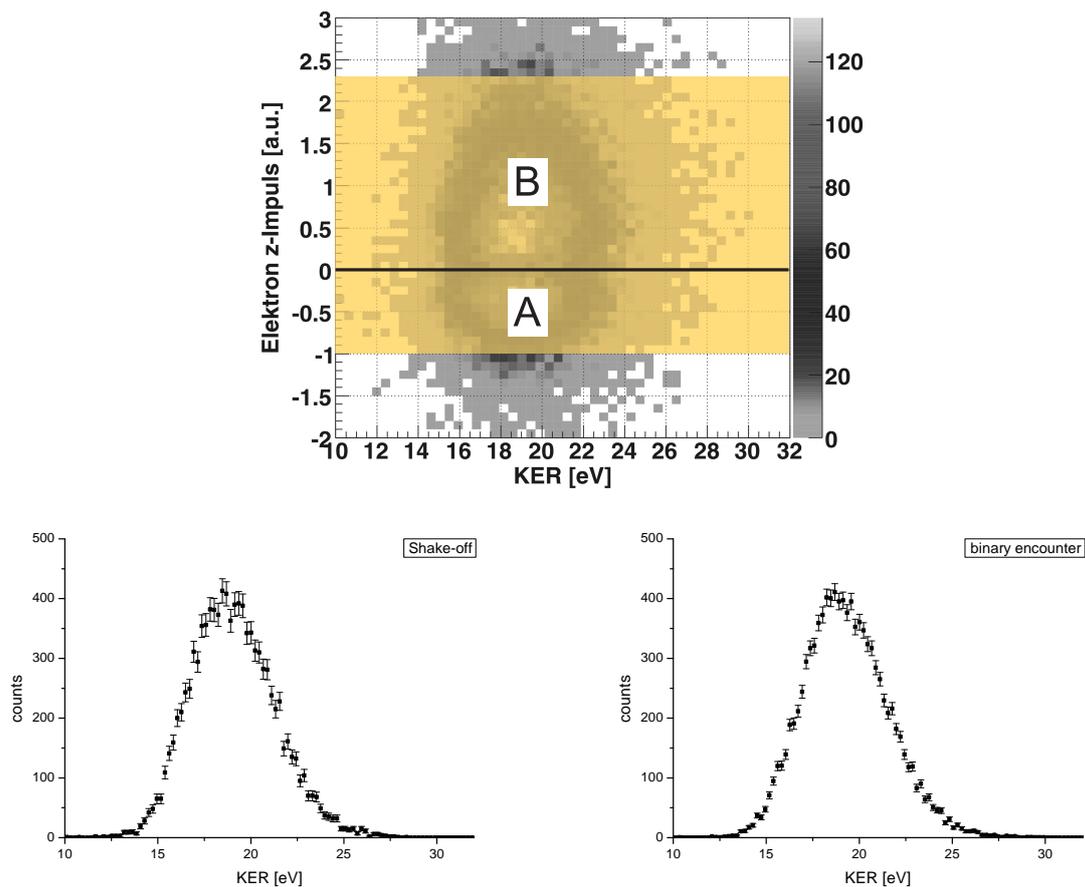


Abbildung 5.17: KER-Verteilungen mit Bedingung auf den *binary encounter* bzw. den *Shake-Off*-Prozess; oben die Visualisierung der projizierten Bereiche, unten links die Projektion für Elektron z -Impulse zwischen -1 und 0 *a.u.* entsprechend der *Shake-Off*-Unterverteilung (Bereich A). Unten rechts die Projektion für Elektron z -Impulse zwischen 0 und $2,3$ *a.u.* entsprechend der *binary encounter*-Unterverteilung (Bereich B). Beide Die beiden Spektren zeigen keine Wesentlichen Unterschiede.

Um einen besseren Vergleich zwischen beiden Projektionen zu ermöglichen werden in Abbildung 5.18 beide KER-Verteilungen zusammengefasst. Das Maximum der Kurven liegt für den *binary encounter*-Prozess bei $18,87\text{ eV}$ und für den *Shake-Off*-Prozess bei $19,13\text{ eV}$. Das Maximum der Energieverteilung für Stoßionisation ist minimal zu höheren Energien verschoben. Dieses Ergebnis ist konsistent mit den obigen Schlussfolgerungen: Die Stoßionisation durch *binary encounter* dominiert bei großen KER-Werten und somit bei kleinen Kernabständen, während eine auf Elektronenkorrelation basierte Ionisation des Targets (*Shake-Off*-Prozess) bei größeren Kernabständen und somit kleineren KER-Werten überwiegt.

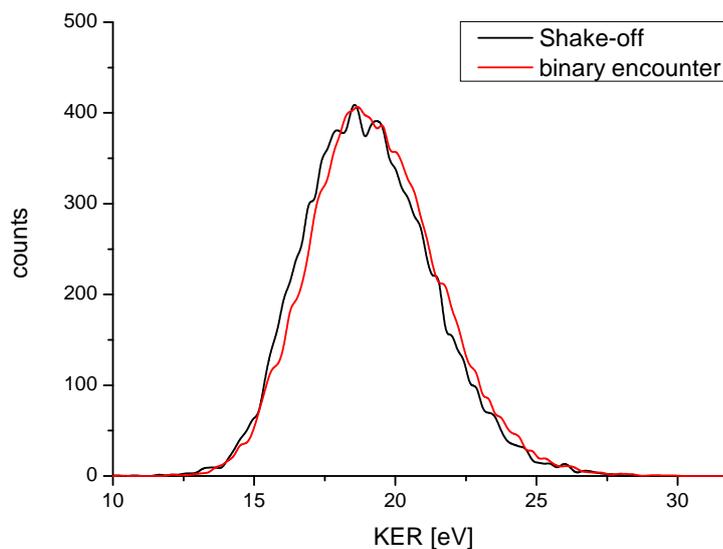


Abbildung 5.18: Vergleich der KER-Verteilungen für den *binary encounter* bzw. den *Shake-Off*-Prozess; die Maxima der Verteilungen liegen bei $18,87\text{ eV}$ für die in *Shake-Off*-Prozessen entstandenen Elektronen und bei $19,13\text{ eV}$ für die Elektronen aus *binary encounter*-Prozessen.

Ein möglicher Verständnisansatz für dieses unerwartete Ergebnis kann im von Voitkiv et al. beschriebenen *ee*-Prozess ([VNU08, Voi08]) gesehen werden. Dieser basiert ebenfalls auf Wechselwirkungen des eingefangenen mit dem emittierten Elektron. Wie beim *Shake-Off*-Prozess werden die Elektronen auch bei diesem Prozess in Rückwärtsrichtung emittiert. Zum momentanen Stand gibt das Modell allerdings sowohl für atomare als auch für molekulare Targets die differentiellen Wirkungsquerschnitte mit unzureichender Übereinstimmung mit dem Experiment wieder. Da die Anpassung der Parameter in der Berechnung aber noch andauert, ist hier in Zukunft mit Fortschritten zu rechnen.

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

In dem hier beschriebenen Experiment wurde die Transferionisation an einem molekularen Target vermessen. Als solches wurde mit H_2 das einfachste zur Verfügung stehende Molekül ausgewählt. In Stößen mit D^+ -Ionen mit einer kinetischen Energie von 300 keV wurde der Prozess mit Hilfe der COLTRIMS-Messtechnik kinematisch vollständig untersucht.

Ziel der Messung war es, die Ergebnisse denen von Mergel et al. ([Mer96]) sowie Schöffler et al. ([Sch06]) gegenüber zu stellen. Beide Autoren verwendeten in ihren Messungen zur Transferionisation atomare Targets. Beide waren außerdem in der Lage, in ihren Daten die Vorwärts- und Rückwärtsemission von Elektronen klar zu unterscheiden und sie einem Ionisationsmechanismus zuzuordnen. Auch in den hier vorgestellten Daten können diese beiden Unterverteilungen klar separiert werden. Die in Projektionsstrahlrichtung freigesetzten Elektronen werden einer Stoßionisation durch Projektil-Elektron-Wechselwirkung (*binary encounter*) zugeschrieben. Elektronen, deren Impulse entgegen der Projektionsstrahlrichtung orientiert sind, werden nach dem Einfang eines Targetelektrons ins Projektil durch Korrelationseffekte ins Kontinuum emittiert (*Shake-Off*). Somit treten für die Transferionisation an Molekülen ursächlich dieselben Mechanismen auf wie im Falle atomarer Targets. Mechanismen wie der *TS2*, also zwei unabhängige Wechselwirkungen der beiden Elektronen mit dem Projektil, von Moshhammer et al. bei der Doppelionisation durch schnelle Stöße mit hochgeladenen Ionen nachgewiesen [MUK⁺96], treten im vorliegenden Experiment nicht auf.

Bestärkt durch die experimentellen Ergebnisse von Weber et al. ([WCJ⁺04]) und Reddish et al. ([RCB⁺08]) sollte die Reaktion darüber hinaus auf mögliche Abhängigkeiten vom Kernabstand untersucht werden. In den vorliegenden Daten zeigt sich, dass die relative Wahrscheinlichkeit der beiden Ionisationsmechanismen sich stark mit dem KER und damit mit dem Kernabstand im Molekül ändert. Die Zunahme der Wahrscheinlichkeit von *binary encounter*-Prozessen mit Verringerung des Kernabstands steht dabei mit der klassischen Vorstellung von diesem Prozess in gutem Einklang.

Die relative Abnahme der durch *Shake-Off* emittierten Elektronen mit kleiner werdendem Kernabstand widerspricht jedoch dem vorherrschenden Verständnis von diesem Prozess. Die gängige Vorstellung ist, dass Korrelationseffekte zwischen den Targetelektronen stärker zum Vorschein kommen, wenn diese im Molekül näher zusammen rücken. Da diese Wechselbeziehung der beiden Elektronen für den *Shake-Off*-Prozess hauptverantwortlich gemacht wird, würde man eine Zunahme desselben mit dem Übergang zu immer kleineren Molekülen erwarten.

Wie vermutet konnte also ein vom Kernabstand abhängiges Verhalten des Systems beobachtet werden. Es ist jedoch mit den zur Verfügung stehenden Daten nicht möglich, eine Aussage darüber zu machen, für welchen der beiden Prozesse sich die Wahrscheinlichkeit absolut gesehen

ändert. Als Ergebnis kann diese Arbeit demnach nur eine Aussage zu den relativen Häufigkeiten der beiden Ionisationsmechanismen machen. Neben einer möglichen Überprüfung dieses Ergebnisses in künftigen Messungen wäre es wünschenswert, die Streuwinkelauflösung des Experiments zu verbessern. Auf diese Weise könnte auch der Impulsübertrag auf das Projektil untersucht werden.

Eine mögliche Erklärung der Befunde ist im von Voitkiv et al. beschriebenen ee -Prozess zu sehen [VNU08, Voi08]. Auch bei diesem Vorgang spielen Korrelationseffekte zwischen den beiden an der Reaktion beteiligten Elektronen eine entscheidende Rolle. Weil gemäß dem *velocity matching*-Prinzip insbesondere Elektronen mit vorwärts gerichteten Impulsen ins Projektil eingefangen werden, besitzt das emittierte Elektron in einem verschränkten System Impulse in Rückwärtsrichtung. Die bisher auf Basis dieses Prozesses errechneten differentiellen Wirkungsquerschnitte stimmen allerdings nicht ausreichend gut mit den gemessenen überein, um die Vorgänge in der Reaktion mit dem ee -Prozess zu erklären. Dies gilt sowohl für die Ergebnisse dieser Messung als auch für die aus Experimenten mit atomaren Targets. Es kann aber davon ausgegangen werden, dass Anpassungen der zur Verfügung stehenden Parameter im Modell eine bessere Übereinstimmung von Theorie und Experiment zur Folge haben werden.

Anhang A

Atomare Einheiten

In der Atomphysik werden in aller Regel atomare Einheiten (atomic units, a.u.) zur Darstellung von Größen genutzt. Die atomaren Einheiten sind auf die Dimensionen eines Elektrons im Grundzustand des Wasserstoffatoms normiert. Daher besitzen die Naturkonstanten, welche für die Berechnung atomarer Prozesse von Bedeutung sind, in atomaren Einheiten einfache Zahlenwerte.

Die folgende Tabelle A.1 stellt die Umrechnungsfaktoren zwischen atomaren und SI-Einheiten dar:

Größe	atomare Einheit	SI-Einheit
Länge	$1 \text{ a.u.} = 0,529177 \cdot 10^{-10} \text{ m} = a_0$	$1 \text{ m} = 1,8897 \cdot 10^{10} \text{ a.u.}$
Zeit	$1 \text{ a.u.} = 2,4189 \cdot 10^{-17} \text{ s}$	$1 \text{ s} = 4,1341 \cdot 10^{16} \text{ a.u.}$
Geschwindigkeit	$1 \text{ a.u.} = 2,1877 \cdot 10^6 \frac{\text{m}}{\text{s}} = c \cdot \alpha$	$1 \frac{\text{m}}{\text{s}} = 4,5706 \cdot 10^{-7} \text{ a.u.}$
Masse	$1 \text{ a.u.} = 9,1091 \cdot 10^{-31} \text{ kg} = m_e$	$1 \text{ kg} = 1,0978 \cdot 10^{30} \text{ a.u.}$
Kraft	$1 \text{ a.u.} = 8,2388 \cdot 10^{-8} \text{ N}$	$1 \text{ N} = 1,2138 \cdot 10^7 \text{ a.u.}$
Energie	$1 \text{ a.u.} = 4,36 \cdot 10^{-18} \text{ J} = 27,212 \text{ eV}$	$1 \text{ J} = 2,294 \cdot 10^{17} \text{ a.u.}$
Ladung	$1 \text{ a.u.} = 1,60219 \cdot 10^{-19} \text{ C} = e$	$1 \text{ C} = 6,1656 \cdot 10^{18} \text{ a.u.}$
Spannung	$1 \text{ a.u.} = 27,212 \text{ V}$	$1 \text{ V} = 0,0367 \text{ a.u.}$
Impuls	$1 \text{ a.u.} = 1,992798 \cdot 10^{-24} \text{ Ns}$	$1 \text{ Ns} = 5,0181 \cdot 10^{23} \text{ a.u.}$

Tabelle A.1: Umrechnungsfaktoren atomare Einheiten - SI-Einheiten

Anhang B

Experimentelle Parameter

Größe	Wert
Strahlstrom Shutter I	$2 \mu A$
Strahlstrom Shutter II	$1,6 \mu A$
Vordruck Gasjet	6 bar
Druckanstieg Jetdump	$1,4 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$
Targetdichte	$5,3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$
Expansionskammer I HV	$4 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}$
Expansionskammer I VV	$6,9 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}$
Expansionskammer II HV	aus
Expansionskammer II VV	$< 1 \cdot 10^{-4} \text{ mbar}$
Hauptkammer HV	$1,5 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$
Hauptkammer VV	$4,6 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}$
Jetdump HV	$1,4 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$
Jet VV	$1,7 \cdot 10^0 \text{ mbar}$
Stromaufnahme Turbopumpe Exp. I	$1,55 \text{ A}$
Rate Projektildetektor	$3,5 \text{ kHz}$
Rate Recoildetektor	20 kHz
Rate Elektrondetektor	40 kHz
Spannung Analysator	$+290 \text{ V}, -275 \text{ V}$
Spannung Beamcleaner	$+570 \text{ V}, -540 \text{ V}$
Spannung Jetfinder	aus
Spannung Spektrometer	$+820 \text{ V}, -104 \text{ V}$
elektrisches Feld	$40,2 \text{ V/cm}$
Strom große Spulen	69 A
Strom kleine Spulen	$1,78 \text{ A}$
magnetisches Feld	$10,7 \text{ Gs}$

Tabelle B.1: Überblick über die wesentlichen Kenngrößen des Experiments

Literaturverzeichnis

- [Ach99] Achler, M.: *Dissertation: Untersuchung von Symmetrieeffekten in der Photodoppelionisation von Helium mit zirkular polarisiertem Licht*. Goethe-Universität Frankfurt, Fachbereich Physik, 1999.
- [AP66] Abrines, R. und Percival, I. C.: *Proc. Phys. Soc.* 88, 861, 1966.
- [BB71] Bensen, T. F. M. und Banks, D.: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys* 4, 706, 1971.
- [BG90] Bethge, K. und Gruber, G.: *Physik der Atome und Moleküle*. VCH-Verlagsgesellschaft Weinheim, 1990.
- [BK30] Brinkman, H. C. und Kramers, H. A.: *Proc. Acad. Sci.* 33, 973, 1930.
- [BT79] Briggs, J. S. und Taulbjerg, K.: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 12, 2565, 1979.
- [Car67] Carlson, T. A.: *Phys. Rev.* 156, 142, 1967.
- [Cza11] Czasch, A.: *lmf2root 1.60x*. <http://www.atom.uni-frankfurt.de/czasch/>, 2011.
- [Dem05] Demtröder, W.: *Experimentalphysik 3*. Springer Verlag, 2005.
- [DMS⁺97] Dörner, R., Mergel, V., Spielberger, L., Achler, M., Khayyat, K., Vogt, T., Bräuning, H., Jagutzki, O., Weber, T., Ullrich, J., Moshhammer, R., Unverzagt, M., Schmitt, W., Khemliche, H., Prior, M. H., Cocke, C. L., Feagin, J., Olson, R. E. und Schmidt-Böcking, H.: *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 124, 225, 1997.
- [Dör11] Dörner, R.: *persönliche Mitteilung*, 2011.
- [GS91] Gayet, R. und Salin, A.: *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 56/ 57, 82, 1991.
- [HJN86] Horsdal, E., Jensen, B. und Nielsen, K. O.: *Phys. Rev. Lett.* 57, 1414, 1986.
- [JFT⁺04] Jahnke, T., Foucar, L., Titze, J., Wallauer, R., Osipov, T., Benis, E. P., Alnaser, A., Jagutzki, O., Arnold, W., Semenov, S. K., Cherepkov, N. A., Schmidt, L. Ph. H., Czasch, A., Staudte, A., Schöffler, M. S., Cocke, C. L., Prior, M. H., Schmidt-Böcking, H. und Dörner, R.: *Phys. Rev. Lett.* 93, 083002, 2004.
- [KKB⁺02] Knapp, A., Kheifets, A., Bray, I., Weber, T., Landers, A. L., Schössler, S., Jahnke, T., Nickles, J., Kammer, S., Jagutzki, O., Schmidt, L. Ph. H., Osipov, T., Rösch, J., Prior, M. H., Schmidt-Böcking, H., Cocke, C. L. und Dörner, R.: *Phys. Rev. Lett.* 89, 033004, 2002.

- [Kre05] Kreidi, K.: *Diplomarbeit: Photodoppelionisation von H_2 - eine Analogie zum Doppelspalt*. Goethe-Universität Frankfurt, Fachbereich Physik, 2005.
- [KTA⁺95] Kambara, T., Tang, J. Z., Awaya, Y., DePaola, B. D., Jagutzki, O., Kanai, Y., Kimura, M., Kojima, T. M., Mergel, V., Nakai, Y., Schmidt-Böcking, H. und Shimamura, J.: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys* 28, 4593, 1995.
- [LEBW96] Lundqvist, M., Edvardsson, D., Baltzer, P. und Wannberg, B.: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 29, 1489, 1996.
- [MC70] McDowell, M. R. C. und Coleman, J. P.: *Introduction to the Theory of Ion-Atom Collisions*. North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1970.
- [MDA⁺97] Mergel, V., Dörner, R., Achler, M., Khayyat, K. H., Lencinas, S., Euler, J., Jagutzki, O., Nüttgens, S., Unverzagt, M., Spielberger, L., Wu, W., Ali, R., Ullrich, J., Cederquist, H., Salin, H., Wood, C. J., Olson, R. E., Belkiz, D., Cocke, C. L. und Schmidt-Böcking, H.: *Phys. Rev. Lett.* 79, 387, 1997.
- [MDA⁺99] Mergel, V., Dörner, R., Achler, M., Khayyat, K. H., Jagutzki, O., Spielberger, L., Salin, H., Wood, C. J., Olson, R. E., Belkiz, D., Cocke, C. L., McGuire, J. H. und Schmidt-Böcking, H.: *New Directions in Atomic Physics*. Plenum (Press) New York, 1999.
- [MDK⁺01] Mergel, V., Dörner, R., Khayyat, Kh., Achler, M., Weber, T., Jagutzki, O., Lüdde, H. J., Cocke, C. L. und Schmidt-Böcking, H.: *Phys. Rev. Lett.* 86, 2257, 2001.
- [Mer96] Mergel, V.: *Dissertation: Dynamische Elektronenkorrelationen in Helium*. Goethe-Universität Frankfurt, Fachbereich Physik, 1996.
- [Mil88] Miller, D. R.: *Free Jet Sources*. Atomic and Molecular Beam Methods, Oxford University Press, Oxford/ New York, 1988.
- [MUK⁺96] Moshhammer, R., Ullrich, J., Kollmus, H., Schmitt, W., Unverzagt, M., Jagutzki, O., Mergel, V., Schmidt-Böcking, H., Mann, R., Woods, C. J. und Olson, R. E.: *Phys. Rev. Lett.* 77, 1242, 1996.
- [MUS⁺96] Moshhammer, R., Unverzagt, M., Schmitt, W., Ullrich, J. und Schmidt-Böcking, H.: *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 108, 425, 1996.
- [Nol06] Nolting, W.: *Grundkurs Theoretische Physik 5/2*. Springer-Verlag, 2006.
- [Opp28] Oppenheimer, J. R.: *Phys. Rev.* 31, 349, 1928.
- [PSCG89] Pálinkás, J., Schuch, R., Cederquist, H. und Gustafsson, O.: *Phys. Rev. Lett.* 63, 2464, 1989.
- [RCB⁺08] Reddish, T. J., Colgan, J., Bolognesi, P., Avaldi, L., Gisselbrecht, M., Lavollée, M., Pindzola, M. S. und Huetz, A.: *Phys. Rev. Lett.* 100, 193001, 2008.
- [Roe08] RoentDek Handels-GmbH: *CoboldPC 2008*. Internetauftritt <http://www.roentdek.com/software/software/>, 2008.

- [Sch02] Schöffler, M. S.: *Diplomarbeit: Entwicklung und Aufbau eines Abbildungssystems zur Messung von Elektronen jenseits niedriger Energien*. Goethe-Universität Frankfurt, Fachbereich Physik, 2002.
- [Sch06] Schöffler, M. S.: *Dissertation: Grundzustandskorrelationen und dynamische Prozesse untersucht in Ion-Helium-Stößen*. Goethe-Universität Frankfurt, Fachbereich Physik, 2006.
- [Sch11] Schmidt, L. Ph. H.: *persönliche Mitteilung*, 2011.
- [SF87] Schiwietz, G. und Fritsch, W.: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys* 20, 5463, 1987.
- [SGW⁺05] Schöffler, M. S., Godunov, A. L., Whelan, C. T., Walters, H. R. J., Schipakov, V. S., Mergel, V., Dörner, R., Jagutzki, O., Schmidt, L. Ph. H., Titze, J., Weigold, E. und Schmidt-Böcking, H.: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 38, L123, 2005.
- [SMD⁺99] Schmidt-Böcking, H., Mergel, V., Dörner, R., Bräuning, H., Achler, M., Spielberger, L., Jagutzki, O., Weber, T., Khayyat, K., Ullrich, J., Cocke, C. L., Prior, M. H., Azuma, Y., Awaya, T. und Kambara, T.: *Aust. J. Phys.* 52, 523, 1999.
- [SMD⁺03a] Schmidt-Böcking, H., Mergel, V., Dörner, R., Cocke, C. L., Jagutzki, O., Schmidt, L., Weber, T., Lüdde, H. J., Weigold, E., Berakdar, J., Cederquist, H., Schmidt, H. T., Schuch, R. und Kheifets, A. S.: *Europhys. Lett.* 62, 477, 2003.
- [SMD⁺03b] Schmidt-Böcking, H., Mergel, V., Dörner, R., Schmidt, L., Weber, T., Weigold, E. und Kheifets, A. S.: *Springer Series on Atomic, Optical and Plasma Physics* 35, 477. Springer-Verlag, 2003.
- [SMS⁺03] Schmidt-Böcking, H., Mergel, V., Schmidt, L., Dörner, R., Jagutzki, O., Ullmann, K., Weber, T., Lüdde, H. J., Weigold, E. und Kheifets, A. S.: *Rad. Phys. and Chem.* 68, 41, 2003.
- [SSJ⁺05] Schmidt-Böcking, H., Schöffler, M. S., Jahnke, T., Czasch, A., Mergel, V., Schmidt, L., Dörner, R., Jagutzki, O., Hattass, M., Weber, T., Weigold, E., Schmidt, H. T., Schuch, R., Cederquist, H., Demkov, Y., Whelan, C., Godunov, A. und Walters, J.: *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.* 233, 3, 2005.
- [Tho12] Thomson, J. J.: *Phil. Mag.* 23, 449, 1912.
- [Tho27] Thomas, L. H.: *Proc. Roy. Soc. (London)* A1 14 561, 1927.
- [UMD⁺97] Ullrich, J., Moshhammer, R., Dörner, R., Jagutzki, O., Mergel, V., Schmidt-Böcking, H. und Spielberger, L.: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 30, 2917, 1997.
- [UMD⁺03] Ullrich, J., Moshhammer, R., Dorn, A., Dörner, R., Schmidt, L. Ph. H. und Schmidt-Böcking, H.: *Rep. Prog. Phys.* 66, 1463, 2003.
- [VMRM05] Vanroose, W., Martín, F., Rescigno, T. N. und McCurdy, C. W.: *Science* 310, 1787, 2005.
- [VNU08] Voitkiv, A. B., Najjari, B. und Ullrich, J.: *Phys. Rev. Lett.* 101, 223201, 2008.

- [Voi08] Voitkiv, A. B.: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 41, 195201, 2008.
- [WCJ⁺04] Weber, T., Czasch, A. O., Jagutzki, O., Müller, A. K., Mergel, V., Kheifets, A., Rotenberg, E., Meigs, G., Prior, M. H., Daveau, S., Landers, A., Cocke, C. L., Osipov, T., Diez Muino, R., Schmidt-Böcking, H. und Dörner, R.: *Nature* 431, 437, 2004.
- [Web99] Weber, T.: *Diplomarbeit: Impulstransfer in Proton-Helium-Stößen untersucht mit hochauflösender Rückstoßionenimpulsspektroskopie*. Goethe-Universität Frankfurt, Fachbereich Physik, zweite Auflage, 1999.
- [WM55] Wiley, W. C. und McLaren, I. H.: *Rev. Sci. Instr.* 26, 1150, 1955.
- [WWM⁺97] Wu, W., Wong, K. L., Montenegro, E. C., Ali, R., Chen, C. Y., Cocke, C. L., Dörner, R., Frohne, V., Giese, J. P., Mergel, V., Meyerhof, W. E., Raphaelian, M., Schmidt-Böcking, H. und Walch, B.: *Phys. Rev. A* 55, 2771, 1997.

Abbildungsverzeichnis

1.1	Von Schöffler et al. gemessene Elektronen-Impulsverteilung in der Streuebene; Projektile jeweils nach rechts gestreut. Das betrachtete Stoßsystem ist $150\text{keV } p^+ + \text{He}$. Klar voneinander getrennt die Elektronen aus den <i>binary encounter</i> - (links oben bei positiven z-Impulsen) und <i>Shake-Off</i> -Ereignissen (links unten, negative z-Impulse).	4
2.1	<i>Elektron-Elektron</i> - (oben) und <i>Elektron-Kern-Thomas-Prozess</i> (unten) in schematischer Darstellung; rot dargestellt das Projektilion, grün der Targetkern, gelb die beteiligten Elektronen. Nach jeweils einem binären Stoß mit dem Projektil und einem mit einem zweiten Targetelektron (<i>EET</i>) beziehungsweise dem Targetkern (<i>NET</i>) besitzt das einzufangende Elektron den gleichen Geschwindigkeitsvektor wie das Projektil. Ein Übergang in einen gebundenen Zustand in selbigem ist sehr wahrscheinlich.	16
2.2	Zustandekommen der ψ_s und ψ_a -Molekülorbitale: Beim ψ_s -Orbital (obere Reihe) ist die Elektronendichte (entspricht etwa ψ^2) zwischen beiden Kernen erhöht, das Orbital ist bindend. Beim ψ_a -Orbital (untere Reihe) hingegen ist die Elektronendichte zwischen den Kernen Null, das Orbital ist nicht-bindend.	21
2.3	Potentialkurven der symmetrischen und der antisymmetrischen Elektronendichteverteilungen $ \psi_s ^2$ bzw. $ \psi_a ^2$ als Funktion des Kernabstands für das H_2^+ -Molekülion, berechnet nach dem <i>LCAO</i> -Verfahren (Grafik aus [Dem05]).	22
2.4	Skizzehafte Darstellung aller Ortsvektoren und Abstände im Molekül; rot die Protonen, gelb die Elektronen	23
2.5	Berechnete Bindungsenergie des Wasserstoffmoleküls als Funktion des Kernabstands für Singulett- und Triplettzustand; Grafik entnommen aus [Nol06]	26
3.1	verwendetes Koordinatensystem; die <i>x</i> -Achse entspricht der Flugzeitrichtung der Recoilionen, die <i>y</i> -Achse gibt der Gasjet vor. Die <i>z</i> -Achse wird durch den einfallenden Projektilstrahl definiert.	27
3.2	Ausbreitung des Targetgases hinter der Düse, mittig die <i>zone of silence</i> (entnommen aus [Mil88]).	29
3.3	Erzeugung des Gasjets, schematisch; gezeigt sind die geometrischen Abmessungen der Expansionskammern 1 und 2. Die Höhe der <i>Skimmer</i> beträgt 21 mm für den 1. <i>Skimmer</i> und 4 mm für den zweiten <i>Skimmer</i>	30
3.4	Strahlführung und Abmessungen am COLTRIMS-XXL-Aufbau, schematisch.	32

3.5	Blick von oben in die Experimentierkammer; der Jet verläuft dem Betrachter entgegen, der Projektilstrahl von oben nach unten. Zu sehen am rechten Rand des Spektrometers der Recoilionendetektor, linksseitig schließt sich die Elektronen-Driftröhre an (nicht im Bild).	32
3.6	Kammer mit Spektrometer und Helmholtzspulen sowie Abschnitte des Projektilstrahlrohrs.	33
3.7	Funktionsprinzip eines <i>MCPs</i> (entnommen aus [Ach99]); das Primärteilchen setzt beim Auftreffen auf die Kanalwand Sekundärelektronen frei. Diese werden durch die angelegte Spannung beschleunigt und lösen bei erneutem Auftreffen auf die Kanalwand ihrerseits Sekundärelektronen aus. Die Verstärkung erreicht so Werte von etwa 10^3	34
3.8	Funktionsprinzip <i>Delayline</i> -Anode; die auftreffende Elektronenwolke bringt Ladung auf die Drähte der beiden Anodenlagen auf. Fließt diese ab, ist das an beiden Enden einer Drahtlage messbar. Der Laufzeitunterschied der Signale wird in eine Ortsinformation übersetzt.	35
3.9	Verschaltung der Ausleseelektronik; Pulstrafos (<i>PT</i>) sorgen für die Differenzbildung zwischen Signal- und Referenzdraht, <i>Fast Amplifier</i> (<i>FA</i>) verstärken die Signale im Anschluss. Anschließend erfolgt die Umwandlung in NIM-Standart-Rechtecksignale mit <i>Constant Fraction Discriminator</i> -Modulen (<i>CFD</i>). Die Datenübertragung an den PC übernehmen <i>Time to Digital Convertern</i> (<i>TDC</i>). Das <i>MCP</i> -Signal des Projektildetektors wird mit einem <i>Linear Fan</i> (<i>LF</i>) dubliziert und als Triggersignal für die Messung verwendet.	37
4.1	Beispielhaftes Ortsspektrum (Elektron-Detektor, Rohdaten)	40
4.2	Projektildetektor Ortsverteilung; links ohne Schnitt, rechts mit Kreisschnitt auf die <i>capture</i> -Verteilung (neutrale Projektil). Der Kreisschnitt entspricht etwa 6 mrad maximalem Streuwinkel. Die Linien höherer Intensität resultieren aus Umladungen im Strahlrohr.	42
4.3	ungeschnittenes <i>PIPICO</i> -Spektrum mit H^+H^+ -Linie (unkorrigierte Flugzeiten) und mit Schnitt auf diese Linie (rechts, Flugzeiten korrigiert).	43
4.4	Veranschaulichung der Gyrationbewegung der Elektronen im Spektrometer; in Abhängigkeit von Richtung und Betrag ihres Anfangsimpulses starten die Elektronen auf unterschiedliche Spiralbahnen. Das homogene Magnetfeld zwingt sie dabei auf eine Kreisbewegung in der yz -Ebene, das elektrische Absaugfeld beschleunigt sie parallel zur Magnetfeldrichtung. Nach einer Gyrationperiode T befinden sich alle Elektronen in der yz -Ebene wieder am selben Punkt (entnommen aus [BG90]).	46
4.5	Geometrie der Gyrationbewegung der Elektronen (zy -Ebene); der Koordinatenursprung wird zur Beschreibung der Gyrationbewegung in den Startort des Elektrons gelegt. Das Elektron wird mit dem Impuls p_{\perp}' in der Detektorebene nachgewiesen, rekonstruiert werden soll der Startimpuls p_{\perp} in der gleichen Ebene.	48
4.6	Vergleich der Stickstoff KER-Verteilungen; Eichmessung für dieses Experiment (rot), Daten von Lundqvist et al. [LEBW96] (schwarz). Die beiden Peaks bei $7,584$ und $10,316\text{ eV}$ wurden durch Iteration der elektrischen Feldstärke bestmöglich zum Überlapp gebracht und so die tatsächliche Feldstärke im Spektrometer bestimmt. Der geschätzte systematische Fehler beträgt 1%	50

4.7	Beispielhaftes <i>wiggle</i> -Spektrum als Skizze; die Flugzeit von Elektronen mit Impuls $p_x = 0$ (rot) liegt asymmetrisch zwischen den Knoten, durch Spiegeln der Verteilung können hier die Nullstellen ausgeglichen werden.	51
4.8	Projektionen der dreidimensionalen Recoilionen-Impulskugel; die Spektren zeigen xy -, zx - und zy -Ebene. Deutlich zu erkennen die kreisrunden Strukturen in allen drei Ebenen. Ursache hierfür ist der isotrope Aufbruch des H_2 -Moleküls in zwei Protonen im Rahmen einer <i>Coulombexplosion</i>	52
4.9	ϕ -Winkelplots für den Recoilionendetektor; links das unkorrigierte Spektrum mit deutlich nichtlinearem Verlauf, rechts nach Anpassung der Ortsnullpunkte und Impuls-Stretchfaktoren.	53
4.10	$\cos(\theta)$ -Plot für den Recoilionendetektor; das unkorrigierte Spektrum (links) zeigt deutliche Abweichungen von einer linearen Form, rechts das gleiche Spektrum nach Anpassung des Flugzeitnullpunkts.	54
5.1	Farbcodiert dargestellt die Energie- (linkes Spektrum) und Emissionswinkelauflösung (rechtes Spektrum) im Elektronenzweig des Spektrometers, jeweils als Funktion der Elektronenergie und des Emissionswinkels; zur Verfügung gestellt von [Dör11]. Der U-förmige Einschnitte in beiden Spektren bei $\theta = 90^\circ$ entstehen durch Elektronen, die senkrecht zur Spektrometerachse starten und deshalb nicht auf den Detektor projiziert werden können.	57
5.2	gemessene KER-Verteilung für H_2 , Maximum bei $19,04\text{ eV}$; simulierte Verteilungen: <i>reflection approximation</i> für ein <i>Morse</i> -Potential (blau gestrichelt) und ein harmonisches Potential (rot gestrichelt), quantenmechanische Berechnungen für <i>Morse</i> -Potential (blau) und harmonisches Potential (rot) Maximum bei $18,68\text{ eV}$; geschätzter systematischer Fehler 1 %	58
5.3	Projektionen der dreidimensionalen Recoilionen-Impulskugel; oben links die xy -Ebene, oben rechts die zx -Ebene, unten die zy -Ebene. Deutlich sichtbar die kreisförmige Signatur der <i>Coulombexplosion</i> der beiden Protonen, außerdem im Zentrum der Spektren die nicht dissoziierten H_2^+ -Ionen aus Ionisations- oder Elektroneneinfangsprozessen.	59
5.4	Projektionen der dreidimensionalen Elektronenimpulse; oben links die xy -Ebene, oben rechts die zx -Ebene, unten die zy -Ebene. Die Elektronen werden in einem gewissen Winkelintervall um die Projektilstrahl-Richtung emittiert.	60
5.5	Elektronen-Transversalimpuls als Funktion des Longitudinalimpulses; links die in dieser Messung für das Stoßsystem $D^+ + H_2$ ermittelte Verteilung, rechts für $p^+ + He$ ([Sch06]). Vorwärts und rückwärts emittierte Elektronen sind klar getrennt. Elektronenimpulse in Projektilstrahlrichtung deuten dabei auf Ionisation durch <i>binary encounter</i> hin, Elektronen mit rückwärts gerichteten Impulsen stammen aus <i>Shake-Off</i> -Prozessen. Die schwarzen Linien kennzeichnen jeweils die theoretisch erwartete <i>binary encounter</i> -Verteilung. Diese entspricht einer Kugel im Geschwindigkeitsraum mit Radius v_p und Mittelpunkt bei v_p	61
5.6	Elektronen-Energieverteilung; die Verteilung fällt erwartungsgemäß zu großen Elektronenenergien hin stark ab.	62

- 5.7 Emissionswinkel β zwischen Elektronenimpuls \vec{p}_e und Elektron-Longitudinalimpuls ($\frac{d\sigma}{d\theta}$) für verschiedene Elektronenenergie-Intervalle; oben die Visualisierung der aufgetragenen Größen: die konstanten Elektronenenergien entsprechen Kreisen in der Impulsverteilung, β ist der Azimutwinkel. Mitte links für Elektronenenergien zwischen 0 und 2,5 eV, Mitte rechts von 2,5 bis 7,5 eV, unten links zwischen 7,5 und 12,5 eV und unten rechts von 22,5 bis 27,5 eV. Die Spektren sind auf ihr Integral normiert. Die Winkelverteilungen stimmen für alle Elektronenenergien gut mit der Impulsverteilung in Abbildung 5.5 überein. 63
- 5.8 Der Winkel α wird eingeschlossen von Molekülachse und Projektilstrahl. Für $\alpha = 90^\circ$ steht das Molekül senkrecht zum Projektilstrahl, für $\alpha = 0^\circ$ oder $\alpha = 180^\circ$ entsprechend parallel. 64
- 5.9 Elektron z -Impuls als Funktion von $\cos(\alpha)$; Trennung der *binary encounter* und der *Shake-Off*-Unterverteilung gut erkennbar. Die *binary encounter*-Unterverteilung bei positiven Elektronenimpulsen zeigt eine leichte Überhöhung der Intensität zwischen $\cos(\alpha) = -0,6$ und $0,6$, die *Shake-Off*-Unterverteilung verläuft vollständig flach. 65
- 5.10 Elektron z -Impulse für verschiedene Molekülorientierungen; oben die Visualisierung der projizierten Bereiche, unten links Summe der Projektionen von $\cos(\alpha) = -1$ bis $-0,8$ und von $\cos(\alpha) = 0,8$ bis 1 (Molekül annähernd parallel zum Projektilstrahl), unten rechts Projektion von $\cos(\alpha) = -0,2$ bis $0,2$ (Molekül und Projektilstrahl annähernd senkrecht zueinander). 66
- 5.11 Elektron z -Impulse für verschiedene Molekülorientierungen; Überlagerung der beiden Spektren für parallele (schwarz) und senkrechte Molekülorientierung (rot). Im ersten Fall sind *binary encounter* und *Shake-Off* etwa gleich wahrscheinlich, im zweiten Fall überwiegt der *binary encounter* um gut 15%. 67
- 5.12 Winkel α zwischen Molekül- und Strahlachse in Polardarstellung, getrennt für Elektronen aus *binary encounter*- und *Shake-Off*-Prozessen. Oben Visualisierung der projizierten Bereiche: Elektronen mit z -Impulsen im Intervall von $-1 a.u.$ bis 0 werden *Shake-Off*-Prozessen zugeordnet (Bereich A), z -Impulse von 0 bis $2,3 a.u.$ führen zur Identifikation als *binary encounter*-Elektron (Bereich B). In Übereinstimmung mit den Erkenntnissen aus Abbildung 5.9 verläuft die *Shake-Off*-Unterverteilung (unten links) annähernd flach, während die *binary encounter*-Unterverteilung (unten rechts) zwischen etwa 45° und 135° eine plateauartige Überhöhung zeigt. 68
- 5.13 Elektron z -Impuls als Funktion des KER; erwartungsgemäß können auch hier *binary encounter* und *Shake-Off* deutlich getrennt werden. Während der *Shake-off*-Anteil der Verteilung symmetrisch ist, erscheint der vorwärts emittierte Teil der Elektronen in Richtung größere KER-Werte verschoben zu sein. 69
- 5.14 Elektron z -Impulse für verschiedene KER-Intervalle; oben links Visualisierung der betrachteten KER-Intervalle, oben rechts von 15 bis $17 eV$, unten links von 18 bis $20 eV$ und unten rechts von 21 bis $23 eV$. Das Verhältnis der Peaks von *binary encounter* und *Shake-Off* ändert sich deutlich mit steigendem KER. 70

5.15 Elektron z -Impulse für verschiedene KER-Intervalle; Überlagerung von drei Spektren für die Intervalle von 15 bis 17 eV (schwarze Linie), von 18 bis 20 eV (rote Linie) und von 21 bis 23 eV (grüne Linie). Das Verhältnis der vorwärts und rückwärts emittierten Elektronen ändert sich von etwa gleichen Intensitäten bei kleinen KER-Werten zu etwa 30 % Überschuss der Vorwärtsemission im höchsten betrachteten Intervall. 71

5.16 Emissionswinkel β ($\frac{d\sigma}{d\Omega}$) für KER-Intervalle zwischen 15 und 17 eV (oben links), 18 und 20 eV (oben rechts) sowie zwischen 21 und 23 eV (unten), dargestellt als Polarplot. Auch in dieser Auftragung ist eine relative Intensitätsverschiebung zu Gunsten der *binary encounter*-Unterverteilung klar zu erkennen. 72

5.17 KER-Verteilungen mit Bedingung auf den *binary encounter* bzw. den *Shake-Off*-Prozess; oben die Visualisierung der projizierten Bereiche, unten links die Projektion für Elektron z -Impulse zwischen -1 und $0 a.u.$ entsprechend der *Shake-Off*-Unterverteilung (Bereich A). Unten rechts die Projektion für Elektron z -Impulse zwischen 0 und $2,3 a.u.$ entsprechend der *binary encounter*-Unterverteilung (Bereich B). Beide Die beiden Spektren zeigen keine Wesentlichen Unterschiede. 73

5.18 Vergleich der KER-Verteilungen für den *binary encounter* bzw. den *Shake-Off*-Prozess; die Maxima der Verteilungen liegen bei 18,87 eV für die in *Shake-Off*-Prozessen entstandenen Elektronen und bei 19,13 eV für die Elektronen aus *binary encounter*-Prozessen. 74

Danksagung

Beginnen möchte ich mit Reinhard Dörner, der mir die Möglichkeit gegeben hat, in seiner Arbeitsgruppe diese Arbeit anzufertigen. Seit meinem Eintritt in die Gruppe mit Beginn der Bachelorarbeit im Oktober 2008 durfte ich hier eine tolle Zeit verbringen. Er ermöglichte zahlreiche Reisen zu Konferenzen und Strahlzeiten im In- und Ausland sowie interessante Projekte und Unternehmungen mit der Gruppe, sowohl physikalischer als auch gänzlich unphysikalischer Natur. Danke dafür, dass seine Tür Bitt- und Fragestellern immer offen steht und seine Physik-Begeisterung so ansteckend ist.

Letzteres gilt in gleichem Maße auch für Horst Schmidt-Böcking. Man ist wohl in keinem Augenblick so motiviert, Physik zu machen, wie nach einem kurzen Gespräch mit Horst. Dabei fasziniert er vor allem mit seinem Detailwissen über frühere Forscher und Experimente immer wieder aufs Neue.

Weiterhin möchte ich Lothar Schmidt danken, der immer wieder ein offenes Ohr für mich hatte, egal ob es ums Ausborgen von Elektronik, das Anstellen von Berechnungen oder das Diagnostizieren von Fehlern im Experiment ging. Außerdem Danke, dass er mit Erzählungen wie der des legendären „Wurstmobile“, damals in der „Kommune“ in Berlin, auch die Tage rettete, an denen mir bis dahin nicht so zum Lachen war.

Achim Czasch war immer dann meine Anlaufstelle, wenn *lmf2root* und ich anderer Meinung waren und einer von beiden eines Besseren belehrt werden musste. Außerdem standen er und Ottmar Jagutzki mir immer mit Rat und Tat zur Seite, wenn es um die richtige Auswahl und die Installation neuer Gitter und MCPs ging.

Till Jahnke hat schon vor der eigentlichen Arbeit bei den Neon-Daten viel Geduld mit mir bewiesen und so dafür gesorgt, dass ich beim Auswerten der hier vorgestellten Daten nicht völlig ins kalte Wasser springen musste. Auch auf Strahlzeiten beantwortete er in den unmöglichsten Augenblicken meine blöde Fragen und hob die Stimmung mit Aussagen wie „der Mensch muss essen“.

Bei der Auswertung selbst bin ich vor allem Markus Schöffler zu Dank verpflichtet. Viele Tricks und Kniffe von seiner Seite machten es mir etwas leichter, die Nullen und Einsen in die entsprechenden Spektren zu zwingen. Darüberhinaus war er quasi zu jeder Tages- und Nachtzeit bereit, Poster zu korrigieren oder sonstige Hilfe zu leisten.

Nadine Neumann ist letztlich mit dafür verantwortlich, dass in dieser Arbeit kein Unsinn steht und alles irgendwie verständlich beschrieben ist. Vielen Dank fürs ausdauernde Lesen und Verbessern.

Klaus Ullmann-Pfleger kümmerte sich, wenn es meinem Rechner mal wieder zu warm wurde oder er nicht das tat, was ich wollte. Danke, dass ich in diesen Momenten den „first level support“ überspringen durfte. Außerdem war er es, der die Arbeit letztlich „zu Papier brachte“. Das Experiment selbst hätte allerdings ohne Jasmin Titze wohl gar nicht erst stattgefunden. Sie hat in zahlreichen Stunden im Keller letztendlich doch irgendwie immer alles zum Laufen

gebracht. Auch auf Fragen zu Arbeit oder Vorträgen hatte sie immer die passende Antwort.

Meine (Nachbar-) Zimmergenossen Debbi, Jörg, Flo, Hong-Keun und Hendrik sorgten stets für eine sehr angenehme Atmosphäre und gingen im Notfall helfend zur Hand. Meinem „Mit-Betreuer“ Hong-Keun gilt dabei ein besonderer Dank für die Unterstützung am Experiment und in seiner Funktion als Administrator, während Hendrik mir einen Großteil der nötigen Programmierkenntnisse vermittelt hat. Meine „Zusammenarbeit“ mit Debbi und Flo dauert nun schon seit Beginn des Studiums an. In dieser Zeit konnte ich immer wieder auf ihre Freundschaft bauen, vielen Dank dafür.

Außerdem danke ich noch allen hier nicht namentlich Erwähnten, die dazu beitragen, dass in unserer Gruppe ein derart angenehmes Arbeiten möglich ist und man stets jemanden findet, der hilft oder zu einem Schwätzchen bereit ist.

Ich möchte mich darüber hinaus bei Frau Frey und Frau Freudenberger, bei der Beschleuniger-mannschaft, bei den Werkstätten und bei der Verwaltung für die Unterstützung in den letzten Jahren bedanken.

Zum Schluss noch ein Dank an meine Familie und Freunde, die Geduld mit mir hatten, bis diese Arbeit endlich fertig war.

