

Fakultät für Physik und Astronomie

Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

**Diplomarbeit**  
**im Studiengang Physik**

vorgelegt von

**Nicole Haag**  
aus Oberndorf am Neckar

Mai 2006



**Kinematisch vollständige  
Experimente zur  
elektronenstoßinduzierten  
Ionisation und Dissoziation  
von  $H_2$ -Molekülen**

Die Diplomarbeit wurde von Nicole Haag ausgeführt am  
Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg  
unter der Betreuung von  
**Herrn Priv. Doz. Dr. A. Dorn**  
sowie  
**Herrn Prof. Dr. J. Ullrich**



## Abstract

The break-up of molecular hydrogen in singly ionizing collisions with 210 eV electrons has been studied kinematically complete, allowing to examine the collision dynamics as detailed as possible. Besides pure ionization the so-called ground state dissociation channel (GSD) has been investigated where the  $H_2^+(1s\sigma_g)$  ions are excited to the vibrational continuum and subsequently dissociate. This allows to additionally extract the molecules' orientation at the time of the collision. For GSD this has never been done before in a kinematically complete experiment. Using a multi-electron recoil-ion momentum spectrometer ('Reaction Microscope') especially designed for electron collision experiments, the scattered projectile, the emitted electron and the  $H^+$  fragment or the  $H_2^+$  target ion, respectively, have been measured in coincidence. In order to cover practically the full solid angle for the detection of  $H^+$  fragments from GSD, a new position sensitive detector has been built and installed in an already existing set-up. Differential cross sections as a function of the molecular alignment, as well as electron emission characteristics for both, dissociative and nondissociative ionization, have been determined. For the latter case fully differential cross sections are, for the first time, presented in 3D, revealing unexpectedly strong electron emission outside the projectile scattering plane.

## Zusammenfassung

Die Einfachionisation von molekularem Wasserstoff, induziert durch Stöße mit 210 eV Elektronen, wurde kinematisch vollständig untersucht, was es erlaubt, die Stoßdynamik so detailliert wie möglich zu studieren. Neben der reinen Ionisation wurde der Reaktionskanal der Grundzustandsdissoziation (GSD) betrachtet, wobei die  $H_2^+(1s\sigma_g)$ -Ionen in das Vibrationskontinuum angeregt werden und dissoziieren. Dies machte es zusätzlich möglich, die Orientierung der Molekülachse zum Zeitpunkt der Reaktion zu bestimmen, was für GSD noch nie in einem kinematisch vollständigen Experiment untersucht wurde. Mit Hilfe eines Multielektronen- und Rückstoßionenimpulsspektrometers ('Reaktionsmikroskop') wurden die Impulse des gestreuten Projektils, des emittierten Elektrons und des  $H^+$ -Fragments, bzw. des  $H_2^+$ -Rückstoßions, in Koinzidenz gemessen. Um dabei praktisch den gesamten Raumwinkel für den Nachweis der  $H^+$ -Fragmente abdecken zu können, wurde ein neuer, großflächig ortsauflösender Detektor für die Ionenseite gebaut und in ein bereits vorhandenes Reaktionsmikroskop integriert. Es wurden differentielle Wirkungsquerschnitte als Funktion der Molekülorientierung, sowie die Winkelverteilung der emittierten Elektronen für sowohl dissoziative als auch nichtdissoziative Ionisation bestimmt. Für letzteren Prozess konnten vollständig differentielle Wirkungsquerschnitte erhalten und erstmals in 3D dargestellt werden, wobei eine unerwartet starke Elektronenemission außerhalb der Projektilstreuebene erkennbar wird.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Stöße von geladenen Teilchen mit Atomen und Molekülen</b>	<b>5</b>
2.1	Elektronenstoßinduzierte Ionisation . . . . .	5
2.2	Grundlagen der theoretischen Beschreibung . . . . .	9
2.2.1	Die Bornsche Näherung . . . . .	9
2.2.2	Nicht-störungstheoretische Ansätze . . . . .	12
2.3	Stoßreaktionen mit molekularem Wasserstoff . . . . .	14
2.4	Interferenzeffekte bei diatomaren homonuklearen Molekülen . . . . .	17
2.5	Das Prinzip der kinematisch vollständigen Messung . . . . .	19
<b>3</b>	<b>Das Experiment</b>	<b>23</b>
3.1	Ein spezielles Reaktionsmikroskop für Elektronenstoßexperimente	24
3.1.1	Das Spektrometer . . . . .	26
3.1.2	Der Projektilstrahl . . . . .	27
3.1.3	Das Gasjet-Target . . . . .	28
3.2	Detektoren . . . . .	30
3.2.1	Micro channel plates . . . . .	31
3.2.2	Ortsauflösende Anoden . . . . .	32
3.2.3	Detektoren mit Loch . . . . .	33
3.2.4	Signalverarbeitung . . . . .	35
3.2.5	Der Elektronendetektor . . . . .	37

3.2.6	Der Ionendetektor - eine neue Hexanode mit zentralem Loch . . . . .	40
3.3	Bestimmung der Impulse . . . . .	42
3.3.1	Der Ionenimpuls . . . . .	44
3.3.2	Der Impuls der Elektronen . . . . .	45
3.3.3	Rekonstruktion der Molekülorientierung . . . . .	47
3.4	Spektrometereigenschaften: Akzeptanz und Auflösung . . . . .	50
3.4.1	Akzeptanz . . . . .	50
3.4.2	Die Auflösung des Spektrometers . . . . .	53
3.5	Durchführung der Messung . . . . .	59
<b>4</b>	<b>Ergebnisse</b>	<b>61</b>
4.1	Wirkungsquerschnitt in Abhängigkeit von der Molekülorientierung	63
4.2	Elektronenspektren aus dissoziativer und nichtdissoziativer Ionisa- tion . . . . .	67
4.3	FDCS für reine Einfachionisation . . . . .	71
<b>5</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>77</b>
	<b>Anhang</b>	<b>81</b>
	Atomare Einheiten . . . . .	81
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>83</b>



# Kapitel 1

## Einleitung

Die Untersuchung von Streuprozessen, bei denen ein atomares oder molekulares Target mit geladenen Teilchen oder Photonen beschossen wird, stellt einen wichtigen Teilbereich atomphysikalischer Forschung dar und hat bereits eine lange Tradition. Im späten 19. Jahrhundert wurden von Philipp Lenard Experimente durchgeführt, die zeigten, dass Elektronen, damals noch Kathodenstrahlen genannt, leicht eine dünne Metallfolie durchdringen. Dies lieferte erste Hinweise darauf, dass Atome und Moleküle keine kompakten Gebilde sind. In seinem berühmten Experiment gelang es Ernest Rutherford 1911, die Streuung von  $\alpha$ -Teilchen an Goldatomen zu messen und in einem Zwei-Körper-Bild zu beschreiben [Rut11]. Seine Ergebnisse trugen entscheidend zum heutigen Verständnis der atomaren Struktur sowie der Dynamik in Zwei-Teilchen-Coulomb-Stößen bei. Weitere wichtige Versuche führten James Franck und Gustav Hertz durch, die mit Hilfe von Elektronenstoßanregung die Energiequantelung der Atomzustände bestätigten. In den frühen 1930er Jahren entwickelte Bethe, ausgehend von der so genannten Bornschen Näherung eine erste quantenmechanische Beschreibung der stoßinduzierten Ionisation [Bet30]. Bei der Berechnung eines solchen Prozesses müssen mindestens drei Teilchen berücksichtigt werden: Das Projektil, der Targetkern und das ionisierte Elektron. Die von Bethe und Born entwickelte Methode basiert auf der quantenmechanischen Störungstheorie und kann dann angewandt werden, wenn das Targetsystem nur geringfügig vom Projektil beeinflusst wird. Noch heute wird die "Erste Bornsche Näherung" häufig zur Berechnung von Wirkungsquerschnitten in atomaren Stößen verwendet. Eine genauere theoretische Beschreibung dieser zeitabhängigen Mehrteilchen-Quantensysteme stellt allerdings immer noch eine große Herausforderung dar und ist Gegenstand aktueller Forschung.

Experimentell wurden vor 1960 meist nur totale Ionisationswahrscheinlichkeiten gemessen. Erst 1969 gelang ein kinematisch vollständiges Experiment zur Einfachionisation von Helium im Elektronenstoß [ESTW69]. Dabei wurden in einer so genannten (e,2e)-Reaktion die Impulse aller Fragmente nach dem Ionisationsprozess, und somit auch Energie- und Impulsübertrag vom Projektil auf das Targetsystem, bestimmt. Für das Verständnis der Stoßdynamik sind diese Größen von entscheidender Bedeutung.

Die Quantendynamik von Mehr-Teilchen-Systemen und ihre Phänomene spielen eine wichtige Rolle bei vielen physikalischen und chemischen Prozessen, also überall dort, wo z.B. Elektronen mit Atomen, Molekülen, Clustern oder Festkörpern wechselwirken. Für die Vorgänge in Gasentladungen und Plasmen sind Stöße von Elektronen oder Ionen mit neutralen Atomen z.B. für den Energietransfer von großer Bedeutung. In planetaren Atmosphären finden chemische Reaktionen, ausgelöst durch Wechselwirkung mit geladenen Teilchen, statt. Stöße von Elektronen mit größeren Molekülen spielen eine wichtige Rolle u. a. in der Biophysik und der medizinischen Physik. Vor allem die Entdeckung, dass Reaktionen mit niederenergetischen Elektronen (3 eV - 20 eV) sehr effizient Doppelstrangbrüche in DNA-Molekülen verursachen können, wobei die Energie unterhalb der Ionisationsschwelle liegt [BCH<sup>+</sup>00], hat zu einem verstärkten Interesse an diesen Prozessen geführt. Es wird deshalb intensiv am fundamentalen Verständnis der Quantendynamik im Stoß von Elektronen mit molekularen Targets geforscht.

Sowohl die Nichtverfügbarkeit von ortsauflösenden Teilchendetektoren als jedoch auch insbesondere das Fehlen von abbildenden Verfahren stellte lange Zeit ein großes Problem für kinematisch vollständige Stoßexperimente dar: Es konnte nie der gesamte Orts- bzw. Impulsraum gleichzeitig erfasst werden. Stattdessen wurden immer sehr kleine Ausschnitte nacheinander beobachtet, was für die Koinzidenzmessungen insgesamt sehr lange Messzeiten erforderlich machte. Experimente zu Reaktionen mit kleinen Wirkungsquerschnitten waren nicht realisierbar und viele interessante Fragen blieben zunächst unbeantwortet. Die Entwicklung des 'Reaktionsmikroskops' [MUS<sup>+</sup>96] in den 1990er Jahren bedeutete eine entscheidende Verbesserung. Bei dieser Technik werden die Fragmente der Stoßreaktion durch elektrische und magnetische Felder auf hochgenaue ortsempfindliche Detektoren projiziert, was es im Grunde ermöglicht, den gesamten Raumwinkel, auch für die Erfassung mehrerer Teilchen, abzudecken.

Was molekulare Targets betrifft, so stellt  $H_2$  ein Prototyp-System dar. Als das einfachste diatomare Molekül ist es bereits seit vielen Jahren Gegenstand von sowohl experimentellen Untersuchungen [JSPE75][CLBD<sup>+</sup>89], als auch theoretischen Berechnungen [WFH<sup>+</sup>01][SFW<sup>+</sup>02]. Gegenüber Atomen kommen

zusätzliche Freiheitsgrade wie Vibration und Rotation ins Spiel, wobei die Kopplung zwischen Elektronen- und Kernbewegung zusätzliche Reaktionskanäle öffnet. Neue Aspekte kommen auch durch die Form des Potentials und die zwei-zentrierte Geometrie des Targets hinzu [GMP05], [SFW<sup>+</sup>03]. In den letzten Jahren kam es deshalb zu einem verstärkten Interesse an vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitten (FDCS) für molekulare Systeme. Dazu trugen unter anderem hauptsächlich zwei Entwicklungen bei: Zum einen die Möglichkeit, Interferenzefekte analog dem Youngschen Doppelspaltexperiment bei diatomaren, homonuklearen Molekülen zu beobachten (z.B. [SSH<sup>+</sup>01],[LWO<sup>+</sup>04],[SEC<sup>+</sup>05]), und zum zweiten, die Orientierung des Moleküls zum Zeitpunkt der Ionisation experimentell zu bestimmen.

So konnten für die Photo-Doppelionisation vor kurzem erstmals FDCS mit bekannter Orientierung der Molekülachse und bekanntem internuklearem Abstand vermessen werden [WCJ<sup>+</sup>04]. Zur stoßinduzierten Ionisation gibt es allerdings bisher nur ein einziges Experiment, bei dem vollständig differentielle Daten für eine bestimmte Ausrichtung des Moleküls gewonnen werden konnten, wobei dies für Ionenstöße aufgrund des sehr kleinen und deshalb kaum messbaren Projektilstreuwinkels praktisch nicht realisierbar ist. Für Elektronenstoßionisation von  $H_2$ -Molekülen gelang zwar ein kinematisch vollständiges Experiment mit konventioneller Spektroskopie ([TWK<sup>+</sup>04], [TWK<sup>+</sup>05]), allerdings sind die Resultate nur wenig aussagekräftig.

Während es inzwischen eine Vielzahl an Experimenten zur Untersuchung von Anisotropieeffekten in Stoßprozessen gibt, bei denen beide Targetelektronen des  $H_2$ -Moleküls beteiligt sind (z.B. [EWDE90], [TWK<sup>+</sup>05]), so ist die Abhängigkeit der Wirkungsquerschnitte von der Molekülorientierung für den Fall der Einfachionisation ohne Anregung des zweiten Elektrons noch relativ wenig erforscht. Nur für Stöße mit Protonen sind Daten vorhanden ([DMF<sup>+</sup>04], [DMF<sup>+</sup>05], [JML<sup>+</sup>05]), welche allerdings nicht vollständig differentiell sind. Um bei diesem Ein-Elektron-Prozess die Richtung der Molekülachse rekonstruieren zu können, wird der Reaktionskanal der Grundzustandsdissoziation (GSD) ausgenutzt, bei dem die  $H_2^+(1s\sigma_g)$ -Ionen in das Vibrationskontinuum angeregt werden und in ein  $H^+$ -Ion und ein neutrales H(1s)-Atom dissoziieren.

Ziel dieser Diplomarbeit war es, erstmals vollständig differentielle Daten für diesen Prozess bei bekannter Orientierung der molekularen Achse zu gewinnen. Dazu musste die Akzeptanz des Ionennachweises verbessert und ein vorhandenes Reaktionsmikroskop so modifiziert werden, dass  $H^+$ -Fragmente mit einer Energie von bis zu 1 eV, wie sie bei der GSD entstehen, in einem möglichst großen Raumwinkelbereich detektiert werden können. Es wurde deshalb ein großflächiger, 2D

ortsauffösender und *multi hit*-fähiger Detektor für die Ionenseite neu aufgebaut und in die speziell für Elektronenstoßexperimente modifizierte Apparatur integriert. Nach erfolgreichen Tests konnten erste kinematisch vollständige Daten erhalten werden.

Darüber hinaus wurden gleichzeitig FDCSs für die nichtdissoziative Ionisation, bei der ein stabiles  $H_2^+$ -Ion im Endkanal vorhanden ist, gemessen. Für diesen Prozess konnte damit erstmals ein komplettes dreidimensionales Bild der Stoßdynamik gewonnen werden.

Die vorliegende Arbeit ist folgendermaßen gegliedert: Zunächst wird eine Einführung in die physikalischen Grundlagen atomarer und molekularer Stoßprozesse gegeben und auf die speziell für molekularen Wasserstoff relevanten Reaktionen eingegangen. In Kapitel 3 werden der experimentelle Aufbau, die verwendeten Techniken und die Analyse der Daten beschrieben. Die Ergebnisse werden in Kapitel 4 vorgestellt und diskutiert. Es werden u. a. Wirkungsquerschnitte in Abhängigkeit der Molekülorientierung und vollständig differentielle Daten zur reinen Einfachionisation präsentiert. Kapitel 5 beinhaltet eine Zusammenfassung der Arbeit und einen Ausblick auf geplante Experimente.

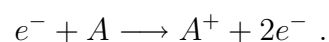
# Kapitel 2

## Stöße von geladenen Teilchen mit Atomen und Molekülen

Bei Stößen zwischen schnellen geladenen Teilchen und Atomen oder Molekülen kann es zu unterschiedlichen Prozessen kommen, welche in verschiedene Kategorien unterteilt werden können und die sich durch die Endprodukte der Reaktion unterscheiden. Zunächst gibt es die elastische Streuung, bei der das Projektil am Target um einen Streuwinkel abgelenkt wird, ohne dass sich die innere Energie der Stoßpartner ändert. Inelastische Reaktionen, bei denen Elektronen im Target durch Anregung in höhere Energieniveaus gehoben werden, bilden eine weitere Kategorie. Außerdem gibt es die stoßinduzierte Ionisation, wobei mindestens ein Targetelektron ins Kontinuum gelangt, so dass sich der Ladungszustand des entsprechenden Targetteilchens ändert. Diese Prozesse treten beim Elektronenstoß im Allgemeinen auch kombiniert auf. Im folgenden wird die in dieser Arbeit untersuchte Stoßionisation ausführlicher diskutiert.

### 2.1 Elektronenstoßinduzierte Ionisation

Der einfachste Ionisationsprozess ist die Entstehung eines einfach geladenen Ions, wobei dieses sich im Grundzustand befindet:



Durch die Coulomb-Wechselwirkung des Projektils mit dem Target kann ausreichend Energie übertragen werden um eines oder auch mehrere Elektronen zu ionisieren. Dies geschieht innerhalb einer sehr kurzen Zeit von ca.  $10^{-16}$  bis  $10^{-18}$ s,

bzw. einigen atomaren Einheiten<sup>1</sup>. Charakteristische Größen sind dabei die Ionisationsschwelle (Bindungsenergie) und der Wirkungsquerschnitt, der ein Maß für die Wahrscheinlichkeit des Prozesses ist.

Man unterscheidet verschiedene kinematische Bereiche: Stöße, bei denen ein schnelles Projektil, klassisch gesehen, in relativ großer Entfernung verglichen mit der Größe des Atoms das Target passiert sowie sehr enge Stöße. Der erste Fall ist der weitaus wahrscheinlichste. Hier wird das Projektil nur sehr schwach abgelenkt und überträgt daher außer Energie nur wenig Impuls. Das emittierte Elektron und der zurückbleibende Kern behalten praktisch denselben Impuls wie im gebundenen Anfangszustand. Da das Coulombfeld des Projektils am Ort des Targetatoms als Halbschwingung eines elektromagnetischen Feldes (Licht) aufgefasst werden kann, zeigt die Ionisation eine Charakteristik sehr ähnlich der Photoionisation, d. h. die emittierten Elektronen bilden eine Dipol-Winkelverteilung (Abb. 2.1a). Sehr enge Stöße des Projektils mit dem Targetelektron kann man sich wie eine Kollision zweier Billiardkugeln vorstellen. Das Projektil überträgt Energie und auch beträchtlichen Impuls in einem direkten, so genannten binären, Stoß auf das Targetelektron. Dieses wird in Richtung des übertragenen Impulses emittiert. Der Impuls des zurückbleibenden Kerns ändert sich im Stoß nicht. Im Allgemeinen wird die Stoßkinematik zwischen diesen Extremen liegen.

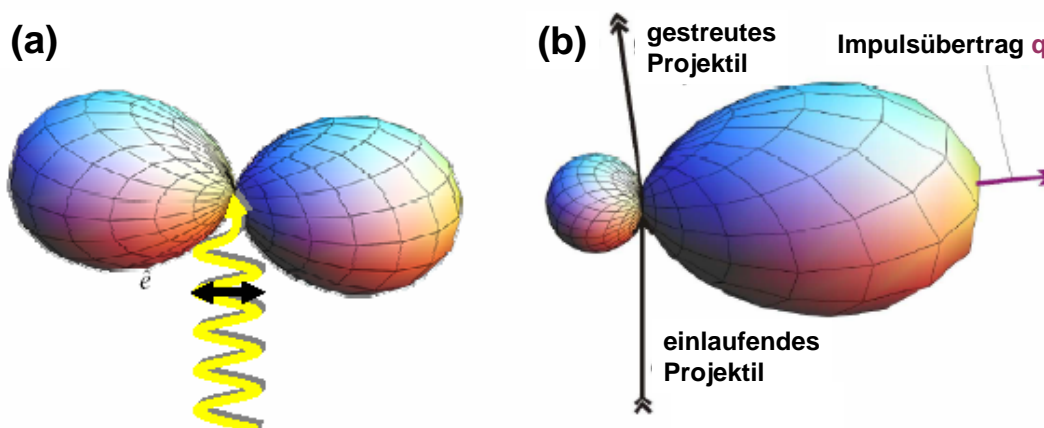


Abbildung 2.1: *Typische Winkelverteilung der emittierten Elektronen nach Photoionisation eines gebundenen s-Elektrons (a) und eines im Stoß mit geladenen Teilchen ionisierten Elektrons (b). Der Wirkungsquerschnitt für die Emission des Targetelektrons in eine bestimmte Richtung entspricht dem Abstand vom Ursprung zur dargestellten Oberfläche in dieser Richtung.*

<sup>1</sup>zu den atomaren Einheiten (a.u.) siehe Anhang

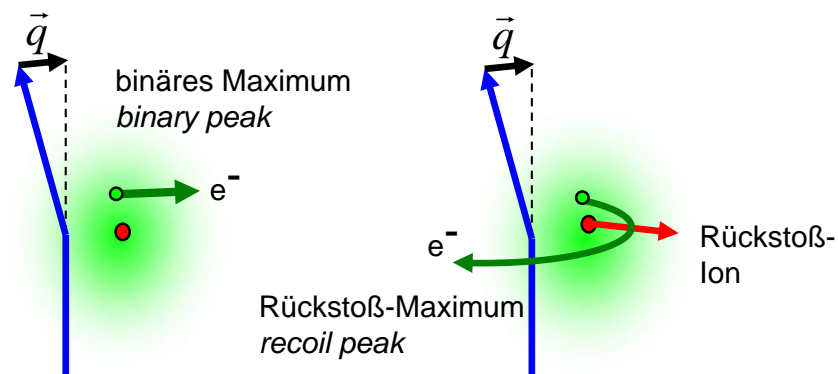


Abbildung 2.2: Illustration der Entstehung von binärem Maximum und Rückstoßmaximum.

In Abb. 2.1 b ist ein typischer Wirkungsquerschnitt für die Winkelverteilung des ionisierten Elektrons nach Elektronenstoß gezeigt. Der Impuls des einlaufenden und gestreuten Projektils ist festgehalten. Der Wirkungsquerschnitt zeigt ein Maximum für die Emission in die Richtung des vom Projektil an das Target übertragenen Impulses  $\vec{q}$ , das so genannte binäre Maximum (engl.: *binary peak*), und ein zweites, in der Regel kleineres Maximum für die Emission in die entgegengesetzte Richtung. Dieses wird Rückstoß-Maximum (engl.: *recoil peak*) genannt, und kommt anschaulich dadurch zustande, dass das zunächst vom Projektilelektron getroffene und in die Richtung des Impulsübertrags  $q$  emittierte Targetelektron vor Verlassen des Atoms im Kernpotential streut und dadurch in der entgegengesetzten Richtung beobachtet wird (siehe Abb. 2.2). Das Ion nimmt dann einen beträchtlichen Rückstoßimpuls auf. Die relative Höhe beider Maxima hängt nun stark vom effektiven Kernpotential, von der Energie des auslaufenden Elektrons und außerdem vom Impulsübertrag  $\vec{q}$ , oder äquivalent vom Projektilstreuwinkel, ab. In Abb. 2.3 (Mitte) ist demonstriert, wie die Intensität des Rückstoß-Maximums mit kleiner werdendem  $q$  zunimmt. Aufgrund der Impulserhaltung verändert sich damit auch die Verteilung der Ionen (Abb. 2.3 unten). Hat das Targetelektron nur eine geringe kinetische Energie, dann ist die Wahrscheinlichkeit, dass es im Kernpotential streut, bevor es emittiert wird, ebenfalls höher, und das Rückstoßmaximum ist stärker ausgeprägt. (e,2e)-Experimente zeigen, dass auch mit steigender Bindungsenergie die relative Intensität des Rückstoßmaximums zunimmt. Die Bindungsenergie steht in direktem Zusammenhang mit dem effektiven Potential, in dem sich das gebundene Elektron bewegt.

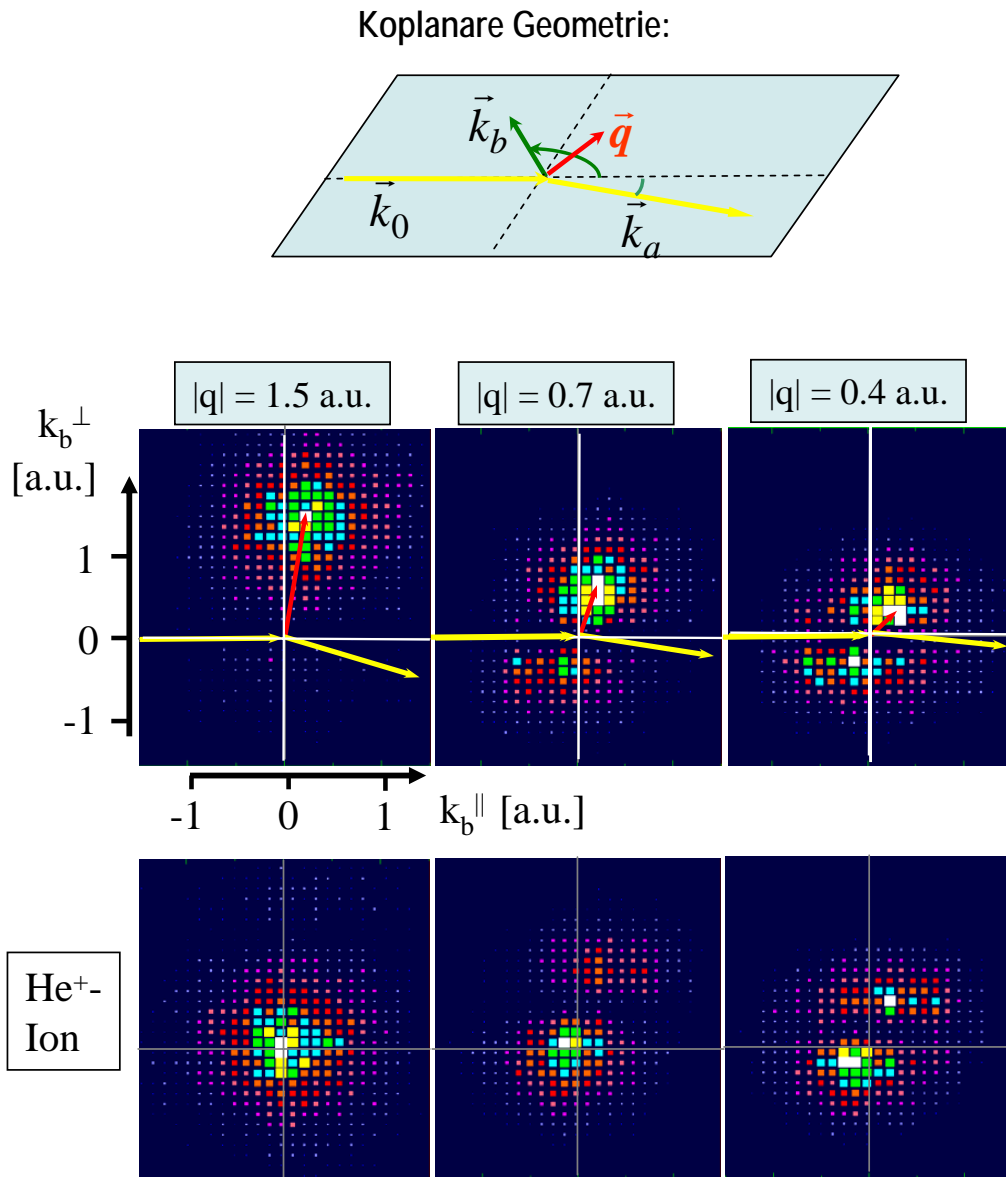


Abbildung 2.3:  $|q|$ -Abhängigkeit des binären und Rückstoß-Maximums bei Einfachionisation von Helium im Elektronenstoß. Oben: koplanare Geometrie, wobei der Impulsvektor des emittierten Elektrons (grüner Pfeil) in der so genannten Streuebene liegt, welche von den Impulsvektoren des einlaufenden und des gestreuten Projektils (gelbe Pfeile) aufgespannt wird. Der rote Pfeil stellt den Impulsübertrag  $\vec{q}$  dar. Mitte: Verteilung der ionisierten Targetelektronen in der Streuebene für verschiedene  $|q|$  (analog verschiedener Streuwinkel des Projektils). Unten: Verteilung der Rückstoßionen-Impulse für die entsprechenden Fälle. Kleine dunkle Quadrate entsprechen dabei jeweils einem kleinen Wirkungsquerschnitt, große helle Quadrate einem großen Wirkungsquerschnitt.



Der in Abb. 2.1 dargestellte Wirkungsquerschnitt ist vollständig differentiell, d. h. alle Impulse der beteiligten Teilchen sind bestimmt. Bei der Einfachionisation im Teilchenstoß müssen dazu, bei bekanntem Anfangszustand, z. B. die Emissionswinkel der beiden Elektronen und die Energie eines der beiden gemessen werden. Daher nennt man den vollständig differentiellen Querschnitt auch dreifach differentiell.

## 2.2 Grundlagen der theoretischen Beschreibung

Seit der ersten quantenmechanischen Beschreibung inelastischer atomarer Stöße von Bethe und Born wurden zahlreiche klassische, semiklassische und quantenmechanische Ansätze entwickelt, um die Elektronenemission in atomaren Stoßprozessen zu beschreiben. Dabei besteht die Schwierigkeit darin, dass sich die exakten Zustände bereits eines Drei-Körper-Systems, wie es zum Beispiel bei der Ionisation von Wasserstoff im Teilchenstoß auftritt, nicht mehr analytisch bestimmen lassen. Somit müssen Näherungen oder numerische Verfahren verwendet werden, um diese Prozesse zu beschreiben. Das Ziel ist dabei die Berechnung der quantenmechanischen Amplitude  $T^{fi}$  für den Übergang aus einem gegebenen Anfangszustand  $|i\rangle$  in einen Endzustand  $|f\rangle$ . Der Wirkungsquerschnitt ist proportional zum Betragsquadrat der Amplitude:  $\sigma \propto |T^{fi}|^2$ . Bei schnellen Stößen, wenn also die Projektilgeschwindigkeit höher als die Geschwindigkeit des im Target gebundenen Elektrons ist, kann häufig ein perturbativer Ansatz gewählt werden (z. B. die Born-Theorie), wobei das Projektil als kleine Störung des Targetatoms behandelt wird. Im Folgenden soll zuerst die Bornsche Näherung grob skizziert und danach einige weiterentwickelte, nicht-störungstheoretische Ansätze kurz vorgestellt werden.

### 2.2.1 Die Bornsche Näherung

In der Bornschen Näherung wird das gesamte Stoßsystem in das Projektil- und das Targetsystem aufgeteilt, die beide vor und nach dem Stoß unabhängig voneinander sind. Somit ist der Hamiltonoperator folgendermaßen gegeben:

$$H = H_0 + V = H_{\text{Projektil}} + H_{\text{Target}} + V, \quad (2.1)$$

mit

$$V = \frac{Z_P Z_T}{R} - \sum_j \frac{Z_P}{|R - r_j|}. \quad (2.2)$$

Dabei ist  $H_{\text{Projektil}}$  der Hamiltonoperator des freien Projektils,  $H_{\text{Target}}$  der des ungestörten Targets und  $V$  die Wechselwirkung zwischen dem Projektil und dem Targetsystem.  $Z_P$  bzw.  $Z_T$  sind die Ladungen des Projektils bzw. des Targetkerns,  $R$  der Ort des Projektils und  $r_j$  der Ort des  $j$ -ten Elektrons (der Targetkern ruht im Ursprung). Somit können die Eigenzustände des ungestörten Systems  $|\phi\rangle$  bestimmt werden. Es ergibt sich:

$$|\phi\rangle = (2\pi)^{-\frac{3}{2}} e^{ip_P R} |\varphi\rangle . \quad (2.3)$$

Das Projektil mit dem Impuls  $p_P$  wird durch eine ebene Welle beschrieben, der Zustand des Targetelektrons ist durch  $|\varphi\rangle$  gegeben.

In der Bornschen Näherung wird nun die exakte Lösung der Schrödingergleichung  $(E - H_0) |\Psi\rangle = V |\Psi\rangle$  mit Hilfe der so genannten Lippmann-Schwinger-Gleichung iterativ gelöst. Für das exakte Übergangsmatrixelement  $T^{fi}$  vom Anfangszustand  $|i\rangle$  in den Endzustand  $|f\rangle$  lässt sich dann schreiben:

$$T^{fi} = \langle \phi_f | V | \phi_i \rangle + \langle \phi_f | V G_0^+ V | \phi_i \rangle + \langle \phi_f | V G_0^+ V G_0^+ V | \phi_i \rangle + \dots \quad (2.4)$$

$G_0^+$  ist dabei der freie Greensche Operator. Da das Störpotential  $V$  die Wechselwirkung zwischen Projektil und Targetsystem darstellt, kann dieser Ausdruck folgendermaßen interpretiert werden: Der erste Term entspricht der einmaligen Wechselwirkung zwischen Projektil und Target, also dem Austausch eines virtuellen Photons. Der zweite Term entspricht der zweimaligen, die weiteren Terme der entsprechend mehrfachen Wechselwirkung. Der freie Greensche Operator  $G_0^+$  stellt dabei die Propagation, bzw. die Bewegung des Systems zwischen den einzelnen Wechselwirkungen dar.

Man kann zeigen, dass diese Reihe eine Entwicklung nach Potenzen des Störoperators  $V$  darstellt. Für ein durch Gleichung 2.2 gegebenes Störpotential entspricht dies einer Potenzreihenentwicklung nach der so genannten Störung  $\eta = Z_P/v_P$  ( $v_P$ : Projektilgeschwindigkeit). Voraussetzung für die Konvergenz der Bornschen Reihe ist also  $\eta < 1$ . Berechnet man nur den ersten Term der Reihe, so spricht man von der *Ersten Bornschen Näherung* ( $\eta \ll 1$ ). Ist die Störung  $\eta$  in dem zu untersuchenden Stoßsystem jedoch zu groß, müssen auch Beiträge höherer Ordnung berücksichtigt werden, so z. B. der zweite Term in der *Zweiten Bornschen Näherung*. Hier treten allerdings bereits Schwierigkeiten bei der Berechnung auf, die nur durch Vereinfachungen gelöst werden können. Weitere Terme der Reihe werden in aller Regel nicht mehr berücksichtigt, da der Aufwand für ihre Berechnung zu groß ist.

### Die Erste Bornsche Näherung

Man kann durch Einsetzen von Gl. 2.2 in den Term erster Ordnung von Gl. 2.4 nach einigen Umformungen schreiben:

$$T_{1B}^{fi} = \frac{Z_P}{2\pi^2 q^2} \left\langle \phi_f \left| \sum_j e^{ipr_j} \right| \phi_i \right\rangle . \quad (2.5)$$

Dies ist ein häufig verwendeter Ausdruck zur Bestimmung der Ersten-Born-Amplitude. Um diese explizit zu berechnen, müssen lediglich die gebundenen Zustände  $|\phi_i\rangle$  und die Kontinuumszustände  $|\phi_f\rangle$  des ungestörten Targets bestimmt werden. Im Falle eines atomaren Wasserstofftargets ist dies exakt möglich. Bei Targets mit mehreren Elektronen ist die Verwendung von genauen Wellenfunktionen häufig recht schwierig. Zum einen ist die Bestimmung dieser Eigenzustände mit großem Aufwand verbunden und nur numerisch möglich, zum anderen erschwert die Verwendung dieser Zustände auch die Berechnung der Matrixelemente. Deshalb wird in vielen Rechnungen zur Einfachionisation ein wasserstoffähnliches Target mit einer effektiven Kernladung  $Z_T$  benutzt. In der Ersten Bornschen Näherung werden alle Effekte höherer Ordnung in der Projektil-Target-Wechselwirkung vernachlässigt. Das heißt, hier werden weder die Interaktion zwischen Projektil und dem Targetkern, noch mehrfache Stöße mit den Targetelektronen berücksichtigt.

### Die Zweite Bornsche Näherung

In der zweiten Bornschen Näherung werden die ersten beiden Terme der Bornschen Reihe (Gl. 2.4) berücksichtigt, d. h. es werden auch Stoßprozesse beschrieben, bei denen das Projektil zweimal mit dem Target wechselwirkt. Dabei gibt es eine ganze Reihe verschiedener Möglichkeiten. So kann das Projektil z. B. am Kern und an einem gebundenen Elektron streuen. Die Wechselwirkung des Projektils mit dem ionisierten Elektron nach dem Stoß (die so genannte *post collision interaction*, *PCI*) ist ebenfalls zum Teil berücksichtigt, da ein Elektron nach der eigentlichen Ionisation noch ein zweites Mal mit dem Projektil wechselwirken kann. Auf diese Weise kann unter Berücksichtigung der Zweiten-Born-Amplitude häufig die Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment deutlich verbessert werden. Der Wirkungsquerschnitt in der Zweiten Bornschen Näherung ergibt sich zu

$$\sigma_{i \rightarrow f} \propto \left| T_{1B}^{fi} + T_{2B}^{fi} \right|^2 = \left| \alpha_1 Z_P + \alpha_2 Z_P^2 \right|^2 = \alpha_1^2 Z_P^2 + 2\alpha_1 \alpha_2 Z_P^3 + \alpha_2^2 Z_P^4 \quad (2.6)$$

$\alpha_{1,2}$  sind dabei Koeffizienten, die sich durch die explizite Berechnung der Übergangsamplituden bestimmen lassen. In Gl. 2.6 entspricht der erste Term dem reinen Ein-Schritt-Prozess, bei dem das Projektil nur einmal mit dem Target wechselwirkt, und der letzte dem reinen Zwei-Schritt-Prozess, wobei genau zwei Wechselwirkungen berücksichtigt sind. Der mittlere Term stellt die Interferenz zwischen diesen beiden Prozessen dar, wodurch eine Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts vom Vorzeichen der Projektilladung auftritt.

### 2.2.2 Nicht-störungstheoretische Ansätze

Um eine bessere Übereinstimmung zwischen Theorie und experimentellen Daten zu erreichen sind oft erweiterte Ansätze und aufwändigere Methoden, die über die Bornsche Näherung hinaus gehen, nötig. Nicht-perturbative Rechnungen werden vor allem bei kleinen Projektilgeschwindigkeiten verwendet, wo die Wechselwirkung mit dem Projektil nicht mehr als kleine Störung angesehen werden kann. Es sollen hier drei Modelle kurz vorgestellt werden, die Gegenstand der aktuellen Forschung sind.

#### Distorted Wave Born Approximation (DWBA)

Die *Distorted-Wave*-Methode erlaubt es, Teile der Wechselwirkung exakt, andere Teile störungstheoretisch zu behandeln. Die Idee bei diesem Ansatz ist es, das vom freien Elektron wahrgenommene Potential  $V_{i,f}$  sowohl im Anfangs- als auch Endzustand in zwei Terme aufzuspalten:

$$V_{i,f} = U_{i,f} + W_{i,f} . \quad (2.7)$$

Die Wechselwirkung des ersten Terms  $U_{i,f}$  wird exakt behandelt, der zweite Term  $W_{i,f}$  störungstheoretisch, ähnlich der Bornschen Reihe. Die Lippman-Schwinger-Gleichung wird dann nur mit dem so genannten '*distortion*'-Term  $U_{i,f}$  gelöst, indem entweder für den Anfangs- oder Endzustand verzerrte Streuwellenfunktionen (engl.: *distorted waves*) bestimmt werden. Damit kann eine exakte Wellenfunktion für z.B. den Anfangszustand angegeben werden, welche in eine Reihe entwickelt werden kann. In der DWB1-Näherung (*Distorted Wave First Born approximation*) wird nur der erste Term dieser Reihe berücksichtigt, in der DWB2-Theorie wird nach dem zweiten Term abgebrochen (siehe z.B. [CMWW04],[CM05]). Formal ist diese Methode ganz ähnlich strukturiert wie die Bornsche Näherung, es sind lediglich die ebenen Wellen durch verzerrte Wel-

len ersetzt. Die DWBA-Rechnungen stimmen noch für kleinere Energien bis zum zwei- bis dreifachen des Ionisationspotentials gut mit experimentellen Ergebnissen überein. Die Berechnung der Matrixelemente bei diesem Ansatz erfolgt durch die Verwendung von Partialwellen, sodass für hohe Projektilenergien ein sehr großer Rechenaufwand besteht.

### Die 3C-Wellenfunktion

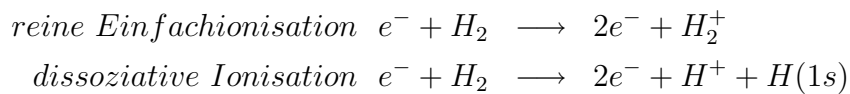
Die so genannte 3C-Wellenfunktion ist eine Näherung, die die Coulomb-Wechselwirkung zwischen drei freien Teilchen beinhaltet und zum ersten mal von Brauner, Briggs und Klar [BBK89] verwendet wurde, um die Elektronenstoßionisation von atomarem Wasserstoff zu beschreiben. Bei dieser Methode wird die Wechselwirkung des Projektilelektrons und des Targetelektrons mit dem Kern, sowie die des emittierten Elektrons mit dem gestreuten Projektil approximativ berücksichtigt. Eine exakte Beschreibung des Drei-Teilchen-Coulombsystems liefert die 3C-Wellenfunktion nur dann, wenn alle Teilchen weit voneinander entfernt sind. Trotzdem konnte in vielen Fällen mit dieser Methode eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment erzielt werden. In Kapitel 4.2 werden Ergebnisse einer Rechnung gezeigt, bei der diese Theorie benutzt wurde.

### Close-Coupling-Näherungen

Bei der Methode der 'gekoppelten-Kanäle'-Rechnung (*close coupling*) wird die zeitunabhängige Schrödinger-Gleichung des Stoßsystems numerisch gelöst. Dazu wird das Targetsystem in einer Basis von Eigenzuständen des ungestörten Target-Hamiltonoperators entwickelt. Als besonders erfolgreich hat sich dabei eine Entwicklung nach orthogonalen Laguerre-Funktionen erwiesen, wobei in der Praxis aber nur eine endliche Zahl  $N$  an Zuständen in die Rechnung mit einbezogen werden kann. Neben den 'echten', gebundenen Zuständen, muss das Kontinuum berücksichtigt werden, welches durch so genannte Pseudozustände approximiert wird. Wenn das Verfahren für große  $N$  eindeutig konvergiert, spricht man auch von *Convergent-Close-Coupling-Rechnungen* (CCC) [Bra02]. Berechnungen mit der CCC-Methode zeigen eine exzellente Übereinstimmung mit experimentellen Daten, z.B. für Elektronenstoßionisation von Helium [SBFB05]. Ein Nachteil dieser Ansätze ist der immense numerische Aufwand, der zur Lösung des Problems erforderlich ist.

## 2.3 Stoßreaktionen mit molekularem Wasserstoff

Bei der Stoßionisation von  $H_2$ -Molekülen gibt es verschiedene Reaktionskanäle, die sich durch die Anzahl der Teilchen im Endzustand grundlegend unterscheiden. In dieser Arbeit wurden die folgenden Prozesse bei einer Projektilenergie von 210 eV untersucht:



In diesem Kapitel sollen die verschiedenen Kanäle näher beschrieben werden.

### Energetische Zustände des $H_2$ -Moleküls

Abbildung 2.4 zeigt die Potentialkurven eines  $H_2$ -Moleküls im Grundzustand und in ausgewählten ionisierten Zuständen als Funktion des Kernabstands. Es sind nicht alle Kurven dargestellt. Zwischen den beiden unteren liegt z. B. eine ganze Kurvenschar, die durch verschiedene Anregungen eines der Elektronen entsteht. Bei Stoßreaktionen geschieht der Wechsel zwischen den Zuständen innerhalb einer Zeitspanne, die klein ist gegen die Schwingungsdauer der Kerne, so dass sich der Kernabstand währenddessen nicht ändert. Nach dem Franck-Condon-Prinzip erfolgt der elektronische Übergang im Potentialkurvendiagramm des Moleküls daher vertikal. Beim hier durchgeführten Experiment liegen die Moleküle aufgrund der niedrigen internen Temperatur des Gasjets nach der Überschallexpansion (vgl. Kapitel 3.1.3) hauptsächlich im Vibrationsgrundzustand vor. In dieser Region kann die Kurve durch ein harmonisches Potential angenähert werden. Für die Ortswahrscheinlichkeitsfunktion ergibt sich daraus eine Gaußkurve um den Abstandsmittelwert  $r_0 = 0,741 \text{ \AA}$ [Ns03]. Der einzige stabile Zustand von  $H_2^+$  ist der elektronische Grundzustand  $1s\sigma_g$ , wo sich das Molekülion in den meisten Fällen nach dem Entfernen eines Elektrons auch befindet (Möglichkeit (a) in Abb. 2.4). Neben dieser *reinen Einfachionisation* gibt es eine Reihe weiterer Reaktionskanäle, die alle zu einer Dissoziation des Moleküls führen.

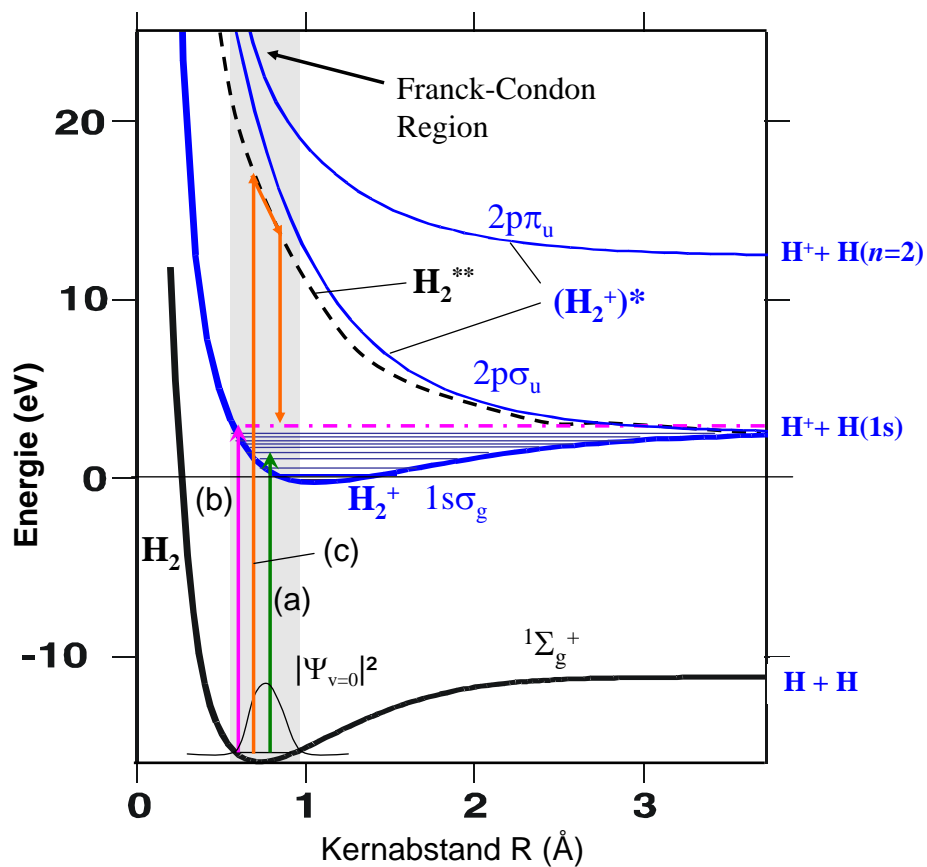


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung einiger Potentialkurven von  $H_2$  und  $H_2^+$ , wobei ausgewählte Kanäle für Einfachionisation illustriert sind. Die Gaußkurve stellt die Wahrscheinlichkeitsdichte der Abstandswellenfunktion des  $H_2$ -Moleküls im Grundzustand dar. (für detaillierte Potentialkurven siehe z.B. [Sha70], [Gub83])

### Dissoziative Prozesse

Mit einer Wahrscheinlichkeit von etwa vier Prozent [BIKC<sup>+</sup>96] dissoziiert das Molekül bei der Ionisation in ein  $H^+$ -Ion und ein neutrales H-Atom. Zu dieser dissoziativen Ionisation kommt es entweder, wenn sich das verbleibende Molekülion in einem elektronisch angeregten Zustand befindet, da alle Zustände  $(H_2^+)^*$  in der Franck-Condon-Region repulsiv sind, oder wenn das Vibrationskontinuum des Grundzustands von  $H_2^+$  besetzt wird. Dieser Prozess führt zur Dissoziation des Moleküls in ein  $H^+$ -Ion und ein H(1s)-Atom und wird Grundzustandsdissoziation genannt (GSD, (b) in Abb. 2.4). GSD findet nur bei sehr geringen Kernabständen statt, und die Wahrscheinlichkeit für diese Reaktion ist daher sehr klein. Der GSD-Anteil relativ zur gesamten Einfachionisation beträgt nur etwa 1,4 Prozent [WECBI00]. Ein weiterer dissoziativer Reaktionskanal ist die Autoionisation eines doppelt angeregten Zustands  $H_2^{**}$  durch einen elektronischen Übergang in das Vibrationskontinuum des Grundzustands von  $H_2^+$ . In Abb. 2.4 ist dies der mit (c) markierte Prozess.

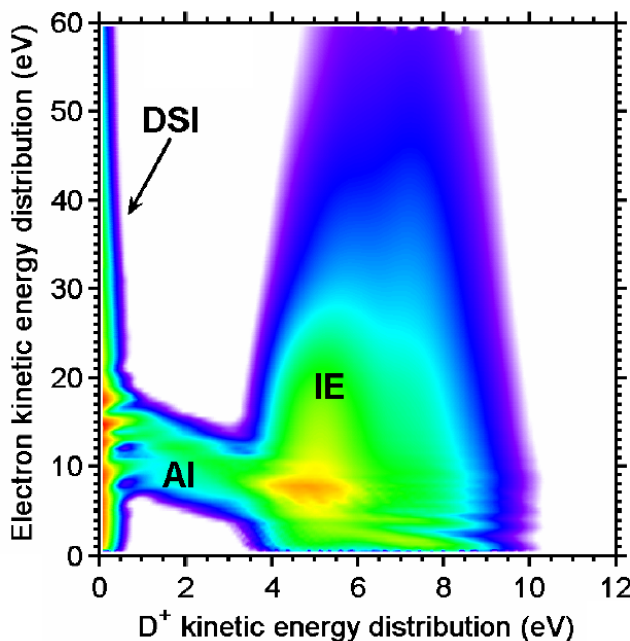


Abbildung 2.5: Theoretisches Diagramm der Energiekorrelation des emittierten Elektrons und des  $D^+$ -Ions bei dissoziativer Ionisation im Ionenstoß (13,6 MeV/u  $S^{15+}$  auf  $D_2$ ). IE: Ionisation mit Anregung; AI: Autoionisation; DSI: Grundzustandsdissoziation. Aus [LFL<sup>+</sup>06].



Eine theoretische Energieverteilung der Fragmente für verschiedene dissoziative Ionisationskanäle ist in Abb. 2.5 dargestellt. Der GSD-Prozess (in Abb. 2.5 als DSI, *Dissociative Single Ionization*, bezeichnet) kann gut von den anderen Reaktionskanälen unterschieden werden, da die kinetische Energie der Ionen hier nur maximal wenige hundert meV beträgt, bei Ionisation plus Anregung (*Ionization-Excitation, IE*) dagegen einige eV. In einem gewissen Elektronenenergieintervall gibt es allerdings einen Überlapp mit der Autoionisation (AI). Im Experiment der hier vorliegenden Arbeit wurden nur niederenergetische ( $< 1$  eV) Ionen detektiert, d. h. IE-Prozesse spielten keine Rolle.

## 2.4 Interferenzeffekte bei diatomaren homonuklearen Molekülen

Ein fundamentales Resultat der Quantenmechanik ist der Wellencharakter von Teilchen, eindrucksvoll bestätigt durch die Interferenz zweier Teilchenwellen - oder zutreffender ausgedrückt, eines Teilchens mit sich selbst - in einem Youngschen Doppelspaltexperiment [FLS65]. Schon 1966 machten Cohen und Fano darauf aufmerksam, dass ein einfaches homonukleares diatomares Molekül ein natürliches Doppelspalt-System für die Emission von Elektronen darstellt [CF66]. Da die Atome ununterscheidbar sind, addieren sich die Beiträge zur Ionisation kohärent, was Interferenzeffekte im Ionisationsprozess erwarten lässt. Experimentell werden diese Effekte bei Photoionisation schon seit Jahren untersucht [DBJ<sup>+</sup>98]. So wurde z.B. in [MBBF00] dieses Konzept benutzt, um destruktive Interferenz der auslaufenden Elektronenwellen bei der Ionisation von diatomaren Molekülen in intensiven Laserfeldern zu erklären. Erst vor wenigen Jahren ist es gelungen auch bei der Ionisation eines Moleküls durch Stoß mit geladenen Teilchen Interferenzeffekte experimentell nachzuweisen [SSH<sup>+</sup>01]. Für Elektronenstoß wurden diese Strukturen im Wirkungsquerschnitt ebenfalls theoretisch vorhergesagt, [SFW<sup>+</sup>03], allerdings noch nie experimentell untersucht.

Die Ursache für Interferenzeffekte in Stößen von Ionen oder Elektronen mit Molekülen lassen sich gut anhand eines einfachen Modells für die elastische Streuung eines Teilchens an zwei Streuzentren veranschaulichen. Wie in Abb. 2.6 dargestellt, gibt es zwei mögliche Wege des Projektils, die beide zum gleichen Streuwinkel führen. Für den Gangunterschied der beiden gestreuten Wellen gilt dabei

$$\Delta = (\vec{p}_0 - \vec{p}_1) \cdot \vec{R} = \vec{q} \cdot \vec{R} . \quad (2.8)$$

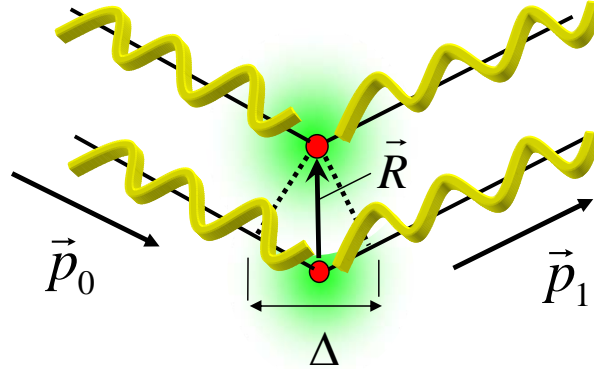


Abbildung 2.6: Schematische Darstellung zur Entstehung von Interferenzeffekten.

Dabei bezeichnet  $\vec{R}$  den Abstandsvektor zwischen den beiden Atomkernen,  $\vec{p}_0$  den Impuls des einlaufenden und  $\vec{p}_1$  den des gestreuten Projektils. Der übertragene Impuls ist  $\vec{q} = \vec{p}_0 - \vec{p}_1$ . Für den Wirkungsquerschnitt ergibt sich dann [Mes79]:

$$d\sigma_{H_2} = d\sigma_{2H} \left[ 1 + \cos(\vec{q} \cdot \vec{R}) \right] , \quad (2.9)$$

wobei  $d\sigma_{2H}$  den Wirkungsquerschnitt für zwei unabhängige H-Atome darstellt. Der Term in der eckigen Klammer beschreibt die Interferenz, die durch die kohärente Streuung an den beiden ununterscheidbaren Atomkernen mit Abstandsvektor  $\vec{R}$  verursacht wird. Unabhängig von  $|\vec{q}|$  wird der Wirkungsquerschnitt dann maximal, wenn  $\vec{q} \perp \vec{R}$  gilt. In [LWO<sup>+</sup>04] wird mit diesem Modell die dort beobachtete Anisotropie bei der Doppelionisation von  $H_2$  im Ionenstoß erklärt.

Der Wirkungsquerschnitt für die Elektronenemission von einem  $H_2$ -Molekül nach Stoßionisation ergibt sich analog zu Gl. 2.9 [SSH<sup>+</sup>01], [SFW<sup>+</sup>03]:

$$d\sigma_{H_2} = d\sigma_{2H} \left( 1 + \cos \left[ (\vec{p}_e - \vec{q}) \cdot \vec{R} \right] \right) . \quad (2.10)$$

Dabei bezeichnet  $\vec{p}_e$  den Impuls des emittierten Targetelektrons. Wird über alle Orientierungen der Molekülachse gemittelt, so bleibt dennoch eine Oszillation aufgrund der Interferenz erhalten:

$$d\sigma_{H_2} = d\sigma_{2H} \left( 1 + \frac{\sin [|\vec{p}_e - \vec{q}| R]}{|\vec{p}_e - \vec{q}| R} \right) . \quad (2.11)$$

Um eine komplette Oszillation des Wirkungsquerschnitts (Gl. 2.10) als Funktion des Winkels zwischen  $(\vec{p}_e - \vec{q})$  und  $\vec{R}$  beobachten zu können, muss für das Skalarprodukt, also für das Argument des Cosinus in Gl. 2.10, gelten:  $(\vec{p}_e - \vec{q}) \cdot \vec{R} \geq 2\pi$ .

Im Fall vernachlässigbar kleiner Impulsüberträge, wie beim Stoß mit schweren Ionen [SSH<sup>+</sup>01], muss dafür die Energie der emittierten Elektronen mindestens so groß sein, dass ihre *de Broglie*-Wellenlänge  $\lambda = h/p$  von der Größenordnung des internuklearen Abstandes im Molekül ist. Der mittlere Abstand der Kerne im  $H_2$ -Molekül beträgt  $R = 0,741 \text{ \AA}$ , oder 1,4 a.u., was einer Elektronenenergie von etwa 270 eV (10 a.u.) entspricht. Im hier beschriebenen Experiment betrug die Energie der Targetelektronen maximal 1 a.u. und die Wellenlänge somit minimal 4,4 a.u.

Bei einem hier typischen Impulsübertrag von einer atomaren Einheit ergibt sich allerdings folgende Situation: Für den wahrscheinlichsten Fall, dass das Elektron in Richtung von  $\vec{q}$  emittiert wird (binäres Maximum, siehe Abschnitt 2.1), ist  $|\vec{p}_e - \vec{q}|$  sehr klein, wodurch ein Nachweis von Interferenzeffekten erschwert wird. Für Elektronen, die zusätzlich am Kernpotential streuen und entgegen der Richtung von  $\vec{q}$  nachgewiesen werden (Rückstoßmaximum), gilt für die angegebenen Werte  $|\vec{p}_e - \vec{q}| \cdot R \approx 3,3$ , sodass es für diesen Fall möglich sein sollte, einen Kontrast von etwa 50% im Wirkungsquerschnitt zu beobachten. Für eine Elektronenenergie von 10 eV wäre noch eine Anisotropie von 40% zu erwarten.

## 2.5 Das Prinzip der kinematisch vollständigen Messung

Die experimentelle Untersuchung von stoßinduzierten Ionisationsprozessen ermöglicht einen tiefen Einblick in atomare und molekulare Reaktionsmechanismen sowie die Dynamik des Mehr-Körper-Problems. Die Herausforderung hierbei ist, möglichst die ganze kinematische Information der beobachteten Reaktion zu gewinnen, d. h. die Impulskomponenten aller beteiligten Teilchen im Anfangs- und Endzustand zu bestimmen. In der Regel sind sie für die Teilchen vor dem Stoß bekannt. Für die  $N$  Endzustandsfragmente jedoch müssen die Impulse nach der Reaktion bestimmt werden. Es reicht allerdings bereits aus,  $N-1$  Fragmente koinzident nachzuweisen, da es der Impulserhaltungssatz erlaubt auch den Impuls des nicht nachgewiesenen Teilchens zu berechnen. Es ist somit möglich, den Endzustandsimpulsraum vollständig aufzulösen und so genannte "vollständig differentielle Wirkungsquerschnitte" (FDCS) zu bestimmen. In ersten Experimenten dieser Art, durchgeführt Ende der 1960er Jahre von Erhardt et al. [ESTW69], wurde der FDCS für Einfachionisation von Heliumatomen, mit Hilfe zweier Elektronenspektrometer gemessen, die in einer bestimmten Geometrie um die Wechselwirkungszone angeordnet waren, wie es schematisch in Abb. 2.7 illustriert ist.

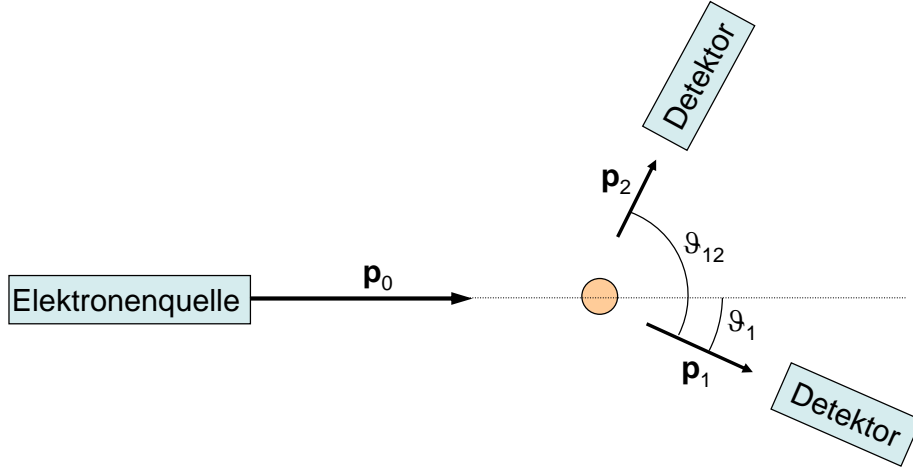


Abbildung 2.7: Schematischer Aufbau zur Messung des vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitts für elektronenstoßinduzierte Einfachionisation von Atomen.

Durch eine zeitliche Koinzidenzmessung wird sichergestellt, dass die detektierten Teilchen an der selben Reaktion beteiligt waren. Dabei ist die Koinzidenzrate  $Z$  proportional zum vollständig differentiellen, also hier dem dreifach differentiellen Wirkungsquerschnitt (TDCS):

$$Z = \frac{d^3\sigma}{d\Omega_1 d\Omega_2 dE_2} \cdot \Delta\Omega_1 \Delta\Omega_2 \Delta E_2 \epsilon_1 \epsilon_2 \cdot N \cdot j, \quad (2.12)$$

mit den Raumwinkeln  $\Delta\Omega_{1,2}$  für den Nachweis der beiden Elektronen, der Energieakzeptanz  $\Delta E_2$  für das zweite Elektron, den entsprechenden Detektoreffizienzen  $\epsilon_{1,2}$  und dem Produkt aus Targetdichte und Projektilstrom  $N \cdot j$  (siehe z. B. [LB91]).

Da mit dieser Technik allerdings jeweils nur ein sehr kleiner Raumwinkelbereich abgedeckt werden kann, sind für Reaktionen mit kleinem Wirkungsquerschnitt unter Umständen sehr lange Messzeiten erforderlich. Ein herkömmliches Elektronenspektrometer z. B. hat eine typische Winkelakzeptanz von nur  $\Omega/4\pi \approx 10^{-3}$ , woraus für Koinzidenzmessungen eine Akzeptanz von  $10^{-6}$  folgt. Außerdem kann diese Messmethode, bei der nur die Elektronen nachgewiesen werden, für molekulare Fragmentationsprozesse, bei denen im Endkanal neben den

Elektronen noch mehr als ein weiteres Teilchen vorhanden ist, keine kinematisch vollständige Information mehr liefern.

In den 1990er Jahren wurde eine neue Methode entwickelt, bei der alle Targetfragmente, also neben dem emittierten Elektron auch das verbleibende Ion, detektiert werden können. Die experimentellen Möglichkeiten wurden durch die Entwicklung dieser Rückstoßionenimpulsspektroskopie erheblich erweitert. Um vollständig differentielle Daten für atomare Stoßreaktionen zu bekommen, war es jetzt nicht mehr zwingend erforderlich, das gestreute Projektil nachzuweisen. Dies ermöglichte nun auch kinematisch vollständige Ionenstoßexperimente, bei denen das Projektil meist nur um einen nicht nachweisbar kleinen Winkel abgelenkt wird. Auch molekulare Stoßreaktionen, bei denen nicht alle Endzustandsteilchen, z. B. aufgrund elektrischer Neutralität, nachgewiesen werden können, sind nun für kinematisch vollständige Experimente zugänglich. Im folgenden Kapitel wird diese neue Technik, das so genannte "Reaktionsmikroskop", genauer beschrieben werden.



# Kapitel 3

## Das Experiment

In der vorliegenden Arbeit wurden Stöße von Elektronen mit Wasserstoffmolekülen in einem Reaktionsmikroskop kinematisch vollständig untersucht. Bei dieser relativ neuen experimentellen Methode wird ein COLTRIM-Spektrometer (Cold Target Recoil Ion Momentum Spectrometer), mit dessen Hilfe der Impuls des ionisierten Targets ermittelt wird, und ein hochauflösendes Elektronenspektrometer, das die Impulsbestimmung eines oder mehrerer niederenergetischer Elektronen über einen großen Raumwinkelbereich erlaubt, kombiniert [MUS<sup>+</sup>96]. Das zeitaufwändige Scannen von Winkeln und Energien entfällt, sodass eine zeitliche Variation von experimentellen Parametern, wie z.B. Targetdichte oder Detektoreffizienz, keinen Einfluss auf die Messung von Wirkungsquerschnitten hat. Ebenso ist es dadurch möglich, verschiedene Reaktionskanäle simultan und unter denselben experimentellen Bedingungen zu studieren. Mit dem Reaktionsmikroskop können also kinematisch vollständige Experimente durchgeführt werden, wobei sich vor allem durch den großen Raumwinkel für den Nachweis der Fragmente etliche Vorteile gegenüber konventionellen Techniken ergeben. In den letzten Jahren wurde diese Methode bereits erfolgreich bei einer Vielzahl von Streuexperimenten mit unterschiedlichen Stoßpartnern eingesetzt, und sie hat sich zu einer bewährten Technik entwickelt [UMD<sup>+</sup>03]. In diesem Kapitel soll zunächst die Funktionsweise eines Reaktionsmikroskops und anschließend der experimentelle Aufbau mit den verwendeten Techniken detailliert erläutert werden.

## 3.1 Ein spezielles Reaktionsmikroskop für Elektronenstoßexperimente

Eine schematische Darstellung der verwendeten Apparatur ist in Abbildung 3.1 gezeigt. Das Reaktionsvolumen, definiert als der Überlapp des Projektilstrahls mit einem kalten atomaren oder molekularen Gasjet, befindet sich im Zentrum des Spektrometers. Dort herrscht ein homogenes elektrisches Feld, das die bei Stoßreaktionen erzeugten Ionen und Elektronen in entgegen gesetzte Richtungen extrahiert. Nach dieser Beschleunigungsstrecke folgt eine üblicherweise doppelt so lange Driftstrecke ohne elektrisches Feld. Schließlich werden die Teilchen von zwei sich gegenüber liegenden Detektoren nachgewiesen. Ein zusätzliches paralleles Magnetfeld von typischerweise einigen Gauß beschränkt dabei die Bewegung der Elektronen in radialer Richtung und zwingt sie somit auf Spiralbahnen. Die sehr viel schwereren Ionen werden von diesem Magnetfeld nur vernachlässigbar schwach abgelenkt. Durch diese besondere Feldkonfiguration im Reaktionsmikroskop können die Fragmente für einen großen Energiebereich über nahezu den vollen Raumwinkel nachgewiesen werden. Angenommen das Targetteilchen ist anfangs in Ruhe und der typische Impulsübertrag durch das einlaufende Elektron beträgt eine atomare Einheit, dann haben die Fragmente, Ionen und Elektronen, in aller Regel vergleichbare Impulse. Dabei liegt die entsprechende kinetische Energie des Rückstoßions im Bereich von wenigen meV. Aufgrund der sehr viel geringeren Masse der Elektronen im Vergleich zu den Ionen ist aber deren Energie, und damit auch deren Geschwindigkeit, um mehr als drei Größenordnungen höher. Bei elektrischen Feldstärken, die eine gute Auflösung der Ionenimpulse gewährleisten, würden Elektronen mit wenigen eV kinetischer Energie in transversaler Richtung nie den Detektor erreichen, gäbe es nicht die Zyklotronbewegung im Magnetfeld.

Beim Studium stoßinduzierter Prozesse mit Ionen vergleichsweise hoher Masse wird die Projektilstrahlrichtung üblicherweise in einem kleinen Winkel zur Spektrometerachse gewählt, bei Photoionisationsexperimenten meist senkrecht dazu. Die Anwendung eines Reaktionsmikroskops zur Untersuchung von elektronenstoßinduzierten Prozessen ist jedoch mit einigen Schwierigkeiten verbunden, da das Magnetfeld, welches zur Abbildung der Elektronen benötigt wird, ebenfalls den Projektilstrahl beeinflusst. Dies macht eine speziell angepasste Apparatur erforderlich. Eine Lösung ist, die Projektilrichtung nun parallel zu elektrischem und magnetischem Feld, also entlang der Spektrometerachse, zu wählen, was allerdings zur Konsequenz hat, dass ungestreute Projektile auf den Elektronendetektor treffen und einen hohen Untergrund verursachen würden. Außerdem würden



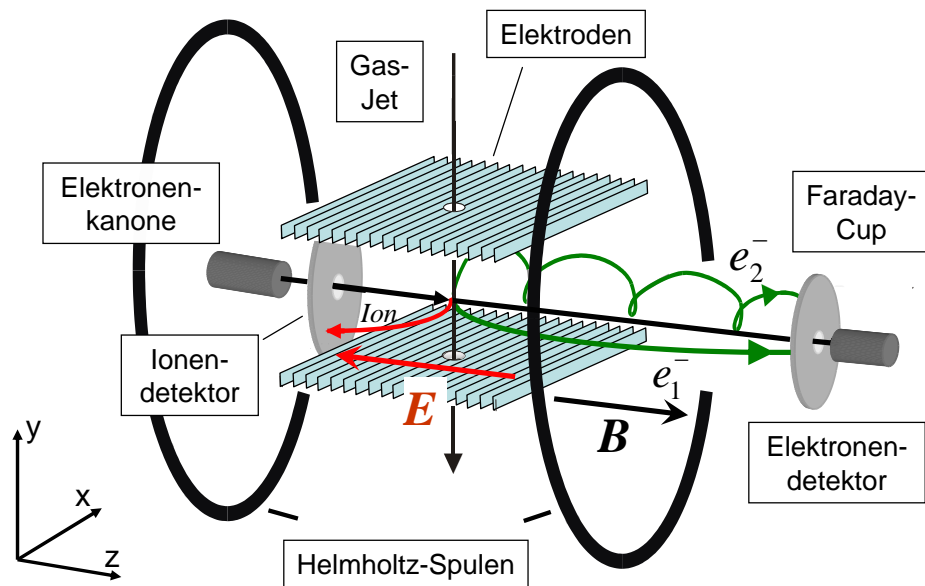


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des verwendeten Reaktionsmikroskops.

die empfindlichen *micro channel plates* (MCPs), die im Detektor verwendet werden, durch die hohe Zählrate an Sensitivität verlieren. Um dies zu verhindern wurde ein Loch von 6 mm Durchmesser in den Detektor implementiert, durch das die nicht gestreuten Elektronen die MCPs passieren können, ohne ein Signal zu erzeugen. Durch diese Anordnung ist es nun sogar zusätzlich möglich, gestreute Projektile nachzuweisen. Dies erlaubt es einerseits, den übertragenen Impuls direkt zu messen und andererseits auch dann die vollständig kinematische Information zu erhalten, wenn eines der Targetfragmente, wie hier das neutrale H-Atom, nicht detektiert werden kann.

Eine weitere Besonderheit ist, dass der Ionendetektor im Vergleich zu früheren Experimenten vergrößert und so nahe am Spektrometer wie möglich montiert wurde. Allerdings macht dies ein Loch durch den kompletten Ionendetektor hindurch erforderlich, da sonst die Projektile nicht passieren könnten. Die Driftstrecke verkürzt sich somit für die Ionen auf etwa 5 cm. Dadurch konnte die Akzeptanz für Ionen mit einigen hundert meV Anfangsenergie, wie sie bei der Grundzustandsdissoziation von molekularem Wasserstoff entstehen, auf den vollen Raumwinkel ausgedehnt werden. Die gesamte Apparatur ist außerdem von drei senkrecht zueinander angeordneten quadratischen Helmholtzspulenpaaren umgeben, die das Erdmagnetfeld in allen drei Raumrichtungen kompensieren (nicht dargestellt in Abb. 3.1). Im Folgenden sollen die einzelnen Komponenten der verwendeten Apparatur näher erläutert werden.

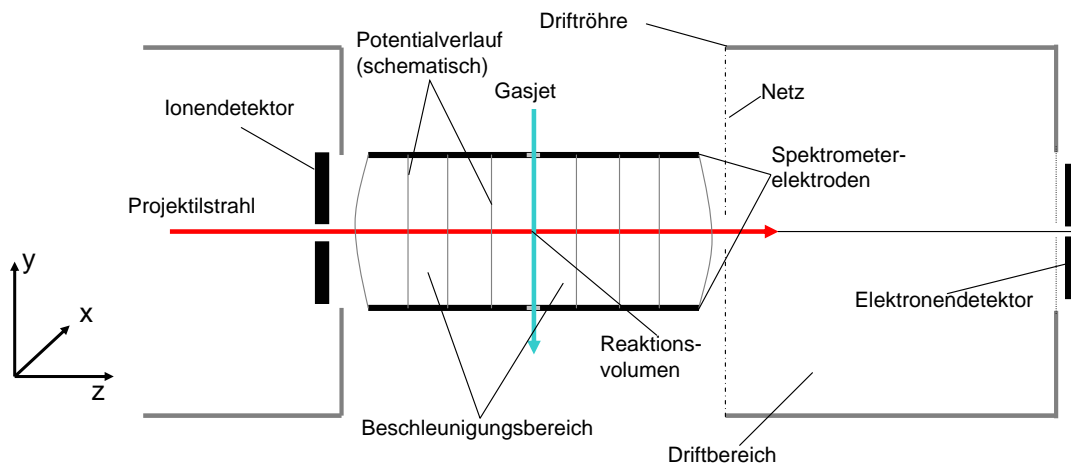


Abbildung 3.2: Aufbau des Spektrometers und Potentialverlauf (schematisch).

### 3.1.1 Das Spektrometer

Das Design des Spektrometers (Abb. 3.2) erlaubt die Bestimmung aller Impuls-komponenten von sowohl Elektronen als auch Ionen, die bei der Fragmentation entstehen. Das elektrische Feld wird von einer Anordnung Spektrometerelektroden erzeugt, die sich in zwei Reihen, oberhalb und unterhalb des Projektilstrahls, befinden. Die Feldstärke betrug im hier beschriebenen Experiment  $5,8 \text{ V/cm}$ . Die einzelnen Elektroden jeder Reihe sind über Widerstände von einige  $\text{k}\Omega$  elektrisch verbunden, sodass die an den Enden angelegte Spannung gleichmäßig abfällt, und jede Elektrode auf dem entsprechenden Zwischenpotential liegt. In der Mitte beider Reihen befindet sich ein Loch, durch das der Gasstrahl hindurch tritt. Der Bereich zwischen den Elektroden bildet die Beschleunigungsstrecke und hat eine Gesamtlänge von  $22 \text{ cm}$ . Die beiden Reihen haben einen Abstand von  $7 \text{ cm}$ , in  $x$ -Richtung beträgt die Ausdehnung  $20 \text{ cm}$ . Indem oben und unten leicht unterschiedliche Spannungen angelegt werden können, lässt sich das Feld in  $y$ -Richtung etwas variieren. Die gesamte Elektrodenkonstruktion kann außerdem um die Jet-Achse rotiert werden. Somit ist es möglich, die Flugbahn der Rückstoßionen in Richtung des Ionendetektors zu optimieren.

Nachdem die Elektronen über eine Strecke von  $11 \text{ cm}$  Länge beschleunigt wurden, passieren sie einen elektrisch feldfreien,  $22 \text{ cm}$  langen, Driftbereich. Dessen Potential entspricht der Spannung an der letzten Elektrode in Richtung der Elektronenextraktion. Zwischen Beschleunigungsbereich und Driftbereich führen Verzerrungen der Feldlinien zu Linseneffekten. Diese können durch das Montieren eines feinen Drahtnetzes, welches eine ebene Äquipotentialfläche darstellt, verhin-

dert werden. Durch die Wahl einer Geometrie, bei der die Beschleunigungsstrecke gerade halb so lang ist wie die Driftstrecke, wird eine so genannte Flugzeitfokussierung erreicht. In dieser Konfiguration hängt die totale Flugzeit der Elektronen nur vom Startimpuls in longitudinaler Richtung ab und ist in erster Näherung unabhängig vom Startort. Somit wird die Auflösung in Extraktionsrichtung nicht durch die Ausdehnung des Reaktionsvolumens beeinträchtigt. Auf der Ionenseite wurde der Detektor so nahe am Beschleunigungsbereich wie möglich montiert, womit sich die Driftstrecke auf 49 mm verkürzt. Im vorgestellten Experiment waren  $H^+$ -Ionen mit einer anfänglichen kinetischen Energie von bis zu 1 eV in transversaler Richtung nachzuweisen. Mit einem Detektor von 80 mm Durchmesser, einem Extraktionspotential von 63,5 V und der beschriebenen Spektrometerkonfiguration ist es theoretisch möglich für diese Ionen einen Nachweisraumwinkel von  $4\pi$  zu erreichen (siehe Abschnitt 3.4.1).

### 3.1.2 Der Projektilstrahl

Der Projektilstrahl wird von einer Glühemissions-Elektronenkanone erzeugt. Die einzelnen Komponenten sind schematisch in Abb. 3.3 dargestellt. Von der Spitze der Glühkathode werden durch thermische Emission Elektronen freigesetzt und Richtung Kanonenausgang beschleunigt, der auf Erdpotential liegt. Ein Wehnelt-Zylinder, der relativ zur Kathode auf negativem Potential liegt, dient zur Bündelung und Regelung des Projektilstroms. Darauf folgen eine elektrostatische Einzellinse, bestehend aus drei Linsenelementen L1-3 zur Fokussierung sowie ein XY-Ablenkplattenpaar zur Positionierung des Strahls.

Für Flugzeitmessungen muss der Projektilstrahl gepulst sein. Dazu wird die Wehnelt-Spannung so geregelt, dass der Strahl zunächst blockiert ist. Werden mit Hilfe eines Pulsgenerators nun kurze, positive Pulse (wenige ns, +20 V, 200 kHz Repetitionsrate) angelegt, so können die von der Kathode emittierten Elektronen die Wehnelt-Blende kurzzeitig passieren. Typische Werte eines so generierten Elektronenpulses sind 1,5 ns für die zeitliche Dauer und etwa 1 mm für den Strahldurchmesser am Targetort. Dadurch wird die erreichbare Auflösung für die Bestimmung der Elektronen- und Ionenimpulse limitiert. Kürzere Pulse wären nur mit erheblich höherem technischen Aufwand möglich, z. B. durch Verwendung einer Photokathode als Elektronenquelle. Die Fokussierung des Strahls in der Targetregion und damit die Minimierung des Reaktionsvolumens ist eine weitere Herausforderung, da die Projektilelektronen nach Verlassen der Kanone keine weiteren Strahlführungselemente passieren, die mögliche Störfelder und ein Auseinanderlaufen des Elektronenpakets kompensieren könnten.

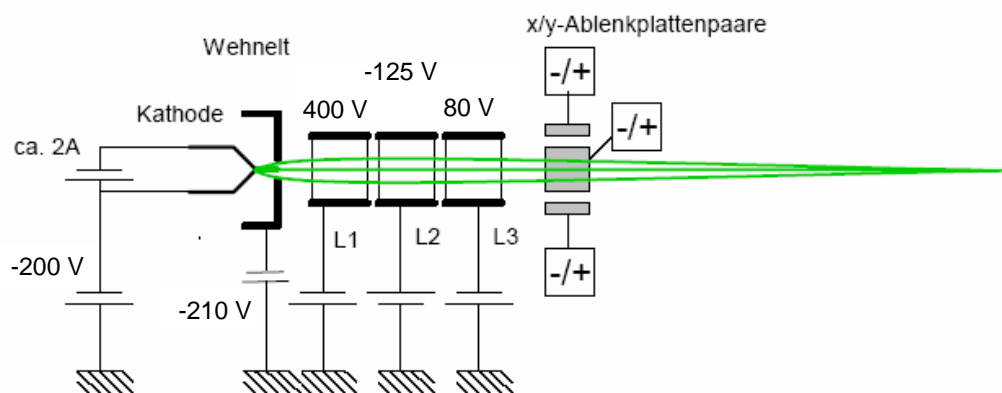


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung der Elektronenkanone mit typischen Potentialen zur Erzeugung eines Elektronenstrahls mit 200 eV Energie.

### 3.1.3 Das Gasjet-Target

Im Experiment sollen Rückstoßionen mit einem Impuls von nur wenigen atomaren Einheiten und Energien im meV-Bereich gemessen werden. Um diese auflösen zu können, muss das Target bestimmten Anforderungen genügen. Eine Voraussetzung für hochauflösende Spektroskopie ist ein möglichst kleines Reaktionsvolumen, was sich am besten mit einem gut lokalisierten Target erreichen lässt. Des Weiteren wird durch einen kollimierten Targetstrahl eine Beeinträchtigung des Ultrahochvakuums in der Reaktionskammer vermieden. Eine weitere Bedingung ist, dass die thermische Bewegung der Targetmoleküle klein sein muss gegen die zu messende Energie der Fragmente. Bei einer Temperatur von  $T_0 = 300\text{K}$  erhält man jedoch mit  $E_{therm} = 5 \cdot \frac{1}{2} k_B T$  eine mittlere kinetische Energie der Wasserstoffmoleküle von 65 meV. Um die benötigte Auflösung zu erreichen, muss das Target also weit unter Raumtemperatur gekühlt werden. Ein Überschallgasjet, wie er im Reaktionsmikroskop eingesetzt wird, erfüllt beide Bedingungen, die niedrige Temperatur und eine geringe Ausdehnung bei gleichzeitig hoher Targetdichte.

#### Die Überschallexpansion

Die Kühlung des Gases erfolgt dabei durch einen thermodynamischen Effekt, die Überschallexpansion. Zu diesem adiabatischen Prozess kann es kommen, wenn ein Gas aus einem Bereich mit hohem Druck durch eine kleine Öffnung in einen Bereich mit niedrigem Druck strömt. Dabei bleibt die Entropie konstant, sodass die Abnahme der räumlichen Dichte durch ein Sinken der Tempera-

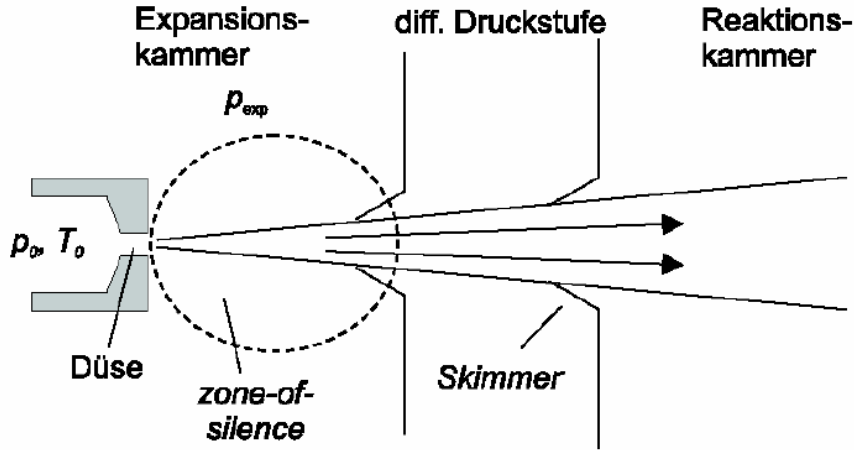


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung eines zweistufigen Überschallgasjets (aus [US03]).

tur ausgeglichen wird. Der Aufbau ist so geformt, dass die Gasteilchen bis zum Ende der Düse die lokale Schallgeschwindigkeit erreichen. Im für diese Arbeit verwendeten Aufbau beträgt der Durchmesser der Öffnung  $30 \mu\text{m}$ . Im Bereich nach der Düse bildet sich die so genannte *zone of silence*, in der sich die Moleküle mit Überschallgeschwindigkeit bewegen. Dieser Bereich ist umgeben von Schock- und Kompressionswellen (siehe [Mil88]). Um nun einen Überschallgasjet zu erzeugen, ist es mit Hilfe eines feinen, scharfberandeten Skimmers möglich, einen Strahl aus der *zone of silence* "herauszuschneiden". Die einzelnen Moleküle des Jets können sich dann mit minimaler thermischer Geschwindigkeit auf einer linearen Bahn durch das Vakuum bewegen. Im Idealfall wird die gesamte freie Enthalpie  $H$ , die sich aus der thermischen Energie  $E_{therm}$  und der durch den Gasdruck pro Molekül gespeicherten Arbeit  $E_p = k_B T_0$  zusammensetzt, in gerichtete kinetische Energie umgewandelt. Es gilt:

$$H = E_{therm} + E_p = \frac{7}{2} k_B T_0, \quad (3.1)$$

$$p_{jet} = \sqrt{7 k_B T_0 M}. \quad (3.2)$$

Dabei ist  $p_{jet}$  der Impuls für Targetmoleküle der Masse  $M$ ,  $k_B$  die Boltzmannkonstante und  $T_0$  die Temperatur des Gases vor der Expansion. Diese idealen Bedingungen lassen sich in der Praxis aber nicht erreichen, da die Moleküle

untereinander und mit dem Restgas stoßen können. Die interne Temperatur  $T$  des expandierten Gases kann ausgedrückt werden durch [Mil88]:

$$T = T_0 \cdot \left( \frac{P}{P_0} \right)^{(\gamma-1)/\gamma}, \quad (3.3)$$

wobei  $\gamma$  den Adiabaten-Exponenten bezeichnet, der für  $H_2$  gleich 1,41 beträgt [Ns03].  $P_0$  ist der Vordruck in der Düse und  $P$  der Druck in der letzten Expansionsstufe. Während des Experiments betrug der Druck in der ersten Expansionskammer  $10^{-3}$  mbar, in der zweiten Stufe etwa  $10^{-6}$  mbar und in der Reaktionskammer zwischen  $10^{-8}$  und  $10^{-9}$  mbar. Für den Vordruck wären Werte bis zu 17 bar technisch möglich, allerdings wurde hier nur mit  $P_0=2,5$  bar gearbeitet, um die Bildung von Clustern bei der Expansion zu vermeiden. Somit ergibt sich aus Gleichung 3.3 eine Targettemperatur von  $T = 4,1$  K, bzw. eine Impulsbreite in Strahlrichtung von  $\delta p \approx 0,5$  a.u. Bei dem in dieser Arbeit verwendeten Gasjet befindet sich zwischen der Expansions- und Reaktionskammer eine weitere, separat gepumpte Druckstufe, die von der Reaktionskammer durch einen zweiten Skimmer getrennt ist. Dadurch wird gewährleistet, dass das Vakuum in der Hauptkammer durch den Jetbetrieb praktisch nicht beeinträchtigt wird. Hinter der Reaktionskammer wird der Strahl in einer weiteren differentiellen Pumpstufe vernichtet. Durch die Verwendung der Skimmer wird die transversale Temperatur des Gasjets weiter verringert, da Teilchen mit einer großen transversalen Geschwindigkeit ausgeblendet werden. Die Impulsunschärfe des Targets ist dann durch die Jetgeometrie und Jetgeschwindigkeit festgelegt. Aus dem Abstand des zweiten Skimmers zur Düse von etwa 23 mm, dem Skimmerdurchmesser von 0,6 mm und dem gerichteten Impuls der Wasserstoffmoleküle von 4,9 a. u. (aus Gl. 3.2) ergibt sich eine Impulsbreite von  $\delta p \approx 0,13$  a.u. in der Richtung senkrecht zum Gasstrahl. Prinzipiell sind mit dieser Technik noch tiefere Temperaturen erreichbar, wenn das Targetgas vor der Expansion zusätzlich gekühlt wird.

## 3.2 Detektoren

Mit den Detektorsystemen sollen die Rückstoßionen und die Elektronen so nachgewiesen werden, dass der Zeitpunkt des Auftreffens und der Auftreffort auf die Detektoren mit guter Auflösung gemessen werden kann. Für diese Anwendung bieten sich *micro channel plate*-Detektoren an, die seit Jahrzehnten erfolgreich in der Atom- und Kernphysik eingesetzt werden. Das Funktionsprinzip solcher Detektoren besteht darin, durch das Auftreffen eines Teilchens eine Ladungswolke zu erzeugen, deren Ort dann über eine geeignete Anode bestimmt wird.

### 3.2.1 Micro channel plates

*Micro channel plates* (MCPs) sind Platten aus Glas von einigen cm Durchmesser und ca. 1 mm Dicke, die parallele, mikroskopische Kanäle ( $10 - 100 \mu\text{m}$ ) enthalten. Tritt ein nachzuweisendes Teilchen in einen Kanal des MCPs ein, so löst es aus der Oberfläche Sekundärelektronen heraus, die durch ein beschleunigendes Potential von typischerweise 1 kV kaskadenartig vervielfacht werden (siehe Abb. 3.5).

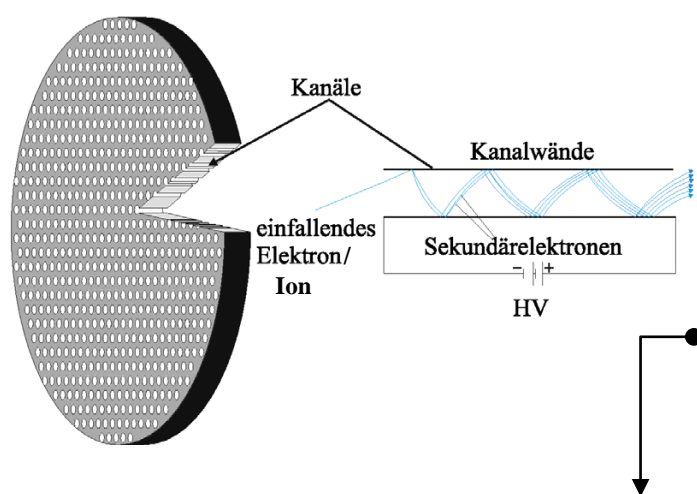


Abbildung 3.5: Funktionsprinzip eines MCPs.

Mit einem einzelnen MCP kann man auf diese Weise eine Verstärkung von bis zu  $10^4$  erreichen. Die Elektronenvervielfachung führt zu einem messbaren Spannungsanstieg an den Platten, der sich als etwa 10 ns breiter Puls kapazitiv auskoppeln und elektronisch weiterverarbeiten lässt. Dieses Signal liefert die Information über den Auftreffzeitpunkt. Die zeitliche Auflösung ist  $\leq 1$  ns, gegeben durch die elektronischen Signalverarbeitungseinheiten. Zur Bestimmung der Position muss die Ladungswolke auf eine Anode hin beschleunigt und dort ortsauflöst nachgewiesen werden. Indem man mehrere Platten hintereinander betreibt, können sowohl Effizienz als auch Verstärkung weiter gesteigert werden. Um Ionenrückkopplung möglichst zu vermeiden werden die MCPs dabei so angeordnet, dass die unter kleinem Winkel gegen die Plattennormale geneigten Kanäle eine Zick-Zack-Struktur ergeben.

### 3.2.2 Ortsauflösende Anoden

Zur Ortsmessung wird eine so genannte *Delay-Line-Anode* verwendet. In einer konventionellen Anordnung besteht diese aus vier voneinander isolierten Drähten, welche paarweise horizontal und vertikal um eine Trägerplatte aus Metall gewickelt sind (Abb. 3.6 (b)). Trifft die in den MCPs erzeugte Ladungswolke nun auf die Drahtebene der Anode, so fließt die Ladung zu den Drahtenden hin ab, wo sie sich als Signal auskoppeln lässt. Die Verwendung von je zwei Drähten in allen Richtungen bringt zwei Vorteile. Zum einen erhält man durch die Anordnung zweier paralleler Drähte eine Doppelleitung, bei der die Dämpfung und Dispersion des transportierten Signals verringert wird. Zum anderen werden die beiden Drähte, die einen Abstand von 0,5 mm voneinander haben, als Signal- und Referenzdraht verwendet. Durch Anlegen geeigneter Spannungen gelangen mehr Elektronen auf den Signaldraht als auf den Referenzdraht. Für die weitere Signalbearbeitung wird nur die Differenz der beiden Signale benutzt. Da auf diese Weise Störungen, die in beiden Drähten fast identisch vorhanden sind, herausgefiltert werden, kann das Rauschen reduziert werden. Um die Ortsinformation zu erhalten, wird die Laufzeit der abfließenden Ladung genutzt, genauer gesagt die Differenz der beiden Laufzeiten, die an jedem Ende des Drahtes gemessen wird. Daraus lässt sich dann die x- bzw. y-Koordinate des Auftreffortes bestimmen. Für eine Lage ist dies schematisch in Abb. 3.6(a) dargestellt.

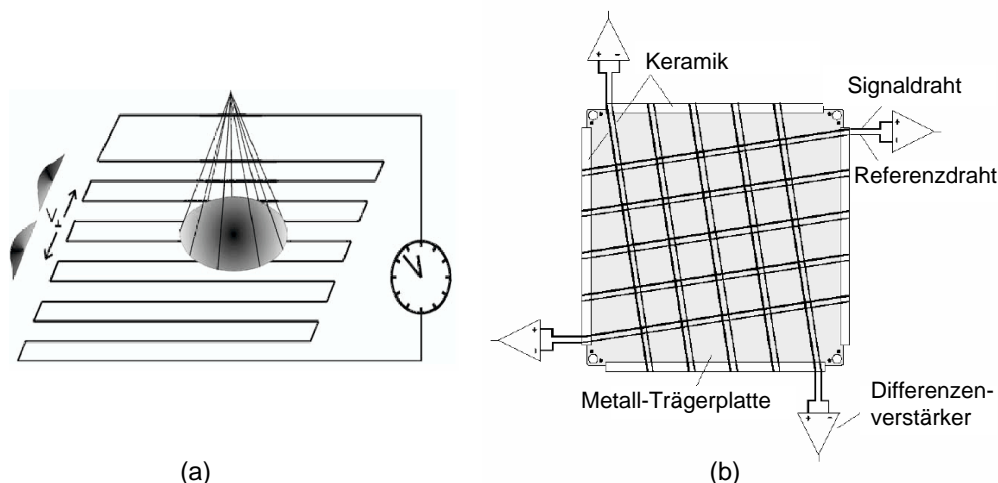


Abbildung 3.6: (a) Funktionsprinzip einer *Delay-Line-Anode* zur Ortsbestimmung. (b) Aufbau einer quadratischen *Delay-Line-Anode* mit zwei Lagen gepaarter Drähte.



Das MCP-Signal liefert die Zeit  $t_0$ , bei der das Primärteilchen den Detektor erreicht und startet die Uhr, welche die Laufzeit des Pulses zum jeweiligen Drahtende,  $(t_{links} - t_0)$  bzw.  $(t_{rechts} - t_0)$ , misst. Angenommen der Puls propagiert entlang der Koordinate mit einer effektiven Geschwindigkeit  $v_{\perp}$ , dann kann die Ortskoordinate einer Lage wie folgt berechnet werden:

$$x = v_{\perp} \cdot ((t_{links} - t_0) - (t_{rechts} - t_0)) = v_{\perp} \cdot (t_{links} - t_{rechts}) . \quad (3.4)$$

Die zweite Lage, senkrecht zur ersten gewickelt, liefert die zweite Koordinate  $y$ . Da die Elektronenwolke beim Auftreffen auf die Anode üblicherweise mehrere Wicklungen des Drahtes überdeckt, kann der Schwerpunkt der Wolke mit größerer Genauigkeit als es dem Drahtabstand entspricht gemessen werden, und es lässt sich eine Auflösung bis zu etwa  $50 \mu\text{m}$  erreichen. Wie aus Gl. 3.4 hervorgeht, wird der Auftreffzeitpunkt auf dem Detektor  $t_0$  für die Ortsinformation nicht benötigt. Die Summe der gemessenen Signallaufzeiten jeder einzelnen Lage

$$t_{sum} = (t_{links} - t_0) + (t_{rechts} - t_0) = const. \quad (3.5)$$

ist eine Konstante, die von der Drahtlänge und der Größe der Anode abhängt. In der Datenanalyse werden dann üblicherweise nur solche Ereignisse weiterverarbeitet, bei denen Gl. 3.5 erfüllt ist, was es erlaubt echte Signale von Untergrund zu trennen.

### 3.2.3 Detektoren mit Loch

Wie bereits erwähnt müssen die Detektoren mit einem zentralen Loch ausgestattet sein, sodass, wie im Fall des Ionendetektors, der Projektilstrahl passieren kann, und der Elektronendetektor nicht durch das Auftreffen der vielen ungestreuten Projektile belastet wird. Die Herausforderung ist dabei, jegliche Streufelder und Felddurchgriffe zu vermeiden, die durch die Hochspannung von einigen kV zwischen der MCP- Vorder- und -Rückseite im Bereich des Lochs entstehen (Abb. 3.7). Die Vorderseite der MCPs ist deshalb mit einem Drahtnetz abgeschirmt, welches auf Driftröhrenpotential liegt. Ein auf der Außenseite mit einer dünnen, hochohmigen (ca.  $5 M\Omega$ ) Germaniumschicht überzogenes Keramikröhrchen ist zwischen Netz und MCP montiert und an beiden Seiten jeweils elektrisch leitend verbunden. Die Germaniumschicht dient somit als kontinuierlicher Spannungsteiler, was zu parallelen Äquipotentialflächen zwischen Netz und MCP führt. Auch auf der Rückseite muss das Feld homogen sein um eine verzerrte Abbildung der

Ladungswolke auf die Anode zu verhindern. Zu diesem Zweck wurde ein mit der MCP-Rückseite elektrisch kontaktierter Metallring in das Loch eingesetzt, was einen Felddurchgriff reduziert. Nicht gezeigt in Abb. 3.7 ist ein weiterer Metallring, der sich zwischen MCP-Rückseite und Anode befindet und zur Homogenität des Feldes in diesem Bereich beiträgt. Die ungestreuten Projektile passieren das

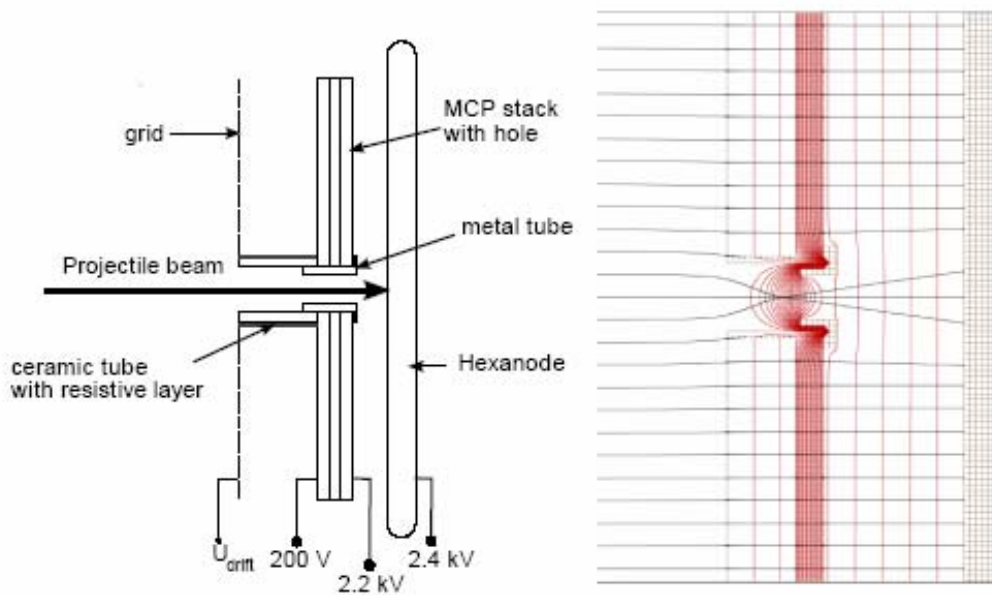


Abbildung 3.7: *Linke Seite: Schnitt durch den Elektronendetektor. Rechte Seite: Die gleiche Ansicht in einer SIMION-Simulation der elektrostatischen Felder und Flugbahnen von Elektronen, die vom Spektrometer kommend auf den Detektor treffen. Die roten Linien beschreiben Äquipotentialflächen für typische Spannungswerte (aus [Dür06]).*

Keramikröhrchen des Elektronendetektors und werden von dem positiven Potential der Anode angezogen, wo der Strahl vernichtet wird. Es ist kein Problem die Anode als 'beam dump' zu verwenden, da die Zahl der Elektronen in einem Puls weit geringer ist als in einer von den MCPs erzeugten Ladungswolke, und somit kein messbares Signal produziert wird. Beim Ionendetektor ist auch die Anode mit einem Loch versehen. Ein langes Keramikröhrchen, das vom Drahtnetz vor den MCPs bis hinter die Anode reicht, ist über die gesamte Länge auf der Innenseite mit einer Leitsilberschicht überzogen, die auf Erdpotential liegt, sodass der passierende Projektilstrahl von den Feldern im Detektor abgeschirmt ist.

### 3.2.4 Signalverarbeitung

Die Anordnung der Elektronik, die zur Gewinnung der Information über Auftreffort und -zeit verwendet wurde, ist in Abbildung 3.8 schematisch dargestellt. Zunächst müssen die notwendigen Signale aus Elektronen- und Ionendetektor erhalten werden. Bei beiden Detektorsystemen wird an der Vorderseite der *channel plates* ein analoger positiver Puls kapazitiv ausgekoppelt, der beim Auftreffen eines Teilchens entsteht. Dieser Spannungspuls hat eine Breite von etwa 10 ns und liefert die Auftreffzeit. Jede Drahtlage einer Delay-Line-Anode besteht aus zwei parallel gewickelten Drähten, dem Referenzdraht und dem Signaldraht. Letzterer liegt auf etwas positiverem Potential und nimmt deshalb einen größeren Teil der Elektronenwolke auf. An jedem Ende der Drähte werden nun die Spannungspulse ausgekoppelt, die nach dem Auftreffen der Ladungswolke dorthin abfließen. Da hier, wie im nächsten Abschnitt noch näher beschrieben werden wird, spezielle Delay-Line-Anoden mit drei Drahtlagen (Hexanode) verwendet wurden, erhält man somit von jeder Anode zwölf Signale. Insgesamt hat man mit all diesen Signalen also die volle Orts- und Zeitinformation der Elektronen und des Ions. Sie müssen nun elektronisch so verarbeitet werden, dass sie digital in einen Computer eingelesen werden können. Die invertierten Signale von den MCPs werden direkt über einen schnellen Verstärker (FA) auf Pulse mit einer Höhe von etwa 1 V verstärkt. Anschließend werden die analogen Signale in einem *Constant-Fraction-Diskriminator* (CFD) in NIM-Pulse umgewandelt. Ein solcher Normpuls wird im CFD immer dann erzeugt, wenn die Eingangsspannung eine gewisse einstellbare Schwelle überschreitet. Die Signale von der Delay-Line-Anode werden im Fall des Ionendetektors zunächst durch einen so genannten Differenzenverstärker (DA) geleitet. Dort werden die Pulse von Signaldraht und dem jeweiligen Referenzdraht subtrahiert und verstärkt. Auf diese Weise erhält man sechs analoge Signale, die ebenfalls in einen CFD gegeben und in NIM-Pulse umgewandelt werden. Beim Elektronendetektor wird die Differenz aus den beiden Signalen mit Hilfe von Pulstransformatoren direkt am Detektor in Spannungspulse umgewandelt. Diese können dann mit FAs verstärkt und an CFDs weitergegeben werden. Dies hat den Vorteil, dass die Pulse mit etwa 10-15 ns etwas kürzer sind als beim Arbeiten mit Differenzenverstärkern (15-20 ns). Außerdem kann so auf die störungsanfälligen DA verzichtet werden. Zur Bestimmung des Auftreffortes der Teilchen wird die Hexanode mit Hilfe eines Zeit-Digital-Wandlers (TDC) ausgelesen. Dieser digitalisiert die Zeitdifferenzen zwischen einem Startsignal und mehreren Stoppsignalen. Dabei dient das Signal, das von den MCPs des Elektronendetektors stammt, als Startsignal. Es öffnet ein Zeitfenster, in dem die Stoppsignale, also die in Normpulse umgewandelten Hexanoden-Signale, liegen müssen. Da mehrere Elek-

tronen in kurzem zeitlichem Abstand nachgewiesen werden sollen, ist ein spezieller Multihit-TDC erforderlich. Zur Flugzeitbestimmung der Elektronen benötigt man ein weiteres, externes Stoppsignal, das zeitlich mit der Reaktion korreliert ist. Hierfür wurde das Signal vom Pulsgenerator der Elektronenkanone benutzt.

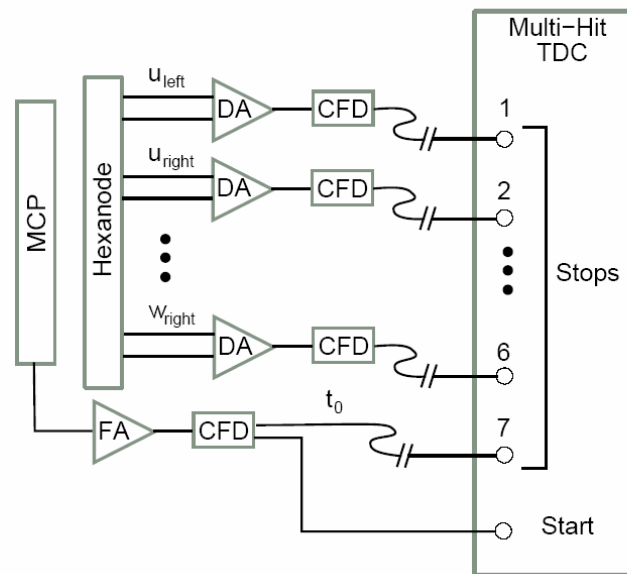


Abbildung 3.8: Schema der elektronischen Signalverarbeitung (siehe Text).

Um die Flugzeit der Ionen zu erhalten wurde das Zeitsignal des gestreuten Projektils als Start und das Ionen-MCP-Signal als Stopp verwendet. Die Bestimmung der Zeitdifferenz zwischen Start- und MCP-Signal erfolgte dann über die Kombination eines Zeit-Amplituden-Wandlers (TAC) und eines Amplituden-Digital-Wandlers (ADC). Der TAC erzeugt einen Puls, dessen Höhe proportional zum zeitlichen Abstand zwischen dem Startsignal und dem Stoppsignal vom Ionendetektor ist. Die Pulshöhe wird dann im ADC digitalisiert, sodass man daraus die Zeitdifferenz berechnen kann. Für Koinzidenzmessungen ist es zweckmäßig, die Elektronik um logische Elemente zu erweitern, womit sich Bedingungen für den Start von ADC und TDC setzen lassen. Beide werden von einem VME-Frontend-Rechner ausgelesen, der die Daten über das Netzwerk an ein Auswerteprogramm weitergibt und im *listmode*-Format speichert.

### 3.2.5 Der Elektronendetektor

Die begrenzte Zeitauflösung der CFDs und die Totzeit des TDCs führen bei der Verarbeitung von Mehrfachtreffern (*multi hits*) zum Verlust von MCP- oder Delay-Line-Signalen. Die Frage ist nun, welche Konsequenzen dies für den Nachweis von mehreren kurz hintereinander auftreffenden Teilchen hat (*Multi-hitfähigkeit*). Trifft ein zweites Teilchen innerhalb von etwa 10 ns nach dem ersten auf den Detektor, dann kann das von den MCPs kommende Signal nicht verarbeitet werden, da die Zeitdifferenz innerhalb der Totzeit der Datenaufnahmeelektronik liegt. Die effektive Totzeit für Delay-Line-Signale beträgt etwa 30 ns, die TDC-Totzeit allein ca. 10 ns.

#### Signalrekonstruktion

Im Prinzip kann das Problem von verloren gegangenen Zeitsignalen gelöst werden, indem der Auftreffzeitpunkt aus den Ortssignalen und der konstanten Zeitsumme der Delay-Line mit Hilfe von Gl. 3.5 rekonstruiert wird:

$$t_0 = \frac{1}{2} \cdot (t_{links} + t_{rechts} - t_{sum}) . \quad (3.6)$$

Die Gleichung gilt für beide Drahtlagen, was eine Kontrolle erlaubt, wenn alle Ortssignale vorhanden sind. Es bleibt allerdings immer noch das Problem von fehlenden Delay-Line-Signalen, wenn zwei Teilchen mit solchen Orts- und Zeitabständen auf den Detektor treffen, dass es zur Überlagerung von Delay-Line-Signalen kommt. Ist die Auftreffzeit bekannt und das Delay-Line-Signal an einem Ende vorhanden, dann kann das fehlende Ortssignal daraus ermittelt werden:

$$t_{links(rechts)} = t_{sum} - t_{rechts(links)} + 2t_0 . \quad (3.7)$$

Ein Problem ergibt sich dann, wenn das Zeitsignal und die Ortssignale einer Koordinate (x oder y) nicht vorhanden sind, da zwei Teilchen innerhalb von wenigen Nanosekunden und annähernd gleicher x oder y Koordinate nachgewiesen werden. Dies hat einen entscheidenden Einfluss auf die Fähigkeit *multi hits* mit einem räumlichen Abstand  $(\Delta x, \Delta y)$  und Zeitdifferenz  $\Delta t$  nachzuweisen. Für eine konventionelle quadratische Anode mit zwei Drahtlagen ergibt sich für einen zweiten Treffer innerhalb  $\Delta t \leq 10$  ns ein toter Bereich für jede Koordinate mit einer Breite von  $\Delta x$  bzw.  $\Delta y$  relativ zum ersten Treffer, wie in Abb. 3.10 links dargestellt.

## Die Hexanode

Durch Hinzufügen einer dritten Lage kann diese Einschränkung überwunden werden, da die zusätzliche Koordinate zu einer erhöhten Redundanz der Information führt [JCC<sup>+</sup>02]. Bei dieser Art von Delay-Line-Anode, der so genannten *Hexanode*, sind drei Lagen von Drähten in einem Winkel von 60° relativ zueinander um eine hexagonale Grundplatte gewickelt (Abb. 3.9). Aus den drei Koordinaten  $u$ ,  $v$  und  $w$  der jeweiligen Lagen können die orthogonalen Koordinaten  $x$  und  $y$  wie folgt berechnet werden :

$$\begin{aligned}x_{uv} &= u \\y_{uv} &= \frac{1}{\sqrt{3}} \cdot (u - 2v)\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}x_{uw} &= u \\y_{uw} &= -\frac{1}{\sqrt{3}} \cdot (u + 2w)\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}x_{vw} &= (v - w) \\y_{vw} &= -\frac{1}{\sqrt{3}} \cdot (v + w)\end{aligned}$$

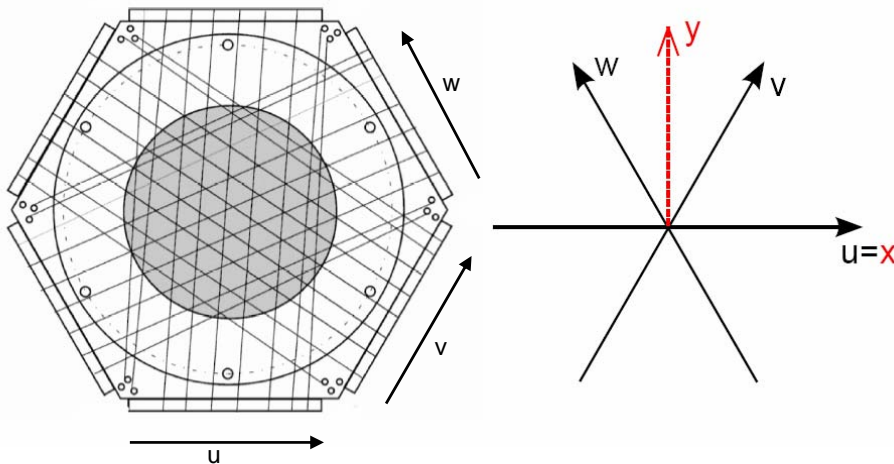


Abbildung 3.9: Schematischer Aufbau einer Delay-Line-Anode mit drei Drahtlagen für verbesserte Multihitfähigkeit. Es ergeben sich die drei Koordinaten  $u$ ,  $v$  und  $w$ , deren Beziehung zu den kartesischen Koordinaten  $(x, y)$  auf der rechten Seite illustriert ist.

Die x- und u-Richtung zeigen der Einfachheit halber in dieselbe Richtung. Zur Ortsbestimmung reichen prinzipiell immer zwei der drei Drahtlagen aus. Die redundante Information erlaubt aber zusätzlich die eindeutige Zuordnung der detektierten Signale zu zwei individuellen Primärteilchen, die innerhalb einer kurzen Zeit  $\Delta t$  auftreffen. Für  $\Delta t < 10$  ns ist der kreuzförmige Totzeitbereich einer zweilagigen Anode auf eine erheblich kleinere Region reduziert (siehe Abb. 3.10, rechte Seite).

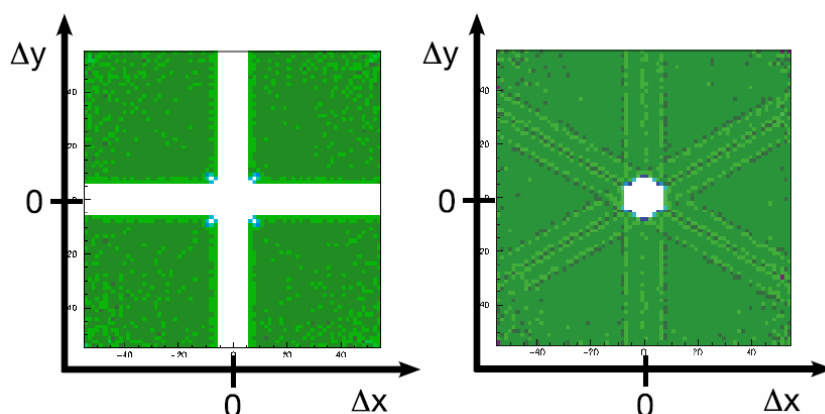


Abbildung 3.10: Totzeit-Region für den Nachweis eines zweiten Teilchens innerhalb von 10 ns nach dem ersten für eine konventionelle Delay-Line-Anode mit zwei Drahtlagen (links), und für zwei gleichzeitige Treffer auf einer Hexanode mit drei Lagen (rechts) [JCC<sup>+</sup> 02].

In der Praxis gestaltet sich die Rekonstruktion von Orts- und Zeitinformation recht kompliziert und aufwändig. Es muss besonders darauf geachtet werden, dass die aufgenommenen Signale den individuellen Treffern richtig zugeordnet werden und nicht fälschlicherweise aus dem Rauschen Signale rekonstruiert werden. Die Rekonstruktion der Pulse ist von entscheidender Bedeutung für den Nachweis mehrerer Elektronen und deshalb unverzichtbar für die Realisierung anspruchsvollerer Elektronenstoßexperimente, bei denen neben dem ionisierten Targetelektron auch das gestreute Projektil nachgewiesen werden muss.

### 3.2.6 Der Ionendetektor - eine neue Hexanode mit zentralem Loch

Für den Ionendetektor ist eine gute Multihitfähigkeit nicht erforderlich, zumindest nicht im für diese Arbeit durchgeführten Experiment, da in den untersuchten Reaktionen nur jeweils ein Ion entsteht. Vielmehr stellt hier das in der Mitte des Detektors benötigte Loch eine große Herausforderung dar. Während MCPs mit zentralem Loch kommerziell vertrieben werden, so ist dies bei ortsauflösenden Anoden der benötigten Größe nicht mehr der Fall. Es wurde deshalb eine Hexanode gebaut, deren Drähte so gewickelt sind, dass in der Mitte jeder Lage eine Lücke von etwa 8 mm Breite frei bleibt. Bis auf einen sechseckigen Bereich in der Mitte befinden sich somit überall mindestens zwei Lagen Draht, aus denen prinzipiell die vollständige Ortsinformation gewonnen werden kann. In Abb. 3.12 ist ein Foto dieser Anode gezeigt. Mit einer konventionellen Delay-Line-Anode aus zwei Drahtlagen wäre es nicht möglich, ein Loch zu integrieren und im gesamten restlichen Bereich die Ortsinformation vollständig zu erhalten.

Aufgrund der Lücken in den Drahtlagen ergeben sich allerdings einige Probleme. Die Laufzeit des Signals auf dem Draht ist nicht mehr direkt proportional zum Auftreffort, da der größere Drahtabstand in der Mitte dazu führt, dass die Ausbreitungsgeschwindigkeit  $v_{\perp}$  nicht mehr konstant ist, sondern an dieser Stelle einen Sprung hat. Dies lässt sich bei der Datenauswertung durch eine Fallunterscheidung und das künstliche Einfügen einer Lücke zumindest näherungsweise korrigieren. Eine weitere Schwierigkeit ergibt sich aus den Verzerrungen im elektrischen Feldverlauf zwischen MCP und Anode, resultierend aus den an manchen Stellen fehlenden Drähten. Vor allem im Bereich um das Loch kam es dadurch zu einer erhöhten Intensität an registrierten Ereignissen. Aus diesem Grund konnte ein Teil der Detektorfläche um die Mitte und die Randzonen herum nicht für die Datenanalyse verwendet werden.

Die Abbildungseigenschaften der Anode wurden mit einer Lochmaske aus Aluminium direkt auf dem Detektor und einer  $\alpha$ -Quelle ( $Am^{241}$ ), die sich etwa 20 cm vor dem Ionendetektor befand, getestet. In Abb. 3.11 (a)-(c) sind die Ortspektren dargestellt, wie man sie aus jeweils verschiedenen Kombinationen zweier Drahtlagen und ohne jegliche Korrekturen erhält. Es ist eine deutliche Verzerrung des Musters erkennbar und teilweise fehlen ganze Bereiche. Unter Einbeziehung aller drei Lagen konnte das Ortsbild in der späteren Analyse rekonstruiert werden (Abb. 3.11 (d)). Um ein unverzerrtes, möglichst komplettes Bild zu erhalten wurde dabei folgendermaßen vorgegangen: Aus jedem der drei Ortschaften (a)-(c) wurden zunächst die Bereiche ausgewählt, in denen das Muster korrekt abgebil-



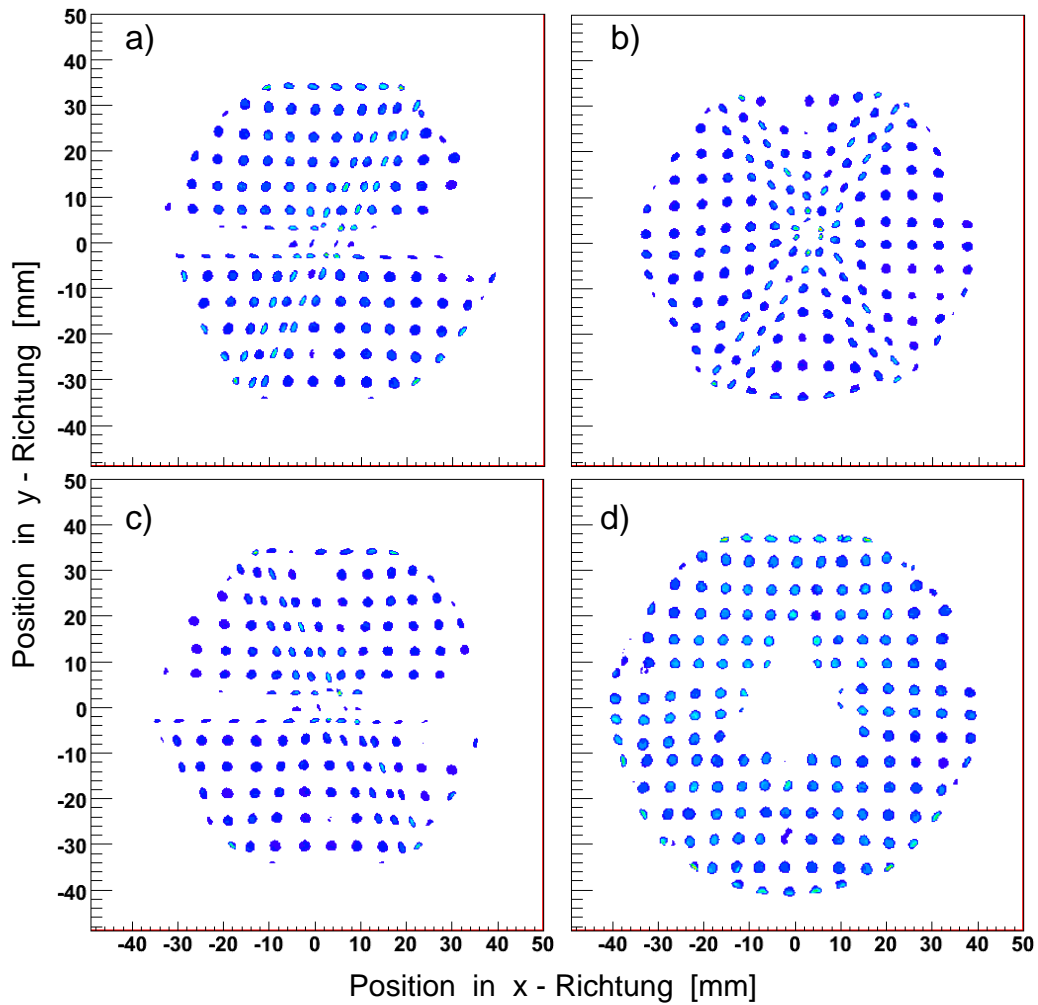


Abbildung 3.11: Abbildung einer Lochmaske auf den Ionendetektor. (a)-(c): Ortsbild wie man es erhält, wenn nur jeweils zwei der drei Drahtlagen zur Positionsbestimmung benutzt werden (verschiedene Kombinationen). Teil (d) zeigt das mit Hilfe aller drei Lagen rekonstruierte Bild.

det wurde. Unter Berücksichtigung der künstlich einzufügenden Lücken wurden diese Einzelteile dann zum Gesamtbild zusammengesetzt. Da in der vorliegenden Arbeit nur ein Teil der Detektorfläche benutzt wurde und die Routine für genau diesen Bereich optimiert werden konnte, war diese einfache Methode ausreichend. Um eine gleichmäßig gute Ortsbildrekonstruktion für die gesamte Fläche des Detektors zu bekommen, wären wesentlich aufwändigere Verfahren nötig.

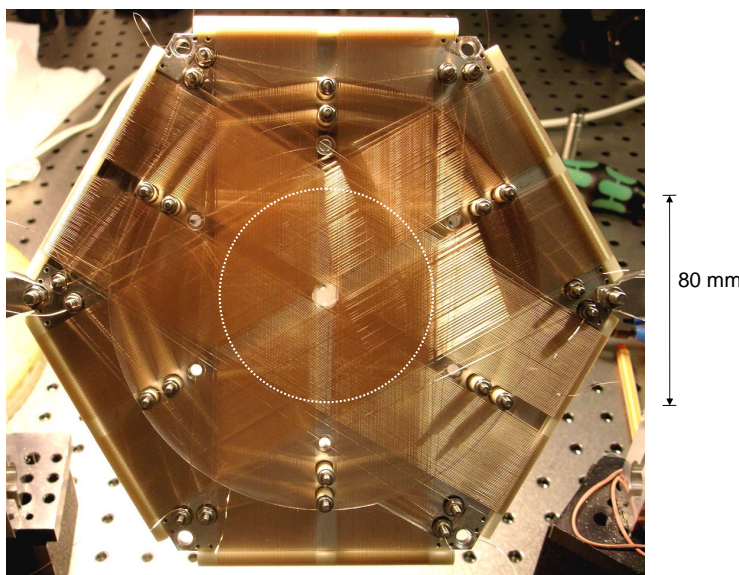


Abbildung 3.12: Foto der Hexanode mit zentralem Loch wie sie im Ionendetektor verwendet wird. Die weiß gepunktete Linie markiert den vom MCP erfassten Bereich.

### 3.3 Bestimmung der Impulse

Bei den beobachteten Stoßprozessen bildet der Projektilstrahl eine Symmetrieachse, bezüglich derer die einzelnen Impulsverteilungen rotations-symmetrisch sind. Da auch das Extraktionsfeld längs der z-Achse orientiert ist, ist es zweckmäßig, die Impulse in Zylinderkoordinaten zu beschreiben:

$$\begin{aligned}
p_{\parallel} &= p_z \\
p_{\perp} &= \sqrt{(p_x)^2 + (p_y)^2} \\
\phi &= \arctan\left(\frac{p_x}{p_y}\right)
\end{aligned}$$

Bei der Koinzidenzmessung zwischen Rückstoßion und Elektron reicht die Angabe der beiden Impulskomponenten nicht aus, da beide Impulsverteilungen zwar nach wie vor rotationssymmetrisch sind, koinzidente Elektronen und Rückstoßionen jedoch eine azimutale Winkelkorrelation aufweisen können. Daher muss auch der Azimutalwinkel  $\phi$  berücksichtigt werden. Die Impulsvektoren der nachgewiesenen Fragmente sind durch die gemessenen Flugzeiten  $t$ , die die Teilchen benötigen um den Detektor zu erreichen, und deren Auftrefforte  $(x,y)$  bestimmt. In der Analyse können die Impulse dann rekonstruiert werden, indem die Trajektorien zum Ursprung zurückverfolgt werden. Dies erfordert ein wohl definiertes elektrisches und magnetisches Feld im gesamten Bereich und einen möglichst genau bekannten Reaktionspunkt. Jede Feldinhomogenität und die endliche Größe des Reaktionsvolumens beeinträchtigen die Auflösung.

Die Zeit, die ein Fragment vom Koordinatenursprung am Reaktionspunkt bis zum Detektor benötigt, lässt sich leicht durch Lösen der Newtonschen Bewegungsgleichung berechnen. Das geladene Teilchen (mit Ladung  $q$  und Masse  $M$ ) wird zuerst in einem homogenen elektrischen Feld  $U/a$  beschleunigt. Dabei bezeichnet  $U$  das Extraktionspotential und  $a$  die Länge der Beschleunigungsstrecke. Das Teilchen gewinnt die kinetische Energie  $q \cdot U$  und durchfliegt anschließend die elektrisch feldfreie Driftregion der Länge  $d$ . Die Gesamtflugzeit des Elektrons, bzw. des Rückstoßions beträgt dann

$$t_{\pm}(E_{\parallel}) = f \cdot \sqrt{M} \cdot \left( \frac{2a}{\sqrt{E_{\parallel}} + qU \pm \sqrt{E_{\parallel}}} + \frac{d}{\sqrt{E_{\parallel}} + qU} \right). \quad (3.8)$$

Dabei ist das '+'-Zeichen zu verwenden, wenn das Teilchen in Extraktionsrichtung emittiert wird, das Minuszeichen gilt entsprechend für einen Startimpuls in entgegengesetzte Richtung. Gleichung 3.8 ergibt die Flugzeit in ns, wenn  $f = 719,9 \sqrt{eV/amu} \cdot ns/cm$  und die Strecken  $a$  und  $d$  in cm, die Masse  $M$  in amu und  $qU$  in eV gemessen werden. Die Startenergie in Richtung der Spektrometerachse,  $E_{\parallel}$ , ist ebenfalls in eV anzugeben. Um den Impuls

$$p_{\parallel} = \sqrt{2ME_{\parallel}}, \quad (3.9)$$

den das Teilchen beim Stoßprozess in diese Richtung bekommt, aus der gemessenen Flugzeit zu bestimmen, muss Gl. 3.8 nach  $p_{\parallel}$  aufgelöst werden. Die Schwierigkeit hierbei ist, dass es zu der angegebenen Gleichung keine analytische Umkehrfunktion gibt, sodass man auf numerische Lösungen und Näherungen angewiesen ist.

### 3.3.1 Der Ionenimpuls

Für die Ionen ist die im Beschleunigungsbereich durch das  $\vec{E}$ -Feld zugeführte Energie wesentlich größer als die Anfangsenergie in longitudinaler Richtung  $E_{\parallel}$ . Deshalb kann Gl. 3.8 um den Punkt  $t_0 = t_{\pm}(E_{\parallel} = 0)$  entwickelt werden:

$$\Delta t = t(E_{\parallel}) - t(E_{\parallel} = 0) \approx \left[ \frac{dt(E_{\parallel})}{dE_{\parallel}} \frac{E_{\parallel}}{p_{\parallel}} \right]_{p_{\parallel}=0} \cdot p_{\parallel} . \quad (3.10)$$

Damit ergibt sich für den Longitudinalimpuls der Rückstoßionen (in atomaren Einheiten):

$$p_{\parallel} = 8,04 \cdot 10^{-3} \frac{cm \text{ a.u.}}{eV \text{ ns}} \cdot \frac{q \cdot U}{a} \cdot \Delta t . \quad (3.11)$$

Die Flugzeit  $t(E_{\parallel} = 0)$  muss noch bestimmt werden (siehe Abschnitt 3.3.3). Bei hohen Projektilgeschwindigkeiten liegt sie nahe dem Maximum der Flugzeitverteilung.

Der Transversalimpuls  $p_{\perp}$  der Ionen kann aus der Flugzeit  $t$  und dem Auftreffort  $(x,y)$  auf dem Detektor bestimmt werden. Der Schwerpunkt der Ortsverteilung, um den das Spektrum rotationssymmetrisch ist, wird dabei als Ursprung  $(x_0, y_0)$  gewählt. Ionen, die an diesem Punkt auf den Detektor treffen, haben den Transversalimpuls  $p_{\perp} = 0$ . Für Ionen der Masse  $M$  ist der Abstand  $r$  von diesem Ursprung dann proportional zur Flugzeit und zum Transversalimpuls:

$$r := \sqrt{(x - x_0)^2 + (y - y_0)^2} = \frac{p_{\perp}}{M} \cdot t . \quad (3.12)$$

Um aus dieser Gleichung  $p_{\perp}$  zu berechnen muss noch die absolute Flugzeit bestimmt werden. Da die Flugzeitänderung  $\Delta t$ , verursacht durch den longitudinalen Startimpuls, gegenüber der Gesamtflugzeit vernachlässigt werden kann ( $\Delta t \ll t$ ), reicht es aus, die Zeit aus Gl. 3.8 für den Fall  $E_{\parallel} = 0$  zu benutzen:

$$t = \sqrt{\frac{M}{q} \frac{(2a + d)}{\sqrt{2U}}} . \quad (3.13)$$

Mit Gl. 3.12 ergibt sich dann für den Transversalimpuls in atomaren Einheiten:

$$p_{\perp} = 11,6 \cdot \frac{a.u.}{\sqrt{amu \text{ eV}}} \frac{r}{2a + d} \sqrt{qU \cdot M} . \quad (3.14)$$

Der Emissionswinkel in der xy-Ebene ist gegeben durch  $\phi = \arctan(y/x)$  (siehe Abb. 3.13).

### 3.3.2 Der Impuls der Elektronen

Für die Elektronenimpulse ist die Situation komplizierter, da zum einen die Energie, mit der das Elektron beim Stoß emittiert wird, nicht mehr vernachlässigt werden kann. Die für die Ionen gemachten Näherungen sind deshalb für die Elektronen nicht möglich. Des Weiteren bewegen sich die Elektronen im Magnetfeld  $\vec{B}$  auf Zyklotron-Bahnen und nicht wie die Rückstoßionen auf Parabeln.

#### Der Longitudinalimpuls

Auf die longitudinale Bewegung des Elektrons hat das Magnetfeld keinen Einfluss, da die Feldlinien parallel zur Extraktionsrichtung verlaufen. Die Bewegungsgleichung des Elektrons in dieser Richtung stimmt also mit der des Ions überein (vgl. Gl. 3.8). Die Gleichung kann aber nicht wie bei den Ionen vereinfacht werden, da die Annahme einer vergleichsweise kleinen Startenergie nicht mehr zulässig ist. Statt dessen wird der Longitudinalimpuls aus einer Näherungsformel berechnet. Dazu wird zunächst eine Substitution der Flugzeit  $t_e$  durchgeführt:

$$T = \frac{t_e \sqrt{qU}}{a \sqrt{2m_e}} \quad \text{und} \quad X = \sqrt{\frac{E_{\parallel}}{qU}}, \quad (3.15)$$

wobei  $m_e$  die Elektronenmasse bezeichnet. Gleichung 3.8 lässt sich dann folgendermaßen schreiben:

$$T = \frac{1}{X + \sqrt{1 + X^2}} + \frac{1}{\sqrt{1 + X^2}} \quad (3.16)$$

Die Umkehrfunktion dieser Gleichung kann nun mit dem vierparametrischen Ausdruck

$$X = A + \frac{B}{T} + C \cdot T + D \cdot \sin(T) \quad (3.17)$$

$$A = -0,051 \quad B = 1,508 \quad C = -0,466 \quad D = 0,2558$$

angenähert werden. Mit Hilfe von Gl. 3.15 und 3.9 kann dann der Longitudinalimpuls des Elektrons berechnet werden:

$$p_{e\parallel} = X \cdot \sqrt{2m_e eU}. \quad (3.18)$$

### Der Transversalimpuls

Die Bewegung des Elektrons in transversaler Richtung ist durch das Magnetfeld  $\vec{B}$  bestimmt, mit dessen Hilfe das Elektron auf einer Spiralbahn zum Detektor gelenkt wird. Auf diese Weise wird die Akzeptanz des Spektrometers für große Transversalimpulse  $p_{e\perp}$  erhöht. Das Elektron bewegt sich im magnetischen Feld mit der Zyklotronfrequenz

$$\omega_c = \frac{eB}{m_e}, \quad (3.19)$$

die nur vom Betrag des Magnetfelds  $B$  abhängt. Der Radius  $r$  dieser Spiralbahn ist proportional zum Transversalimpuls. Es gilt:

$$r = \frac{p_{e\perp}}{eB}. \quad (3.20)$$

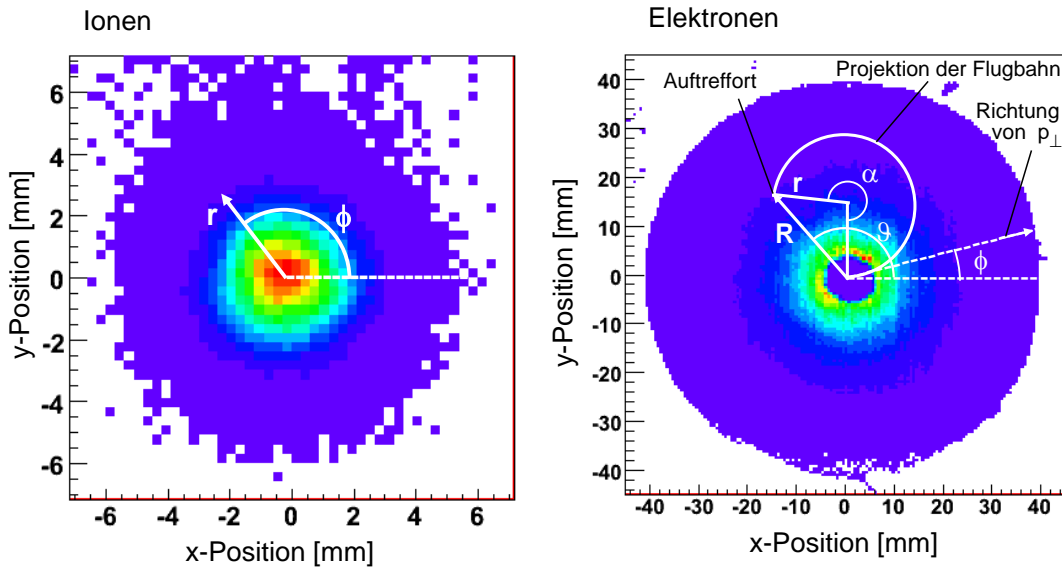


Abbildung 3.13: Ortsbilder vom Ionendetektor (links), bzw. Elektronendetektor (rechts). Illustriert ist dabei die Rekonstruktion der Transversalimpulskomponenten aus der Auftreffposition.

Diese Größe  $r$  kann jedoch nicht direkt gemessen werden, sondern muss mit Hilfe der Flugzeit  $t_e$  und des Auftrefforts  $(x_e, y_e)$  ermittelt werden. Ehe es auf den Detektor trifft, durchläuft das Elektron einen Winkel  $\alpha$ , welcher sich aus der Flugzeit und der Zyklotronfrequenz ergibt:  $\alpha = \omega_c t_e = eBt_e/m_e$ . Im Experiment sind dies mehrere volle Umdrehungen. Die Trajektorie hängt außerdem vom Azimutalwinkel  $\phi$  ab, mit dem das Elektron emittiert wurde. Eine Projektion der

Flugbahn in die Detektorebene (xy-Ebene) ist in Abb. 3.13 (rechts) dargestellt. Aus trigonometrischen Überlegungen erhält man unter Kenntnis des Winkels  $\alpha$  und der radialen Koordinate  $R$  auf dem Detektor den Radius  $r$  der Zyklotronbahn (vgl. Abb. 3.13). Der Ursprung des Koordinatensystems ist dabei definiert durch den Startpunkt der Flugbahn, welcher sich auf der Spektrometerachse befindet. Es gilt:

$$\left| \sin \frac{\alpha}{2} \right| = \frac{R}{2r} \Rightarrow r = \frac{R}{2 |\sin(\omega_c t_e / 2)|} . \quad (3.21)$$

Mit Gl. 3.20 lässt sich nun der Transversalimpuls des Elektrons berechnen:

$$p_{e\perp} = \frac{ReB}{2 |\sin(\omega_c t_e / 2)|} . \quad (3.22)$$

Der Azimutalwinkel  $\phi$ , mit dem das Elektron ursprünglich emittiert wurde, hängt mit dem Winkel  $\vartheta$  in der Detektorebene wie folgt zusammen:

$$\phi = \vartheta - \omega_c t_e / 2 . \quad (3.23)$$

Schließlich ist noch eine Schwierigkeit zu beachten, die sich aus der Tatsache ergibt, dass sich im Detektor ein zentrales Loch von 8 mm Durchmesser befindet. Ist die Flugzeit  $t_e$  nahe einem Vielfachen der Umlaufzeit auf der Zyklotronbahn (d.h.  $\alpha \approx n \cdot 2\pi$ ), dann landet das Elektron nahe dem Ursprung auf dem Detektor und somit im Loch. Die Konsequenzen, die sich daraus für die Akzeptanz des Spektrometers ergeben, werden in Abschnitt 3.4.1 näher diskutiert werden.

### 3.3.3 Rekonstruktion der Molekülorientierung

Ein Ziel der Arbeit war es, vollständig differentielle Daten für bekannte Orientierung des Moleküls zu gewinnen. Um die Richtung der Molekülachse zum Zeitpunkt der Kollision rekonstruieren zu können, muss ein dissoziativer Prozess ausgenutzt werden, bei dem ein entlang der Achse emittiertes Fragment nachgewiesen wird. Bei dem hier betrachteten Reaktionskanal der Grundzustandsdissoziation ist dies möglich, wobei allerdings einige Punkte beachtet werden müssen. Wie bereits in [DMF<sup>+</sup>05] vorgeschlagen und gezeigt, handelt es sich hierbei um einen zweistufigen Prozess. Zuerst wird, aufgrund der Wechselwirkung mit dem Projektil, ein Elektron emittiert. Im zweiten Schritt dissoziiert dann das  $H_2^+$ -Ion. In diesem Bild sind die beiden Schritte unabhängig voneinander. Um nun aus den gemessenen Impulsvektoren die ursprüngliche Orientierung zu rekonstruieren, müssen diese um denjenigen Impuls korrigiert werden, den das Molekül bereits bei der Ionisation bekommt. Der bei der dissoziativen Ionisation übertragene

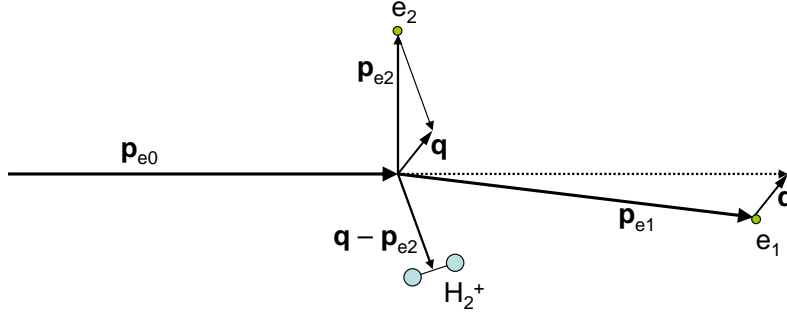


Abbildung 3.14: Illustration der Stoßkinematik mit den Impulsen der beteiligten Teilchen.  $\mathbf{q}$  ist der bei der Reaktion übertragene Impuls.

Impuls  $\vec{q}$  setzt sich aus den Impulsen aller Fragmente zusammen, also

$$\vec{q} = \vec{p}_{e2} + \vec{p}_r + \vec{p}_n, \quad (3.24)$$

wobei der Index e2 für das ionisierte Elektron, r für das Proton und n für das neutrale H-Atom steht. Der Schwerpunkt des  $H_2^+$ -Ions erhält damit im ersten Schritt den Impuls  $(\vec{p}_r + \vec{p}_n) = \vec{q} - \vec{p}_{e2}$ . In Abb. 3.14 ist die Kinematik des Stoßes schematisch dargestellt. Im zweiten Schritt, bei dem sich das Proton und das neutrale H-Atom im Schwerpunktsystem des Molekülions mit gleich großen Impulsen in entgegengesetzte Richtung voneinander entfernen, gilt dann:

$$\left( \vec{p}_r - \frac{1}{2} (\vec{q} - \vec{p}_{e2}) \right) = - \left( \vec{p}_n - \frac{1}{2} (\vec{q} - \vec{p}_{e2}) \right). \quad (3.25)$$

Somit entspricht die Größe  $\vec{p}'_r = \vec{p}_r - \frac{1}{2} (\vec{q} - \vec{p}_{e2})$  dem Impuls des  $H^+$ -Ions im Ruhesystem des Moleküls. Für die einzelnen Komponenten erhält man:

$$\begin{aligned} p'_{r,x} &= p_{r,x} - 1/2 \cdot (q_x - p_{e2,x}) \\ p'_{r,y} &= p_{r,y} - 1/2 \cdot (q_y - p_{e2,y}) \\ p'_{r,z} &= p'_{r\parallel} = p_{r\parallel} - 1/2 \cdot (q_{\parallel} - p_{e2\parallel}) \end{aligned}$$

Dabei ist der transversale Impulsübertrag gleich dem entgegengesetzten Transversalimpuls des gestreuten Projektils e1,  $q_x = -p_{e1,x}$  und  $q_y = -p_{e1,y}$ . Für die longitudinale Richtung wurde die Näherung  $q_{\parallel} = (\delta E + E_{e2})/v_p$  benutzt. Hierbei ist  $\delta E$  die Summe aus dem Ionisationspotential von  $H_2$  (15,4 eV) und der Dissoziationsenergie des  $H_2^+$ -Ions (2,7 eV),  $E_{e2}$  ist die kinetische Energie des emittierten Elektrons und  $v_p$  die Projektilgeschwindigkeit (3,9 a. u.). In Abb. 3.15 (a) ist



exemplarisch die Impulsverteilung der  $H^+$ -Ionen in longitudinaler Richtung,  $p_{r\parallel}$ , dargestellt, und zwar getrennt für den Fall, dass das Targetelektron bezüglich der Projektilstrahlrichtung nach vorne, bzw. nach hinten, emittiert wurde. Man beobachtet, dass das Maximum jeweils entgegen der Elektronenemissionsrichtung verschoben ist. Zum Vergleich ist in dieser Abbildung auch die Impulsverteilung der  $H_2^+$ -Ionen aus nichtdissoziativer Ionisation gezeigt, allerdings nicht getrennt nach Emissionsrichtung des Elektrons. Wie erwartet ist die Verteilung der Protonen viel breiter, resultierend aus der Energiefreisetzung bei der Fragmentation. Nach der Transformation in das Molekülsystem hängt die Position der  $H^+$ -Ionenimpulsverteilungen nicht mehr von der Elektronenemissionsrichtung ab (Abb. 3.15 b)). Offensichtlich sind die Abweichungen, die in Abb. 3.15 (a) zu sehen sind, eine Folge der Stoßkinematik. Die Tatsache, dass die Verteilung von  $p'_{r\parallel}$  ihr Maximum bei Null haben muss, wurde dazu benutzt, die Flugzeit  $t(E_{\parallel} = 0)$  festzulegen, welche in die Berechnung der Longitudinalimpulse mit einfließt. In den Diagrammen ist auch zu sehen, dass Ereignisse, bei denen das Elektron in Vorwärtsrichtung emittiert wird, leicht überwiegen. Allgemein wird dies bei Elektronenstoß beobachtet, da hier der Impulsübertrag üblicherweise leicht nach vorne gerichtet ist.

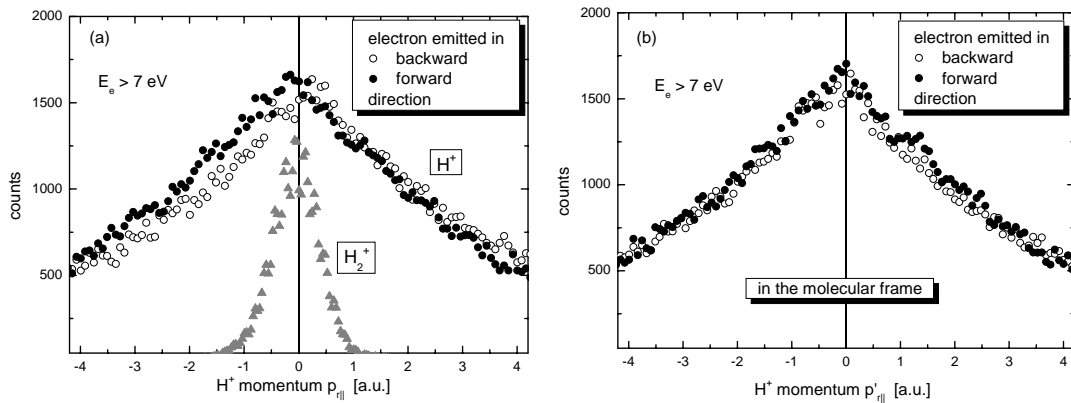


Abbildung 3.15: Longitudinalimpulsverteilung (a: im Laborsystem, b: im Schwerpunktsystem des Moleküls) der  $H^+$ -Ionen für den Fall, dass das Elektron bezüglich der Projektilstrahlrichtung nach vorne (schwarze Symbole), bzw. nach hinten (offene Symbole), emittiert wurde. In (a) ist zum Vergleich auch die Impulsverteilung der  $H_2^+$ -Ionen aus nichtdissoziativer Ionisation gezeigt (graue Dreiecke).

Weiterhin muss sichergestellt werden, dass die Dissoziation schnell abläuft, verglichen mit der molekularen Rotation, sodass die gemessene Richtung der  $H^+$ -Emission tatsächlich der Richtung der Molekülachse zum Zeitpunkt der Kollision

entspricht ('axial recoil approximation' [Zar67]). Für die Dissoziation der Wasserstoffmolekülonen ist dies dann gültig, wenn die Energie der  $H^+$ -Ionen  $E_{kin}$  groß ist gegenüber der Rotationsenergie des Moleküls  $E_R$ . Eine einfache klassische Abschätzung des Winkels  $\alpha$  zwischen dem Impulsvektor des dissoziierenden Teilchens und der ursprünglichen Orientierung der Molekülachse ergibt für einen sehr großen Abstand der sich voneinander entfernenden Fragmente [DK63]:

$$\alpha_\infty = \sqrt{\frac{E_R}{E_{kin}}} . \quad (3.26)$$

Es wird angenommen, dass sich beim hier beschriebenen Experiment die meisten Targetmoleküle nach der Überschallexpansion im Rotationsgrundzustand befinden. Prinzipiell können deshalb wie in [DMF<sup>+</sup>05] alle Ereignisse für die Datenanalyse verwendet werden, bei denen die kinetische Energie  $E_{kin} = (p')^2/2M$ , welche die Protonen bei der Dissoziation gewinnen, größer ist als etwa 2 meV.

Der Winkel  $\theta$  zwischen Projekttilstrahlrichtung und Molekülachse zum Zeitpunkt der Kollision ist dann gegeben durch

$$\theta = \arccos \left( \frac{p'_{r\parallel}}{|p'_r|} \right) . \quad (3.27)$$

## 3.4 Spektrometereigenschaften: Akzeptanz und Auflösung

Durch den hier verwendeten Aufbau mit einem Projekttilstrahl parallel zur Spektrometerachse sowie einer verkürzten Driftstrecke für die Ionen und Detektoren mit zentralem Loch ergeben sich einige Konsequenzen für den Nachweisraumwinkel und die erreichbare Auflösung. So können z.B. nicht mehr alle Elektronen auf den Detektor abgebildet werden, was die Akzeptanz einschränkt. Da allerdings auch die gestreuten Projektile nachgewiesen werden können, und somit für den Fall der einfachen Ionisation ohne Dissoziation des Moleküls alle Teilchen im Endzustand, ist es möglich mit Hilfe der Impulserhaltung die Detektoren zu kalibrieren und die Gesamtauflösung zu bestimmen.

### 3.4.1 Akzeptanz

Die Akzeptanz im Impulsraum ist durch die Größe der ortsauflösenden Detektoren und die verwendeten Spektrometerfelder beschränkt. Für die Ionen ergibt sich

die Akzeptanz in transversaler Richtung direkt aus Gl. 3.14 und einer maximalen Auslenkung von 40 mm, was dem Radius des Detektors entspricht. Mit einer Extraktionsspannung von  $U = 63,5$  V und den in Abschnitt 3.1.1 angegebenen Spektrometerabmessungen ergibt sich für die  $H^+$ -Ionen mit Masse  $M = 1$  amu ein maximaler Transversalimpuls von 13,7 a.u.. Da es auf Grund des Lochs im Ionendetektor allerdings in einem relativ großen Bereich um das Detektorzentrum herum nicht möglich war eine verlässliche Ortsinformation zu bekommen, wurden die Ionen etwas nach unten abgelenkt und schließlich nur die Detektorhälfte unterhalb des Lochs benutzt. Dies reduziert die vollständig nachweisbare Auslenkung der Ionen auf die Hälfte. Wegen Linseneffekten, verursacht durch Feldinhomogenitäten am Übergang vom Beschleunigungsbereich zum Driftbereich, müssen außerdem noch Skalierungsfaktoren berücksichtigt werden (siehe Abschnitt 3.4.2). Aus diesen Gründen reduziert sich die transversale Akzeptanz auf 4,8 a.u.. In longitudinaler Richtung bestehen dagegen für die Ionen, die hier von Interesse sind, keine Beschränkungen.

Auch für die Elektronen ist man in longitudinaler Richtung nicht wesentlich limitiert. Nur Elektronen, die mit einer kinetischen Energie größer  $eU = 63,5$  eV entgegen der Extraktionsrichtung emittiert werden, können nicht mehr nachgewiesen werden. Alle Elektronen mit  $p_{\parallel} > -\sqrt{eU/2m_e}$  werden vom elektrischen Feld zum Detektor gelenkt. In positiver Richtung besteht keine Einschränkung. Es können also auch noch sehr schnelle Elektronen detektiert werden, allerdings mit schlechterer Auflösung. Für die transversale Komponente  $p_{\perp}$  sind die Einschränkungen entscheidend, welche die Trajektorien der Elektronen limitieren. Die Zyklotronbewegung der Elektronen ist durch den Abstand der Spektrometerelektroden auf einen Radius  $r$  von maximal 17,5 mm beschränkt. Auf Grund des Lochs im Zentrum des Elektronendetektors können nur solche Elektronen nachgewiesen werden, deren Bahnradius mehr als 2,5 mm beträgt, was zu einem toten Bereich von 10 mm Durchmesser in der Mitte des Detektors führt (vgl. Abb. 3.13). Folglich ergibt sich ein minimaler, bzw. maximaler Wert für den Transversalimpuls  $p_{\perp}$  von

$$4 \cdot 10^{-3} \frac{\text{a.u.}}{\text{mm Gauß}} \cdot B r_{\min} < p_{\perp} < 4 \cdot 10^{-3} \frac{\text{a.u.}}{\text{mm Gauß}} \cdot B r_{\max} , \quad (3.28)$$

der durch das Magnetfeld vorgegeben ist. Die Zyklotronbewegung hat noch eine weitere Konsequenz für die Akzeptanz. Beträgt die Flugzeit ein ganzzahliges Vielfaches der Zyklotron-Umlaufdauer, also  $t = t_{wig} = n \cdot 2\pi/\omega$  ( $n=0,1,2,\dots$ ), dann kehren die Elektronen auf die Spektrometerachse zurück. Diese charakteristischen Zeiten  $t_{wig}$  hängen nur vom Magnetfeld ab und werden 'Wiggle' genannt. In Abb. 3.16 (linke Seite) ist der Abstand  $R$  der nachgewiesenen Elektronen von

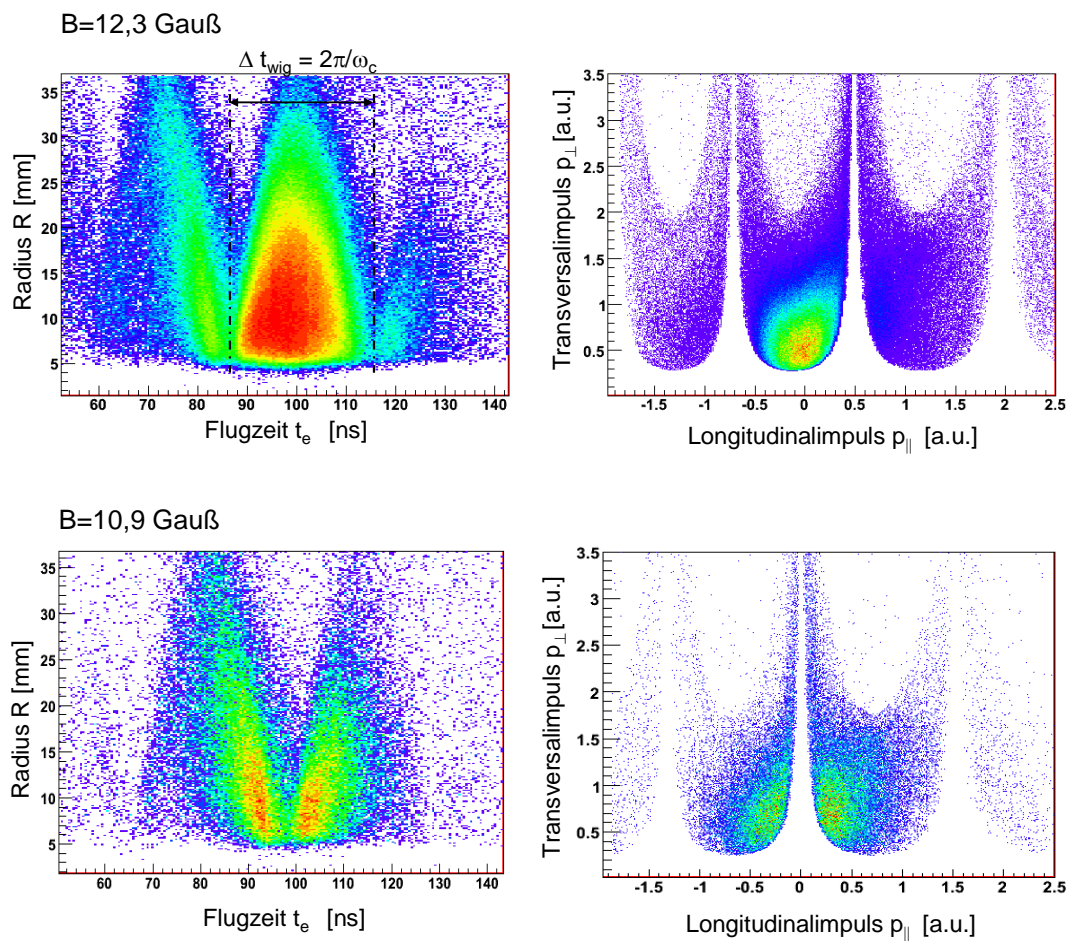


Abbildung 3.16: Links ist die radiale Ortskoordinate der detektierten Elektronen als Funktion ihrer Flugzeit dargestellt, rechts die daraus resultierende Akzeptanz im Impulsraum. Dabei stammen die in der oberen Reihe gezeigten Daten aus der ersten Messung, die untere Reihe zeigt Spektren aus der mit verändertem Magnetfeld durchgeführten zweiten Messung.

der Detektormitte gegen die Flugzeit aufgetragen. Liegt letztere in der Nähe von  $t_{wig}$ , so schrumpfen die Radien  $R$  und es werden insgesamt weniger Teilchen detektiert, da sie in das Loch treffen. Mit den Gleichungen 3.22 und 3.18 können Abstand  $R$  und Flugzeit  $t_e$  der Elektronen in transversalen, bzw. longitudinalen Impuls übersetzt werden. Dies führt zu einem entsprechenden Muster für die Akzeptanz im Impulsraum, das in Abb. 3.16 (rechts) dargestellt ist. Die freien Flächen können aufgefüllt werden, indem die Messung mit verändertem elektrischem oder magnetischem Feld wiederholt wird. Es ist auch möglich beides zu variieren. Im für diese Arbeit durchgeführten Experiment wurde die Extraktionsspannung (und somit die Flugzeit) konstant gehalten und nur das B-Feld, also  $t_{wig}$  verändert. Es wurden, wie in Abb. 3.16 gezeigt, zwei Messreihen aufgenommen, eine mit  $B=12,3$  Gauß und eine mit  $B=10,9$  Gauß.

### 3.4.2 Die Auflösung des Spektrometers

Die Auflösung des Spektrometers hängt von verschiedenen Faktoren ab. Dazu gehören die Targettemperatur, die Ausdehnung des Reaktionsvolumens, Inhomogenitäten im elektrischen Feldverlauf sowie das örtliche und zeitliche Auflösungsvermögen der Detektoren. Die Genauigkeit der Impulsspektroskopie ist immer auch davon abhängig, wie exakt die Extraktionsspannung, die Länge der Beschleunigungs- und der Driftstrecke und das magnetische Feld bekannt sind. Teilweise wurden diese Parameter nicht direkt gemessen, sondern in einem Kalibrierverfahren ermittelt. Der Einfluss all dieser Faktoren auf das Auflösungsvermögen ist für Ionen und Elektronen sehr unterschiedlich. Für Letztere spielen zusätzlich noch Flugzeit und Nachweisort eine große Rolle.

#### Die Auflösung für Elektronen

Die Auflösung der Elektronenimpulse wird im Wesentlichen durch die Unsicherheit bei der Orts- und Zeitmessung begrenzt. Die Targettemperatur spielt hier eine vernachlässigbare Rolle, da die kinetische Energie, mit der das Elektron emittiert wird, erheblich höher ist als die thermische Energie des Targets. Aufgrund der Bewegung der Elektronen auf Zyklotronbahnen ist die Auflösung an jedem Punkt im Endzustandsimpulsraum verschieden. Um eine hohe Genauigkeit zu erreichen, müssen das elektrische und magnetische Feld möglichst präzise bekannt sein. Der Wert des Magnetfelds  $B$  lässt sich dabei aus dem Abstand zweier Wiggles (Abb. 3.16) und mittels Gl. 3.19 mit einer Genauigkeit von etwa zwei Prozent berechnen.

Die absolute Flugzeit der Elektronen ist a priori nicht aus der alleinigen Messung der Auftreffzeit bekannt. Es muss ein zeitlicher Nullpunkt  $t=0$  festgelegt werden, der durch Extrapolieren der Wiggles in ganzzahligen Schritten  $n \cdot t_{wig}$  ( $n=1,2,3,\dots$ ) zu früheren Zeiten hin bestimmt werden kann. Für ein gewisses  $n$  ist dieser Nullpunkt gefunden, da die Trajektorien der Elektronen am Reaktionspunkt auf der Spektrometerachse starten und der erste Wiggle somit bei  $t=0$  sein muss.

Mit Hilfe der Gaußschen Fehlerfortpflanzung und den Formeln zur Impulsberechnung (Gln. 3.22, 3.18 und 3.23) kann das Auflösungsvermögen des Transversalimpulses und des Azimutalwinkels abhängig von der  $R$ -Koordinate und der Flugzeit  $t$  angegeben werden:

$$\delta p_{\perp} \propto \frac{B}{2 |\sin(\frac{1}{2}\omega t)|} \sqrt{(\delta R)^2 + \left( \frac{R\omega \cdot \delta t}{2 \cdot \tan(\frac{1}{2}\omega t)} \right)^2} \quad (3.29)$$

$$\delta \phi = \sqrt{\left( \frac{\delta R}{R} \right)^2 + \left( \frac{\omega}{2} \delta t \right)^2}. \quad (3.30)$$

Für die longitudinale Komponente hängt die Auflösung  $\delta p_{\parallel}$  nur von der Unsicherheit der Flugzeitmessung ab, wohingegen für  $\delta p_{\perp}$  und  $\delta \phi$  auch die radiale Koordinate  $r \propto |\sin(1/2 \cdot \omega t)|$  auf dem Detektor mit berücksichtigt werden muss. Man erhält die Auflösung des Longitudinalimpulses aus  $\delta p_{\parallel} = (dp_{\parallel}/dt) \cdot \delta t$  und Gl. 3.18, was allerdings einen längeren analytischen Ausdruck ergibt, der hier nicht aufgeführt wird. Die Ausdehnung des Reaktionsvolumens in longitudinaler Richtung ist aufgrund der Flugzeitfokussierung (siehe Kapitel 3.1.1) vernachlässigbar.

Die Unsicherheit in der Flugzeitmessung ist durch die Länge des Projektilimpulses von 1,5 ns gegeben. Die signalverarbeitende Elektronik stellt keine Limitierung dar, da ihre Zeitauflösung deutlich besser ist.  $\delta R$  ist bestimmt durch die Ortsauflösung der Delay-Line-Anode (etwa 0,5 mm) und die transversale Ausdehnung des Reaktionsvolumens, welche durch den Projektilstrahldurchmesser im Fokus gegeben ist ( $< 1$  mm). Zusammen ergibt sich eine Auflösung, die zu  $\delta R \approx 1$  mm ermittelt wurde. Mit diesen Werten wurde die Auflösung berechnet, die in Abb. 3.17 zu sehen ist, wobei eine Spektrometereinstellung mit 63,5 V Beschleunigungsspannung und einem Magnetfeld von  $B=10,9$  Gauß benutzt wurden. Dargestellt ist die Unsicherheit, mit der die einzelnen Impulskomponenten  $p_{\parallel}$ ,  $p_{\perp}$  und  $\phi$  bestimmt werden können, als Funktion des Longitudinalimpulses. Für die Transversalkomponenten ist dabei eine interessante Eigenschaft zu sehen. Die

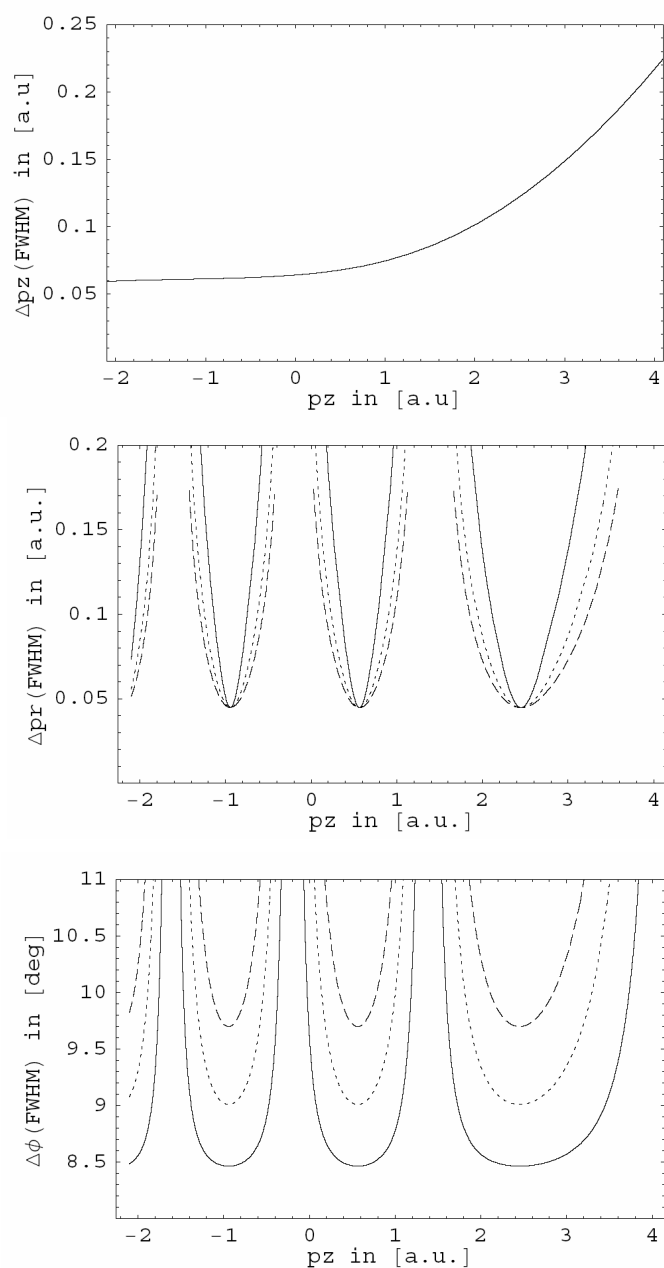


Abbildung 3.17: Auflösung der Komponenten  $(p_z, p_r, \phi)$  des Elektronenimpulses für eine Spektrometerspannung von  $U=63,5$  V und ein Magnetfeld von  $B=10,9$  Gauß. Die Kurven wurden mit Hilfe der Gaußschen Fehlerfortpflanzung berechnet, wobei eine Messgenauigkeit von  $\delta t=1,5$  ns für die Flugzeit und  $\delta R=1$  mm für die Bestimmung des Auftreffortes angenommen wurde. Die Kurven stellen die Auflösung für Elektronen mit drei verschiedenen Transversalimpulsen dar:  $p_r=1,3$  a.u. (—),  $p_r=0,7$  a.u. ( $\cdot\cdot\cdot$ ),  $p_r=0,5$  a.u. (- - -).

Abhängigkeit von der absoluten Flugzeit  $t$  geht aufgrund der Zyklotronbewegung periodisch in die Berechnung der Auflösung ein. An den Wiggles, also dort wo alle Elektronen in der Nähe der Spektrometerachse den Detektor erreichen, gibt es keine Auflösung. Ansonsten geht die Abhängigkeit bezüglich der Unsicherheit in der Flugzeitmessung mit  $\delta t/\omega$ , also nur relativ zur Dauer eines Zyklotronumlaufs, in die Berechnung ein. Auch für gestreute Projektile mit hoher Energie und kurzer Flugzeit bleibt die gute Auflösung der Transversalkomponenten also erhalten, wohingegen die longitudinale Komponente nur mit immer größer werdender Ungenauigkeit bestimmt werden kann. Um für diese schnellen Elektronen in transversaler Richtung eine bestmögliche Auflösung zu erhalten, kann das Magnetfeld so gewählt werden, dass die Teilchen gerade zwischen zwei Wiggles den Detektor erreichen.

### Die Auflösung für Ionen

Die Auflösung der Rückstoßionenimpulsspektroskopie hängt ganz entscheidend von der Temperatur des Targets ab, welche hier bei ca. 4 K liegt. Durch die verwendeten Skimmer können Moleküle mit hoher Geschwindigkeit senkrecht zur Strahlrichtung ausgeblendet werden; in y-Richtung allerdings (d.h. in Richtung des Jets) kann die Auflösung nicht weiter verbessert werden (vgl. Kapitel 3.1.3). Wie bereits in 3.1.3 diskutiert, ergibt sich für die Impulsunsicherheit auf Grund der Targettemperatur:

$$\begin{aligned}\delta p_x^{thermal} &= 0,13 \text{ a.u.} \\ \delta p_y^{thermal} &= 0,49 \text{ a.u.} \\ \delta p_z^{thermal} &= 0,13 \text{ a.u.}\end{aligned}$$

Zusätzlich muss die Unsicherheit in der Orts- und Zeitmessung berücksichtigt werden. Der Fehler bei der Ortsbestimmung wird im Wesentlichen durch die Ausdehnung des Reaktionsvolumens, aber auch durch Abbildungsfehler des Spektrometers und die begrenzte Ortsauflösung des Detektors verursacht. Die Unsicherheit bei der Zeitmessung liegt sowohl an der zeitlichen Breite des Projektilpulses als auch an der Zeitauflösung des Detektors. In der folgenden Abschätzung wird für den Fehler im Ort  $\delta r = 1 \text{ mm}$  und den Fehler in der Zeit  $\delta t = 1,5 \text{ ns}$  angenommen. Aus Gleichung 3.11 und 3.14 ergibt sich dann für die Impulsunsicherheit:



$$\delta p_{\parallel}^2 = \left( \left( 8,04 \cdot 10^{-3} \frac{cm \ a.u.}{eV \ ns} \cdot \frac{q \cdot U}{a} \right) \cdot \delta t \right)^2 + \delta(p_{therm})^2 \quad (3.31)$$

$$\delta p_{\perp}^2 = \left( \left( 11,6 \cdot \frac{a.u.}{\sqrt{amu \ eV}} \frac{\sqrt{qU \cdot M}}{2a + d} \right) \cdot \delta r \right)^2 + \delta(p_{therm})^2 \quad (3.32)$$

Der Fehler der Beschleunigungsstrecke  $a$ , der durch die longitudinale Ausdehnung des Reaktionsvolumens verursacht wird, trägt vernachlässigbar zum Gesamtfehler bei. Zusammenfassend ergibt sich für die im Experiment gewählten Einstellungen ( $U=63,5$  V) eine erreichbare Auflösung der einzelnen Ionenimpuls-komponenten von

$$\begin{aligned} \delta p_x &= 0,37 \ a.u. \\ \delta p_y &= 0,60 \ a.u. \\ \delta p_z = \delta p_{\parallel} &= 0,15 \ a.u. \end{aligned}$$

Dabei ist die z-Achse identisch mit der Projekttilstrahl- bzw. Extraktionsrichtung, die y-Achse verläuft entlang des Gasjets und die x-Richtung ist senkrecht zu den beiden Strahlen (vgl. Abb. 3.1).

Inhomogenitäten im elektrischen Feldverlauf wie sie am Übergang vom Beschleunigungs- zum Driftbereich entstehen, beeinflussen die Ionen weit stärker als die Elektronen, da ihre kinetische Energie sehr viel geringer ist. Mit den richtigen Skalierungsfaktoren kann die Auftreffposition, und somit die transversalen Impuls-komponenten der Ionen,  $p_x$  und  $p_y$ , korrigiert werden. Des Weiteren führen die Ionen ebenfalls eine Zyklotronbewegung durch, aufgrund ihrer hohen Masse allerdings nur einen kleinen Bruchteil einer vollen Umdrehung, was durch Drehen des Ortsspektrums kompensiert werden kann. Für die einfache Ionisation ohne Dissoziation des Moleküls, bei der die Kinematik überbestimmt ist, können diese Faktoren durch Nachprüfen der Impulserhaltung gewonnen, und der Detektor somit kalibriert werden. Die Summe der Impulse aller Teilchen im Endzustand muss dabei gleich dem Impuls des Projektils sein:

$$\vec{p}_{e0} = \vec{p}_{e1} + \vec{p}_{e2} + \vec{p}_{ion} \ . \quad (3.33)$$

Die Impulserhaltung in transversaler Richtung ist in Abb. 3.18 (unten) gezeigt, wobei die Impulssumme der Endzustandsteilchen gleich Null sein

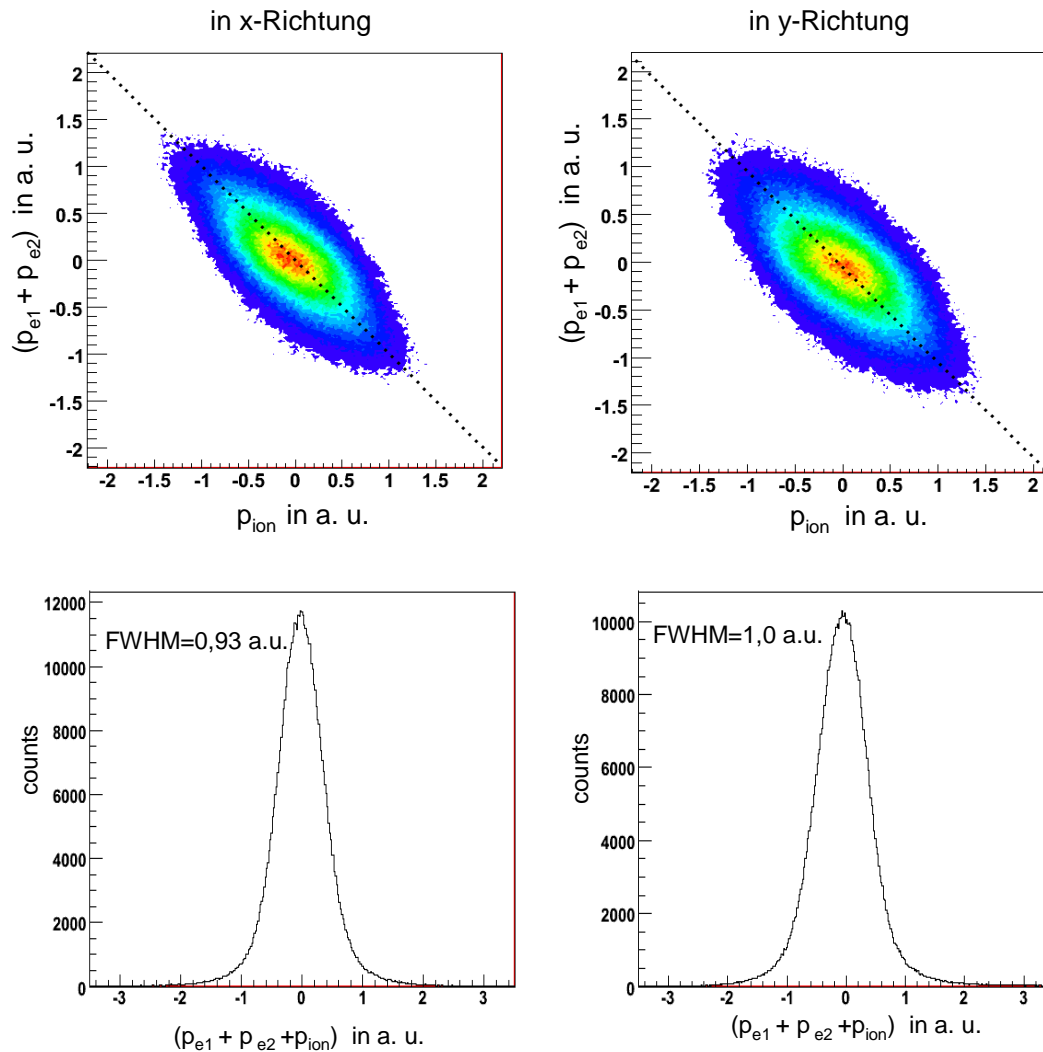


Abbildung 3.18: *Transversalimpulse der Teilchen im Endzustand (zwei Elektronen und ein  $H_2^+$ -Ion). Im oberen Teil ist demonstriert, wie die Summe der Elektronenimpulse durch den Impuls des Ions ausgeglichen wird, jeweils separat für die x- und y-Richtung. Unten ist für beide Richtungen die Summe aller drei Impulse aufgetragen, woraus man Informationen über die Gesamtauflösung der einzelnen Komponenten erhält.*

muss, da das Projektil einen verschwindenden Transversalimpuls hat ( $\vec{p} = (p_{x,e0}, p_{y,e0}, p_{z,e0}) = (0, 0, \sqrt{2E_0})$ ). Die Breite gibt dabei die Gesamtauflösung für die Messung der Impulse von beiden Elektronen und dem Ion an. Die Skalierungsfaktoren für den Ionenimpuls in x- bzw. y-Richtung wurden dabei so festgelegt, dass die Elektronenimpulse gerade kompensiert werden (Abb. 3.18 oben).

### 3.5 Durchführung der Messung

Das beschriebene Experiment wurde am Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg durchgeführt. Nach dem Bau des neuen Detektors für die Ionenseite und dessen Integration in einem bereits bestehenden Reaktionsmikroskop folgte zunächst eine etwa drei Monate lange Test- und Optimierungsphase. Das größte Problem, das dabei zu überwinden war, war ein hoher Untergrund auf dem Ionendetektor, der durch Teilchen verursacht wurde, die im Elektronendetektor produziert und zurück in das Spektrometer beschleunigt wurden. Ein Grund für diese Ionenrückkopplung ist die Tatsache, dass sich die relativ großflächigen Detektoren (80 mm Durchmesser) direkt gegenüber stehen. Eine weitere Ursache ist das Loch im Elektronendetektor, durch das in den MCPs oder zwischen MCP und Anode produzierte Ionen hindurch fliegen und dabei stark beschleunigt (ca. 3 kV) werden können.

Schließlich konnten die Spannungen an den Detektoren und den Strahlführungselementen der Elektronenkanone soweit optimiert werden, dass im Flugzeitbereich der ionisierten Targetmoleküle, also der 'interessanten' Ionen  $H^+$  und  $H_2^+$ , kaum noch störende Signale vorhanden waren. Bei der späteren Analyse konnten diese dann vollständig eliminiert werden, da nur Ereignisse weiterverarbeitet wurden, bei denen ein Ion, das gestreute Projektil und das emittierte Targetelektron innerhalb eines gewissen Zeitfensters nachgewiesen wurden (*3-fach-Koinzidenz*).

Die Elektronenkanone wurde mit einer Pulsrate von 200 kHz betrieben, was eine Elektronenzählrate von etwa 8,5 kHz ergab. Ein höherer Projektilstrom, und damit auch eine höhere Ereignisrate, wäre nur unter Inkaufnahme von zeitlich längeren Pulsen möglich gewesen. Die Zählrate der Ionen lag typischerweise bei etwa 500 Hz, die der 2-fach-Koinzidenzen mit einem Elektron und einem Ion bei etwa 12 Hz, wobei die  $H_2^+$ -Rate mit einem Faktor 32 untersetzt war. Diese Koinzidenzen triggerten den Rechner für die Datenaufnahme.

In der ersten Messreihe wurden 5 Wochen lang Daten gesammelt. Für die dissoziative Ionisation wurden dabei 180000 3-fach-Koinzidenzen registriert, für

reine Ionisation 570000. Bei der zweiten Messung mit veränderter Magnetfeldeinstellung betrug die Strahlzeit lediglich 8 Tage, bevor das Experiment aufgrund eines Problems mit dem Elektronendetektor unterbrochen werden musste. In dieser Zeit konnten 25000 (dissoziative Ionisation), bzw. 48000 (nichtdissoziative Ionisation) 3-fach-Koinzidenzen gemessen werden.

# Kapitel 4

## Ergebnisse

Im durchgeführten Experiment zur Einfachionisation von  $H_2$ -Molekülen konnten simultan zwei verschiedene Reaktionen kinematisch vollständig gemessen werden. Zum einen wurde der dissoziative Prozess (siehe Abschnitt 2.3) speziell daraufhin untersucht, ob es eine Abhängigkeit der Reaktionswahrscheinlichkeit von der Molekülorientierung relativ zur Richtung des Projektilstrahls gibt. Hierbei konnte gezeigt werden, dass es im Prinzip möglich ist, vollständig differentielle Wirkungsquerschnitte (FDCS) für eine bestimmte Ausrichtung der Molekülachse zu erhalten. Trotz der langen Messdauer (siehe Abschnitt 3.5) reichte hier die Gesamtzahl der Ereignisse noch nicht aus um vollständig differentiellen Daten mit ausreichender statistischer Signifikanz zu extrahieren. Allerdings gelang es in einem ersten Schritt bereits weniger differentielle Wirkungsquerschnitte zu vermessen, welche hier präsentiert werden.

Zum anderen wurde die reine Einfachionisation, bei der im Endzustand ein stabiles  $H_2^+$ -Rückstoßion vorhanden ist, betrachtet. Für diesen Prozess konnten FDCS gewonnen und dreidimensional dargestellt werden. Erstmals war es somit möglich, auch Beiträge außerhalb der Streuebene zu studieren. Für beide Reaktionen konnten die Impulsverteilung und die Emissionscharakteristik für das Targetelektron untersucht, und so die Grundzustandsdissoziation (GSD) mit der reinen Ionisation verglichen werden. Die verschiedenen Ergebnisse sollen in diesem Kapitel vorgestellt und diskutiert werden.

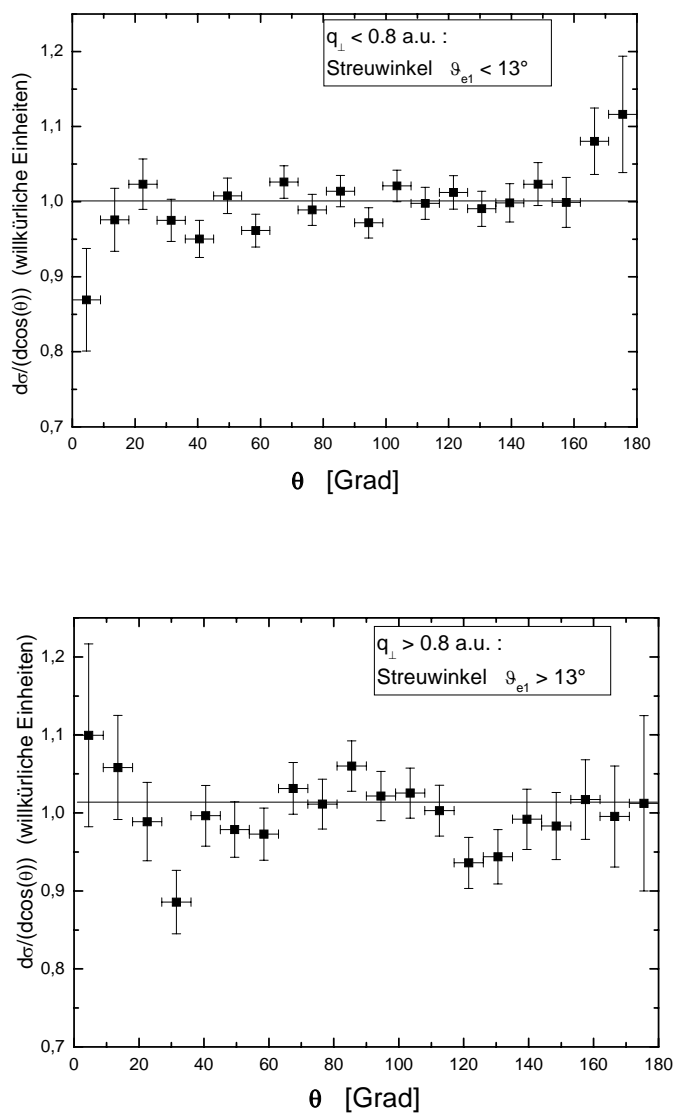


Abbildung 4.1: Wirkungsquerschnitt in Abhängigkeit von der Molekülorientierung. Oben: nur Ereignisse, bei denen das Projektil einen Streuwinkel zwischen  $5^{\circ}$  und  $13^{\circ}$ , also einen Impulsübertrag  $q_{\perp} < 0,8 \text{ a.u.}$  aufwies. Unten: engere Stöße mit einem Impulsübertrag größer  $0,8 \text{ a.u.}$ , entsprechend einem Projektilstreuwinkel von  $13$  bis  $25^{\circ}$ . Die Energie der Fragmente betrug zwischen  $10$  und  $70 \text{ meV}$ . Die Fehlerbalken stellen den statistischen Fehler dar.

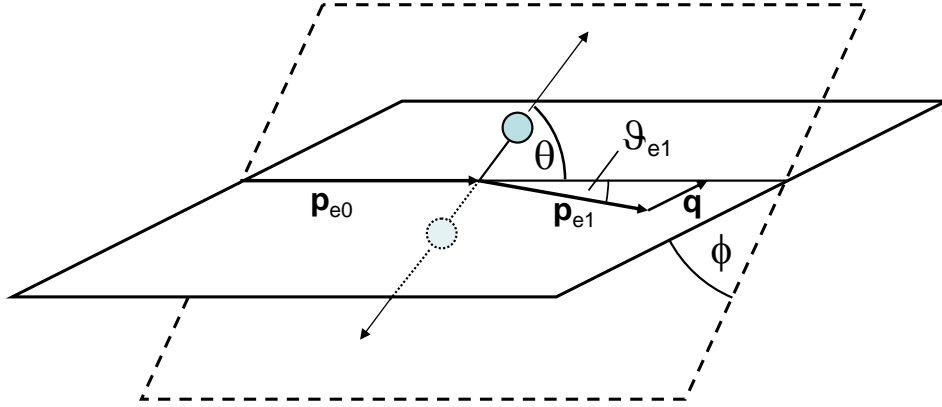


Abbildung 4.2: Illustration der Streuebene (durchgezogene Linie) und Projektile-Molekül-Ebene (gestrichelt) mit den verwendeten Winkelbezeichnungen.

## 4.1 Wirkungsquerschnitt in Abhängigkeit von der Molekülerorientierung

Wie in Abschnitt 3.3.3 beschrieben, konnte für den dissoziativen Reaktionskanal die Orientierung der Molekülachse zum Zeitpunkt des Stoßes aus dem Impulsvektor des detektierten  $H^+$ -Ions rekonstruiert werden. Dies erlaubt es, den Wirkungsquerschnitt in Abhängigkeit des polaren Winkels  $\theta$  zwischen internuklearer Achse und Richtung des einlaufenden Projektils zu bestimmen. In Abb. 4.1 ist das Ergebnis, der differentielle Wirkungsquerschnitt  $d\sigma/d\cos(\theta)$ , für zwei verschiedene kinematische Bereiche dargestellt: Oben für Stöße mit geringem Impulsübertrag, unten für engere Stöße. Dabei wurden nur Ereignisse in die Analyse mit einbezogen, bei denen das  $H^+$ -Ion bei der Dissoziation eine Energie zwischen 10 und 70 meV bekommt. Die obere Grenze ergibt sich aus der Akzeptanz des Detektors (siehe 3.4.1), das untere Limit wurde so gewählt, dass eine ausreichend gute Auflösung für  $\cos(\theta)$  gegeben ist. Außerdem wurde über alle Azimutwinkel  $\phi$  zwischen Streuebene und Projektile-Molekül-Ebene integriert (vgl. Abb. 4.2).

Bei Stößen mit kleinem Streuwinkel, die den größten Beitrag zum Gesamtwirkungsquerschnitt liefern, ist keine eindeutige Winkelabhängigkeit auszumachen. Das Resultat bestätigt somit das Ergebnis in [JML<sup>+</sup>05], wo durch Protonenstoß induzierte GSD untersucht wurde. Da die hier durchgeführte Messung jedoch kinematisch vollständig ist, war es nun aber erstmals möglich, nicht nur über alle Impulsüberträge integrierte Wirkungsquerschnitte zu erhalten, sondern

auch Spezialfälle zu studieren. Und tatsächlich zeigt sich eine leichte Anisotropie, wenn nur Ereignisse betrachtet werden, bei denen es zu einem engeren Stoß zwischen dem Projektil und dem Targetmolekül gekommen war, der transversale Impulsübertrag also groß ist. In diesem Fall kann man erwarten, dass das einlaufende Elektron aufgrund des geringeren Abstands mehr von der Struktur des Molekülpotentials beeinflusst wird, und eine eventuelle Winkelabhängigkeit des Wirkungsquerschnitts deshalb stärker ausgeprägt ist. Anzeichen dafür lassen sich in Abb. 4.1 erkennen, wo sich ein leichtes, statistisch jedoch signifikantes Maximum bei  $90^\circ$  und zwei Minima etwa  $40^\circ$  davon entfernt andeuten. Um zu sehen, ob sich der Trend zu einer stärkeren Anisotropie mit zunehmendem Streuwinkel bestätigt, müsste eine differenziertere Analyse mit mehr als zwei verschiedenen kinematischen Bereichen durchgeführt werden. Dies ist jedoch auf der Basis der hier gewonnenen Daten, aufgrund der statistischen Schwankungen, nicht sinnvoll.

In [EWME92] wurde die Winkelabhängigkeit des Wirkungsquerschnitts für verschiedene dissoziative Reaktionskanäle (siehe Abschnitt 2.3) bei der Ionisation von  $H_2$  durch Elektronenstoß bereits untersucht, allerdings nicht für GSD. Für alle dort betrachteten Reaktionen, also Ionisation mit Anregung in verschiedene Niveaus, Autoionisation und Doppelionisation, zeigt sich eine Anisotropie. Erklärt wird dieses Resultat mit der Anisotropie der Wellenfunktionen der beteiligten angeregten Zustände und dem Dipolcharakter der Übergänge. Für Autoionisation ergibt sich dabei ein Maximum für die Orientierung des Moleküls senkrecht zum Projektilstrahl. Im vorliegenden Experiment konnten GSD und Autoionisation nicht getrennt werden. Um sicher zu gehen, dass nur Beiträge aus der GSD enthalten sind, dürften nur Ereignisse betrachtet werden, bei denen die Energie des emittierten Targetelektrons maximal ca. 6 eV betrug (siehe Abb. 2.5), was jedoch ebenfalls aufgrund noch nicht ausreichender Statistik nicht untersucht werden konnte.

Der Argumentation in Abschnitt 2.4 und [GMP05] zufolge sollte ein möglicher Interferenzeffekt am stärksten ausgeprägt sein, wenn die Molekülachse in der Projektilstreuebene liegt (siehe Illustration in Abb. 4.3). Um dies genauer zu studieren wurden Ereignisse betrachtet, bei denen die Projektil-Molekülebene (siehe Abb. 4.2) um maximal  $\pm 25^\circ$  gegen diese Ebene geneigt war, d.h.  $|\phi| < 25^\circ$ . Die Winkelverteilung der in das Schwerpunktsystem des Moleküls transformierten  $H^+$ -Impulse, gleichbedeutend mit der Orientierung der Moleküle in der Streuebene, ist in Abb. 4.3 dargestellt. Dabei wurde über alle Projektilstreuwinkel  $\vartheta_{e1}$  zwischen  $5^\circ$  und  $25^\circ$ , sowie Richtung und Energie des emittierten Elektrons integriert. Die eingezeichnete Richtung des Impulsübertrags bezieht sich auf das Maximum der Winkelverteilung von  $\vec{q}$  (siehe Abb. 4.4). In dieser Richtung, und in der dazu entgegen gesetzten, sind jeweils Maxima in der Verteilung der Mo-



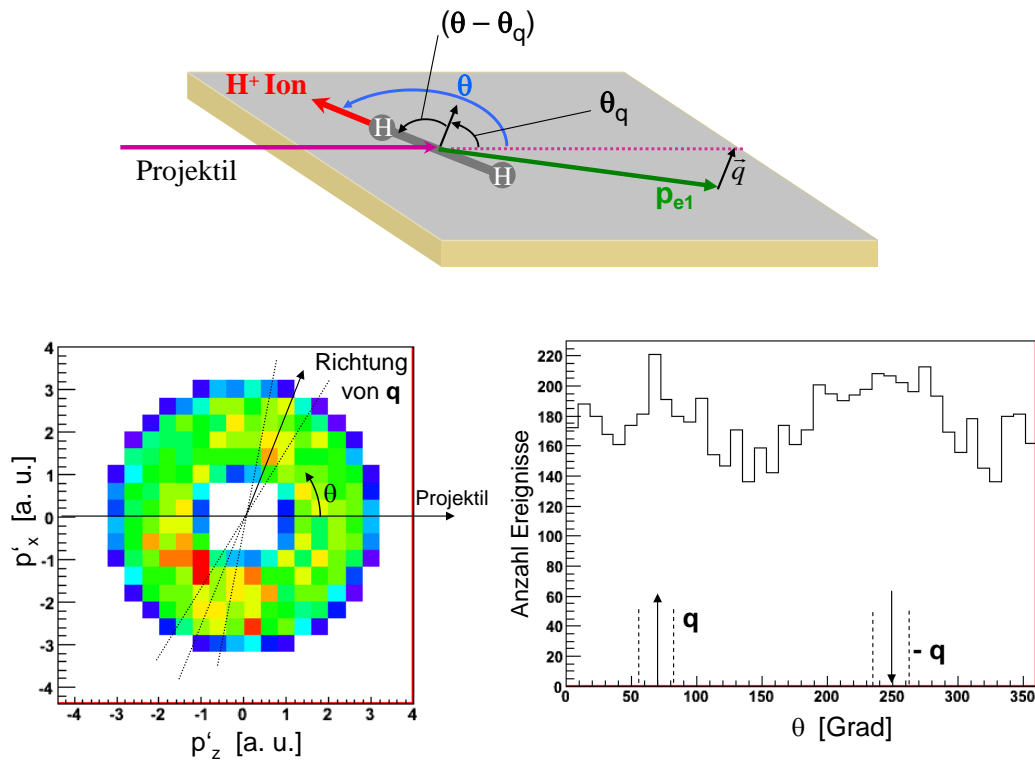


Abbildung 4.3: Oben: Illustration der Streuebene, definiert als die von Projektilstrahlrichtung und Impulsvektor des gestreuten Projektils aufgespannte Ebene. Unten: Verteilung der in das Molekülsystem transformierten Protonenimpulse für Moleküle in der Streuebene ( $\pm 25^\circ$ ). Es wurden  $H^+$ -Ionen betrachtet, die bei der Dissoziation eine kinetische Energie zwischen 10 und 70 meV bekommen, woraus sich der im linken Bild dargestellte ringförmige Ausschnitt ergibt. Das Loch in der Mitte ist rund und erscheint nur in der hier gewählten Auflösung als Quadrat. Die Emissionsrichtung des  $H^+$ -Ions entspricht dabei der Orientierung der Molekülachse beim Stoß.

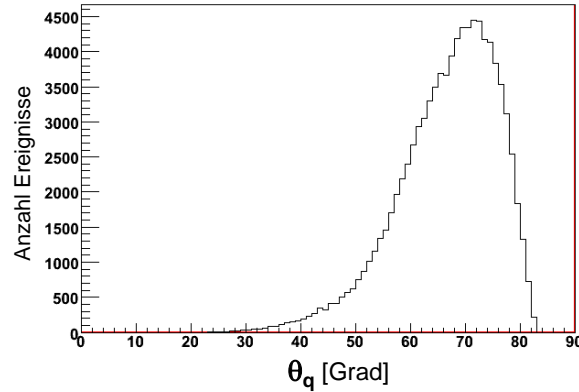


Abbildung 4.4: Verteilung des Polarwinkels von  $\vec{q}$  in der Projektilstrebene.

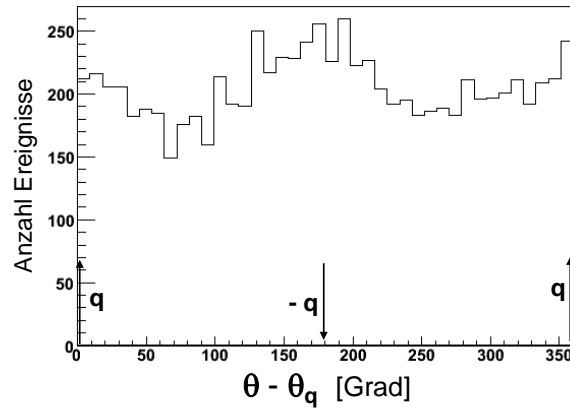


Abbildung 4.5: Relativwinkel  $\theta - \theta_q$  zwischen Impulsübertrag  $\vec{q}$  und  $H^+$ -Impuls  $\vec{p}_r$  in der Projektilstrebene.

lekülorientierungen erkennbar, in den dazu senkrechten Richtungen jeweils Minima. Um dies genauer zu untersuchen, wurde in Abb. 4.5 der Relativwinkel zwischen  $\vec{q}$  und der Richtung des  $H^+$ -Impulsvektors aufgetragen, wobei sich das eben genannte Resultat bestätigt. Ob diese Winkelabhängigkeit allerdings von einer Interferenz durch kohärente Streuung an den beiden Atomkernen des Moleküls herrührt, ist fraglich. Mit dem in Abschnitt 2.4 vorgestellten einfachen Ansatz, woraus sich ein Maximum für Orientierungen senkrecht zur Richtung des Impulsübertrags ergibt, lässt sich der Effekt zumindest nicht erklären. Eine andere Frage ist, ob es grundsätzlich möglich ist, Interferenzeffekte bei der dissoziativen Ionisation zu beobachten. Da hier durch die gemessene Emissionsrichtung des  $H^+$ -Ions die beiden Kerne nicht mehr ununterscheidbar sind, sollten auch die gestreuten Wellen nicht mehr miteinander interferieren können.

Der Ursprung des hier beobachteten Effekts ist also noch nicht ganz klar.

Es handelt sich aber um die erste Messung für stoßinduzierte Einfachionisation, bei der eine Anisotropie des Wirkungsquerschnitts beobachtet wurde und bei der es überhaupt möglich war, die Streuebene festzulegen. Eine mögliche Erklärung wäre, dass es sich nicht um eine Interferenz, sondern um einen geometrischen Effekt handelt, also darum dass der Wirkungsquerschnitt für Einfachionisation davon abhängt, wie die anisotrope und entlang der Molekülachse ausgedehnte Wellenfunktion des zunächst gebundenen Elektrons relativ zur Trajektorie des gestreuten Projektils orientiert ist.

Bisher gibt es keine Rechnung für die hier vorliegende Kinematik. Allerdings zeigt eine existierende Näherungsrechnung für Ionisation mit Anregung bei einer Projektilenergie von 4087 eV [LJ05] ebenfalls ein Maximum für den Fall, dass das Molekül parallel zu  $q$  orientiert ist, und ein Minimum für senkrechte Ausrichtung. Bei dieser Rechnung wurden jedoch beide Targetelektronen als aktiv Beteiligte berücksichtigt. Ob und wie weit dieses Resultat auch für die Ionisation ohne Anregung, also einen Ein-Elektron-Prozess, gilt, muss noch geklärt werden.

## 4.2 Elektronenspektren aus dissoziativer und nichtdissoziativer Ionisation

Um die Emissionscharakteristik für die Targetelektronen zu studieren, wurde zunächst untersucht, wie die Impulse derjenigen Elektronen verteilt sind, die in die Streuebene ( $\pm 20^\circ$ ) emittiert wurden. Getrennt für die beiden betrachteten Fälle, dissoziative und reine Einfachionisation, sind diese Verteilungen in Abb. 4.6 gezeigt. Es wurde auch hier über alle Projektilstreuwinkel zwischen  $5^\circ$  und  $25^\circ$  integriert. Für die reine, wie auch die dissoziative Ionisation erhält man ein stark ausgeprägtes binäres Maximum, also eine Emission in Richtung von  $\vec{q}$ , und ein wesentlich schwächeres Rückstoßmaximum in die entgegen gesetzte Richtung. Die Impulsverteilungen sind sehr ähnlich, unterscheiden sich aber etwas in der relativen Höhe der beiden Maxima. Um die relativen Intensitäten besser vergleichen zu können, wurden jeweils Elektronen der Energie  $(5 \pm 1)$  eV ausgewählt (angedeuterter Ausschnitt im rechten Diagramm der Abb. 4.6) und deren Winkelverteilungen aufgetragen, welche in Abb. 4.7 rechts dargestellt sind. In diesem Energiebereich trägt lediglich die GSD zur dissoziativen Ionisation bei, Autoionisation spielt hier keine Rolle (vgl. Abb. 2.5).

Eine mögliche Erklärung für das leicht stärkere Rückstoßmaximum bei GSD im Vergleich zur reinen Ionisation ist folgende: Für den Übergang in das Vibrationskontinuum des  $H_2^+$ -Ions muss eine gesamte Bindungsenergie des Elektrons

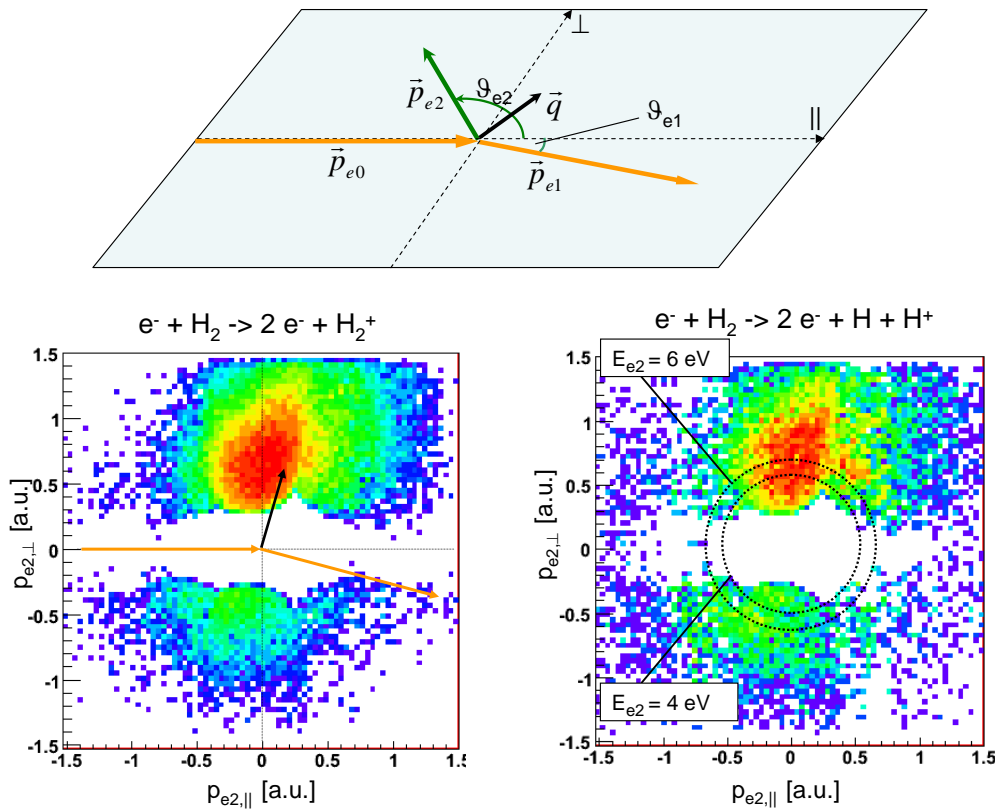


Abbildung 4.6: Oben: Koplanare Geometrie, bei der alle Elektronenimpulse in der Streuebene liegen. Unten: Verteilung des emittierten Elektrons  $e_2$  in der Streuebene für die dissoziative Reaktion, rechts, und reine Einfachionisation mit einem stabilen  $H_2^+$ -Ion im Endzustand, links.

von 18,1 eV überwunden werden. Das sind bis zu 2,7 eV mehr als im Fall der nichtdissoziativen Ionisation in einen gebundenen Vibrationszustand. Bei minimalem internuklearem Abstand im Targetmolekül ( $R \approx 0,6 \text{ \AA}$ ), wo GSD am wahrscheinlichsten ist, ist das Elektron also stärker gebunden, 'spürt' eine höhere effektive Kernladung, als im Fall der nichtdissoziativen Ionisation bei einem mittleren Abstand von  $R = 0,74 \text{ \AA}$ . Um die Abhängigkeit des dreifach differentiellen Wirkungsquerschnitts von eben dieser effektiven Ladung zu untersuchen, wurde eine Rechnung mit variierten Bindungsenergien durchgeführt (Abb. 4.8). Dazu wurden bei der eingesetzten Grundzustandswellenfunktion entsprechende effektive Kernladungen benutzt, wie im Diagramm angegeben. Für die Berechnung des Übergangsmatrixelements wurde die in Abschnitt 2.2.2 vorgestellte Methode der 3C-Wellenfunktion benutzt. Die in Abb. 4.8 gezeigten Wirkungsquerschnitte wurden anhand von Modellrechnungen von B. Najjari erhalten [Naj].

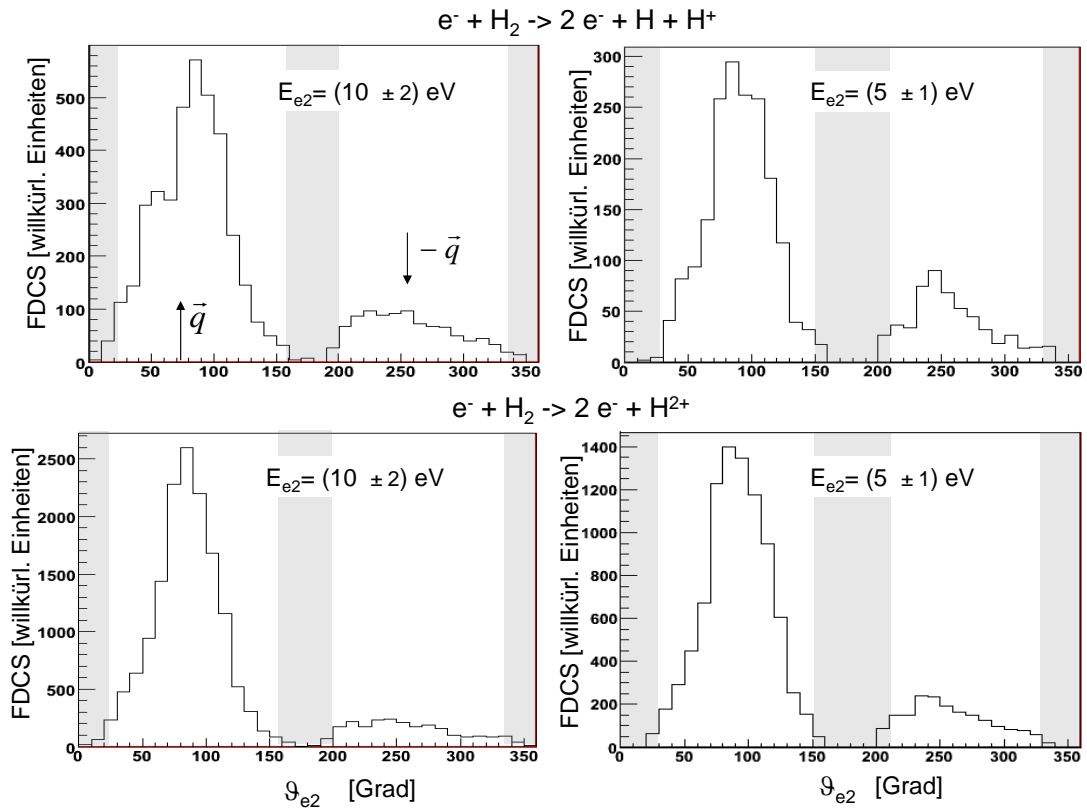


Abbildung 4.7: Winkelverteilung in der Steuebene von Elektronen mit  $(5 \pm 1) \text{ eV}$  (siehe angedeuteter Ausschnitt in Abb. 4.6, Bild unten rechts) und  $(10 \pm 2) \text{ eV}$  Energie, jeweils für die angegebene Reaktion. Es wurde über einen Projektilstreuwinkelbereich  $\Delta\vartheta_{e1}$  von  $5^\circ$  bis  $25^\circ$  integriert. In den grau schraffierten Bereichen sind aufgrund des Lochs im Elektronendetektor keine Daten verfügbar.

Es zeigt sich, dass die relative Intensität des Rückstoßmaximums mit steigender Bindungsenergie zunimmt, und sich außerdem die Position zu größeren Winkeln hin verschiebt. Letzteres ist in den experimentellen Daten allerdings nicht eindeutig auszumachen. Bei einer Zunahme der Bindungsenergie von 15 eV auf 18 eV, also unter Berücksichtigung der Dissoziationsenergie, erhöht sich das Rückstoßmaximum jedoch nur leicht, so dass der erwartete Effekt klein ist. Darüber hinaus könnte es sein, dass auch molekulare Effekte für die beobachtete höhere Intensität eine Rolle spielen, die im verwendeten Modell nicht berücksichtigt sind. Eine deutliche Zunahme zeigt sich in der Simulation allerdings bei 25 eV Bindungsenergie, was etwa der Situation im Helium-Atom entspricht.

Vergleicht man nun die vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitte (FDCS)  $d^3\sigma/d\Omega_{e1}d\Omega_{e2}dE_{e2}$  der beiden Reaktionen für eine höhere Energie, wie in Abb. 4.7 auf der linken Seite für  $E_{e2} = (10 \pm 2) \text{ eV}$  gezeigt, so lässt sich feststel-

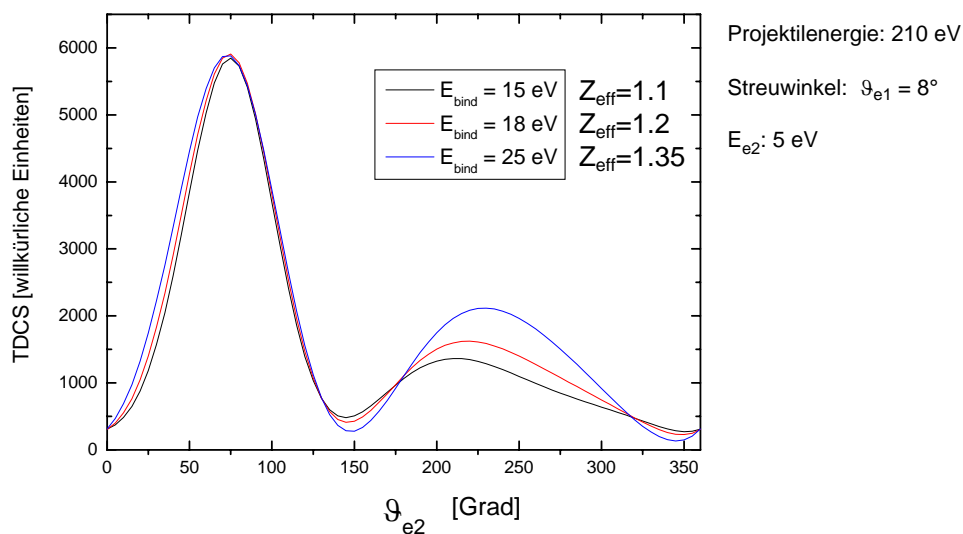


Abbildung 4.8: Mit der 3C-Wellenfunktion berechneter dreifach differentieller Wirkungsquerschnitt  $d^3\sigma/d\Omega_{e1}d\Omega_{e2}dE_{e2}$  (TDCS) für ein dem H-Atom ähnliches Target, wobei die Bindungsenergie  $E_{\text{bind}}$  durch Ändern der effektiven Kernladung  $Z_{\text{eff}}$  in der Grundzustandswellenfunktion variiert wurde.

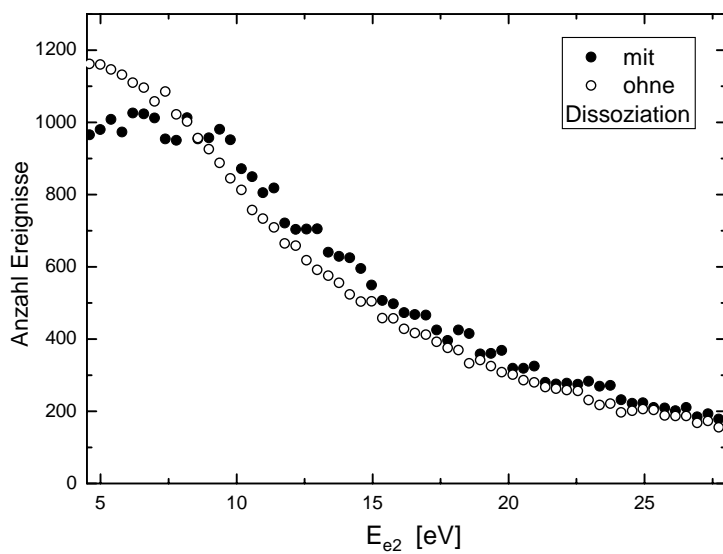


Abbildung 4.9: Vergleich der Energieverteilung des Targetelektrons für dissoziative und nichtdissoziative Ionisation. Die Verteilungen sind auf die gleiche Gesamtanzahl an Ereignissen normiert. Für kleine Energien ist die Akzeptanz aufgrund des Lochs in der Mitte des Detektors geringer, Elektronen mit weniger als 1,2 eV können bei den hier verwendeten Spektrometereinstellungen überhaupt nicht nachgewiesen werden.

len, dass das Verhältnis von *binary* zu *recoil peak* bei der dissoziativen Ionisation mit steigender Energie weniger stark abnimmt. Dies lässt sich dadurch erklären, dass ab einer Elektronenenergie von etwa 6 eV die Autoionisation von doppelt angeregten Zuständen  $H_2^{**}$  einen nicht vernachlässigbaren Beitrag zur dissoziativen Ionisation liefert (siehe Kapitel 2.3 und Abb. 2.5). Da die quantenmechanischen Zustände der Fragmente aus GSD und Autoionisation identisch sind, können die beiden Prozesse dort, wo sich die Energiebereiche überlappen, nicht getrennt werden.

Ein Vergleich der Elektronenenergieverteilungen resultierend aus dissoziativer bzw. reiner Ionisation ist in Abb. 4.9 gezeigt, wobei deutlich wird, dass beim dissoziativen Prozess höhere Energien vergleichsweise häufiger vorkommen. Auch bei der Ionisation von  $H_2$  durch Stöße mit Protonen wurde für den dissoziativen Prozess eine erhöhte Intensität für Elektronen mit mehr als 6 eV Energie beobachtet und auf Beiträge aus der Autoionisation doppelt angeregter Zustände zurückgeführt [DMF<sup>+</sup>04]. Vermutlich trägt zu dieser Verschiebung der Verteilung aber nicht nur die Autoionisation bei. Ein weiterer Grund könnte sein, dass das gebundene Elektron nicht in Ruhe ist, sondern sich im Target mit einer Impulsverteilung, dem so genannten Compton-Profil, bewegt. Bei Stößen mit kleinem Impulsübertrag wird diese Verteilung in das Kontinuum abgebildet. Da die Wahrscheinlichkeit für GSD am größten ist, wenn der internukleare Abstand im  $H_2$ -Molekül minimal, also die kinetische Energie des Elektrons am größten ist, besitzt es auch nach der Ionisation im Kontinuum einen größeren Impuls.

### 4.3 FDCS für reine Einfachionisation

In Abb. 4.10 sind vollständig differentielle Wirkungsquerschnitte in der Streuebene für die reine Einfachionisation dargestellt. Wie erwartet beobachtet man eine Abnahme der relativen Intensität des Rückstoßmaximums mit größer werdendem Streuwinkel und zunehmender Energie des Targetelektrons (vgl. Kapitel 2.1). Das Verhältnis von binärem Maximum zu Rückstoßmaximum liegt für die hier betrachteten Fälle zwischen etwa 5 und 13. Berechnungen [SFW<sup>+</sup>02] für nur leicht unterschiedliche Kinematik (250 eV Projektilenergie) ergeben ebenfalls Werte in diesem Bereich.

Da die kinematisch vollständige Information für Emission in alle Raumrichtungen vorhanden ist, können nicht nur für die Streuebene, sondern auch für beliebige andere Ebenen Wirkungsquerschnitte angegeben werden. Insgesamt ergibt sich so eine dreidimensionale Darstellung, wie sie in Abb. 4.11 für zwei Fälle

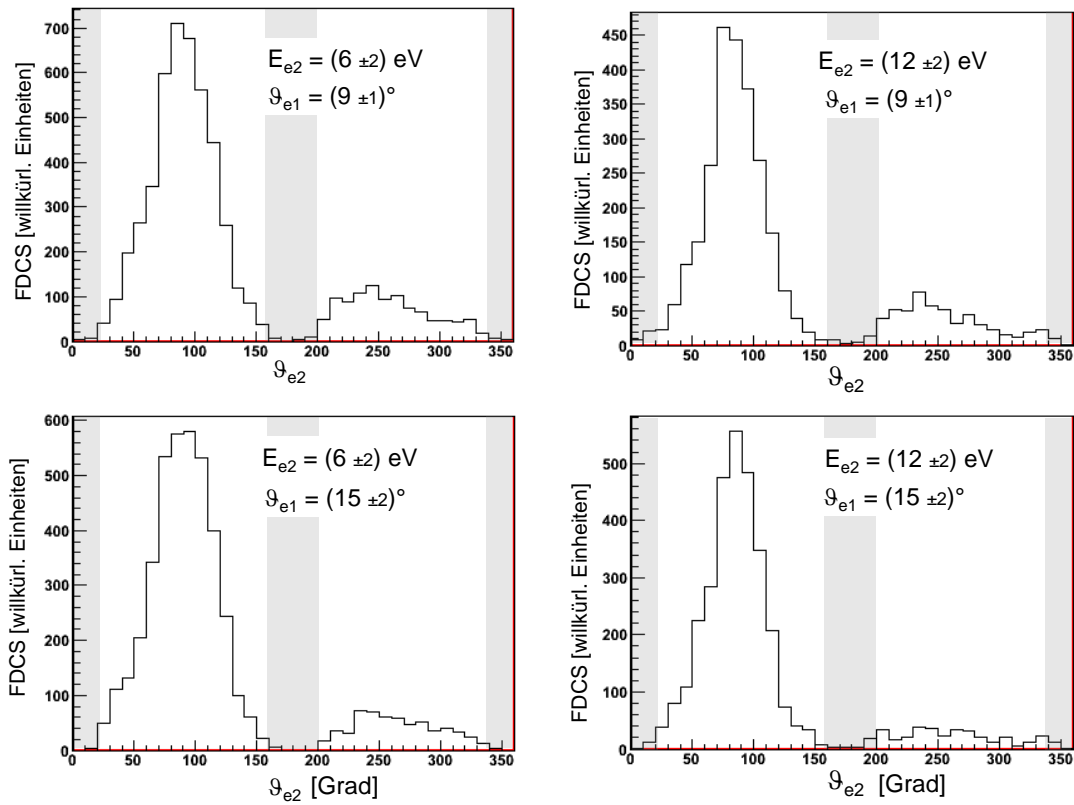


Abbildung 4.10: Vollständig differentielle Wirkungsquerschnitte (FDCS)  $d^3\sigma/d\Omega_{e1}d\Omega_{e2}dE_{e2}$  in der Streuebene. In den grau schraffierten Bereichen sind aufgrund des Lochs im Detektor keine Daten verfügbar.



demonstriert ist. Es wurden dabei dieselben Kombinationen aus Streuwinkel und Energie des emittierten Elektrons gewählt wie in Abb. 4.10 links oben und rechts unten. Deutlich zu sehen ist die geringere Ausprägung des *recoil peaks* für größeren Impulsübertrag. Das binäre Maximum liegt nicht genau in Richtung von  $\mathbf{q}$ , sondern ist etwas nach hinten gedrückt. Dies resultiert aus der gegenseitigen Wechselwirkung der Teilchen nach dem Stoß, vor allem aus der Abstoßung zwischen auslaufendem Projektil und ionisiertem Elektron. Die hier gemessene Abweichung beträgt etwa  $20^\circ$ . In einem Experiment mit ähnlicher Kinematik (250 eV Projektilenergie) beobachteten Jung *et al.* einen Winkel von  $10^\circ$  bis  $15^\circ$  zwischen *binary peak* und  $\vec{q}$  [JSPE75].

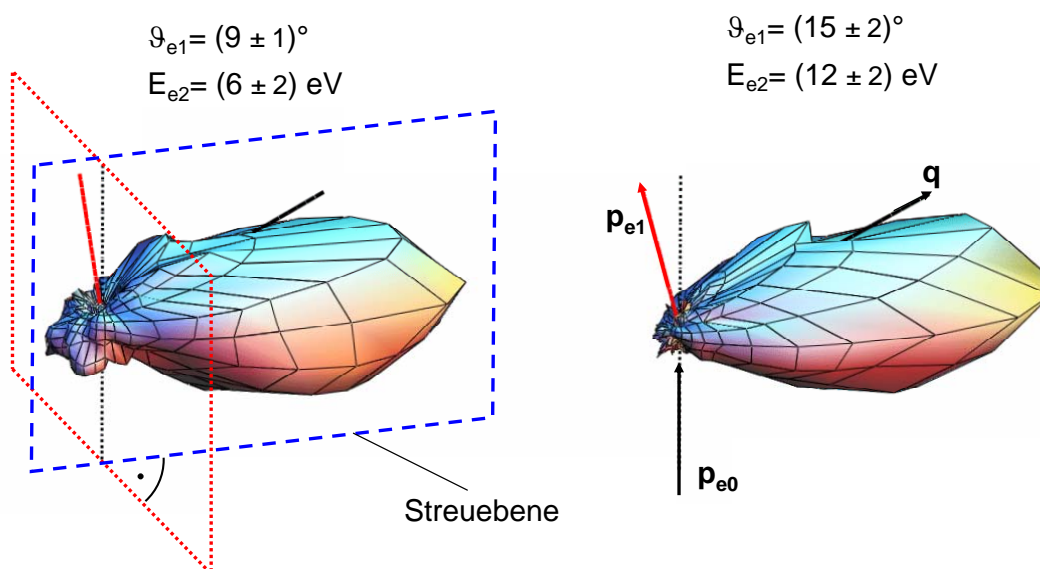


Abbildung 4.11: Dreidimensionale Polardarstellung des vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitts  $d^3\sigma/dE_{e2}d\Omega_{e2}dq$  für die Einfachionisation von  $\text{H}_2$  durch Stöße mit 210 eV Elektronen für die angegebenen Projektilstreuungswinkel  $\vartheta_{e1}$  und Targetelektronenergien  $E_{e2}$ . Die Werte entsprechen einem Impulsübertrag  $|q|$  von 0,6 a.u. im linken, und 1,0 a.u. im rechten Bild.

Ein Schnitt durch den dreidimensionalen Wirkungsquerschnitt in der Ebene senkrecht zur Streuebene, wie in Abb. 4.11 mit einem roten Rahmen angedeutet, ist in Abb. 4.12 dargestellt. Auffällig ist eine relativ starke Intensität außerhalb der Streuebene, die so genannte *out-of-plane*-Emission. Im 3D-Bild ist dies auch dadurch erkennbar, dass das Rückstoßmaximum nicht deutlich vom binären Maximum getrennt ist, wie man es theoretisch erwarten würde (vgl. Abb. 2.1), sondern

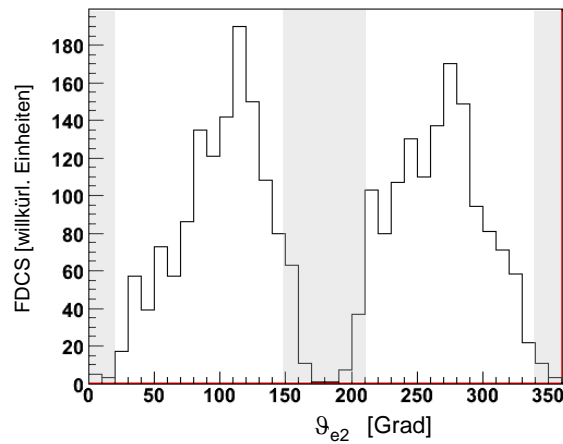


Abbildung 4.12: Schnitt durch den dreidimensionalen Wirkungsquerschnitt von Abb. 4.11 in der Ebene senkrecht zur Streuebene. Dargestellt ist  $d^3\sigma/d\Omega_{e1}d\Omega_{e2}dE_{e2}$  (FDCS) als Funktion des Emissionswinkels des Targetelektrons  $\vartheta_{e2}$  relativ zur Projekttilstrahlrichtung. Der Streuwinkel beträgt  $\vartheta_{e1} = 9^\circ$ , die Energie des emittierten Elektrons ist  $E_{e2} = 6$  eV.

eher einen Ring bildet. Eine mögliche Erklärung dieses Phänomens ist eine elastische Streuung des Projektils am Targetkern nach der eigentlichen Ionisation, wodurch sich die Streuebene ändert und das ausgeprägte Minimum, welches *recoil* und *binary peak* trennt, aufgefüllt wird [SMFU03].

Zum Vergleich sind in Abb. 4.13 dreidimensionale Polarplots des vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitts für Elektronenstoßionisation von Heliumatomen und Stickstoffmolekülen gezeigt. Bei Helium ist das Rückstoßmaximum wesentlich deutlicher ausgeprägt. Ein Grund dafür ist die große Bindungsenergie von 24,6 eV. Die Wahrscheinlichkeit, dass das Elektron an diesem relativ tiefen Potential streut, bevor es ins Kontinuum emittiert wird, ist im Vergleich zu  $H_2$  mit einer Bindungsenergie von 15,4 eV recht groß (vgl. Simulation in Abb. 4.8). Die ebenfalls sehr neuen Daten für Stickstoff, welche von D. Nandi stammen, zeigen eine noch stärkere *out-of-plane*-Emission als bei Wasserstoff. Es gibt mehrere mögliche Ursachen für diese Beobachtung: Einerseits ist die Projektilgeschwindigkeit niedriger, so dass Streuprozesse höherer Ordnung wie z.B. Ionisation des Elektrons und zusätzliche Streuung im Kernpotential wahrscheinlicher werden. Andererseits wird die Wechselwirkung mit dem Kernpotential auch durch die erhöhte Kernladung stärker. Eine quantitative Analyse wird durch den Vergleich mit entsprechenden theoretischen Rechnungen möglich werden.

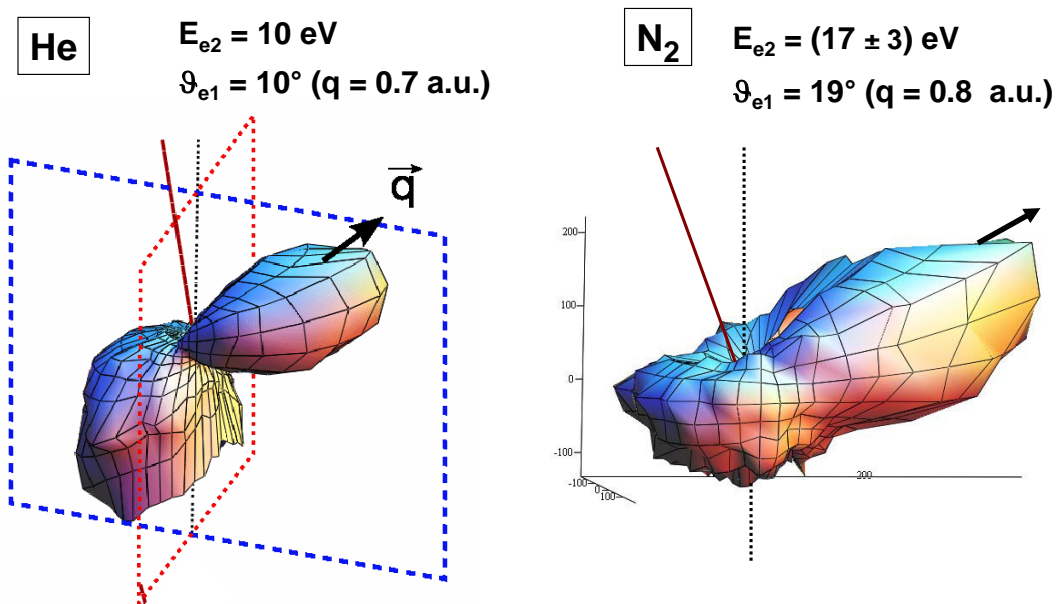


Abbildung 4.13: Dreidimensionale Polarplots des vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitts für die Einfachionisation von Helium durch Stöße mit 102 eV Elektronen (links) [Dür06] und von Stickstoff bei einer Projektilenergie von 75 eV (rechts) [Nan06].



# Kapitel 5

## Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurde die Einfachionisation von molekularem Wasserstoff, induziert durch Stöße mit Elektronen, kinematisch vollständig untersucht. Das heißt, es konnten die Impulse aller beteiligter Teilchen bestimmt werden. Dadurch war es möglich, die Dynamik der betrachteten Stoßreaktion bei der verwendeten Projektilenergie von 210 eV im Detail zu studieren.

Für das Experiment wurde ein so genanntes Reaktionsmikroskop benutzt, das eine Kombination aus Rückstoßionenimpulsspektrometer (*Cold Target Recoil Ion Momentum Spectrometer*, COLTRIMS) und Elektronenspektrometer darstellt. Mit Hilfe dieser modernen Technik war es möglich, alle geladenen Fragmente der Reaktion in einem großen Raumwinkel- und Energiebereich in Koinzidenz und mit guter Auflösung nachzuweisen. Das Messprinzip basiert auf einer Kombination aus elektrischem Feld, das die Teilchen entlang der Spektrometerachse extrahiert, und einem magnetischen Feld, das die Elektronen auf Zyklotronbahnen lenkt und somit zu einer hohen Energieakzeptanz führt. Mittels Überschall-expansion wird ein kaltes Gasjet-Target erzeugt, das mit dem gepulsten Projektilstrahl gekreuzt wird. Die Fragmente werden anschließend von zwei Detektorsystemen orts- und zeitaufgelöst nachgewiesen.

Um den speziellen Anforderungen eines Elektronenstoßexperiments gerecht zu werden, bei dem auch das gestreute Projektil detektiert werden musste, wurde die Apparatur entsprechend angepasst, und es kamen *multi hit*-fähige Detektoren zum Einsatz. Für den untersuchten Prozess, bei dem Ionen mit mehreren hundert meV kinetischer Energie gemessen werden sollten, musste ein Kompromiss zwischen ausreichend guter Impulsauflösung und Nachweisraumwinkel für diese Ionen gefunden werden. Deshalb wurde u. a. ein neuer, größerer ortsauflösender Detektor gebaut, im Spektrometer installiert, getestet und in Betrieb genommen.

Die Ortsbestimmung erfolgt mit einer hexagonalen, 3-lagigen *Delay-Line-Anode*, einer so genannten *Hexanode*. Die Besonderheit dabei ist, dass sich in deren Mitte ein ca. 8 mm großes Loch befindet, sodass die Projektile entlang der Spektrometerrachse durch den Ionendetektor hindurch zum Target gelangen können.

Ein Ziel der Arbeit war es, für die Einfachionisation vollständig differentielle Daten (FDCS) bei bekannter Orientierung der Molekülachse zu gewinnen. Dazu wurden Stoßprozesse verwendet, in denen das Molekül dissoziiert und der Winkel zwischen Projekttilstrahlrichtung und internuklearer Achse in der späteren Analyse anhand eines entlang der Molekülachse emittierten und nachgewiesenen Fragments rekonstruiert werden kann. Es wurde deshalb speziell die so genannte Grundzustandsdissoziation (GSD) untersucht, ein Reaktionskanal, bei dem das ionisierte Targetmolekül in das Vibrationskontinuum des elektronischen Grundzustands angeregt wird und daraufhin dissoziiert. Es konnte dabei erstmals eine Abhängigkeit des Ionisationsquerschnitts von der Ausrichtung der Molekülachse relativ zur Projekttilstrahlrichtung beobachtet werden. Diese lässt sich nicht mit dem gängigen Modell als eine Interferenz durch kohärente Streuung erklären. Vermutlich handelt es sich eher um einen geometrischen Effekt, resultierend aus dem anisotropen Molekülpotential. Die Analyse von FDCS bei bekannter Orientierung der molekularen Achse und damit der experimentelle Nachweis eines möglichen Interferenzeffekts, verursacht durch die kohärente Emission von zwei Zentren, war aufgrund zu geringer Statistik noch nicht möglich, wobei die prinzipielle Machbarkeit jedoch demonstriert werden konnte.

Gleichzeitig wurden auch die Fragmente aus nichtdissoziativer Ionisation, bei der neben dem gestreuten Projektil und dem ionisierten Targetelektron ein stabiles, gebundenes  $H_2^+$ -Ion im Endzustand vorhanden ist, vermessen. Zum einen konnten so Elektronenspektren aus den beiden verschiedenen Reaktionskanälen verglichen und leichte Unterschiede zwischen den Prozessen festgestellt werden. Modellrechnungen deuten darauf hin, dass diese aus den unterschiedlichen Kernabständen im Molekül, bei denen die jeweilige Reaktion am wahrscheinlichsten stattfindet, herrühren. Dabei konnte für die GSD ein erhöhtes Rückstoßmaximum und eine zu größeren Werten hin verschobene Energieverteilung der Targetelektronen beobachtet werden. Zum anderen gelang es für die nichtdissoziative Ionisation FDCS erstmals für beliebige Emissionsrichtungen des ionisierten Elektrons zu bestimmen und daraus dreidimensionale Polarplots zu erstellen. Auffallend dabei ist der schwache *recoil peak* und eine überraschend starke Emission aus der Projekttilstreuebene heraus, so genannte *out-of-plane*-Beiträge, deren Ursache selbst für atomare Targets noch nicht geklärt und Gegenstand aktueller Diskussion ist.

Es ist geplant, die Messung in naher Zukunft mit dem Ziel fortzusetzen, FDCS als Funktion der Molekülorientierung zu bestimmen und darin mögliche Interferenzeffekte zu erkennen. Im Rahmen dieser Arbeit konnte die prinzipielle Machbarkeit solcher Experimente mit den vorgenommenen Verbesserungen des Nachweises dissoziierter  $H^+$ -Ionen demonstriert werden, wobei trotz mehrwöchiger Strahlzeit ausreichende statistische Signifikanz noch nicht erreicht werden konnte. Dies lag u.a. auch an der relativ großen Untergrundrate, die bei zukünftigen Experimenten, möglicherweise mit dem schwereren Isotop  $D_2$  und bei anderer Projektilenergie, erheblich zu reduzieren sein wird.

Durch die Erzeugung ultra-kalter Elektronen mit Hilfe einer GaAs-Photoemissionsquelle wird es in Zukunft darüber hinaus möglich sein, Experimente nahe der Ionisationsschwelle zur Untersuchung der Wechselwirkung von sehr energiescharfen Elektronenstrahlen mit Molekülen, aber auch Atomen und Clustern, durchzuführen [SRD<sup>+</sup>05]. Bei Stößen mit langsamen Elektronen kann es z. B. zu resonantem Einfang kommen, was besonders für die Erforschung von Strahlenschäden an Biomolekülen eine wichtige Rolle spielt. Eine ganze Reihe neuer Studien zu bisher weitgehend unerforschten Reaktionen werden außerdem möglich, wenn Positronen als Projektile verwendet werden. Entsprechende Experimente dazu sind in Vorbereitung.





# Anhang

## Atomare Einheiten

In der Atomphysik werden häufig die *atomaren Einheiten* verwendet. Die Basiseinheiten dieses Systems für Länge, Masse, Ladung und Geschwindigkeit richten sich nach den entsprechenden Größen für ein Elektron im Grundzustand des Wasserstoffatoms. Demnach ergeben sich die folgenden Basisgrößen und Naturkonstanten:

### Basiseinheiten und Naturkonstanten

$r_e = 1 \text{ au} = 5,2918 \cdot 10^{-11} \text{ m}$	Bohrscher K-Schalenradius des Wasserstoff
$v_e = 1 \text{ au} = 2,1877 \cdot 10^6 \text{ m/s}$	Geschwindigkeit auf der Bohrschen Bahn
$m_e = 1 \text{ au} = 9,1095 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$	Ruhemasse des Elektrons
$q_e = e = 1 \text{ au} = 1,6022 \cdot 10^{-19} \text{ As}$	Ladung des Elektrons
$\hbar = m_e v_e r_e = 1 \text{ au}$	Drehimpulsquantum
$c = e^2/(\hbar\alpha) = 137 \text{ au}$	Lichtgeschwindigkeit

Hilfreich ist oft die Kenntnis der Umrechnungsfaktoren zwischen atomaren Einheiten und anderen gängigen Einheiten:

### Umrechnungsfaktoren

Energie	$E \text{ [eV]} = 27,2 \cdot E \text{ [au]}$
Impuls	$p \text{ [kg m/s]} = 1,995 \cdot 10^{-24} \cdot p \text{ [au]}$



# Literaturverzeichnis

- [BBK89] BRAUNER, M. ; BRIGGS, J. S. ; KLAR, H.: Triply-differential cross sections for ionisation of hydrogen atoms by electrons and positrons. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 22 (1989), S. 2265–2287
- [BCH<sup>+</sup>00] BOUDAIFFA, B. ; CLOUTIER, P. ; HUNTING, D. ; HUELS, M. A. ; SANCHE, L.: Resonant Formation of DNA Strand Breaks by Low-Energy (3 to 20 eV) Electrons. In: *Science* 287 (2000), S. 1658–1660
- [Bet30] BETHE, H.: Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie. In: *Ann. Physik* 5 (1930), S. 325–400
- [BIKC<sup>+</sup>96] BEN-IZTHAK, I. ; KRISHNAMURTHI, V. ; CARNES, K. D. ; ALIABADI, H. ; KNUDSEN, H. ; MIKKELSEN, U. ; ESRY, B. D.: Ionization and excitation of hydrogen molecules by fast proton impact. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 29 (1996), S. L21–L28
- [Bra02] BRAY, I.: Close-Coupling Approach to Coulomb Three-Body Problems. In: *Phys. Rev. Lett.* 89 (2002), S. 273201
- [CF66] COHEN, H. D. ; FANO, U.: Interference in the Photo-Ionization of Molecules. In: *Phys. Rev.* 150 (1966), S. 30–33
- [CLBD<sup>+</sup>89] CHÉRID, M. ; LAHMAM-BENNANI, A. ; DUGUET, A. ; ZURALES, R. W. ; LUCCHESI, R. R. ; DAL CAPPELLO, M. C. ; DAL CAPPELLO, C.: Triple differential cross sections for molecular hydrogen, both under Bethe ridge conditions and in the dipolar regime. Experiments and theory. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 22 (1989), S. 3483–3499
- [CM05] CHEN, Z. ; MADISON, D. H.: Second-order distorted wave calculation for electron-impact ionization of helium to  $He^+(n = 1 \text{ and } 2)$ . In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 38 (2005), S. 4195–4209

- [CMWW04] CHEN, Z. ; MADISON, D. H. ; WHELAN, C. T. ; WALTERS, H. R. J.: Second-order distorted wave calculation for electron impact ionization of hydrogen. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 37 (2004), S. 981–995
- [DBJ+98] DÖRNER, R. ; BRÄUNING, H. ; JAGUTZKI, O. ; MERGEL, V. ; ACHLER, M. ; MOSHAMMER, R. ; FEAGIN, J. M. ; OSIPOV, T. ; BRÄUNING-DEMIAN, A. ; SPIELBERGER, L. ; MCGUIRE, J. H. ; PRIOR, M. H. ; BERRAH, N. ; BOZEK, J. D. ; COCKE, C. L. ; SCHMIDT-BÖCKING, H.: Double Photoionization of Spatially Aligned  $D_2$ . In: *Phys. Rev. Lett.* 81 (1998), S. 5776–5779
- [DK63] DUNN, G. H. ; KIEFFER, L. J.: Dissociative Ionization of  $H_2$ : A Study of Angular Distributions and Energy Distributions of Resultant Fast Protons. In: *Phys. Rev.* 132 (1963), S. 2109–2117
- [DMF+04] DIMOPOULOU, C. ; MOSHAMMER, R. ; FISCHER, D. ; HÖHR, C. ; DORN, A. ; FAINSTEIN, P. D. ; CRESPO LÓPEZ-URRUTIA, J. R. ; SCHRÖTER, C. D. ; KOLLMUS, H. ; MANN, R. ; HAGMANN, S. ; ULLRICH, J.: Breakup of  $H_2$  in Singly Ionizing Collisions with Fast Protons: Channel-Selective Low-Energy Electron Spectra. In: *Phys. Rev. Lett.* 93 (2004), S. 123203
- [DMF+05] DIMOPOULOU, C. ; MOSHAMMER, R. ; FISCHER, D. ; FAINSTEIN, P. D. ; HÖHR, C. ; DORN, A. ; CRESPO LÓPEZ-URRUTIA, J. R. ; SCHRÖTER, C. D. ; KOLLMUS, H. ; MANN, R. ; HAGMANN, S. ; ULLRICH, J.: Dissociative ionization of  $H_2$  by fast protons: three-body break-up and molecular-frame electron emission. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 38 (2005), S. 593–601
- [Dür06] DÜRR, Martin: *Electron Induced Break-up of Helium: Benchmark Experiments on a Dynamical Four-Body Coulomb System*. Heidelberg, Ruprecht-Karls-Universität, Dissertation, 2006
- [ESTW69] ERHARDT, H. ; SCHULZ, M. ; TEKAAT, T. ; WILLMANN, K.: Ionization of Helium: Angular Correlation of the Scattered and Ejected Electrons. In: *Phys. Rev. Lett.* 22 (1969), S. 89–92
- [EWDE90] EDWARDS, A. K. ; WOOD, R. M. ; DAVIS, J. L. ; EZELL, R. L.: Collisional ionization and excitation of  $H_2$ : Two-electron processes. In: *Phys. Rev. A* 42 (1990), S. 1367–1375

- [EWME92] EDWARDS, A. K. ; WOOD, R. M. ; MANGAN, M. A. ; EZELL, R. L.: Collisional ionization and excitation of  $H_2$ : Dependence on the orientation of the internuclear axis. In: *Phys. Rev. A* 46 (1992), S. 6970–6976
- [FLS65] FEYNMAN, R. P. ; LEIGHTON, R. B. ; SANDS, M.: *The Feynman Lectures on Physics*. Bd. 3. Reading, MA : Addison-Wesley, 1965, S. 1–11
- [GMP05] GAO, J. ; MADISON, D. H. ; PEACHER, J. L.: Interference effects for low-energy electron-impact ionization of nitrogen molecules. In: *Phys. Rev. A* 72 (2005), S. 032721
- [Gub83] GUBERMAN, S. L.: The doubly excited autoionizing states of  $H_2$ . In: *J. Chem. Phys.* 78 (1983), S. 1404–1413
- [JCC<sup>+</sup>02] JAGUTZKI, O. ; CEREZO, A. ; CZASCH, A. ; DÖRNER, R. ; HATTASS, M. ; HUANG, M. ; MERGEL, V. ; SPILLMANN, U. ; ULLMANN-PFLEGER, K. ; WEBER, T. ; SCHMIDT-BÖCKING, H. ; SMITH, G. D. W.: Multiple Hit Readout of a Microchannel Plate Detector With a Three-Layer Delay-Line Anode. In: *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 49 (2002), S. 2477–2482
- [JML<sup>+</sup>05] JOHNSON, N. G. ; MELLO, R. N. ; LUNDY, M. E. ; KAPPLINGER, J. ; PARKE, E. ; CARNES, K. D. ; BEN-ITZHAK, I. ; WELLS, E.: Single ionization of hydrogen molecules by fast protons as a function of the molecular alignment. In: *Phys. Rev. A* 72 (2005), S. 052711
- [JSPE75] JUNG, K. ; SCHUBERT, E. ; PAUL, D. A. L. ; EHRHARDT, H.: Angular correlation of outgoing electrons following ionization of  $H_2$  and  $N_2$  by electron impact. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 8 (1975), S. 1330–1337
- [LB91] LAHMAM-BENNANI, A.: Recent developments and new trends in (e,2e) and (e,3e) studies. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 24 (1991), S. 2401–2442
- [LFL<sup>+</sup>06] LAURENT, G. ; FERNÁNDEZ, J. ; LEGENDRE, S. ; TARISIEN, M. ; ADOUI, L. ; CASSIMI, A. ; FLÉCHARD, X. ; FRÉMONT, F. ; GERVAIS, B. ; GIGLIO, E. ; GRANDIN, J. P. ; MARTÍN, F.: Kinematically Complete Study of Dissociative Ionization of  $D_2$  by Ion Impact. In: *Phys. Rev. Lett.* 96 (2006), S. 173201

- [LJ05] LAHMIDI, N. ; JOULAKIAN, B.: Dissociative simple ionization of two active electron diatomic systems by fast electron impact. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 38 (2005), S. 51–60
- [LWO<sup>+</sup>04] LANDERS, A. L. ; WELLS, E. ; OSIPOV, T. ; CARNES, K. D. ; AL-NASER, A. S. ; TANIS, J. A. ; MCGUIRE, J. H. ; BEN-ITZHAK, I. ; COCKE, C. L.: Interference effects in double ionization of spatially aligned hydrogen molecules by fast highly charged ions. In: *Phys. Rev. A* 70 (2004), S. 042702
- [MBBF00] MUTH-BÖHM, J. ; BECKER, A. ; FAISAL, F. H. M.: Suppressed Molecular Ionization for a Class of Diatomics in Intense Femtosecond Laser Fields. In: *Phys. Rev. Lett.* 85 (2000), S. 002280
- [Mes79] MESSIAH, A.: *Quantenmechanik*. Bd. 2. Berlin : Walter de Gruyter, 1979, S. 324–332
- [Mil88] Kap. Free Jet Sources In: MILLER, D. R.: *Atomic and Molecular Beam Methods*. Oxford/New York : Oxford University Press, 1988, S. 14–53
- [MUS<sup>+</sup>96] MOSHAMMER, R. ; UNVERZAGT, M. ; SCHMITT, W. ; ULLRICH, J. ; SCHMIDT-BÖCKING, H.: A  $4\pi$  recoil-ion electron momentum analyzer: A high-resolution 'microscope' for the investigation of the dynamics of atomic, molecular and nuclear reactions. In: *Nucl. Instrum. Methods B* 108 (1996), S. 425–445
- [Naj] NAJJARI, B.. – MPI für Kernphysik, Heidelberg, Private Mitteilung
- [Nan06] NANDI, D.: 2006. – MPI für Kernphysik, Heidelberg, Private Mitteilung
- [Ns03] NORDLING, C. ; ÖSTERMAN, J.: *Physics Handbook for Science and Engineering*. Lund, Sweden : Studentlitteratur, 2003
- [Rut11] RUTHERFORD, E.: The Scattering of  $\alpha$  and  $\beta$  Particles by Matter and the Structure of the Atom. In: *Phil. Mag.* 21 (1911), S. 669–688
- [SBFB05] STELBOVICS, A. T. ; BRAY, I. ; FURSA, D. V. ; BARTSCHAT, K.: Electron-impact ionization of helium for equal-energy-sharing kinematics. In: *Phys. Rev. A* 71 (2005), S. 052716

- [SEC<sup>+</sup>05] STØCHKEL, K. ; EIDEM, O. ; CEDERQUIST, H. ; ZETTERGREN, H. ; REINHED, P. ; SCHUCH, R. ; COCKE, C. L. ; LEVIN, S. B. ; OSTROVSKY, V. N. ; KÄLBERG, A. ; SIMONSSON, A. ; JENSEN, J. ; SCHMIDT, H. T.: Two-center interference in fast proton- $H_2$ --electron transfer and excitation processes. In: *Phys. Rev. A* 72 (2005), S. 050703(R)
- [SFW<sup>+</sup>02] STIA, C. R. ; FOJON, O. A. ; WECK, P. F. ; HANSEN, J. ; JOULAKIAN, B. ; RIVAROLA, R. D.: Molecular three-continuum approximation for ionization of  $H_2$  by electron impact. In: *Phys. Rev. A* 66 (2002), S. 052709
- [SFW<sup>+</sup>03] STIA, C. R. ; FOJON, O. A. ; WECK, P. F. ; HANSEN, J. ; RIVAROLA, R. D.: Interference effects in single ionization of molecular hydrogen by electron impact. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 36 (2003), S. L257–L264
- [Sha70] SHARP, T. E.: Potential-energy curves for molecular hydrogen and its ions. In: *At. Data* 2 (1970), S. 119–169
- [SMFU03] SCHULZ, M. ; MOSHAMMER, R. ; FISCHER, D. ; ULLRICH, J.: Evidence for significant projectile-target nucleus scattering in single ionization of helium. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 36 (2003), S. L311–L317
- [SRD<sup>+</sup>05] SCHRÖTER, C. D. ; RUDENKO, A. ; DORN, A. ; MOSHAMMER, R. ; ULLRICH, J.: Status of the pulsed photoelectron source for atomic and molecular collision experiments. In: *Nucl. Instrum. Methods A* 536 (2005), S. 312–318
- [SSH<sup>+</sup>01] STOLTERFOHT, N. ; SULIK, B. ; HOFFMANN, V. ; SKOGVALL, B. ; CHESNEL, J. Y. ; RANGAMA, J. ; FRÉMONT, F. ; HENNECART, D. ; CASSIMI, A. ; HUSSON, X. ; LANDERS, A. L. ; TANIS, J. A. ; GALASSI, M. E. ; RIVAROLA, R. D.: Evidence for Interference Effects in Electron Emission from  $H_2$  Colliding with 60 MeV/u  $Kr^{34+}$  Ions. In: *Phys. Rev. Lett.* 87 (2001), S. 023201
- [TWK<sup>+</sup>04] TAKAHASHI, M. ; WATANABE, N. ; KHAJURIA, Y. ; NAKAYAMA, K. ; UDAGAWA, Y. ; ELAND, J. H. D.: Observation of molecular frame (e,2e) cross section using an electron-electron-fragment ion triple coincidence apparatus. In: *J. Electron Spectrosc. Rel. Phenom.* 141 (2004), S. 83–93

- [TWK<sup>+</sup>05] TAKAHASHI, M. ; WATANABE, N. ; KHAJURIA, K. ; UDAGAWA, Y. ; ELAND, J. H. D.: Observation of Molecular Frame (e,2e) Cross Section: An (e,2e + M) Triple Coincidence Study on  $H_2$ . In: *Phys. Rev. Lett.* 94 (2005), S. 213202
- [UMD<sup>+</sup>03] ULLRICH, J. ; MOSHAMMER, R. ; DORN, A. ; SCHMIDT, L. Ph. H. ; SCHMIDT-BÖCKING, H.: Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: reaction-microscopes. In: *Rep. Prog. Phys.* 66 (2003), S. 1463–1545
- [US03] ULLRICH, J. ; SHEVELKO, V. P.: *Many-Particle Quantum Dynamics in Atomic and Molecular Fragmentation*. Springer, 2003
- [WCJ<sup>+</sup>04] WEBER, Th. ; CZASCH, A. ; JAGUTZKI, O. ; MÜLLER, A. ; MERGEL, V. ; KHEIFETS, A. ; FEAGIN, J. ; ROTENBERG, E. ; MEIGS, G. ; PRIOR, M. H. ; DAVEAU, S. ; LANDERS, A. L. ; COCKE, C. L. ; OSIPOV, T. ; SCHMIDT-BÖCKING, H. ; DÖRNER, R.: Fully Differential Cross Sections for Photo-Double-Ionization of  $D_2$ . In: *Phys. Rev. Lett.* 92 (2004), S. 163001
- [WECBI00] WELLS, E. ; ESRY, B. D. ; CARNES, K. D. ; BEN-ITZHAK, I.: Asymmetric branching ratio for the dissociation of  $HD^+(1s\sigma)$ . In: *Phys. Rev. A* 62 (2000), S. 062707
- [WFH<sup>+</sup>01] WECK, P. ; FOJÓN, O. A. ; HANSEN, J. ; JOULAKIAN, B. ; RIVAROLA, R. D.: Two-effective center approximation for the single ionization of molecular hydrogen by fast electron impact. In: *Phys. Rev. A* 63 (2001), S. 042709
- [Zar67] ZARE, R. N.: Dissociation of  $H_2^+$  by Electron Impact: Calculated Angular Distribution. In: *J. Chem. Phys.* 47 (1967), S. 204–215



# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei all denen bedanken, die maßgeblich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Besonderer Dank gilt meinem Betreuer Alexander Dorn für seine vielfältige Unterstützung während meiner gesamten Zeit als Diplomandin. Ein Großteil dieser Arbeit basiert auf seinen Ideen.

Ganz herzlich möchte ich mich auch bei Martin Dürr bedanken, der mir eine unglaublich große Hilfe bei allen Fragen zur Datenauswertung war und mich mit einem äußerst nützlichen Grundgerüst des Analyseprogramms Go4 ausgestattet hat. Ohne seine wertvolle Unterstützung wäre diese Arbeit so nicht möglich gewesen.

Bei Dhananjay Nandi möchte ich mich ganz besonders für seine Hilfe beim Bau des Detektors und die Unterstützung in der Testphase sowie während der Strahlzeit bedanken. Claus Dieter Schröter danke ich ebenfalls für seine Ratschläge und die Hilfe im Labor.

Herrn Prof. J. Ullrich danke ich für die Aufnahme in seine Arbeitsgruppe und die Möglichkeit an einem spannenden Thema mitzuarbeiten. Das sehr angenehme Arbeitsklima und die Begeisterung in der Gruppe machten es leicht, Spaß an der Forschung zu haben. Ich bin sehr dankbar für das vergangene Jahr, denn es war eine Zeit, in der ich viel gelernt habe.

Auch bei allen weiteren Mitgliedern der Arbeitsgruppe, von denen ich hier besonders Helga Rietz, Katharina Kubicek, Karl Zrost und Thorsten Ergler erwähnen möchte, bedanke ich mich für die moralische Unterstützung, viele interessante Gespräche und unterhaltsame Kaffeepausen.

Nicht zuletzt gilt der Dank meinen Eltern, die mir dieses Studium ermöglicht und mich stets vertrauensvoll unterstützt haben.

Nemo solus satis sapit.  
(Plautus, miles gloriosus 884)



Erklärung:

Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Heidelberg, den .....

.....

Unterschrift

