

Die Untersuchung der Ionisationsdynamik von Heliumdimeren in Stößen mit α -Teilchen

DISSERTATION

ZUR ERLANGUNG DES DOKTORGRADES
DER NATURWISSENSCHAFTEN

VORGELEGT BEIM FACHBEREICH PHYSIK
DER GOETHE-UNIVERSITÄT FRANKFURT AM MAIN
IN FRANKFURT AM MAIN

VON
Jasmin Titze
AUS FRANKFURT A. M.

FRANKFURT AM MAIN, SEPTEMBER 2011
(D30)

VOM FACHBEREICH PHYSIK DER
GOETHE-UNIVERSITÄT FRANKFURT AM MAIN ALS DISSERTATION ANGENOMMEN.

Dekan: Professor M. Huth

1. Gutachter: Professor R. Dörner

2. Gutachter: Professor H. Schmidt-Böcking

Datum der Disputation: 25.11.2011

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Physikalische Grundlagen	5
2.1. Der Ion-Atom-Stoß	7
2.1.1. Theoretische Beschreibung des Stoßprozesses	9
2.1.2. Störungstheorie und Bornsche Näherung	13
2.1.3. Numerische Lösung der Schrödingergleichung	26
2.2. Kinematik von Ion-Atom-Stößen	32
2.3. Wechselwirkung zwischen gebundenen Atomen und Ionen	35
2.3.1. Die kovalente Bindung	35
2.3.2. Van-der-Waals Bindung	41
2.3.3. Übergänge in Molekülen	44
2.3.4. Intramolekulare Zerfallsprozesse	47
3. Experiment	59
3.1. Präparation des Ionenstrahls	60
3.2. Vakuumsystem der Experimentierkammer	61
3.3. Präparation des Gasstrahls	63
3.3.1. Produktion von Clustern	67
3.4. Gewinnung der Orts- und Zeitinformation	73
3.4.1. Das elektrische Feld	73
3.4.2. Das magnetische Feld	74
3.4.3. Die Detektoren	76
3.4.4. Die Datenaufnahme	79
3.5. Der Impulsvektor	81
3.5.1. Der Impulsvektor des Projektils	81
3.5.2. Der Impulsvektor des Rückstoßions	82
3.5.3. Impulsvektor der Elektronen	85
4. Auswertung und Kallibration	87
4.1. Bestimmung des absoluten Nullpunktes der Flugzeit	88
4.2. Identifizierung von Molekülaufbrüchen durch die Flugzeit	90
4.3. Eichung des elektrischen Feldes	91
4.4. Kallibration der Impulse des He ₂ -Aufbruchs	94
4.5. Die Signale auf dem Rückstoßionendetektor	95
4.6. Kallibration der Elektronenimpulse	99
4.6.1.ohne Eichmessung	100
4.6.2.mit Eichmessung	101

5. Ergebnisse	103
5.1. Auflösung	103
5.1.1. Auflösung der Rückstoßionen	103
5.1.2. Auflösung der Projektile	105
5.1.3.der Elektronen	107
5.2. Energie und Impuls der He ⁺ -Ionen aus dem Dimeraufbruch	109
5.2.1. Die Identifikation der verschiedenen Prozesse	112
5.3. Trennung der Reaktionskanäle	117
5.4. Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem ICD	121
5.4.1. Elektronenimpulse beim ICD	126
5.4.2. ICD durch höher angeregte Zustände	131
5.5. Der Ein- und Zwei-Zentren-Prozess	132
5.5.1. Zwei-Zentren-Prozess	132
5.5.2. Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem Ladungstransfer	147
5.5.3. Elektronenimpulse der Ein- und Zwei-Zentren-Transferionisation	151
5.6. Diskussion der Wirkungsquerschnitte	154
5.6.1. Abschätzung der Dimerrate	157
6. Zusammenfassung und Ausblick	161
6.1. Zusammenfassung	161
6.2. Ausblick	163
A. Atomare Einheiten	165
B. Experimentelle Parameter	167
C. Herleitung der Rückstoßionenimpulse in z-Richtung	171
D. Hitsuiche für den (He⁺, He⁺)- Zerfall	177
E. Simulation der Stoßparameterverteilung des Zwei-Zentren-Prozesses	181
Abbildungsverzeichnis	187
Tabellenverzeichnis	191
Literatur	193

1. Einleitung

Moleküle sind die Bausteine unseres menschlichen Daseins und bestimmen wie kaum etwas anderes unser alltägliches Leben. Es sind die Atome, bestehend aus einem positiv geladenen Atomkern und einer negativ geladenen Elektronenhülle, die sich miteinander verbinden und so ein Molekül formen. Wir sprechen von quantenmechanischen Systemen, deren ‚Kleber‘ im Grunde bekannt ist, da aufgrund der Distanz und Masse ihrer Komponenten (Kern, Elektronen) letztendlich nur die elektromagnetische Kraft entscheidend zur Wechselwirkung beiträgt. Und dennoch sind wir heutzutage immer noch weit davon entfernt, die Bindung zwischen Atomen wirklich vollständig zu erfassen und zu verstehen.

Von Seiten der Theorie stehen wir dem Problem gegenüber, dass die Bewegungsgleichung eines Systems aus mehr als zwei Komponenten analytisch nicht mehr lösbar ist. Bereits beim einfachsten molekularen System, dem H_2^+ -Ion, kann die Schrödinger-Gleichung nur gelöst werden, wenn die Bewegung des Elektrons unabhängig von der der Kerne betrachtet wird – eine Näherung, die wegen der großen Masseunterschiede von Kern und Elektron gerechtfertigt ist. Der Weg zum Verständnis von Bindungen zwischen Atomen verläuft über Näherungsverfahren, die sich häufig aus vereinfachenden Bildern der Strukturen und Abläufe ergeben. Je komplexer ein solches System ist, desto gravierender sind die Auswirkungen der Näherung(en) auf die Ergebnisse. Die Rolle des Experimentes ist dabei klar: Durch Vergleich der Ergebnisse des Experiments und der Berechnung lässt sich prinzipiell feststellen, ob die jeweiligen Näherungsverfahren bzw. vereinfachenden Bilder angemessen sind und die Realität gut beschreiben.

Quantenmechanische Objekte können jedoch nicht wie makroskopische Objekte mit Hilfe der Augen beobachtet und untersucht werden. Vielmehr muss ihr Zustand über Umwege sichtbar gemacht werden. Der häufigste Ansatz ist hier, in Streuexperimenten das jeweilige quantenmechanische System mittels eines oder mehrerer Photonen, einem Ion, Elektron etc. zu ‚stören‘ und aus seiner Reaktion, die sich in den Messergebnissen zeigt, die Informationen über Struktur und im System ablaufende Prozesse zu erhalten. Diese Herangehensweise beinhaltet jedoch eine Schwierigkeit. Um Aussagen über das zu untersuchende System treffen zu können, muss uns die Aus- und Wechselwirkung der ‚Störung‘ bekannt sein. Ein Verständnis über deren Einfluss lässt sich jedoch meistens auch nur mit Hilfe dieser Experimente erlangen. Bei Streuexperimenten stehen wir daher dem Problem gegenüber, dass die Ergebnisse sich aus einer Mischung von Informationen über das zu untersuchende System und über die ‚störende‘ Wechselwirkung ergeben, wobei eine klare Zuordnung nicht immer möglich ist. Die Untersu-

chung eines quantenmechanischen Objekts gewinnt dadurch zusätzlich an Komplexität. Es ist daher sinnvoll, für solche Experimente möglichst einfache quantenmechanische Modellsysteme zu finden, die aber dennoch den Gewinn grundlegender physikalischer Erkenntnisse über das System selbst und/oder die ‚Störung‘ ermöglichen. Das Heliumdimer ist genau ein solches Modellsystem. Zum einen besitzen die zwei Van-der-Waals gebundenen Heliumatome eine vergleichsweise einfache und überschaubare Struktur bzw. Elektronenkonfiguration. Zum anderen besagen Berechnungen, dass das Potenzial zwischen den beiden Heliumatomen insgesamt nur etwa 1 meV [Tan95] tief ist und damit etwa die Größe der Nullpunktsenergie besitzt. Das führt zu einer äußerst kleinen Bindungsenergie von nur 95 neV [Gri00]. Der gebundene Zustand des Heliumdimers liegt damit nur sehr knapp unter der Kontinuumsgrenze, wodurch sich die Kernwellenfunktion über einen sehr großen Bereich von mehr als 200 Angström erstreckt [Luo93]. Dadurch ist die Größe des Heliumdimers mit der eines DNA-Moleküls bzw. anderer Makromoleküle vergleichbar. Das bietet die einzigartige Chance, Prozesse und Wechselwirkung zwischen den atomaren Zentren über eine extrem lange Distanz zu untersuchen. Ein Prozess, der hier eine bedeutende Rolle spielen könnte, ist der so genannte ‚Interatomic Coulombic Decay‘ [Ced97]. Dieser Mechanismus erlaubt es, Energie mittels eines virtuellen Photons von einem Atom auf ein Nachbaratom zu übertragen, selbst wenn diese mehrere Angström voneinander entfernt sind. Beim Nachbaratom wird in der Folge ein Elektron mit geringer kinetischer Energie emittiert. Bisher konnte dieser Prozess an Heliumdimeren nur nach einer Photoionisation beobachtet werden. Neueste Ergebnisse zeigen jedoch, dass Strangbrüche und damit die Schädigung der DNA durch niederenergetische Elektronen verursacht werden [Bou00]. Man vermutet, dass der ‚Interatomic Coulombic Decay‘ eine Quelle dieser Elektronen ist [Muc10, Jah10]. Da ein sehr großer Teil der natürlichen Strahlenbelastung auf den Alphazerfall von Radon zurückzuführen ist und damit aus Alphateilchen besteht [BS10], ist die Untersuchung, ob und wie wahrscheinlich dieser Prozess auch nach einer Wechselwirkung mit einem Ion stattfindet, immens wichtig.

Ziel dieser Arbeit war es daher, zum ersten Mal Heliumdimere in einen Ionenstoß zu untersuchen. Neben der Erforschung des eben beschriebenen Prozesses gab es jedoch eine weitere Motivation für dieses Experiment, bei der allerdings die ‚störende‘ Wechselwirkung im Mittelpunkt stand: Im Ionenstoß spielt der so genannte Stoßparameter eine wichtige Rolle. Er beschreibt den minimalen Abstand, der sich ergeben würde, wenn keine Kraft zwischen den Stoßpartnern wirkt, und verleiht dem grundlegenden Begriff des Wirkungsquerschnitts seine anschauliche Bedeutung. E. Rutherford zeigte mit seinem Streuexperiment zu Anfang des letzten Jahrhunderts, dass es bei einer elastischen Streuung eines Ions am Coulombpotenzial eines Atomkerns grundsätzlich möglich ist, den Stoßparameter und damit den Wirkungsquerschnitt über den Streuwinkel bzw. die Impulsänderung des Ions zu bestimmen [Rut11]. Schwerpunkte nachfolgender und auch heutiger Experimente sind jedoch inelastische Streuprozesse, in denen häufig dieser Weg nicht beschritten werden kann. Bei einer Ionisation beispielsweise wechsel-

wirkt das Ion zusätzlich mit dem jeweiligen Elektron. Bei den hier betrachteten Stoßenergien ist der dabei übertragene Impuls sogar in der gleichen Größenordnung wie der des zugehörigen Kerns (z.B. [Dör89, Ull89]), was eine Bestimmung des Stoßparameters aus dem Streuwinkel bisher unmöglich machte. Bei einem Heliumdimer kann nun das schnelle Ion prinzipiell mit den beiden gut separierten atomaren Zentren einzeln wechselwirken. Dies setzt jedoch voraus, dass die Dimerachse in einem bestimmten Winkel zur Bewegungsrichtung des Ions steht, der durch die jeweiligen Stoßparameter bestimmt wird. Lässt sich ein derartiger Zwei-Zentren-Prozess mit dieser Arbeit experimentell nachweisen, so könnte über die Winkelverteilung der Dimerachse die Verteilung des Stoßparameters ermittelt und somit hier erstmals ein Zugang zu dieser fundamentalen Größe geschaffen werden.

Der Fokus dieser Arbeit lag auf Reaktionskanälen, in denen das Dimer nach der Wechselwirkung mit dem Projektilion in zwei einfach geladenen Heliumionen zerfällt. Der Impulsvektor, der für diese Ionen aus dem schnellen Aufbruch resultiert, gibt die Stellung der Dimerachse zu diesem Zeitpunkt wieder. Mit Hilfe der multikoinzidenten Impulsspektroskopie¹ [Dör00, Ull03] konnte der dreidimensionale Impulsvektor aller Fragmente eines Ereignisses bestimmt werden. Dadurch war es möglich, die Stellung der Dimerachse sowie die kinetische Energien der Fragmente zu ermitteln, um die jeweiligen Prozesse nachzuweisen bzw. zu identifizieren.

¹COLD Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy

2. Physikalische Grundlagen

In dieser Arbeit wurde die Transferionisation und der doppelte Elektroneneinfang an einem Heliumdimer untersucht. Die beiden Prozesse sind seit langem bekannt und wurden bereits an Atomen erforscht (siehe z.B. [Sch06]). Im Fall des doppelten Elektroneneinfangs wechseln zwei Elektronen von einem gebundenen Zustand des Dimers in einen gebundenen Zustand des Projektils. Bei der Transferionisation wird ein Elektron vom Projektil eingefangen, während ein zweites ionisiert wird. In beiden Prozessen verliert das Dimer jedoch zwei Elektronen. Ein Heliumdimer besteht aus zwei Van-der-Waals gebundenen Heliumatomen, die laut Berechnungen auf einer atomaren Skala sehr weit voneinander entfernt sind [Luo93]. Hier sind prinzipiell zwei Szenarien denkbar:

- Beide Elektronen werden an einem Zentrum des Dimers ausgelöst. Hier bleibt ein Dimerion He_2^{2+} zurück, das aus einem neutralen Heliumatom und einem He^{2+} gebildet wird und das gegenüber dem Heliumdimer eine hohe Bindungsenergie von etwa 400 meV besitzt. Dadurch ist es sehr stabil.
- Beide atomaren Zentren des Dimers verlieren durch die Wechselwirkung mit dem Projektil jeweils ein Elektron. Hier entsteht ebenfalls ein Dimerion, das aber aus zwei He^+ -Ionen besteht, die sich aufgrund der Coulombkraft sofort voneinander abstoßen.

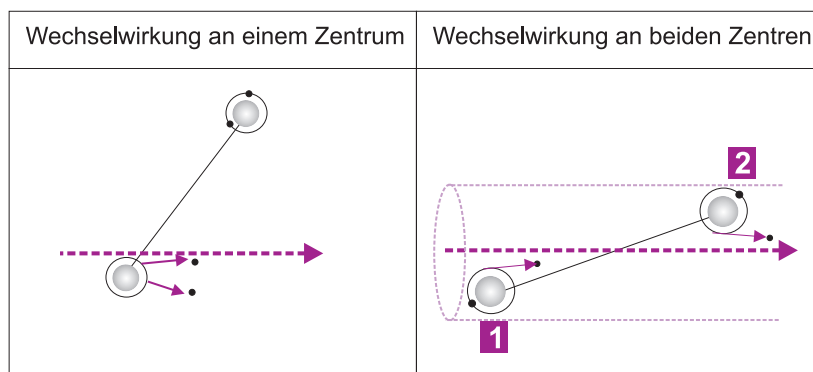
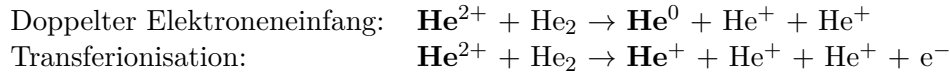


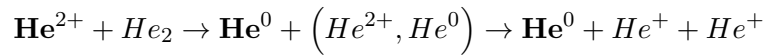
Abb. 2.1.: Schematische Darstellung des Ein-Zentren- und Zwei-Zentren-Prozesses.

Durch das gewählte Messverfahren der multikoinzidenten Impulsspektroskopie (Kapitel 3) können alle geladenen Fragmente eines Ereignisses detektiert und deren Impulse bestimmt werden. Da die Bewegung im elektrischen Feld abhängig ist vom Masse-zu-Ladungsverhältnis,

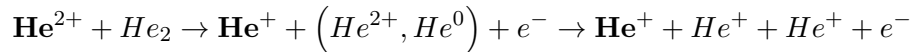
können die ionischen Fragmente des Targetatoms-, -moleküls oder -dimers eindeutig identifiziert werden. Mit der zusätzlichen Kenntnis der Projektilladung nach dem Stoß kann dadurch ein bestimmter Reaktionskanal ausgewählt werden. In dieser Arbeit wurden für die Transferionisation und den doppelten Elektroneneinfang jeweils der Reaktionskanal vermessen, der zum Aufbruch des Heliumdimers in zwei einfach geladene Heliumionen führt:



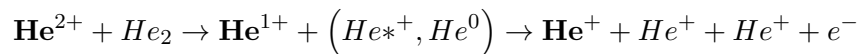
Das Projektil ist hier im Eingangs- und Ausgangskanal fett gedruckt. Intuitiv würde man nach obiger Ausführung davon ausgehen, dass in diesen Reaktionskanälen nur Ereignisse enthalten sind, in denen jeweils ein Elektron an beiden Zentren ausgelöst wurde. Tatsächlich zeigen Impulse und Energien der gemessenen Teilchen aber, dass die geladenen Fragmente auch noch über andere Wege entstehen können, die einen Zwischenschritt in der Reaktion beinhalten. Für den doppelten Elektroneneinfang ergibt sich der zusätzliche Weg:



Hier werden durch den Stoß mit dem Projektil beide Elektronen an einem Zentrum ausgelöst. Danach kommt es innerhalb des Dimerions zu einem Ladungsaustausch. Dieser Prozess wird im Englischen ‚Charge Transfer‘ genannt und wurde bereits an Neondimeren [Kre09] beobachtet. Die überschüssige Energie wird hier in Form eines Photons emittiert. Bei der Transferionisation lässt sich dieser Prozess auch finden:



Zudem gibt es einen Prozess, der exakt die gleichen Endprodukte liefert, der aber nicht als Transferionisation bezeichnet werden kann, da das emittierte Elektron nicht mit dem Projektil wechselwirkt:



Hier fängt das Projektil ein Elektron an einem atomaren Zentrum ein und regt dieses an. Die Anregung ist durch einen Stern gekennzeichnet. Die Wechselwirkung zwischen Projektil und Targetdimer besteht daher in einem Einfacheinfang mit zusätzlicher Anregung. Erst im nächsten Schritt, wenn das Projektil weit entfernt ist, wird ein Elektron am anderen atomaren Zentrum emittiert. Hierfür muss Energie zwischen den beiden Zentren und damit über eine große Distanz ausgetauscht werden. Dieser Prozess wurde auch schon in Photoionisationsexperimenten mit Heliumdimeren [Hav10c] aber auch Neondimeren [Mar03, Jah04] beobachtet und wird als ‚Interatomic Coulombic Decay‘ [Ced97] bezeichnet. Er ist typisch für Van-der-

Waals gebundene Systeme.

Die Prozesse lassen sich dementsprechend in zwei Kategorien einteilen: Primäre Prozesse, die die Wechselwirkung zwischen Projektil und einem bzw. beiden Zentren des Dimers beinhalten und sekundäre Prozesse, die die Wechselwirkung zwischen den beiden Zentren des Dimers beschreiben. Daher ist dieses Kapitel grundsätzlich in zwei Teile untergliedert. Der erste Teil befasst sich mit der Dynamik von Ion-Atom-Stößen und deren theoretischer Beschreibung. Im zweiten Teil werden die Eigenschaften des Heliumdimers beschrieben, sowie Prozesse, die innerhalb dieses Systems stattfinden können, vorgestellt.

2.1. Der Ion-Atom-Stoß

Um ein tieferes Verständnis für Stoßprozesse zu erhalten, ist ein Vergleich zwischen experimentellen Ergebnissen und Resultaten, die sich aus theoretischen Modellen berechnen lassen, notwendig. Die zentrale Rolle spielt hierbei der Wirkungsquerschnitt. Einer der bedeutendsten Versuche der Atomphysik, der mit diesem Begriff in Verbindung steht und in den gängigen Lehrbüchern stets zur Veranschaulichung des Wirkungsquerschnitts herangezogen wird, ist das Streuexperiment von E. Rutherford [Rut11]. Durch die elastische Streuung von Alphateilchen an Goldatomen konnte nicht nur gezeigt werden, dass das bis dato gängige Thomsonsche ‚Plum pudding-Modell‘ die neu gewonnenen Erkenntnisse nicht erklären konnte und damit die Notwendigkeit eines neuen präziseren Atommodells bestand. Vielmehr legte Rutherford durch seine Überlegungen den Grundstein für eine grundlegende Herangehensweise, wie sie auch heute noch für Streuvorgänge gilt. Er fand einen mathematischen Ausdruck für den differentiellen Wirkungsquerschnitt ein, der ein Maß für die Wahrscheinlichkeit ist, dass ein Teilchen unter einem bestimmten Winkel ϑ in ein Raumwinkelement $d\Omega$ streut (siehe Abb. 2.2):

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{e^2 Z_p Z_T}{16 \pi \epsilon_0 E_{kin}} \frac{1}{\sin^4(\frac{\vartheta}{2})} \quad (2.1)$$

wobei Z_p bzw. Z_T der Kernladung des Projektils und des Targetatoms entsprechen. Indem er die Anzahl der Teilchen, die unter einem bestimmten Winkel abgelenkt wurden, experimentell relativ zur Gesamtanzahl aller gestreuten Teilchen bestimmte, konnte er diesen Ausdruck verifizieren. Dadurch bewies er, dass die gesamte positive Ladung im Kern des Atoms konzentriert sein muss und die Wechselwirkung nur durch die Coulombabstoßung der beiden Kerne gegeben wird. Insgesamt versuchte er, durch die Messung der gestreuten Teilchen Informationen über die Wechselwirkung, aber auch über die Struktur und Größe des Targetatoms zu erhalten.

Hierbei führte er eine Größe ein, die den minimalen Abstand beschreibt, der sich ergeben würde, wenn keine Kraft zwischen den Stoßpartnern wirkt. Diese Größe wird im Allgemeinen als

Stoßparameter bezeichnet und meistens mit dem Buchstaben b abgekürzt. Mit ihr lässt sich eine Relation finden, die dem gesamten Wirkungsquerschnitt eine anschauliche Bedeutung gibt:

$$\sigma = \int 2 \pi b db = 2 \pi b^2 \quad (2.2)$$

Der gesamte Wirkungsquerschnitt σ gibt damit die Fläche eines Streuzentrums an, innerhalb der es zu einer Reaktion kommt. Man kann ihn aber auch etwas unhandlicher als Wahrscheinlichkeit pro Targetflächendichte interpretieren.

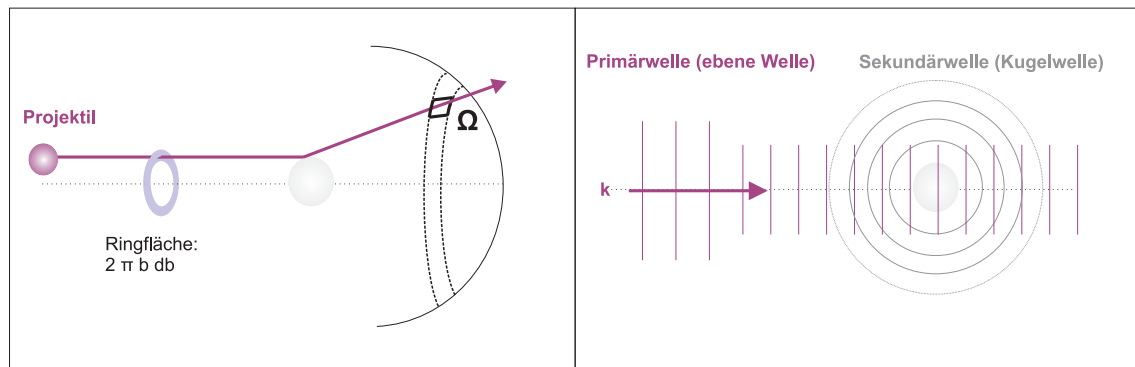


Abb. 2.2.: Schematische Darstellung des Streuprozesses. Links: Streuung am Coulombpotenzial nach Rutherford. Der differentielle Wirkungsquerschnitt enthält Informationen über den Streuvorgang und ist abhängig vom Stoßparameter b . Rechts: Streuung im quantenmechanischen Wellenbild. Das Projektil streut als ebene Welle am Potenzial des Targetatoms. Dadurch entsteht eine zweite Kugelwelle. Durch die Amplitude und Phase dieser Kugelwelle gewinnt man Informationen über die Streuung, sie entspricht dem differentiellen Wirkungsquerschnitt. Die Streuwelle ist eine Superposition der ebenen Welle und der Kugelwelle.

In der quantenmechanischen Sichtweise lässt sich jedes Teilchen auch gleichzeitig als Welle bzw. Wellenpaket veranschaulichen, das mathematisch durch eine Wellenfunktion beschrieben wird. Hat ein Projektil einen sehr schmal definierten Impuls entlang der Bewegungsrichtung und einen vernachlässigbaren Impuls in transversaler Richtung, kann es als ausgedehnte ebene Welle angesehen werden. Ein Ion-Atom-Stoß wird dann als Streuung dieser Welle am Coulombpotenzial des Targetatoms interpretiert, wodurch eine Kugelwelle, die so genannte Streuwelle, ausgesandt wird [Nol04]:

$$\Psi^S(\vec{r}) = A(\theta, \phi) \frac{e^{ikr}}{r} \quad (2.3)$$

Diese Kugelwelle wird die komplette Informationen über die Streuung und damit über die Wechselwirkung enthalten. Es lässt sich zeigen [Bra03a], dass die so genannte Streuamplitude A dem differentiellen Wirkungsquerschnitt entspricht:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = |A(\theta, \phi)|^2 \quad (2.4)$$

Weitet man dieses Bild auf inelastische Stöße aus, so müssen während des Stoßes auch elektromische Übergänge (Anregung, Ionisation, Einfang) berücksichtigt werden. Für einen Übergang von einem quantenmechanischen Anfangszustand in den Endzustand lässt sich ein Übergangsmatrixelement bestimmen. Im inelastischen Fall ist die Streuamplitude proportional zum Quadrat dieses Übergangsmatrixelementes.

2.1.1. Theoretische Beschreibung des Stoßprozesses

Der Sinn atomphysikalischer Stoß- und Streuexperimente ist es, ein Atom oder Molekül mit einem Projektil zu ‚stören‘ um Informationen über die Wechselwirkung, aber eben auch Erkenntnisse über das Atom oder Molekül vor dem Stoß zu erhalten. Stöße wiederum, gleichgültig ob zwischen makroskopischen Gegenständen oder mikroskopischen Teilchen, sind von ihrer Natur her zeitabhängig. Die zeitliche Entwicklung eines mikroskopischen und damit quantenmechanischen Systems wird durch die zeitabhängige Schrödingergleichung gegeben (z.B. [Jel93]):

$$H\Psi(t) = \hbar i \frac{\partial}{\partial t} \Psi \quad (2.5)$$

Mit einem bekannten Anfangszustand $\Psi_i = \Psi(t_0)$ kann jeder Zustand für $t > t_0$, und damit auch der Endzustand, durch diese Gleichung prinzipiell bestimmt werden. Hierbei muss allerdings der Wahrscheinlichkeitscharakter quantenmechanischer Prozesse berücksichtigt werden. Bei makroskopischen Objekten ist durch die Kenntnis des Zustandes zum Zeitpunkt $t = t_0$ der darauffolgende Zustand eindeutig durch eine Trajektorie bestimmt. Im mikroskopischen Bereich ist die Zeitentwicklung so zu interpretieren, dass sie zu jedem Zeitpunkt $t > t_0$ alle möglichen Zustände $\Psi_n(t)$ eines Quantensystems wiedergibt. Bei einer Messung zu einem Zeitpunkt $t > t_0$ lässt sich das Quantensystem mit gegebener Wahrscheinlichkeit in einem dieser Zustände finden.

Wie im makroskopischen Bereich fordert dieser Ansatz jedoch auch, dass der Anfangszustand $\Psi(t_0)$ des gesamten Systems exakt bekannt ist. Obwohl die Natur der Wechselwirkung der Teilchen in atomphysikalischen Stoßexperimenten (= Coulombwechselwirkung) sehr genau bekannt ist, wird hier ein prinzipielles Problem offenbar: Die Bewegungsgleichungen von drei Körpern, die miteinander in Wechselwirkung stehen, sind analytisch nicht lösbar. Bezogen auf einen Ion-Atom-Stoß bedeutet das, dass es streng genommen bereits für das denkbar einfachste Stoßsystem bestehend aus einem Proton und einem Wasserstoffatom (Proton plus Elektron) keine exakte Lösung gibt.

Die allgemeinste Methode besteht darin, die Lösung der Schrödingergleichung numerisch zu bestimmen. Eine Möglichkeit ist hier die gekoppelte Kanälerechnung. Hier wird für Zustände $\Psi_N(t)$ eine möglichst große Anzahl an Basis-Wellenfunktionen gesucht, die Lösungen der

Schrödingergleichung sind und das Problem näherungsweise gut beschreiben [Fri93]:

$$\Psi_N(t) = \sum_{k=0}^N a_k(t) \Phi_k(t) \quad (2.6)$$

Setzt man diese Gleichung in die zeitabhängige Schrödingergleichung 2.5 ein und multipliziert sie skalar mit einer weiteren Basiswellenfunktion Φ_j , so erhält man N gekoppelte Differentialgleichungen, mit denen man die Entwicklungskoeffizienten festlegt und durch die man die Wellenfunktionen für die Zustände $\Psi(t)$ numerisch lösen kann:

$$\hbar i \sum_{k=0}^N \langle \Phi_j | \Phi_k \rangle \dot{a}_k(t) = \sum_{k=0}^N a_k(t) \langle \Phi_j | H - \hbar i \frac{\partial}{\partial t} | \Phi_k \rangle \quad (2.7)$$

Die Wellenfunktionen Φ_j und Φ_k sind selbst Lösungen des Hamiltonoperators, die über Näherungsverfahren bestimmt wurden. Hier bieten sich zum Beispiel Linearkombinationen der atomaren Wellenfunktionen von Target und Projektil an, wie man sie aus der Molekülphysik kennt, nur dass die Kernbewegung hier explizit nicht vernachlässigt werden kann. Ebenso ist es aber auch möglich, bei größeren Projektilgeschwindigkeiten das Projektil als ebene Welle darzustellen (,plane wave approximation‘). Dann lassen sich die Wellenfunktionen als Produkt aus einer ebenen Welle und Wellenfunktion des Targetatoms schreiben. Die Entwicklungskoeffizienten $a_k(t)$ sind ebenfalls zeitabhängig und bestimmen, inwieweit Wellenfunktionen und damit Zustände miteinander ,koppeln‘ d.h. sich miteinander vermischen. Durch dieses Vermischen kann es zu Übergängen zwischen den betroffenen Zuständen kommen.

Ziel der gekoppelten Kanälerechnung ist es, eine möglichst große Anzahl an Basiswellenfunktionen zu verwenden, um den Prozess bzw. die Wirkungsquerschnitte möglichst genau zu bestimmen. Umgekehrt muss die Berechnung aber auch mit der gegebenen Rechenleistung heutiger Computer zu bewältigen sein. Atome mit mehreren Elektronen stellen hierbei eine besondere Herausforderung dar, ebenso wie Mehrfachionisationen, -anregungen bzw. -einfangprozessen. In Kapitel 2.1.3 wird im Rahmen der Dichtefunktionaltheorie ein weiterer numerischer Ansatz vorgestellt.

Eine weitere Möglichkeit, die Lösung der Schrödingergleichung eines Stoßsystems näherungsweise zu bestimmen, ist die innerhalb der Störungstheorie behandelte Bornsche Näherung. Im Gegensatz zum numerischen Ansatz ist sie aber nicht für jedes Stoßsystem gültig, allerdings ist sie rechnerisch häufig leichter zu bewerkstelligen. Eine grobe Orientierung, wann die Bornsche Näherung Anwendung finden kann, bietet die so genannte Störung η . Sie berechnet sich aus der Projektilladung Z_p und der Projektilgeschwindigkeit v_p wie folgt:

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

Die Kernladung des Projektils ist hierbei ein Maß für die Stärke des Coulombfeldes zwischen Projektil und Targetatom bzw. -molekül, während die Geschwindigkeit ein direktes Maß für die Wechselwirkungszeit ist.

Eine große Störung (> 1) lässt sich erreichen durch eine hohe Kernladung und/oder kleine Geschwindigkeiten des Projektils. Im ersten Fall ist das Feld des Projektils so stark, dass die Energiedichte und damit die Intensität (Produkt aus Energiedichte und Geschwindigkeit) so hoch ist, dass es zu Mehrfachprozessen (hauptsächlich Anregung und Ionisation) kommen kann. Im zweiten Fall steigt die Wechselwirkungszeit an, weil das Projektil so langsam ist. Die Bewegung der Elektronen muss hier unter dem Einfluss der beiden Potentiale von Target- und Projektilkern betrachtet werden. Anschaulich lässt sich die Wechselwirkung in beiden Fällen in mehrerer Schritte zerlegen. Man kann sich daher vorstellen, dass das Gesamtsystem (Target plus Projektil) über mehrere Zwischenzustände in den Endzustand übergeht:

$$\Phi_i(t) \rightarrow \Phi_1(t) \rightarrow \Phi_2(t) \rightarrow \Phi_3(t) \dots \dots \Phi_{j-1}(t) \rightarrow \Psi_j(t), \quad (2.9)$$

wobei jeder Zustand selbst zeitabhängig sein kann. Die Abfolge der Übergänge soll hier nicht zwingend eine zeitliche Reihenfolge darstellen, es soll nur angedeutet werden, dass die Wechselwirkung in mehrere Schritte (Übergänge) unterteilt werden kann. Bei kleinen Geschwindigkeiten kann man sich hierbei vorstellen, dass ein oder zwei Elektronen über verschiedenen elektronische Zwischenzustände zu ihrem Endzustand kommen. Bei hohen Geschwindigkeiten können die Schritte die einzelnen Anregungs-, Ionisations- und Einfangprozesse der Elektronen veranschaulichen. Für große Störungen (> 1) muss die Lösung numerisch bestimmt werden.

Kleine Störungen (< 1) werden durch große Projektilgeschwindigkeiten und kleine Kernladungen erreicht. In einem vereinfachten Bild sind die Elektronen des Targetatoms oder -moleküls im Vergleich zu ihrer Umlaufzeit dem Feld des Projektils nur kurz ausgeliefert. Dadurch verringert sich auch die Anzahl der Schritte, in die die Gesamtwechselwirkung zerlegt werden kann, sehr stark. Bei extrem kurzen Wechselwirkungszeiten kann sich die Anzahl auf einen Schritt reduzieren:

$$\Phi_i(t) \rightarrow \Phi_j(t) \quad (2.10)$$

Das Übergangsmatrixelement für diese Wechselwirkung kann man sich vereinfacht aus Gleichung 2.7 wie folgt herleiten: Geht man davon aus, dass die Wellenfunktionen $\Phi_j(t)$ und $\Phi_k(t)$ Lösungen des gleichen Hamiltonoperators und damit orthonormal sind, so ergibt das Skalarprodukt auf der linken Seite von Gleichung 2.7 genau dann 0, wenn $k \neq j$ ist. Es hat dagegen den Wert 1, wenn $k=j$ gilt. Weiterhin lässt sich anschaulich die Aussage treffen, dass wenn das System ursprünglich im Zustand i ist, es auch mit großer Wahrscheinlichkeit bei einer kurzen Wechselwirkungszeit in diesen Zustand bleibt. Für die rechte Seite der Gleichung 2.7 wird man also erwarten, dass der Koeffizient $a_k(t)$ für $k=i$ gegen 1 strebt, während ihre

Werte für $k \neq i$ sehr klein werden. Damit vereinfacht sich Gleichung 2.7 zu:

$$\hbar i \dot{a}_j(t) = \langle \Phi_j | H - \hbar \frac{\partial}{\partial t} | \Phi_i \rangle \quad (2.11)$$

Durch Integration über die Zeit ergibt sich dann für den Koeffizienten $a_j(t)$ zu [Bra03c]:

$$a_j(t) = -\frac{i}{\hbar} \int \langle \Phi_j | H - \hbar \frac{\partial}{\partial t} | \Phi_i \rangle dt' \quad (2.12)$$

Im Allgemeinen lassen sich die zeitabhängigen Wellenfunktionen wie folgt in einen rein ortsabhängigen und einen rein zeitabhängigen Teil separieren: $\Phi_j = \varphi_j(r) e^{-i \frac{E_j}{\hbar} t}$. In Gleichung 2.12 entspricht der Ausdruck $\langle \Phi_j | H - \hbar \frac{\partial}{\partial t} | \Phi_i \rangle$ einem Integral. Durch den Separationsansatz kann die Zeitableitung von Φ_j gebildet werden, die sich zu $\left(-\hbar i \varphi_j \left(-i \frac{E_j}{\hbar} \right) e^{-i \frac{E_j}{\hbar} t} \right)$ berechnet. Somit ergibt sich für Gleichung 2.12:

$$a_j(t) = -\frac{i}{\hbar} \langle \varphi_j | H - E_j | \varphi_i \rangle \int e^{i \frac{E_i - E_j}{\hbar} t} dt' \quad (2.13)$$

In der Störungsrechnung geht man davon aus, dass ein System (Projektil und Target) zunächst ungestört, es dann kurz zu einer Wechselwirkung kommt, die als Störung dieses Zustands verstanden wird, und danach sich das System wieder in einem ungestörten Zustand befindet. Wenn Φ_j das System nach der Wechselwirkung und damit auch den ungestörten Zustand nach der Wechselwirkung beschreibt, so ist die E_j der Eigenwert des 'ungestörten' Hamiltonoperators H_0 . H ist der Hamilton-Operator für das komplette 'gestörte' System, der sich wiederum aus dem 'ungestörten' Hamiltonoperator H_0 und dem Wechselwirkungspotenzial bzw. Störpotenzial V_S zusammensetzt. Die Differenz vor dem Integral in Gleichung 2.13 lässt sich daher auch als Differenz der beiden Operatoren H und H_0 schreiben, was dem Störpotenzial V_S entspricht:

$$T_{ij}^1 = \langle \varphi_j | H - E_j | \varphi_i \rangle = \langle \varphi_j | H - H_0 | \varphi_i \rangle = \langle \varphi_j | V_S | \varphi_i \rangle \quad (2.14)$$

T_{ij}^1 ist genau das Matrixelement, das sich formal aus dem störungstheoretischen Ansatz erster Ordnung, der sogenannten ersten Bornschen Näherung, ergibt. Die Einheit dieses Übergangsmatrixelementes entspricht durch den Hamiltonoperator der einer Energie. Da der Wirkungsquerschnitt die Einheit [Länge⁻²] besitzt, besteht zwischen dem differentiellen Wirkungsquerschnitt bzw. der Streuamplitude A und dem Matrixelement folgender Zusammenhang [Bra03c]:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = |A|^2 = \frac{m^2}{(2\pi)^2 \hbar^4} |T_{ij}^1|^2 \quad (2.15)$$

Den gesamten Wirkungsquerschnitt erhält man trivialerweise über die Integration des Raumwinkels. Das Quadrat des Koeffizienten $a_j(t)$ aus Gleichung 2.13 entspricht der Übergangs-

wahrscheinlichkeit. Das ist zum Beispiel sinnvoll, wenn die Wahrscheinlichkeitsverteilung des Stoßparameters $P(b)$ für eine bestimmte Reaktion bestimmt werden soll. Man spricht bei dem Koeffizienten daher häufig von einer Wahrscheinlichkeitsamplitude.

Neben dem störungstheoretischen und numerischen Ansatz gibt es noch eine weitere nicht quantenmechanische Methode zur Behandlung von Ion-Atom-Stößen: die Trajectory-Monte-Carlo-Methode. Hier werden die Teilchenbahnen klassisch berechnet, und der Angangszustand wird aus einer Anfangskonfiguration zufällig ausgewählt. Letztere wird aus quantenmechanischen Rechnungen entnommen. Ihrem Wesen entsprechend kann in der Trajectory-Monte-Carlo-Methode keine quantenmechanischen Effekte wie z.B. Interferenz berücksichtigt werden. Dennoch stellt sie eine gute Alternative zur Untersuchung von Stoßsystemen dar, die störungstheoretisch nicht behandelt werden können und für die der numerisch Ansatz aufgrund begrenzter Rechenleistung keine ausreichend guten Ergebnisse liefert. Das ist bei großen Störungen im Bereich großer Geschwindigkeit ($v_p > 1.0$) der Fall, da hier durch die verhältnismäßig hohe Stoßenergie mehrfache Ionisationen, Anregungen etc. stattfinden können, was bei numerischen Ansatz eine Berücksichtigung vieler Wellenfunktionen zur Folge hat. Für nähere Informationen wird auf weiterführende Lektüre verwiesen [Gry65a, Gry65b, Abr66, Wet86]. Die Projektilgeschwindigkeiten, die im Rahmen dieser Arbeit untersucht wurde, liegen im Bereich von 2.5 a.u.. Die Kernladungen des Projektils, einem Alphateilchen, beträgt $Z_P=2$. Daraus ergibt sich eine Störung von 0.8. Dies ist ein Bereich, in dem die Störungsrechnung angewandt werden kann. Daher wird in den nächsten Kapiteln sehr kurz die Herangehensweise in der Störungstheorie erläutert bzw. kurz dargestellt, wie die Ionisation und der Einfang im Rahmen der Störungstheorie behandelt wird. Die Motivation dahinter ist, die vereinfachten physikalischen Bilder vorzustellen, die man zur Beschreibung der Ionisation und des Einfangs in diesem Bereich heranzieht. Die eigentlichen theoretischen Daten, die in dieser Arbeit verwendet wurden, sind mit Hilfe einer numerischen Methode berechnet worden. Diese wird in Kapitel (2.1.3) vorgestellt.

2.1.2. Störungstheorie und Bornsche Näherung

Wie im Abschnitt vorher erwähnt kann in Stoßprozessen die Wellenfunktion häufig in einen Orts- und einen Zeitanteil separiert werden. Das reduziert das Problem auf das Lösen der nicht-zeitabhängigen Schrödingergleichung. Für kleine Störungen kann man dann vereinfachend folgendes physikalisches Bild annehmen: Das ungestörte System (Target plus Projektil) befindet sich einem Zustand mit der Wellenfunktion φ_i . Wenn nun die Störung 'angeschaltet' wird, d.h. beide miteinander wechselwirken, wechselt das System in einen Zustand mit der Wellenfunktion ψ_i . Während der Wechselwirkung kann sich die Struktur des System einschließlich der Störung selbst 'ändern', wie das in Abbildung 2.3 zum Beispiel bei einem Elektroneneinfangprozess der Fall ist. Das komplette System befindet sich im Zustand mit der Wellenfunktion ψ_f . Wird die Störung nun wieder 'ausgeschaltet', d.h. sind Target und

Projektil hinreichend weit von einander entfernt, ist das System wieder ungestört im Zustand, der beschrieben wurde durch die Wellenfunktion φ_f .

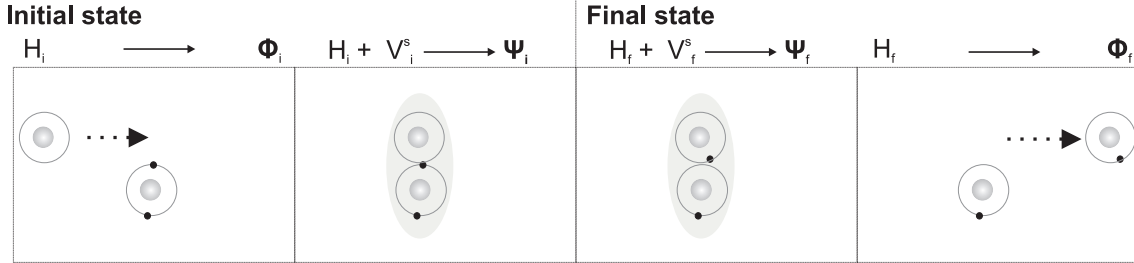


Abb. 2.3.: Schematische Darstellung der Störungstheorie, am Beispiel eines Elektroneneinfangs. Die Hamilton-Operatoren, die für das jeweilige Stadium des Stoßes gelten, und deren entsprechenden Lösungen sind in in der Bildüberschrift dargestellt.

Dementsprechend teilt man den Hamiltonoperator in zwei Teile, in einen Teil, der die ungestörte Bewegung festlegt, wenn Target und Projektil weit voneinander entfernt sind, H_0 und einen Hamiltonoperator der Störung, der die Wechselwirkung festlegt. Da diese in atomphysikalischen Experimenten nur aus einem Coulombpotenzial V_S bestehen kann, ergibt sich für den gesamten Hamiltonoperator H aufgrund der Energieerhaltung [Jel88] :

$$H = H_0^i + V_S^i = H_0^f + V_S^f \quad (2.16)$$

Wie im vorigen Abschnitt erwähnt, ist für die Bestimmung des Wirkungsquerschnitts das Matrixelement T_{ij} entscheidend. Der Hamiltonoperator des ungestörten Systems liefert per Definition keinen Beitrag zur Übergangswahrscheinlichkeit, so enthält das Matrixelement nur das Störpotenzial. Aufgrund der Umkehrbarkeit der Zeit gibt es hier zwei Ausdrücke für das Übergangsmatrixelement [Bra03b]:

$$T_{fi} = \langle \varphi_f | V_S^f | \psi_i^+ \rangle \quad (2.17)$$

$$T_{fi} = \langle \psi_f^- | V_S^i | \varphi_i \rangle \quad (2.18)$$

Gleichung 2.17 stellt die so genannte post-Form dar, sie beschreibt das Übergangsmatrixelement in Richtung der Zeitachse $t \rightarrow \infty$. Gleichung 2.18 wird dementsprechend als prior-Form bezeichnet, da sie sich auf Übergänge $t \rightarrow -\infty$ bezieht. Wichtig sind die Bezeichnungen (+) und (-) bei den Zuständen der gestörten Systeme. Das Pluszeichen bedeutet, dass die Randbedingung erfüllt ist, im Limit $t \rightarrow \text{infity}$ in den Anfangszustand mit der Wellenfunktion φ_i überzugehen, d.h. aus ihm hervorgeht. Das Minuszeichen deutet an, dass der Zustand im Limit $t \rightarrow \infty$ in den ungestörten Endzustand mit der Wellenfunktion φ_f übergeht.

Das besondere Konzept der Störungstheorie besteht nun darin, dass die Wellenfunktionen

φ_i und φ_f , die die Eigenzustände der ungestörten Systeme definieren, abgesehen von einer Korrektur auch Lösungen des Hamiltonoperators H sind. Es war die Idee von Max Born, die Lösung des gestörten Systems in einer Reihe zu entwickeln, und zwar in der Weise, dass ein Glied der Reihe mit Hilfe des vorigen Reihenglieds, d.h. iterativ, berechnet werden kann, wobei das erste Reihenglied natürlich die Wellenfunktion des ungestörten Systems ist:

$$\psi_i^+ = \varphi_i + \chi_i^1 + \chi_i^2 + \dots + \chi_i^n \quad (2.19)$$

Für jedes einzelne Reihenglied gilt die zeitunabhängige Schrödingergleichung. Mit dem Hamiltonoperator des ungestörten Systems H_0^i und dem Störpotenzial V_S^i sowie dem zugehörigen Energieeigenwert E_i ergibt sich:

$$(E_i - H_0^i)\chi_i^1 = V_S^i\varphi_i \quad (2.20)$$

$$(E_i - H_0^i)\chi_i^2 = V_S^i\chi_i^1 \quad (2.21)$$

....

Es handelt sich hierbei um n lineare inhomogene Differentialgleichungen, für die die Lösungen χ_i^n gefunden werden müssen. Hierzu benutzt man die Greensche Funktion G . Sie ist die Lösung einer der obigen Differentialgleichungen für eine so genannte Delta-Inhomogenität, d.h. der Lösung an einem bestimmten Ort r' . Das Konzept der Greenschen Funktion besteht nun darin, dass sich jede beliebige Lösung, hier in diesem Fall die Wellenfunktionen χ_i^n , im Prinzip aus diesen Delta-Inhomogenitäten zusammensetzen lässt, wobei diese an jeder Stelle r mit einer bestimmten Amplitude gewichtet wird. Dies drückt man mit einem Integral über die Greensche Funktion, das Potenzial und die entsprechende Wellenfunktion aus. Zur Übersichtlichkeit wird hier auf die gleich bedeutende Operator-Schreibweise zurückgegriffen. Für die komplette Zustand des gestörten Systems ψ_i^+ erhält man damit [Bra03b]:

$$T_{if} = \langle \varphi_f | V | \varphi_i \rangle + \langle \varphi_f | V G V | \varphi_i \rangle + \langle \varphi_f | V G V G V | \varphi_i \rangle \dots \quad (2.22)$$

Diese Potenzreihe konvergiert nur, wenn die Potenz kleiner 1 ist. Für ein reines Coulombpotenzial mit der Abhängigkeit $1/r$ ergibt sich hieraus genau eine Entwicklung nach Potenzen der Störung (Z_p/v_p).

Anschaulich kann man jeden Summanden der Bornschen Reihe als Wechselwirkung zwischen Projektil und Target auffassen. Das bedeutet, dass der erste Summand eine einmalige Wechselwirkung, d.h. einen einmaligen Austausch eines virtuellen Photons, beschreibt. Wird der zweite Summand zusätzlich berücksichtigt, entspricht dies der Beschreibung einer zweimaligen Wechselwirkung etc. Es hängt von der Anzahl der Wechselwirkungen ab, die für einen Prozess berücksichtigt werden müssen, wann die Bornsche Reihe abgebrochen wird. Im Folgenden soll kurz dargestellt werden, wie sowohl die Ionisation als auch der Elektroneneinfang

mit Hilfe der ersten Bornschen Näherung theoretisch behandelt wird.

Ionisation in der 1. Bornschen Näherung

Die Ionisation in einem Ion-Atom-Stoß in der ersten Bornschen Näherung wurde das erste Mal von H. Bethe 1930 [Bet30] veröffentlicht. Die grundsätzliche Idee besteht darin, das Elektron im Endzustand nicht als einzelnes freies Teilchen zu betrachten, sondern als quasifreies Teilchen in einem Kontinuumszustand des Targetkerns. Die theoretische Herangehensweise unterscheidet sich prinzipiell also nicht von der Beschreibung der Stoßanregung, da hier das Elektron sich in einem gebundenen Zustand des Atoms befindet. Die Ionisation ist dementsprechend als Grenzfall der Anregung zu sehen.

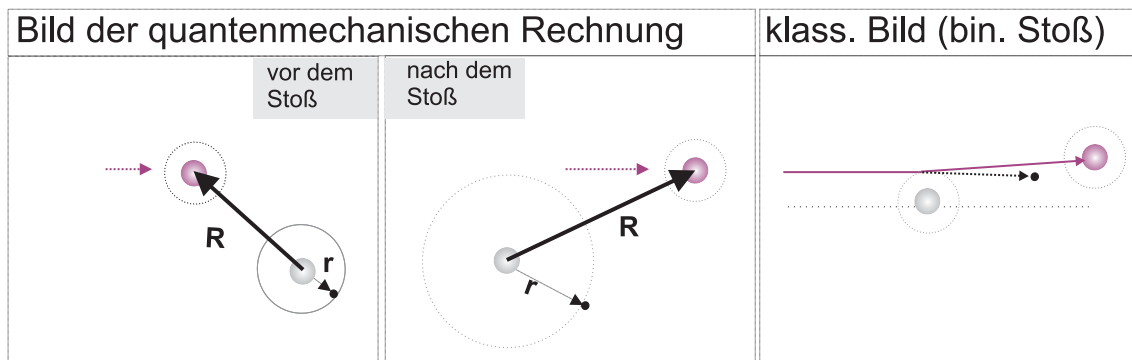


Abb. 2.4.: Darstellung der Einfachionisation. Links und Mitte: Behandlung in der ersten Bornschen Näherung. Das Elektron wechselt in einen Kontinuumszustand des Targets. Die Kern-Kern-Wechselwirkung entfällt durch diese spezielle Annahme in der störungstheoretischen Rechnung erster Ordnung. Rechts: Klassisches Bild der Einfachionisation. Das Projektil wechselwirkt mit dem Elektron und beschleunigt es in Richtung des Projektils. Der Kern fungiert damit näherungsweise als Zuschauer.

Für den Fall eines p-H-Stoßsystems entspricht der Hamilton-Operator des ungestörten Systems dem Hamilton-Operator des ungestörten Targetatoms. Das Störpotenzial ergibt sich aus der Coulombwechselwirkung des Projektils mit dem Targetkern und dem Elektron

$$H_i = H_i^0 + V_i^S = -\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_r - \frac{Z_T e}{r} + \frac{Z_P Z_T}{R} - \frac{Z_P e}{R-r}, \quad (2.23)$$

wobei r der Ortsvektor des Elektrons in Bezug zum Targetkern und R der Abstandsvektor zwischen Targetkern und Projektil ist. m_e stellt die Masse des Elektrons dar. Für den zeitunabhängigen Teil der Lösung des 'ungestörten' Operators bietet sich bei den Projektilenergien, die hier betrachtet werden, ein Produkt aus einer ebenen Welle, die die Bewegung des Projektils beschreibt, und den Zuständen des 'ungestörten' Targetatoms an:

$$|\varphi_i\rangle = e^{-ip_i R} |\varphi_i^T\rangle \quad (2.24)$$

$$|\varphi_f\rangle = e^{-ip_f R} |\varphi_f^T\rangle, \quad (2.25)$$

wobei mit p_i und p_f die Projektilimpulse in Anfangs- und Endzustand gemeint sind.

Wenn man den Zustand des freien Elektrons mit einem Kontinuumszustand des Targetkerns beschreibt, ergibt sich hieraus eine Konsequenz, die die Rechnung im Rahmen der ersten Bornschen Näherung stark vereinfacht: Sowohl die ungestörten Hamiltonoperatoren vor und nach dem Stoß als auch die Störpotenziale V_i^S und V_f^S können als gleich angenommen werden. Dadurch sind die Eigenzustände $|\varphi_i^T\rangle$ und $|\varphi_f^T\rangle$ Lösungen des selben Hamilton-Operators, wodurch sie per Definition orthogonal zueinander sind.

Wenn man nun das Übergangsmatrixelement bestimmen möchte, muss man das Integral berechnen, das in diesem Fall von zwei Variablen R und r abhängt. Führt man die Integration über den Abstand R durch, so ergibt sich für das Matrixelement:

$$T_{if}^{1B} = \frac{Z_P}{2\pi^2 (p_i - p_f)^2} \langle \varphi_f^T | Z_T - e^{i(p_i - p_f)r} | \varphi_i^T \rangle \quad (2.26)$$

Der erste Summand in Gleichung 2.26 ist nicht von r abhängig und lässt sich auch in der Form $(k \langle \varphi_f^T | \varphi_i^T \rangle)$ schreiben. Durch die Orthogonalität der Zustände $|\varphi_i^T\rangle$ und $|\varphi_f^T\rangle$ ergibt ihr Skalarprodukt 0, wodurch dieser Summand verschwindet. Physikalisch entspricht dieser Summand jedoch der Kern-Kern-Wechselwirkung, was bedeutet, dass diese für die Ionisation in der ersten Bornschen Näherung vernachlässigt wird. Das klassische Bild, das man mit dieser theoretischen Näherung sofort verbindet, ist der Einzelstoß zwischen Projektil und Elektron (engl. binary encounter). Denn auch hier ist der Targetkern nur Zuschauer. Trifft das Projektil das Elektron zentral, so lässt sich klassisch aus der Impulserhaltung berechnen, dass das Elektron auf maximal zweifache Projektilgeschwindigkeit beschleunigt werden kann. Treffen sie unter einem bestimmten Winkel zusammen, verringert sich diese Geschwindigkeit dementsprechend. Da das Elektron, um ins Kontinuum zu gelangen, noch eine Bindungsenergie aufbringen muss, lässt sich für die kinetische Energie des Elektrons nach dem Stoß sehr leicht abschätzen:

$$E_{kin}^e < 2v_p^2 m_e \cos(\Theta_{e,p})^2 - E_{bind} \quad (2.27)$$

Der absolute Wirkungsquerschnitt lässt sich aus obigem Matrixelement ermitteln, und man erhält für unterschiedliche Stoßsysteme folgende Abhängigkeit [McD70]:

$$\sigma \propto \frac{Z_P^2}{E_P \ln E_P} \quad (2.28)$$

Vergleicht man die berechneten totalen Wirkungsquerschnitte mit den experimentell bestimmten totalen Wirkungsquerschnitten, zeigte sich eine gute Übereinstimmung. Das macht deutlich, dass die Vernachlässigung der Kern-Kern-Wechselwirkung in der Ionisation bei kleinen Störungen eine weitgehend gute Näherung ist, was das vereinfachte Bild des Elektron-

Projektil-Stoßes oder auch der Binary-Encounter-Näherung zur Veranschaulichung etablierte. Auch differenzielle Wirkungsquerschnitte können zumindest qualitativ gut wiedergegeben werden. So zeigten die ersten koinzidenten Ionisationsmessungen, dass der Impulsübertrag des Projektils in Bewegungsrichtung des Projektils positive Werte annimmt. Der Longitudinalimpuls ist in Streuexperimenten, wie sie hier betrachtet werden, ein Maß für die Inelastizität einer Reaktion. Da die Energie, die für die Ionisation eines Elektrons benötigt wird, nur aus der Bewegungsenergie des Projektils kommen kann, führt das zu einer entsprechenden Impulsänderung des Projektils entlang der ursprünglichen Bewegungsrichtung. Da diese Bindungsenergien negativ sind, folgt daraus eine Abbremsung des Projektils und damit ein positiver Impulsübertrag auf die anderen Komponenten.

Für sehr hohe Geschwindigkeiten und kleine Projektilladungen konnten in Elektronenemissionsspektren, in denen der Impulsübertragsvektor durch das Projektil festgehalten wurde, die typische Doppelkeulenstruktur nachgewiesen werden, die aus $(e,2e)$ -Experimenten bekannt ist. Diese lässt sich mit der Binary-Encounter-Näherung qualitativ gut erklären [Fis03, Fis04]. Die größere der beiden Keulen zeigt in Richtung des Impulsübertragsvektors und wird als Ergebnis des direkten Stoßes zwischen Elektron und Projektil gesehen (Binary Peak), während bei der kleineren keulenartigen Struktur entgegengesetzt zum Impulsübertragsvektor davon ausgegangen wird, dass sie durch emittierte Elektronen entsteht, die am Targettrumpf streuen und so abgelenkt werden.

Für mittlere Geschwindigkeiten, wie sie hier betrachtet werden, sind die Strukturen nicht mehr so eindeutig. Je langsamer das Projektil ist, desto länger und damit auch stärker können Projektil- und Targetkern miteinander wechselwirken. Die Transversalimpulsübertrag wird bei Geschwindigkeiten, wie sie hier betrachtet werden, von Elektron und Rückstoßion zu etwa gleichen Teilen kompensiert. Zudem kann das freie Elektron mit dem Projektilkern länger wechselwirken, das Elektron wird durch diese Wechselwirkung mit dem Projektil mitbeschleunigt [Web99, Web00, Wan96]. Man spricht hier von Post-Collision-Interaction (PCI). Diese Impulsänderung wiederum muss durch das Rückstoßion ausgeglichen werden. Wie zu erwarten wird also mit größer werdender Störung der Drei-Körper-Charakter stärker deutlich. Eine Wechselwirkung zwischen Elektron und Projektil bleibt jedoch am wahrscheinlichsten [Web00].

Dies ändert sich für das Proton-Helium-Stoßsystem bei Projektilenergien von etwa 50-60 keV/u [Sch06]. Hier scheinen die Impulsspektren besser mit dem klassischen Bild der Sattelpunktionisation erklärbar zu sein, bei der sich das Elektron während des Stoßes aufgrund des leicht abgesenkten Potentials zwischen den beiden Kernen bewegt und bei ihrem Auseinanderbewegen im Kontinuum strandet [Irb89, Sch00]. Die störungstheoretische Beschreibung liefert hier keine guten Ergebnisse mehr, da die Elektronenbewegung im Zwei-Zentren-Potenzial der beiden Kerne betrachtet werden muss. Numerische Ansätze liefern in diesem Fall bessere Ergebnisse.

Um Effekte des Zwei-Zentren-Potenzials auch in der ersten Bornschen Näherung zumindest teilweise in den Berechnungen zu berücksichtigen und damit auch eine quantitativ bessere Übereinstimmung mit den differentiellen Wirkungsquerschnitten zu erreichen, hat sich eine Erweiterung der Bornschen Näherung etabliert: die Methode der gestörten Welle (CDW, engl. continuum distorted waves)[Che64, Cro09]. Hier wird der Endzustand durch eine Coulombwelle, die die Wechselwirkung von Targetelektron und Projektil beschreibt, verzerrt. Zusätzlich lässt sich dies auch für den Anfangszustand durch eine Eikonalphase (EIS, engl. eikonal initial state) erreichen. Die CDW-EIS-Theorie konnten daher PCI-Effekte in den Impulsspektren gut reproduziert werden.

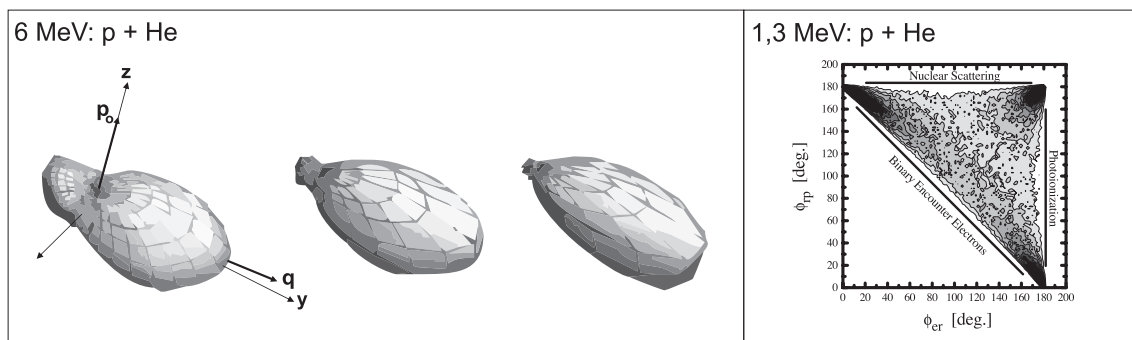


Abb. 2.5.: Die Binary-Encounter-Näherung bei der Einfachionisation. Links: drei-dimensionaler Polarplot für die Ionisation im (p+He)-Stoßsystem bei 6 MeV/u (aus [Fis04]). Bei hohen Projektilenergien zeigt die Emissionsrichtung des ionisierten Elektrons eine klare Doppelkeulenstruktur, die im Bild des klassischen Projektil-Elektron-Stoß (Binary-Encounter-Näherung) gut zu erklären ist. q ist hier der Impulsübertragsvektor durch das Projektil. Da der Longitudinalimpuls mit $\frac{1}{v_p}$ skaliert, ist er bei diesen Projektilenergien sehr klein. Durch die kurze Wechselwirkungszeit ist die Kern-Kern-Wechselwirkung ebenfalls gering. Von links nach rechts steigt die Energie des emittierten Elektrons an (6.5 eV, 11 eV, 15 eV). Rechts: Winkelverteilung in der Ebene transversal zur Ausbreitungsrichtung des Projektils aller drei Teilchen des Endzustands für die Einfachionisation des Stoßsystems (p+He) bei 1.3 MeV/u (aus [Web00]). Auf der x-Achse ist der Winkel zwischen Elektron und Rückstoßion in der transversalen Ebene aufgetragen, während auf der y-Achse der Winkel zwischen Projektil und Rückstoßion in der transversalen Ebene gezeigt wird. Bei der Kante rechts stoßen sich Elektron und Rückstoßion in der Transversalebene unter 180° , wie es auch in der Photoionisation der Fall ist. Bei Ereignissen, die im Bereich der oberen Kante liegen, fliegen Projektil und Rückstoßion unter 180° auseinander, was bei der reinen Kern-Kern-Streuung der Fall ist. Die schräge Kante repräsentiert dann dementsprechend die direkte Wechselwirkung zwischen Projektil und Elektron. Hier sind die meisten Ereignisse zu sehen, was ein Beweis für die Gültigkeit der Binary-Encounter-Näherung ist.

Im Limit sehr großer Geschwindigkeiten und hoher Kernladungen lässt sich die Ionisation durch die Absorption mehrerer (virtueller) Photonen aufgrund des starken elektromagnetischen Feldes des Projektils beschreiben [vW34, Mos97]. Durch die kurze Wechselwirkungszeit wird kaum Impuls durch das Projektil übertragen. Dadurch ähnelt die Elektronenimpulsverteilung tatsächlich der Dipolverteilung der Elektronenemissionsspektren, die bei einer Photoionisation beobachtet werden kann. Diese Ausführungen zeigen, dass es für verschiedenen Projektilgeschwindigkeiten und -ladungen unterschiedliche physikalische Bilder gibt.

Das macht noch einmal die Crux der Beschreibung atomphysikalischer Streuprozesse deutlich: Da man mathematisch nicht in der Lage ist, einen Prozess wie die Ionisation in seiner Ganzheit (mit allen Parametern) zu erfassen, kann man immer nur Teile der Realität abbilden.

Elektroneneinfang in der 1. Bornschen Näherung

Den Elektroneneinfang mit der Bornschen Näherung zu beschreiben, ist etwas schwieriger, da der gesamte Hamilton-Operator H zwar aufgrund der Energieerhaltung gleich bleiben muss, die ungestörten Hamilton-Operatoren vor und nach dem Stoß allerdings nicht. Ebenso ändert sich das Wechselwirkungspotenzial während des Stoßes. Es gilt:

$$H_i = H_{0,i} + V_i^S = -\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_R - \frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_r - \frac{Z_T e}{r} + \frac{Z_P Z_T}{R} - \frac{Z_P}{R-r} \quad (2.29)$$

$$H_f = H_{0,f} + V_f^S = -\frac{\hbar^2}{2\mu'} \nabla_{R'} - \frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_{r'} - \frac{Z_P e}{r'} + \frac{Z_P Z_T}{R'} - \frac{Z_T e}{R'-r'} \quad (2.30)$$

R ist hierbei der Abstand des Projektils vom Schwerpunkt von Targetkern und Elektron vor dem Einfang, während R' der Abstand des Targetkerns vom Schwerpunkt von Projektil und Elektron nach dem Einfang ist. r bzw. r' ist jeweils der Abstand des Elektrons zum jeweiligen Kern. Das Störpotenziale sind unterschiedlich und bestehen in beiden Fällen aus zwei Termen, der Kern-Kern-Wechselwirkung im jeweiligen System und der Wechselwirkung des Elektrons mit dem Kern, an den es nicht gebunden ist. Ebenso wie in der Ionisation setzen sich die Lösungen der ungestörten Systeme aus der Lösung einer ebenen Welle und des elektronischen Zustands zusammen:

$$|\varphi_i\rangle = e^{-ip_i R} |\varphi_i^T\rangle \quad (2.31)$$

$$|\varphi_f\rangle = e^{-ip_f R'} |\varphi_f^T\rangle \quad (2.32)$$

Gegenüber der Ionisation ergeben sich jedoch zwei Unterschiede. Durch die beiden unterschiedlichen Störpotenziale V_i^S und V_f^S lassen sich zwei Ausdrücke für das Matrixelement finden, die eine Uneindeutigkeit repräsentieren. Durch eine Koordinatentransformation kann gezeigt werden, dass diese beiden aufgrund des großen Überlapps der Wellenfunktionen zumindest für das p-H-System nahezu gleich sind [Jac53]. Zum anderen sind die Zustände $|\varphi_i^T\rangle$ und $|\varphi_f^T\rangle$ nicht orthogonal zueinander, da die beiden Hamilton-Operatoren H_i und H_f nicht gleich sind. Dadurch ergibt die Berechnung des Terms, der die Kern-Kern-Wechselwirkung darstellt, nicht Null. Es war der Ansatz von J. R. Oppenheimer [Opp28], der dann etwas später von H. C. Brinkman und H.A. Kramers [Bri33] aufgenommen wurde, die Kern-Kern-Wechselwirkung komplett zu vernachlässigen, d.h. das Matrixelement ohne den ersten Term des Störpotenzials zu berechnen.

In dieser Näherung, die heute als Oppenheim-Brinkman-Kramers-Näherung (OBK-Näherung)

bekannt ist, konnten H. C. Brinkman und H.A. Kramers einen Ausdruck für den Einfang-Wirkungsquerschnitt finden:

$$\sigma^{OBK} \propto \frac{1}{E_p^6} \quad (2.33)$$

Es zeigte sich, dass der Wirkungsquerschnitt für $v > 1$ a.u. die Realität zumindest qualitativ gut abbildet [Jac53]. Dies legte das physikalische Bild des kinematischen Einfangs (engl. velocity matching) nahe: Die Geschwindigkeit eines Elektrons in einem Wasserstoffatom beträgt etwa eine atomare Einheit. Je langsamer ein Projektil ist und je näher es dieser Geschwindigkeit kommt, desto wahrscheinlicher ist der Einfang. Es kommt hier auf das relative Verhältnis von Elektronen- und Projektilgeschwindigkeit an.

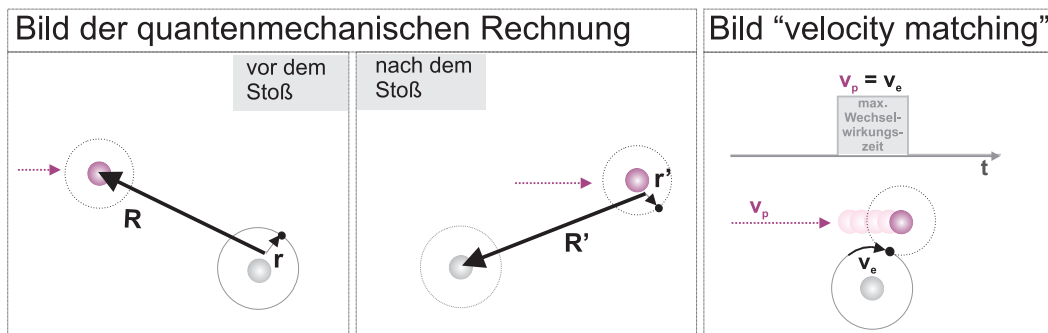


Abb. 2.6.: Elektroneneinfang. Links und Mitte: Bild, das der quantenmechanischen Berechnung zu Grunde liegt. Das Koordinatensystem ist im Anfangs- und Endzustand nicht mehr gleich. Dadurch ergeben sich nicht die Vereinfachungen wie bei der Ionisation. Rechts: Bild des 'velocity matching'. Wenn die Geschwindigkeiten von Projektil v_p und Elektron v_e gleich sind, besteht eine lange Wechselwirkungszeit und die Wahrscheinlichkeit für einen Einfang erhöht sich.

Quantitativ ergibt die Bornsche Näherung für den Wirkungsquerschnitt nicht wirklich ausreichend gute Ergebnisse. Dies liegt u.a. daran, dass die Kern-Kern-Wechselwirkung doch einen nicht zu vernachlässigenden Anteil ausmacht und im Störpotenzial berücksichtigt werden muss. Eine weitere Verbesserung kann wie bei der Ionisation auch durch die Methode der gestörten Wellen erreicht werden. Um der Drei-Körper-Dynamik Rechnung zu tragen, wird hier in einer Störungstheorie zweiter Ordnung mit der Fadeev-Gleichungen [Fad61] der Einfang-Prozess durch zwei Zwei-Körper-Wechselwirkungen (Projektil + (Target, Elektron) \rightarrow Target + (Projektil, Elektron) [Lov64, Dod66] berechnet.

Wie bei der Ionisation gibt es beim Elektroneneinfang ebenfalls noch weitere Mechanismen, die zum Wirkungsquerschnitt beitragen. Hierzu gehören der radiative Elektroneneinfang [Sha79] und der Thomas-Prozess [Tho27]. Beim erstgenannten wird beim Einfang ein Photon frei, wobei man sich bei großen Projektilgeschwindigkeiten vorstellt, dass dieses durch die Beschleunigung des Elektrons auf Projektilgeschwindigkeit emittiert wird, während bei kleinen Projektilgeschwindigkeiten die Emission bei einem entsprechenden molekularen Über-

gang stattfindet. Beim Thomas-Prozess wird das Elektron durch eine Doppelstreuung am Projektil- und Targetkern oder am Projektilkern und dem zweiten Elektron auf Projektilgeschwindigkeit beschleunigt und kann dadurch eingefangen werden. Dieser Prozess kann in einer Störungstheorie zweiter Ordnung behandelt werden. Die Wirkungsquerschnitte beider Prozesse fallen mit steigender Projektilenergie sehr viel langsamer als der durch den kinematischen Einfang. Dadurch gewinnen diese relativ zum kinematischen Einfang bei hohen Geschwindigkeiten an Bedeutung. Bei großen Störungen und kleinen Geschwindigkeiten geht man davon aus, dass das Elektron über verschiedene molekulare Zwischenzustände, die sich durch das Zwei-Zentren-Potenzial von Projektil und Target ergeben, in den Endzustand gelangt.

Doppelter Elektroneneinfang und Transferionisation in der Bornschen Näherung

Sowohl beim doppelten Elektroneneinfang als auch bei der Transferionisation spielt ein zweites Elektron eine Rolle. Zum Hamiltonoperator im Anfangszustand kommt zum einen ein Term hinzu, der das zusätzliche Elektron im Coulompotenzial des Targetkerns beschreibt. Zum anderen muss streng genommen ein weiterer Term berücksichtigt werden, der der Wechselwirkung der beiden Elektronen entspricht [Gay81]:

$$H_i = -\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_R - \frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_{r_1} - \frac{Z_T e}{r_1} - \frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_{r_2} - \frac{Z_T}{r_2} - \frac{e^2}{r_1 - r_2} \quad (2.34)$$

Das Wechselwirkungspotenzial entspricht vor dem Transfer bzw. vor dem Einfang:

$$V_i^S = \frac{Z_P Z_T}{R} - \frac{Z_P e}{R - r_1} - \frac{Z_P e}{R - r_2} \quad (2.35)$$

Doppelter Elektroneneinfang und Transferionisation sind streng genommen Prozesse zweiter Ordnung. In beiden Prozessen wechselwirkt das Projektil zweimal mit dem Target und sie müssten in einer Störungstheorie zweiter Ordnung behandelt werden. Rechnungen dieser Art sind sehr rechenaufwendig, daher wurden insbesondere zu Beginn derartige Zwei-Elektronen-Probleme mit einer Näherung erster Ordnung berechnet. Hierbei werden die beiden Elektronenübergänge als unabhängig betrachtet. Konkret bedeutet das, dass die Wechselwirkung der beiden Elektronen ($-\frac{e^2}{r_1 - r_2}$) in der Berechnung vernachlässigt wird. Diese Näherung wird als Independent Event/Particle Model bezeichnet. Der Wirkungsquerschnitt lässt sich in der semiklassischen Näherung (siehe Kapitel 2.1.3) aus den Wahrscheinlichkeiten der einzelnen Prozesse berechnen [Dun91] :

$$\sigma_{DC} = \int 2\pi b P_{DC} db = \int 2\pi b P_{SC1} P_{SC2} db \quad (2.36)$$

$$\sigma_{TI} = \int 2\pi b P_{TI} db = \int 2\pi b (P_{SC1} P_{SI2} + P_{SI1} P_{SC2}) db, \quad (2.37)$$

wobei man hier die Bedeutung der Wahrscheinlichkeiten im Independent Event bzw. im Independent Particle Model unterscheiden muss. Im Independent Particle Model beziehen sich die Wahrscheinlichkeiten auf die einzelnen Elektronen. P_{SC1} gibt dann die Wahrscheinlichkeit an, dass ein bestimmtes Elektron eingefangen wird [The79, Sid81]. Beim Independent Event Model bezieht sich die Wahrscheinlichkeit auf das Ereignis. P_{SC1} bezeichnet dann die Wahrscheinlichkeit, dass eines der beiden Elektronen beim ersten Mal eingefangen wird [Cro87, Dun91]. Im letzteren führt man entsprechend eine Art Zwischenzustand ein.

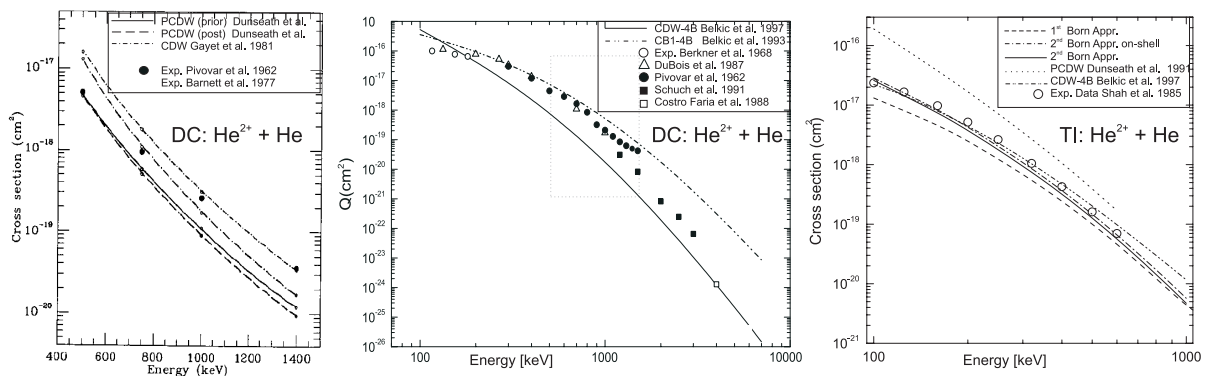


Abb. 2.7.: Wirkungsquerschnitte für den doppelten Elektroneneinfang (links und mitte) und die Transferionisation (rechts). Links: aus [Dun91]. Die beiden Einfänge wurden als unabhängig betrachtet (IEM). Die durchgezogenen und gestrichelten Kurven zeigen Rechnungen in der ersten Bornschen Näherung mit der Berücksichtigung von statischen Korrelationseffekten durch die Wahl einer entsprechenden Targetwellenfunktion, die strich-punktieren Kurven von Gayet et al. [Gay81] berücksichtigen keine Korrelationseffekte. Die Punkte repräsentieren Ergebnisse aus entsprechenden Messungen [Piv62]. Mitte: aus [Bel10]. Der Graph zeigt neuere Rechnungen zum doppelten Elektroneneinfang, die auch dynamische Korrelationseffekte berücksichtigen. 'CDW-4B' steht für die Rechnung mit gestörten Wellen in erster Bornschen Näherung, wobei die Zweiteilchenwechselwirkung aller vier Teilchen miteinbezogen wurde. Bei der 'CB1-4B' wurde reine Kontinuumszwischenzustände nicht berücksichtigt. Die experimentellen Daten stammen von [Ber68, DuB87, Piv62, Sch91, dCF88]. Der Kasten zeigt den Teilbereich, der dem Graphen links entspricht. Rechts: aus [God06]. Der Graph zeigt eine Rechnung in der zweiten Born-Näherung im Vergleich mit der PCDW-Rechnung, die nur statische Korrelationseffekte berücksichtigt und einer CDW-4B [Bel97], die dynamische Korrelation miteinbezieht. Die experimentellen Ergebnisse sind von Shah et al. [Sha85].

Diese Herangehensweise wird von den Ergebnissen auf der experimentellen Seite unterstützt. Experimentelle Ergebnisse zeigen, dass der Wirkungsquerschnitt sowohl für die Transferionisation als auch den doppelten Elektroneneinfang von Alphateilchen mit Projektilenergien größer 25 keV stark abfällt (siehe Abbildung 2.7) und damit ein sehr ähnliches Verhalten wie der des einfachen Elektroneneinfangs aufweist. Mit dem Bild unabhängiger Prozesse lässt sich dieses Verhalten in beiden Fällen anschaulich gut erklären. Tatsächlich zeigen Resultate, die sich aus dem Independent Event Model (IEM) [Dun91] ergaben, zumindest qualitativ gute Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen.

Prozesse, wie der Shake-over- und der Shake-off-Prozess [McG82, McG88], die in den 1980ern als weitere Ionisations- bzw. Einfangprozesse vorgeschlagen wurden, wurden mit dieser Herangehensweise nicht berücksichtigt. Bei diesen Mechanismen führt der Verlust eines Elektrons zu einer sehr schnellen Änderung des effektiven Potentials. Beim Shake-Over wird dadurch ein Elektron in das Projektil 'geschüttelt', während im zweiten Fall ein Elektron ins Kontinuum 'geschüttelt' wird. In beiden Prozessen spielte die Wechselwirkung der beiden aktiven Elektronen, auch Korrelation genannt, eine entscheidende Rolle. Statische Korrelationseffekte der Elektronen konnten durch die Wahl einer Wellenfunktion berücksichtigt werden, die explizit von den Relativkoordinaten der beiden Elektronen abhängt (Pluvillage-Wellenfunktion z.B. in [Mou90]). Dynamische Korrelationseffekte wie z.B. Streuung konnten erst mit einer anderen Herangehensweise miteinbezogen werden: Belkic et al. [Bel97, Bel10] entwickelten innerhalb der Bornschen Näherung mit gestörten Wellen eine Methode, die unter Berücksichtigung der Zweiteilchenwechselwirkung aller vier Teilchen (zwei Elektronen, zwei Atomkerne) gute Übereinstimmung mit den Wirkungsquerschnitten erreichte.

Experimentell kann zwischen dem Shake-over-Prozess und dem kinematischen Einfang nicht unterschieden werden, da die Energiebilanz und daher die Struktur des Longitudinalimpulses (in Strahlrichtung) in beiden Fällen gleich sein müssen. Bei der Transferionisation jedoch wird zusätzlich eines der Elektronen emittiert, das Impuls und Energie tragen kann. Dadurch wird eine weitere Information gewonnen, die einen möglichen Fingerabdruck der unterschiedlichen Prozesse liefern kann. Schöffler et al. [Sch05] war es möglich, die Transferionisation an Helium mit verschiedenen Projektilen in einem Projektilenergiebereich zwischen 40 keV/u und 630 keV/u zu untersuchen. Hierbei wurden die Impulse von Projektil, Rückstoßion und Elektron koinzident gemessen. Es stellte sich heraus, dass sich mit zunehmender Projektilenergie die Struktur des Elektronenlongitudinalimpulses änderte.

Ein Teil der Ergebnisse ist in Abbildung 2.8 zu sehen. Es scheint mit größer werdender Projektilenergie immer mehr Elektronen zu geben, die rückwärts gegen die Projektilrichtung gestreut werden. Bei den Elektronen mit positivem Longitudinalimpuls wurde davon ausgegangen, dass sie durch den direkten Stoß zwischen Elektron und Projektil ('Binary Encounter') entstehen. Rechnungen von Godunov et al. [God05, Sch05, Sch06] zeigten nun für das (H^+, He)-Stoßsystem bei 630 keV, dass die rückwärts gestreuten Elektronen nicht vom Recoilpeak der Ionisation stammen können, sondern in einem Shake-Off-Prozess emittiert werden. In den Berechnungen von Godunov et al. [God05] wurde mit einer Bornschen Näherung erster Ordnung die Übergangsamplituden für die beiden Fälle derart bestimmt, dass als erstes ein Einfang bzw. als erstes eine Ionisation stattfindet. Bei der Berechnung der Wellenfunktion des Heliumatoms wurde die Wechselwirkung der Elektronen berücksichtigt. Dadurch wurden durch die Übergangsamplituden auch teilweise Übergänge beschrieben, die durch Korrelation stattfinden, also Shake-Off und Shake-Over. Um den differentiellen Wirkungsquerschnitt zu ermitteln, der die Elektronenverteilung darstellt, wurden diese beiden Amplituden entspre-

chend kohärent addiert und das Betragsquadrat gebildet.

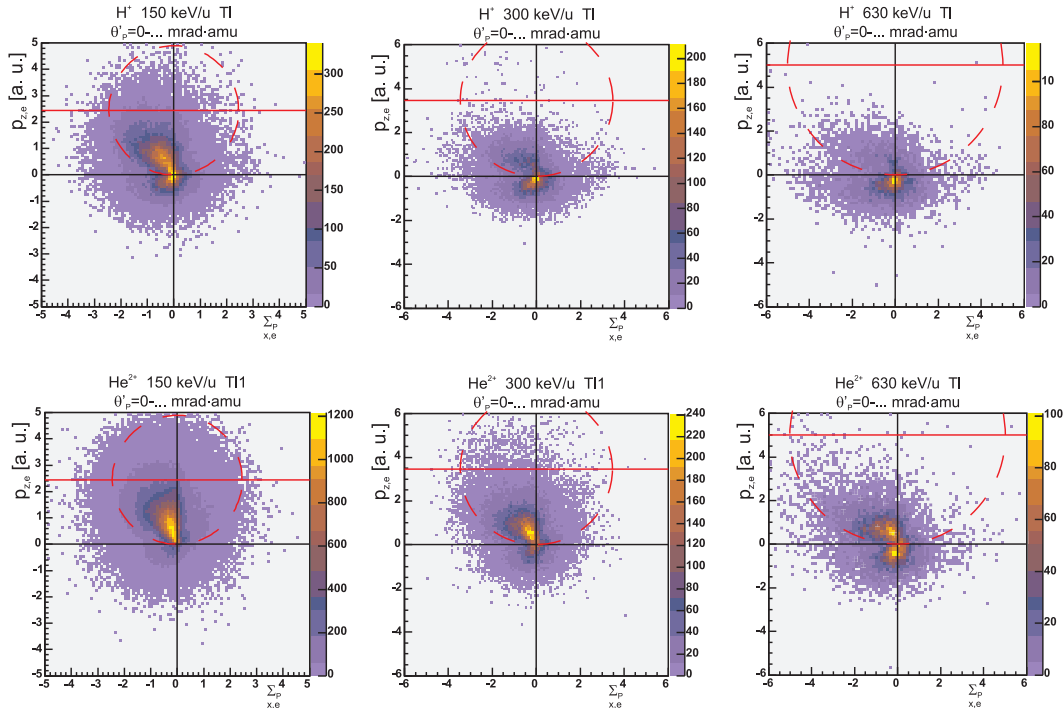


Abb. 2.8.: oben: Elektronenimpulsverteilung der Transferionisation des (H^+ ,He)-Stoßsystems für verschiedene Energien. unten: Elektronenimpulsverteilung der Transferionisation des (He^{2+} ,He)-Stoßsystems für verschiedene Energien. Die Impulse sind in der Streuebene dargestellt, was bedeutet, dass der Projektiltraversalsimpuls immer nach rechts zeigt. Bei kleinen Energien streuen die Elektronen überwiegend nach vorne (positiver Longitudinalimpuls). Mit größer werdender Projektilenergie zeigen die Bilder einen zunehmenden Anteil an Elektronen mit negativem Longitudinalimpuls. Als Ursache für den Peak in Vorwärtsrichtung wird daher der direkte Projektil-Elektronen-Stoß gesehen, während der Peak in Rückwärtsrichtung als Fingerabdruck des Shake-Off-Prozesses gilt.

Das Besondere bei diesen Berechnungen war, dass bei der Bestimmung der Wellenfunktion des Heliums auch Zustände mit höheren Drehimpulsen berücksichtigt wurden, wodurch eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten erreicht wurde. Auch wenn die anderen beiden Stoßsysteme (He^+ ,He) und (He^{2+} ,He) nicht ganz so deutliche Strukturen aufwiesen, geht man nach heutigem Kenntnisstand davon aus, dass Elektronen mit einem Impuls in Vorwärtsrichtung durch einen direkten Stoß mit dem Projektil emittiert werden, während Elektronen mit einem negativen Longitudinalimpuls durch einen Shake-Off-Prozess ins Kontinuum gelangen.

Aus Abbildung 2.8 unten links lässt sich schließen, dass die Ionisation für das (He^{2+} ,He)-Stoßsystem mit einer Projektilenergie 150 keV/u hauptsächlich durch den direkte Stoß zwischen Projektil und Elektron stattfindet. Für den Elektroneneinfang wird bei diesen Energien der kinematische Einfang stark dominieren. Daher kann in erster Näherung bei der hier be-

trachteten Projektilenergie davon ausgegangen werden, dass der doppelte Elektroneneinfang sich anschaulich aus zwei einzelnen kinematischen Einfang-Prozessen zusammensetzt und sich die Transferionisation als eine Anreihung aus Projektil-Elektron-Stoß und kinematischem Einfang beschreiben lässt.

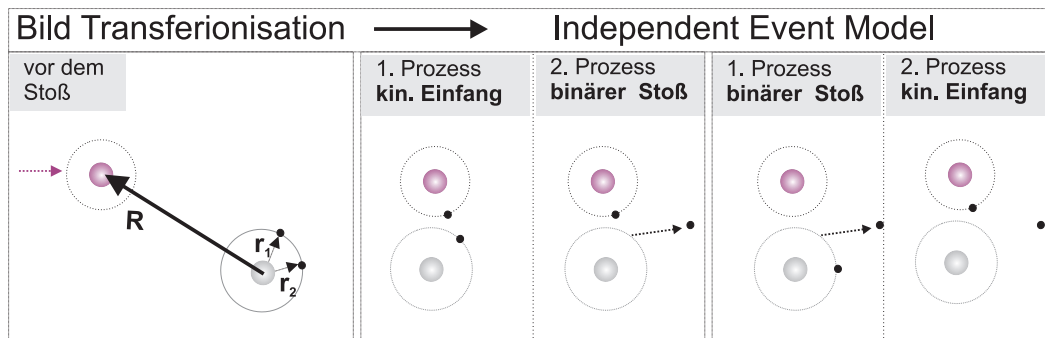


Abb. 2.9.: Darstellung der Transferionisation. In der Näherung des Independent Event Models werden die Elektronenübergänge unabhängig betrachtet. Die Transferionisation kann man dementsprechend in einen Einfang und eine Ionisation zerlegen. Bei diesen Projektilenergien sind der kinematische Einfang und der binäre Stoß die Hauptmechanismen. Nach diesem Modell kann die Transferionisation daher je nach Reihenfolge auf zwei verschiedene Arten stattfinden, die man in der theoretischen Berechnung berücksichtigen muss.

2.1.3. Numerische Lösung der Schrödingergleichung

Wie im letzten Abschnitt bereits erwähnt wurde, ist es die lange Reichweite des Coulombpotenzials, die bei der Behandlung eines Stoßproblems und der Lösung der Schrödingergleichung Probleme bereitet. Selbst bei den Projektilenergien, die hier betrachtet werden und bei denen die Störung klein ist, gibt es Ionsiations- und Einfangmechanismen, deren Ursache in dieser langen Reichweite der Wechselwirkung zu liegen scheinen. Aus diesem Grund unternahm und unternimmt man auf theoretischer Seite große Anstrengung, numerische Methoden zu entwickeln, mit denen die zeitabhängige Schrödingergleichung gelöst werden kann. Eine Methode ist die bereits erwähnte gekoppelte Kanälerrechnung. Die Grundidee ist, mit einer Basis an Wellenfunktionen einen Ausdruck für die Wahrscheinlichkeitsamplituden zu erhalten, mit dem dann der Wirkungsquerschnitt berechnet werden kann. Die Basis-Wellenfunktionen können Lösungen für ein Ein-Zentren-Potenzial [Pon00, Iga00] aber auch für ein Zwei-Zentren-Potenzial [Bat58, Fu01, Tos99, Pie91] sein. Eine zweite grundsätzliche Methode beinhaltet die Schrödingergleichung auf einem Gitter im Ortsraum zu berechnen [Wel96, Sch99]. Man erhält die Wellenfunktion für verschiedene Punkte im Raum ($\Psi(x, y, z) \rightarrow \Psi(x_1, y_1, z_1)$). Mit den gewonnenen Lösungen lässt sich die Wahrscheinlichkeit für einen Prozess bestimmen.

Im Folgenden soll nun kurz ein weiterer numerischer Ansatz vorgestellt werden. Er unterscheidet sich von der klassischen gekoppelten Kanälerechnung insofern, als dass nicht eine größtmögliche Basis ausgewählt wird, um die Wirkungsquerschnitte mit hoher Präzision zu beschreiben, sondern nur eine begrenzte Anzahl an Basiswellenfunktionen. Die Methode heisst Basis-Generator-Methode und wird im ersten Abschnitt vorgestellt.

Die Wellenfunktionen, die hierbei benutzt werden, werden im Rahmen der Dichtefunktionaltheorie hergeleitet. Durch sie kann die Schrödinger-Gleichung für ein N-dimensionales Elektronensystem gelöst werden, indem man das Problem auf die Lösung von N Differentialgleichungen zurückführt und diese numerisch berechnet. Der Vorteil und gleichzeitig Nachteil der Dichtefunktionaltheorie ist, dass sie wie die Hartree-Fock-Methode die Zweiteilchenwechselwirkung der Elektronen vernachlässigt. Dadurch können keine Aussagen über Korrelationseffekte gemacht werden, die auch im Mittelpunkt des Interesses sind. Umgekehrt ermöglicht sie dadurch aber, Mehrelektronensysteme überhaupt erst quantenmechanisch behandeln zu können. Die Grundlagen der Dichtefunktionaltheorie werden im zweiten Abschnitt kurz erläutert. Im dritten Abschnitt wird kurz ausgeführt, wie im Rahmen dieses Ansatzes mit der semiklassischen Näherung die Verteilung der Stoßparameter gewonnen werden kann.

Die Basis-Generator-Methode

Die prinzipielle Idee der Basis-Generator-Methode (BGM) ist, dass die Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung einen eindimensionalen Unterraum des Hilbertraums definiert. In diesem Fall ist es ausreichend, einen Unterraum zu finden, der die Lösung zu jedem Zeitpunkt vollständig enthält. Man ist dann nicht mehr auf der Suche nach der vollständigen Basis, die den Hilbertraum aufspannt, sondern einer sehr viel kleinere Basis, die einen Unterraum formt. Es konnte gezeigt werden, dass eine solche zeitabhängige Basis gefunden werden kann, indem der Operator, der die Wechselwirkung enthält, mehrmals auf ein die Basis des ungestörten Anfangszustandes angewendet werden kann [Lud93, Lüd96, Kro99]. Der Operator der Wechselwirkung ist nach der zeitabhängigen Schrödingergleichung gegeben durch:

$$O = H(t) - i\partial_t \quad (2.38)$$

Der Anfangszustand ist gegeben durch die Eigenfunktionen des ungestörten Systems:

$$H_0 |\phi_v^0\rangle = E_v |\phi_v^0\rangle \quad v=0, 1, 2, \dots, V \quad (2.39)$$

Aus diesem lässt sich nun die Basis wie folgt generieren:

$$|\phi_v^u(t)\rangle = O |\phi_v^{(u-1)}(t)\rangle = O^u |\phi_v^0\rangle \quad v=0, 1, 2, \dots, V \quad u=0, 1, 2, \dots, U \quad (2.40)$$

Es kann gezeigt werden, dass die Zustände $|\phi_v^u(t)\rangle$ linear unabhängig sind. Durch diesen Ansatz entsteht zu jedem Zeitpunkt eine u -fache Hierarchie an Unterräumen A^u . Ihre Gesamtheit bildet einen 'dynamischen' Unterraum A^{UV} des Hilbertraums. Der komplementäre Raum zu A ist infinit, d.h. wird von unendlich vielen Basiszuständen aufgespannt. Man kann nun für die Zustände des Unterraums A^{UV} zeigen, dass, wenn man sie in die Grundgleichung der gekoppelten Kanalrechnung einsetzt, sich prinzipiell auf der rechten Seite zwei Terme bilden:

$$-\frac{\hbar}{i} \sum_{u=0}^U \sum_{v=0}^V \langle \phi_K^k(t) | \phi_v^u(t) \rangle \dot{a}_v^u(t) = \sum_{u=0}^U \sum_{k=0}^N a_v^u(t) \langle \phi_K^k(t) | O | \phi_v^u(t) \rangle + i |\Omega_k^{VU}(t)\rangle \quad (2.41)$$

Der linke Term beschreibt die Kopplung der Zustände untereinander. Der rechte Term enthält das Matrixelement $|\Omega_k^{VU}(t)\rangle$, das die Kopplung der Zustände von A^{UV} mit den Zuständen des infiniten komplementären Unterraums beschreibt. Aufgrund dieses Terms kann die Wahrscheinlichkeitsamplitude $a_v^u(t)$ und damit die Zeitenwicklung des System nicht numerisch bestimmt werden. Es lässt sich nun aber zeigen, dass der Zustand $|\Omega_k^{VU}(t)\rangle$ für den Fall $u < U$ Null ergibt. Das bedeutet, dass nur die Zustände des 'hierarchisch' höchsten Unterraums $|\phi_v^U(t)\rangle$ mit dem infiniten komplementären Raum koppeln.

In der numerischen Rechnung wird die Schrödingergleichung in der Zeit diskretisiert. Der eben erwähnte Zusammenhang bedeutet nun, so lange U größer ist als die Anzahl der gemachten Zeitschritte, kann die Kopplung an den komplementären Raum vernachlässigt und die Zeitentwicklung des Systems bestimmt werden.

Die iterative Anwendung des Operators O führt zu einer mathematisch komplizierten Struktur der Lösungen. Daher wird meistens eine alternative Formulierung für die Zustände gesucht, die ebenfalls nach dem Wechselwirkungspotenzial entwickelt wird:

$$|\chi_\nu^u(t)\rangle = V(t)^u |\chi_\nu^0\rangle \quad (2.42)$$

Für diese muss die gleiche mathematische Struktur gelten. Die BGM hat mittlerweile eine breite Anwendung im Bereich der Ion-Atom-Stöße gefunden (z.B. [Kir04, Kir02, Brä05, Kno05]).

Grundlagen der Dichtefunktionaltheorie

Befindet sich ein Mehrelektronensystem ganz allgemein in einem äußeren Coulombfeld wie dem eines ionischen Projektils, so lässt sich der Hamiltonoperator in drei Teile zerlegen [Lüd03]:

$$H(t) = T + W + V(t) = \sum_{j=1}^N -\frac{1}{2} \nabla_j^2 + \sum_{i < j=1}^N -\frac{1}{r_i - r_j} + \sum_{j=1}^N v(r_j, t) \quad (2.43)$$

Der erste Term entspricht der kinetischen Energie der Elektronen, der zweite der Wechselwirkung der Elektronen untereinander. $V(t)$ ist das von außen gegebene Potenzial, das eine

explizite Zeitabhängigkeit besitzt und die Geometrie des Systems vorgibt. Hierbei ist es wichtig, dass dieses zerlegt werden kann in die Coulombwechselwirkung jedes einzelnen Elektrons mit dem äußeren Feld $v(r_j, t)$.

Die zentrale Größe der Dichtefunktionaltheorie ist die so genannte Einelektronenwahrscheinlichkeitsdichte. Für ein Einelektronensystem entspricht diese direkt der Wahrscheinlichkeitsdichte des Systems:

$$\gamma^1(r, t) = \int |\Psi(r, t)|^2 d^3r \quad (2.44)$$

wobei \mathbf{r} der Ortsvektor ist. Die Wahrscheinlichkeit, das Elektron an einem bestimmten Ort zu finden beträgt mit dieser Nomenklatur $P = \gamma^1 d^3r$. Bei einem System aus N Elektronen muss man, um die Dichte eines beliebigen Elektrons zu bekommen, über die Koordinaten und den Spinzustand der restlichen Elektronen, die nicht 'betrachtet' werden, integrieren und dies mit den N Möglichkeiten, ein Elektron herauszusuchen, multiplizieren. Es gilt also:

$$n(r, t) = n(r_1, t) = N \int |\Psi(x_1, x_2, \dots, x_N, t)|^2 d^4x_2 \dots d^4x_N, \quad (2.45)$$

wobei $x_j = (r_j, s_j)$ ein Vektor ist, der die Ortskoordinaten r und den Spinzustand s des j -ten Elektrons enthält. Der Ausdruck d^4x_j entspricht dementsprechend einer Integration über Ortskoordinaten und Spin. Wie man in Gleichung 2.45 sieht, lässt sich für ein von außen gegebenes Potential $v(r, t)$ und einen gegebenen Anfangszustand prinzipiell zu jedem Zeitpunkt eine eindeutige Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung finden. Das so genannte Runge-Gross-Theorem besagt nun, dass es für jedes Einteilchen-Potenzial, das in einer Taylorreihe für $t = t_0$ entwickelt werden kann, eine eindeutige Einteilchendichte $n(r, t)$ gibt. Eine solche eindeutige Zuordnung lässt sich invertieren, was wiederum bedeutet, dass zu jeder Einteilchendichte ein eindeutiges Einteilchenpotenzial gefunden werden kann, was wiederum einer eindeutigen Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung zugeordnet werden kann:

$$n(r, t) \rightarrow v(r, t) \rightarrow \Psi(t), \quad (2.46)$$

die durch einen Anfangszustand Ψ_0 gegeben ist. Dieses Theorem gilt allgemein für jedes Wechselwirkungspotenzial W , das die Form wie in Gleichung 2.43 besitzt, aber auch für den Fall, dass W vernachlässigt wird. Nimmt man dies an, lässt sich die Einteilchendichte prinzipiell durch N Einteilchenwellenfunktionen darstellen

$$n(r, t) = \sum_{j=1}^N |\phi_j(r, t)|^2 \quad (2.47)$$

die alle die Schrödingergleichung eines Einteilchensystems der Form

$$i\partial_t \phi_j(r, t) = \left(-\frac{1}{2} \nabla_j^2 + v_{KS} \right) \phi_j(r, t) \quad (2.48)$$

erfüllen. v_{KS} wird das Kohn-Sham-Potenzial genannt und die komplette Gleichung Kohn-Sham-Gleichung. Voraussetzung ist, dass es ein solches Potenzial gibt. Im Allgemeinen hat es eine Form

$$v_{KS} = v(r, t) + v_H(r, t) + v_{XC}(r, t) , \quad (2.49)$$

wobei $v(r, t)$ die bereits erwähnte Wechselwirkung eines Elektrons mit dem äußeren Feld ist. $v_H(r, t)$ ist das Hartree-Potenzial, das die Abschirmung des äußeren Feldes durch die anderen Elektronen beinhaltet, während $v_{XC}(r, t)$ einen Austauschterm darstellt. Die große Schwierigkeit besteht nun darin, dieses zu bestimmen. Hierzu sind weitere Näherungen notwendig, für die auf weiterführende Literatur verwiesen wird.

Die in Gleichung 2.48 definierten Zustände werden in der Basisgeneratormethode als Anfangszustände genutzt, aus denen alle weiteren Zustände abgeleitet werden können.

Die semiklassische Näherung und die Stossparmeterverteilung

In der semiklassischen Näherung wird die Projektilbewegung nicht durch die Bewegung eines Wellenpakets beschrieben, sondern durch eine klassische gerade Trajektorie $R(t) = (b, 0, v_p t)$. b ist hierbei der Stoßparameter und v_p die Geschwindigkeit des Projektils. Diese Näherung macht jedoch nur dann Sinn, wenn nach der Heisenbergschen Unschärferelation ($b p_{trans} > \frac{\hbar}{2}$) jeder Trajektorie eindeutig ein Stoßparameter zugeordnet werden kann. Für eine elastische Streuung erhält man für den Stoßparameter und den transversalen Impuls in atomaren Einheiten den Zusammenhang $b = Z_P Z_T \frac{2}{v_P p_{trans}}$. Damit ergibt sich als Bedingung für die semiklassische Näherung in atomaren Einheiten:

$$Z_P Z_T > v_p \quad (2.50)$$

Die Kernladungszahl von Projektil und Targetatom beträgt 4. Die hier betrachteten Projektilgeschwindigkeiten sind etwa 2.5 a.u.. Dementsprechend ist eine semiklassische Näherung gerechtfertigt. Für das Wechselwirkungspotenzial zwischen Targetatom und Projektil ergibt sich mit dieser Näherung zu:

$$V(t) = \sum_{j=1}^N v(r_j, t) = \sum_{j=1}^N \left(\frac{Z_T}{r_j} + \frac{-Z_P}{|r_j - R(t)|} \right) \quad (2.51)$$

Im Rahmen des Independent-Particle-Modell lassen sich die Elektronen als unabhängig betrachten. Die Übergangswahrscheinlichkeit $p(b)$ eines einzelnen Elektrons kann man berechnen aus der Projektion der Lösungen der Einteilchen-Kohn-Sham-Gleichungen 2.48, die den Anfangszustand definieren, zum Zeitpunkt $t = t_f$ auf die gebundenen Zustände des Projektils und Targetatoms. Genauer gesagt ergibt sich die Einteilchen-Übergangswahrscheinlichkeit für

einen bestimmten Abstand b aus dem Quadrat des Skalarprodukts der Zustände:

$$p(b) = \langle \phi_{KS} | \phi_f \rangle \quad (2.52)$$

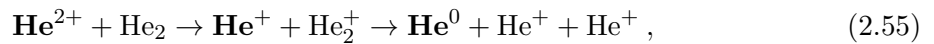
Der komplette Wirkungsquerschnitt ergibt sich aus der Integration über den kompletten Stoßparameterbereich. Wenn man mehrere Elektronen betrachtet, kann die Gesamtwahrscheinlichkeit $P(b)$ q Elektronen in bestimmten Zuständen $\phi_{f1}, \phi_{f2}, \phi_{f3}$ zu finden, während die anderen $(N-q)$ Elektronen nicht detektiert wurden, als $(q \times q)$ Determinante der Einteilchen-Dichte-Matrix ausgedrückt werden. Wenn die Anzahl der Endzustände groß ist, lässt sich die Determinanten-Struktur vernachlässigen. Man erhält für einen einfachen Elektroneneinfang bzw. eine Einfachionisation an einem Zweielektronensystem wie Helium folgenden vereinfachten Ausdruck für die Gesamtwahrscheinlichkeit:

$$P_I(b) = \binom{2}{1} p_I(b) (1 - p_I(b))^{2-1} \quad (2.53)$$

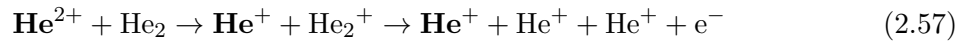
$$P_{SC}(b) = \binom{N_P}{1} p_{cap}(b) (1 - p_{cap}(b))^{N_P-1} \quad (2.54)$$

Dies entspricht dem Ausdruck, den man von der Binomialverteilung kennt. Für das hier untersuchte Stoßsystem ist das Projektil ein Alphateilchen, N_P als die maximale Anzahl, die das Projektil einfangen kann, ist damit ebenfalls 2.

Die Stoßparameterverteilung, die mit dieser Methode gewonnen wurde, wird benutzt, um sie mit den experimentellen Daten des Zwei-Stufen-Prozesses zu vergleichen. Bei diesem Prozess wechselwirkt das Projektil nacheinander mit beiden Zentren des Dimers. Ein doppelter Elektroneneinfang teilt sich hier tatsächlich in zwei unabhängige Einfacheinfänge auf:



während die Transferionisation sich aus einem Ionisationsprozess und einem Einfacheinfang zusammensetzt:



Für die Transferionisation ergibt sich je nach Reihenfolge der Prozesse zwei Möglichkeiten. Insgesamt benötigt man zur Beschreibung dieser Einzelprozesse vier unterschiedliche Stoßparameter-Verteilungen, zum einen für die Einfänge in den Stoßsystemen $(\mathbf{He}^{2+} + \mathbf{He})$ und $(\mathbf{He}^+ + \mathbf{He})$, zum anderen für die Ionisationsprozesse in den Stoßsystemen $(\mathbf{He}^{2+} + \mathbf{He})$ und $(\mathbf{He}^+ + \mathbf{He})$.

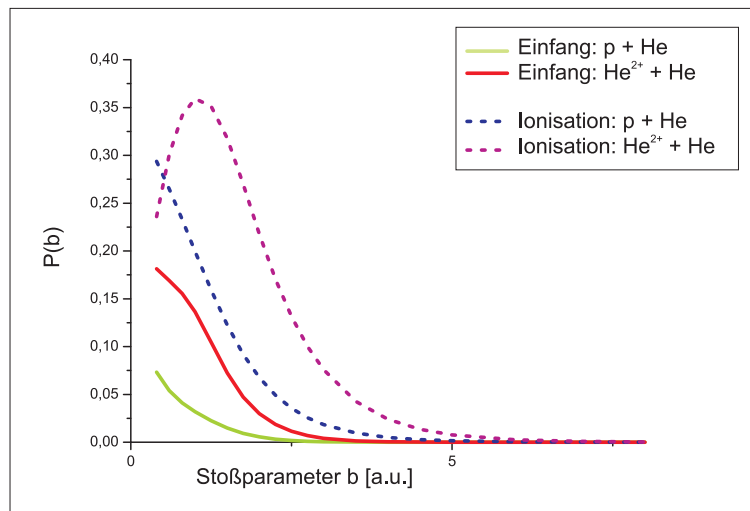


Abb. 2.10.: Stoßparameterverteilungen, wie man sie aus der geschilderten theoretischen Herangehensweise erhält. Sie werden in Kapitel 5 benutzt, um die Verteilung des Winkels zwischen Dimerachse und Bewegungsrichtung des Projektils zu reproduzieren. Da sich die Stoßparameter des He^+ -Ions für den Einfang ($\text{He}^+ + \text{He}$) bzw. für die Ionisation ($\text{He}^+ + \text{He}$) kaum von denen eines Protons (p) unterscheiden, werden die Daten für den Einfang und die Ionisation des Stoßsystems ($\text{p} + \text{He}$) verwendet.

Wenn das Projektil mit dem Dimer in zwei unabhängigen Schritten wechselwirkt, kann die Dimerachse nur in einem bestimmten Winkel zur Projektilstrahlrichtung stehen, damit es innerhalb des in Abbildung 5.23 gezeigten Stoßparameterbereichs zu einer Reaktion kommen kann. Die Wahrscheinlichkeitsverteilung des Winkels zwischen Dimerachse und Projektilstrahlrichtung ist damit eine Funktion des Stoßparameters. In Kapitel 5 wird dieser Zusammenhang anhand der gewonnenen Daten näher erläutert.

2.2. Kinematik von Ion-Atom-Stößen

In dem hier verwendeten Aufbau wird ein gekühlter Überschallgasstrahl mit einem Ionenstrahl unter 90° gekreuzt. Die Bewegung der Gastome bzw. Dimere ist durch diese spezielle Präparation gerichtet. Die Impulskomponente der Gasteilchen in Ausbreitungsrichtung ist bekannt und kann dadurch von der Impulsbilanz subtrahiert werden, die Impulse transversal dazu können aufgrund ihrer Größe vernachlässigt werden. Dies bedeutet, dass für die folgenden Betrachtungen vereinfachend angenommen werden kann, dass die Gasteilchen, und damit die Targetatome bzw. -dimere, vor der Reaktion in Ruhe sind. Lediglich das Projektil besitzt einen Impuls. Es bietet sich daher an, dass seine Ausbreitungsrichtung eine Achse des Koordinatensystems definiert, hier wird sie als z-Achse gewählt. Die Achsen transversal zu ihr werden, wie es üblich ist, als x- und y-Achse bezeichnet.

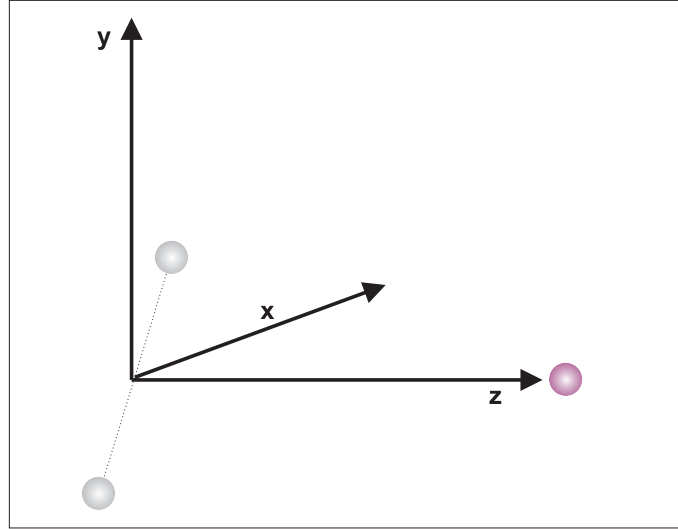


Abb. 2.11.: Koordinatensystem des Ion-Molekül-Stoßes. Die Bewegungsrichtung des Projektils definiert die z-Achse.

Nach einem inelastischen Stoß liegen je nach Reaktion bzw. Targetstruktur (Atom, Molekül bzw. Cluster) verschiedenen Fragmente vor, für die Impuls- und Energierhaltung gilt. Ein Molekül bzw. ein Dimer kann im Gegensatz zu einem Atom durch den Stoß mit dem Projektil zusätzlich dissoziieren bzw. Coulomb explodieren. Zur Vereinfachung wird im Folgenden jedoch nur der Impulsübertrag auf den Schwerpunkt (CM = center of mass) des jeweiligen Systems betrachtet. Dann gilt für die Impulserhaltung:

$$\begin{pmatrix} p_x^{p,i} \\ p_y^{p,i} \\ p_z^{p,i} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} p_x^{p,f} + p_x^{R,CM} + \sum^n p_x^e \\ p_y^{p,f} + p_y^{R,CM} + \sum^n p_y^e \\ p_z^{p,f} + p_z^{R,CM} + \sum^n p_z^e \end{pmatrix} \quad (2.58)$$

Die Indizes R und e stehen für Rückstoßion und Elektron. Der Index n bezeichnet die Anzahl der frei gewordenen Elektronen.

Betrachtet man die Energiebilanz, so besteht die Energie vor dem Stoß aus der kinetischen Energie des Projektils und den Bindungsenergien aller Elektronen. Nach dem Stoß müssen noch zusätzlich die kinetische Energie der Rückstoßionen und Elektronen, sowie ein Energierterm $E^{\gamma, KER}$, der sich aus energetischen Übergänge innerhalb des Moleküls bzw. Dimers während der Reaktion ergibt, berücksichtigt werden. Für Projektilenergien, wie sie hier betrachtet werden, lässt sich zeigen (Anhang A), dass der Impulsübertrag in Strahlrichtung (z-Achse) auf das Rückstoßion bzw. den Schwerpunkt der ionischen Fragmente eine Art Fingerabdruck

der gesamten Reaktionskinematik ist. Er repräsentiert die Inelastizität des Stoßes:

$$\begin{aligned}
 p_z^{R,CM} = & - \frac{Q}{v_p} - \frac{n_c m_e v_p}{2} && \text{(Einfang)} \\
 & + \frac{\sum^{n_T} (E_{kin}^e - E_{bind}^i)}{v_p} - \sum^{n_T} p_z^e && \text{(Targetionisation)} \\
 & + \frac{n_p m_e v_p}{2} + \frac{\sum^{n_P} (E_{kin}^e - E_{bind}^i)}{v_p} - \sum^{n_P} p_z^e && \text{(Projektilionsation)} \\
 & + \frac{E^{\gamma, KER}}{v_p} && \text{(Photon, KER)}
 \end{aligned}$$

wobei m wieder der Anzahl aller gebundenen Elektronen entspricht, während n_T die Anzahl der freien Elektronen, die vom Target stammen, beschreibt, n_P hingegen stellt die Anzahl der freien Elektronen dar, die bei einer Ionsation des Projektils entstanden sind. n_c ist die Anzahl der eingefangenen Elektronen. Die Differenz der Bindungsenergien wird als Q -Wert bezeichnet.

Häufig ist es auch sinnvoll, die kinetische Energie im Projektilsystem darzustellen, d.h. in einem Koordinatensystem, das sich mit Projektilgeschwindigkeit mitbewegt. Es lässt sich leicht zeigen (siehe Anhang A), dass auch alternativ gilt:

$$\begin{aligned}
 p_z^{R,CM} = & - \frac{Q}{v_p} - \frac{n_c m_e v_p}{2} && \text{(Einfang)} \\
 & - \frac{n_T m_e v_p}{2} + \frac{\sum^{n_T} (\epsilon_{kin}^e - E_{bind}^i)}{v_p} && \text{(Targetionisation)} \\
 & + \frac{\sum^{n_P} (\epsilon_{kin}^e - E_{bind}^i)}{v_p} && \text{(Projektilionsation)} \\
 & + \frac{E^{\gamma, KER}}{v_p} && \text{(Photon, KER)}
 \end{aligned}$$

wobei ϵ die Energie im Projektilsystem ist. Für einen einfachen Einfang (SC, $n_C = 1$) bzw. den doppelten Elektronen (DC, $n_C = 2$) aus einem Molekül oder Dimer berechnet sich die z -Impulsübertrag aus den Schwerpunkt wie folgt:

$$\text{SC: } p_z^{R,CM} = -\frac{Q}{v_p} - \frac{m_e v_p}{2} + \frac{E^{\gamma, KER}}{v_p} \quad (2.59)$$

$$\text{DC: } p_z^{R,CM} = -\frac{Q}{v_p} - m_e v_p + \frac{E^{\gamma, KER}}{v_p}, \quad (2.60)$$

während sie sich für die Transferionisation ($n_C = 1$, $n_T = 1$) ergibt zu

$$\text{TI: } p_z^{R,CM} = -\frac{Q_{SC}}{v_p} - \frac{m_e v_p}{2} + \frac{E_{kin}^e - E_{bind}}{v_p} - p_z^e + \frac{E^{\gamma, KER}}{v_p} \quad (2.61)$$

2.3. Wechselwirkung zwischen gebundenen Atomen und Ionen

Bisher wurde in diesem Kapitel allgemein der Einfluss bzw. die Wechselwirkung eines schnellen Ions mit einem neutralen Atom, Molekül oder Dimer beschrieben. Diese Prozesse wurden als Primärprozesse bezeichnet. Im Folgenden geht es um Sekundärprozesse, die nur im Dimer stattfinden und über die das Dimer zerfallen kann, wenn das Ion bereits weit entfernt ist. Letztendlich geht es auch bei diesen Prozessen um die Wechselwirkung zwischen Ionen und Atomen. Allerdings befinden sich diese am anderen Enden einer Skala, auf der die Wechselwirkungszeit aufgetragen ist, als die bisher betrachteten Prozesse. Sie besitzen eine sehr lange Wechselwirkungszeit, weil sie gebunden sind. Die Bewegung der Kerne spielt hier zwar eine Rolle, allerdings ist sie so langsam, dass aus ihr nicht die Energie für elektronische Übergänge gewonnen werden kann.

Zunächst wird jedoch allgemein auf die Bindung eingegangen, die sich zwischen Atomen bzw. Atomen und Ionen ausbilden kann. Obwohl das Heliumdimer und damit ein Van-der-Waals gebundenes System als Target verwendet wurde, wird hierbei auch kurz die kovalente Molekülbindung erläutert. Der Grund hierfür liegt darin, dass die theoretische Herangehensweise, wie sich das Potenzial und die Gesamtwellenfunktion des gebundenen Systems berechnet, sich grundsätzlich nicht unterscheidet und die Nomenklatur der Zustände gleich ist. Zudem laufen in dem Moment, in dem das Dimer ein Elektron durch den Ionenstoß verliert, die beiden Kerne zusammen. Dadurch wird langsam ein Molekülion gebildet, das auch kovalente Anteile besitzt.

2.3.1. Die kovalente Bindung

Im Gegensatz zu einem Atom hat ein Molekül weitere Freiheitsgrade in der Bewegung: Neben der Bewegung der Elektronen können die Kerne gegeneinander schwingen und das komplette Molekül im Raum rotieren. Bei der vollen quantenmechanischen Behandlung eines Moleküls muss daher eine Wellenfunktion gefunden werden, die einerseits die Bewegung und Wechselwirkung der Elektronen untereinander und andererseits die Bewegung und Wechselwirkung der Kerne beschreibt. Aufgrund der großen Masse der Kerne findet die Elektronenbewegung jedoch sehr viel schneller statt als die Kernbewegung. Zur Beschreibung der Bewegung der Elektronen können die Kerne daher näherungsweise in Ruhe angesehen werden. Diese Näherung ist als Born-Oppenheimer-Näherung bekannt. Aufgrund dieser Näherung lässt sich durch eine Koordinatentransformation der Hamilton-Operator und damit die Gesamtwellenfunktion des Moleküls in zwei Teile separieren:

$$\Psi = \Psi_e \Psi_{KK} \quad (2.62)$$

wobei Ψ_e die Wechselwirkung und Bewegung der Elektronen bei festem Kernabstand und Ψ_{KK} die Kernbewegung beschreibt. Im Folgenden wird zunächst kurz die Lösung des elektro-

nischen Anteils dargestellt. Der Einfluss der Kernbewegung wird im nächsten Unterabschnitt erläutert.

Das einfachste molekulare System ist das H_2^+ -Ion. Hier befindet sich ein Elektron im Zwei-Zentren-Potenzial der beiden Kerne. Die Vorstellung ist hierbei, dass das Elektron sich in der Nähe eines der beiden Kerne befinden kann. Die Zustände, hier durch die elektronischen Wellenfunktionen Φ_a und Φ_b beschrieben, müssen entartet sein, der zugehörige Energieeigenwert muss also gleich sein. Durch die Anwesenheit des jeweils anderen Kerns wird dieser Zustand aber gestört. Die Gesamtwellenfunktion wird eine Linearkombination der beiden atomaren Zustände sein. Tatsächlich findet man [Hak03] für die Gesamtwellenfunktion zwei Lösungen

$$\Psi_- = c (\Phi_a - \Phi_b) \quad (2.63)$$

$$\Psi_+ = c (\Phi_a + \Phi_b) \quad (2.64)$$

wobei c eine Konstante ist, die durch die Normierung der Gesamtwellenfunktion festgelegt wird. Die beiden Lösungen entstehen also durch Addition und der Differenz der beiden atomaren Wellenfunktionen. Hierbei kann man sich leicht vorstellen, dass die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektrons zwischen den beiden Kernen relativ groß ist, wenn die beiden Wellenfunktionen sich additiv überlagern. Das Elektron kann in diesem Fall von der Anziehung beider Kerne profitieren, wodurch die potenzielle Energie abgesenkt wird. Für die Differenz der Wellenfunktionen gilt dies nicht, da die Aufenthaltswahrscheinlichkeit zwischen den Kernen minimal ist.

Tatsächlich gestaltet sich die Bestimmung der Bindungsenergie etwas schwieriger. Man erhält aus der quantenmechanischen Berechnung, dass sie abhängig ist von drei Integralen. Die Coulombabstoßung der Kerne im Abstand R_{ab} wird als konstante Energie auf den erhaltenen Energiewert addiert und man erhält:

$$V(R_{ab}) = E_{Bind} = \frac{C + D}{1 + S} + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 R_{ab}} \quad (2.65)$$

$$V(R_{ab}) = E_{Bind} = \frac{C - D}{1 - S} + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 R_{ab}} \quad (2.66)$$

wobei sich die Integrale wie folgt ergeben:

$$\begin{aligned} \text{Überlappungsintegral:} \quad S &= \int \Phi_a \Phi_b dV \\ \text{Coulombsche Wechselwirkungsenergie:} \quad C &= \int \Phi_a \left(-\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 R_{ab}} \right) \Phi_a dV \\ \text{Austauschintegral:} \quad D &= \int \Phi_a \left(-\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 R_{ab}} \right) \Phi_b dV \end{aligned}$$

Es zeigt sich, dass weder das Überlappungsintegral noch das Integral, das die Wechselwirkungsenergie beschreibt, für kleine Abstände R_{ab} negativ werden, d.h. zu einer Bindung führen. Vielmehr entscheidet nur das Austauschintegral darüber, ob es bei einem bestimmten Abstand zu einer Bindung kommt. Es ergibt sich danach ein 'bindender' und ein 'antibindender' Zustand. Die Bindung des H_2^+ -Ions beruht demnach auf einem rein quantenmechanischen Effekt. In Abbildung 2.12 ist der Abstand der beiden Kerne gegen die potenzielle Energie eines molekularen Systems aufgetragen. Man bezeichnet dies auch als Korrelationsdiagramm. Wie sich erkennen lässt, überwiegt bei kleinen Abständen die Coulombsabstoßung der beiden Kerne, die Bindungsenergie wird unendlich hoch, bei großen Abständen strebt sie einem konstanten Wert entgegen. Dadurch ergibt sich die typische Form einer Potenzialkurve eines molekularen Zustands.

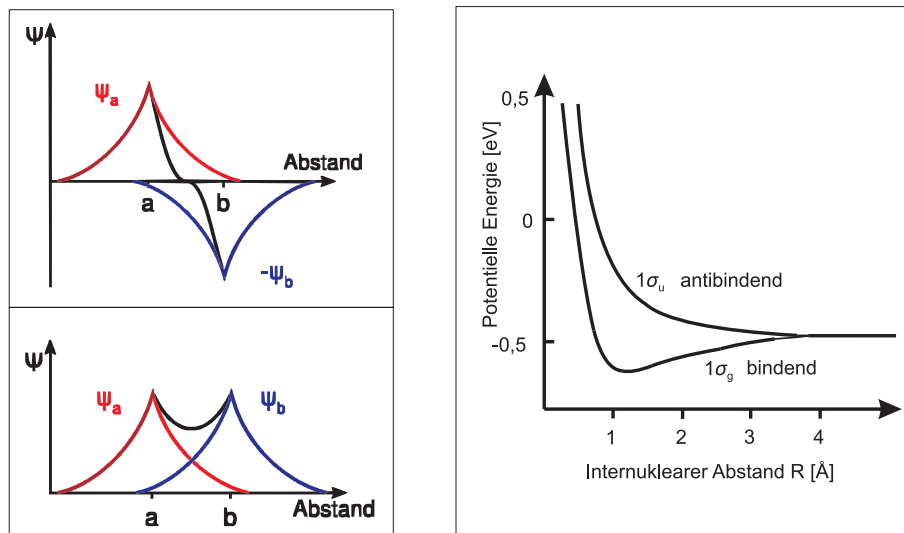


Abb. 2.12.: Links: Überlagerung der atomaren Wellenfunktionen (aus [wik]). Die destruktive Überlagerung (oben) führt zu einer verminderten Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektrons zwischen den Kernen. Dies entspricht einem antibindenden Zustand. Durch die konstruktive Überlagerung erhöht sich die Aufenthaltswahrscheinlichkeit zwischen den Kernen. Man spricht von einem bindenden Zustand. Rechts: Korrelationsdiagramm des Wasserstoffmoleküls (aus [Hak03]). Beim bindenden Zustand ergibt sich ein Minimum bei kleinen Kernabständen, für den antibindenden Zustand ergibt sich eine Potenzialkurve, die sich hauptsächlich aus der Coulombabstoßung der beiden Kerne ergibt.

Bei molekularen Systemen mit mehreren Elektronen besteht das Problem, dass sich die Gesamtwellenfunktion bereits für mehr als zwei Elektronen nicht mehr analytisch berechnet werden kann. Hier wählt man den Ansatz, die Elektronen als unabhängig zu betrachten. Die Wechselwirkung zweier Elektronen und damit die Korrelationseffekte werden vernachlässigt. Vielmehr wird angenommen, dass sich das Elektron in einem effektiven gemittelten Feld der restlichen Elektronen befindet. Diese Näherung ist als Hartree-Fock-Näherung bekannt [Hak03]. In diesem Fall kann die Gesamtwellenfunktion als Produkt von Einteilchenwellen-

funktionen dargestellt werden:

$$\Psi = \prod_{i=0}^n \chi_i(j) \quad (2.67)$$

Die Einteilchenwellenfunktionen Ψ_i werden als Molekülorbitale bezeichnet. Im Prinzip führt man mit dieser Näherung die Berechnung einer n-dimensionalen Wellenfunktion auf das Lösen von n Einteilchen-Differentialgleichungen zurück. Bei mehreren Elektronen muss zudem das Pauliprinzip beachtet werden. Es besagt, dass eine Wellenfunktion in allen Koordinaten der Elektronen antisymmetrisch sein muss. Eine Einteilchenwellenfunktion lässt sich als ein Produkt schreiben aus einer Ortswellenfunktion und einer Spinwellenfunktion $\chi_i(j) = \psi_i(r_i) s(j)$. Um das Pauli-Prinzip in der Hartree-Fock-Näherung in der Berechnung der Gesamtwellenfunktion zu berücksichtigen, wird die Slaterdeterminante benutzt. Sie besteht aus den Einteilchenwellenfunktionen, z.B.:

$$\Psi = \frac{1}{\sqrt{N!}} \begin{vmatrix} \chi_1(1) & \chi_2(1) & \dots & \chi_N(1) \\ \chi_1(1) & \chi_2(2) & \dots & \chi_N(2) \\ \cdot & \cdot & \dots & \cdot \\ \cdot & \cdot & \dots & \cdot \\ \chi_1(N) & \chi_2(N) & \dots & \chi_N(N) \end{vmatrix} \quad (2.68)$$

Die Determinante wird aus der Differenz des Produktes der Hauptdiagonalen und des Produktes der Nebendiagonalen berechnet. Mittels Variationsverfahren lässt sich hieraus nun die Gesamtwellenfunktion numerisch bestimmen. Hierzu ist allerdings ein Ansatz für die Einteilchenwellenfunktionen notwendig. Prinzipiell erhält man diese Funktionen durch das Lösen der n Einteilchen-Differentialgleichungen. Das gestaltet sich in der Praxis jedoch meistens sehr rechenaufwendig, so dass man auf die Idee zurückgreift, wie sie kurz beim Wasserstoffmolekülion beschrieben wurde. Die Molekülorbitale $\chi_i(r_i, j)$ werden als eine Überlagerung der Atomorbitale der Bindungspartner berechnet:

$$\chi_i(r_i, j) = \sum^k c_k \Phi_k \quad (2.69)$$

Im Englischen nennt man diese Methode 'Linear Combination of Atomic Orbitals' oder kurz (LCAO). Hier müssen die Koeffizienten c_k in einer numerischen Rechnung bestimmt werden. Das reduziert die Rechnung auf ein lineares Problem.

Bei einem zweiatomigen Molekül oder Molekülion werden nur zwei Atomorbitale zu einem Molekülorbital überlagert. Anschaulich ist klar, dass die verschiedenen Atomorbitale zu unterschiedlichen Elektronendichteverteilungen der Molekülorbitale führen. Wie sich beim Molekülion bereits gezeigt hat, kann die additive Überlagerung von zwei s-Orbitalen eine erhöhte Elektronendichte zwischen den Kernen ergeben. Wenn sich bei der Überlagerung Elektro-

nendichteverteilungen ergeben, die rotationssymmetrisch um die Kernverbindungsline sind, spricht man von einem σ -Orbital. p-Atomorbitale, die senkrecht zur Verbindungsachse stehen, können sich aber ebenfalls überlagern. In diesem Fall spricht man von π -Bindungen. Diese haben einen Knoten auf der Verbindungsachse.

Aufgrund des Feldes der beiden Kerne definiert die Kernverbindungsline eine Vorzugsrichtung. In einer Vektordarstellung lässt sich vorstellen, dass der Bahndrehimpuls eines Elektrons \vec{l} um diese Richtung präzidiert. Die Bahndrehimpulsquantenzahl ist damit keine gute Quantenzahl mehr, seine Projektion auf die Kernverbindungsline jedoch durchaus. Diese Projektion wird im Folgenden λ genannt und stellt eine der Quantenzahlen dar, die den Zustand eines Elektrons im Molekül beschreibt. Je nachdem welchen Wert diese Projektion für ein Orbital hat, spricht man von einem σ -, π -, δ -Molekülorbital:

$$\lambda = 0 \rightarrow \sigma$$

$$\lambda = 1 \rightarrow \pi$$

$$\lambda = 2 \rightarrow \delta$$

Natürlich ist die Projektion maximal so groß, wie der Drehimpuls der einzelnen Atomorbitale. Diese Nomenklatur gilt für Einelektronen-Zustände. Für Mehrelektronensysteme bzw. -zustände ergibt sich ein Gesamtdrehimpuls \vec{L} , der sich aus den Bahndrehimpulsen der einzelnen Elektronen zusammensetzt. Für ihn gilt das Gleiche wie für die einzelnen Bahndrehimpulse. Seine Projektion auf die Kernverbindungsachse wird mit dem Buchstaben Λ gekennzeichnet. Besitzt sie den Wert 0, 1 oder 2, so wird das Mehrelektronensystem mit den entsprechenden griechischen Großbuchstaben beschrieben:

$$\Lambda = 0 \rightarrow \Sigma$$

$$\Lambda = 1 \rightarrow \Pi$$

$$\Lambda = 2 \rightarrow \Delta$$

Bei der Bezeichnung eines Mehrelektronensystems wird häufig ebenfalls die Gesamtsymmetrie des Systems angegeben. g deutet dabei eine gerade Symmetrie, u dementsprechend eine ungerade Symmetrie an. Diese ergibt sich bei homonuklearen Molekülen in einfacher Weise aus den Symmetrien der besetzten Orbitale. Ein Orbital hat dabei eine gerade bzw. ungerade Symmetrie, wenn die entsprechende Wellenfunktion symmetrisch bzw. antisymmetrisch gegenüber einer Punktspiegelung am Symmetriezentrum ist. Bei zweiatomigen Molekülen entspricht dieses Symmetriezentrum dem Schwerpunkt. Zudem wird zur Beschreibung eines molekularen Zustands wie beim Atom auch oben links neben dem Gesamtdrehimpuls die Multiplizität $(2S+1)$ angegeben. Die Quantenzahl S entspricht dabei dem Gesamtspin des Systems, der sich ebenfalls aus den Spinquantenzahlen der einzelnen Elektronen zusammensetzt.

Die Kernbewegung und weitere Quantenzahlen

Wie bereits erwähnt, hat ein Molekül gegenüber einem Atom noch zusätzliche Freiheitsgrade in der Bewegung: Es kann schwingen und rotieren. Die Energie eines molekularen Zustands setzt sich dementsprechend aus mehreren Termen zusammen. Der einfachste Ansatz hierzu ist:

$$E = V(R_e) + \left(v + \frac{1}{2}\right) h\omega + \frac{h^2 J(J+1)}{2m_e R_e^2} \quad (2.70)$$

Der erste Teil entspricht dem elektronischen Anteil, wie er sich aus der Lösung der Schrödingergleichung mit der Wellenfunktion Ψ_e für einen festen mittleren Kernabstand R_e berechnet. Der zweite Term stellt die Energie dar, die sich durch die Schwingungsbewegung der Kerne ergibt, wenn man davon ausgeht, dass das Potenzial eines bindenden Zustands harmonisch ist. Die Energieniveaus der Schwingungszustände entsprechen dann genau jenen eines quantenmechanischen harmonischen Oszillators, wobei v als Schwingungsquantenzahl bezeichnet wird. Spektroskopische Untersuchungen zeigen jedoch, dass die Schwingungszustände in einem Molekül energetisch nicht den gleichen Abstand besitzen [Hak03]. Je größer die Energie der Schwingungszustände ist, desto kleiner wird ihre Energiedifferenz. Die Ursache hierfür liegt darin, dass das reale Potenzial eines bindenden molekularen Zustands bei großen Abständen anharmonisch ist, d.h. von dem eines harmonischen Oszillators abweicht. Es verbreitert sich mit steigender Energie sehr viel stärker. Um dieser Anharmonizität Rechnung zu tragen, wählt man für dieses Potenzial daher im Allgemeinen einen empirischen Ansatz:

$$V(R) = D_e(1 - e^{-a(R-R_e)})^2 \quad (2.71)$$

wobei D_e die Dissoziationsenergie und a eine molekülspezifische Konstante ist. $V(R)$ wird als Morse-Potenzial bezeichnet. Mit diesem Potenzial lässt sich aus der Schrödingergleichung der Energieeigenwert der einzelnen Schwingungszustände berechnen. Man erhält einen Energieterm, der eine deutlich kompliziertere Gestalt hat, die Realität dafür aber gut wiedergibt.

Der dritte Term in Gleichung 2.70 beinhaltet die Rotationsenergie, die man für einen starren Rotator, d.h. einem Rotator mit fester Achsenlänge, erwartet. J wird als Rotationsquantenzahl bezeichnet. Für einen starren Rotator sind die Energiedifferenzen der Rotationszustände konstant. In Experimenten zeigt sich jedoch auch hier, dass das nicht der Realität entspricht. Tatsächlich verändert sich der Kernabstand aufgrund der Schwingung der Kerne während der Rotation ständig. Die Überlagerung von Rotations- und Schwingungsbewegung führt zu einer Kopplung der Bewegungen. Um dies in einer Rechnung zu berücksichtigen, werden Rotationskonstanten eingeführt, die sich aus spektroskopischen Messungen für jedes Molekül bestimmen lassen.

Wie man sieht, ist es ziemlich schwierig, die Energien tatsächlich realistisch abzubilden. Den-

noch zeigt die Energiegleichung, wie sich die absolute Energie im Korrelationsdiagramm prinzipiell zusammensetzt. Die Größenverhältnisse von Elektronen-, Vibrations- und Rotationsenergie ist etwa 10000:100:1.

2.3.2. Van-der-Waals Bindung

Edelgase können keine kovalenten Bindungen bilden. Der Grund hierfür liegt in der Elektronenkonfiguration ihrer Valenzschale. Wenn sich die Atomorbitale zu Molekülorbitalen überlagern, entstehen bindende und antibindende Zustände. Bei einem Wasserstoffmolekül befinden sich beide Elektronen in einem bindenden Molekülzustand. Bei einem Heliummolekül gäbe es vier Elektronen, jeweils zwei Elektronen würden sowohl den bindenden als auch den nichtbindenden Zustand besetzen. Es gäbe keinen effektiven Energiegewinn in einer derartigen molekularen Bindung. Daher gibt es keine kovalent gebundenen Heliummoleküle. Dies ist bei acht Elektronen in der Valenzschale ebenfalls der Fall. Es gibt genau so viele besetzte bindende wie nichtbindende Molekülzustände. Dadurch bilden die restlichen Edelgase ebenfalls keine kovalenten Bindungen aus.

Dennoch zeigen Experimente, dass gebundene Edelgase existieren. Man nennt sie Cluster bzw. im Fall eines zweiatomigen Clusters Dimer. Man schreibt die Ursache für diese Bindungen der so genannten van-der-Waals Wechselwirkung zu. Diese beruht auf der Polarisierbarkeit der Elektronenhülle eines Atoms durch ein Dipolmoment eines anderen Atoms. Elektronen und Kern eines Atoms stellen eine Ansammlung von Punktladungen dar, die eine bestimmte räumliche Verteilung aufweisen. Anschaulich bewegen sich die Elektronen um den Kern, was bedeutet, dass sich diese Verteilung zeitlich ändert. So kann die im zeitlichen Mittel kugelsymmetrische Ladungsverteilung eines Atoms zu einem bestimmten Zeitpunkt auch eine Dipolverteilung und damit ein Dipolmoment $\vec{\mu}_1$ aufweisen. Dieses geht mit einem elektrischen Feld \vec{E}_1 einher. Kommt das Atom in diesem Moment einem anderen Atom näher, kann dessen kugelsymmetrische Elektronenverteilung durch dieses elektrische Feld verzerrt werden und dort ebenfalls ein Dipolmoment $\vec{\mu}_2$ induziert werden. Das erzeugt ebenfalls ein elektrisches Feld \vec{E}_2 . Die Dipolmomente werden dabei parallel zur Verbindungsachse zeigen und es gilt [Dem10]:

$$\vec{\mu}_2 = k_1 \vec{E}_1(R) = k_1 \frac{2\mu_1}{4\pi\epsilon_0 R^3} \vec{R}_0 \quad (2.72)$$

$$\vec{\mu}_1 = k_2 \vec{E}_2(R) = -k_2 \frac{2\mu_2}{4\pi\epsilon_0 R^3} \vec{R}_0 \quad (2.73)$$

wobei \vec{R}_0 der normierte Vektor des Verbindungsvektors \vec{R} ist. Die potenzielle Wechselwirkungsenergie ist proportional zu den beiden Dipolmomenten, wodurch sich eine R^{-6} -Abhängigkeit ergibt:

$$V(R) = -\frac{C}{R^6} \quad (2.74)$$

Es kommt zu einer Bindung. Bei realen Van-der-Waals-Systemen zeigt sich, dass das Lennard-Jones-Potenzial eine gute Beschreibung für das Potenzial liefert:

$$V(R) = \frac{a}{R^{12}} - \frac{b}{R^6} \quad (2.75)$$

wobei a und b zwei Anpassungsparameter sind. Nicht nur Edelgase können Van-der-Waals-Bindungen bzw. Cluster bilden. Es gibt auch Moleküle, die diese Bindungen ausbilden. Das prominenteste Beispiel ist das Wassermolekül. Im Gegensatz zu den eben besprochenen Clustern besitzt dieses jedoch ein permanentes Dipolmoment. Bei Van-der-Waals-Bindungen zwischen Wassermolekülen spricht man daher von Wasserstoffbrückenbindungen.

Der mittlere Bindungsabstand Van-der-Waals gebundener Systeme ist aufgrund der Natur der Bindung größer als bei kovalent gebundenen Molekülen. Die Bindungsenergien sind mit einigen Millielektronenvolt um einen Faktor 1000 kleiner als bei kovalenten Molekülbindungen. Da bei Raumtemperatur die mittlere thermische Energie etwa 40 meV beträgt, können die meisten Dimere bzw. größere Cluster nur entstehen, wenn die Atome gekühlt werden.

Die Eigenschaften des Heliumdimers

Bereits im Jahr 1928 hat sich J.C. Slater mit der Bindung zweier Heliumatome beschäftigt. Er kam durch seine Berechnungen zu dem Schluss, dass es aufgrund der Van-der-Waals-Wechselwirkung ein attraktives Potenzial zwischen den beiden Atomen geben muss, das ein Minimum bei etwa 5.6 a.u. hat [Sla28]. In den Jahren danach folgten zahlreiche andere Berechnungen des Wechselwirkungspotenzials, die mitunter zu äußerst unterschiedlichen Ergebnissen kamen, was das Bindungsverhalten von Heliumatomen anging.¹ Das Problem dieser Berechnungen wird klar, wenn man über die Heisenbergsche Unschärferelation die Nullpunktsenergie des Grundzustands abschätzt. In Abbildung 2.13 ist das Potenzial des Heliumdimers zu sehen, wie es von Tang et al. 1995 [Tan95] berechnet wurde. Die Tiefe dieses Potenzials beträgt nur etwa 1 meV. Es lässt sich erkennen, dass die Breite dieses Potenzialminimums etwa 2 a.u. beträgt. Setzt man dies in die Unschärferelation ein:

$$dp \geq \frac{\hbar}{dx} = 0.5 a.u. \quad (2.76)$$

so erhält man daraus folgende Relation für die Energie der Nullpunktsschwingung von:

$$\frac{dp^2}{2\mu} \geq 1 \text{ meV} \quad (2.77)$$

Diese einfache Abschätzung zeigt, dass die Tiefe des zu erwartenden Potenzials in der gleichen Größenordnung liegt wie die Nullpunktsschwingung. Das stellte und stellt sehr große Ansprüche

¹Eine Übersicht über mehr als 50 Wechselwirkungspotenziale ist zu finden unter [And93].

che an die Genauigkeit der quantenmechanischen Rechnungen. In den Anfängen der voll quantenmechanischen Rechnungen haben die atomaren Basisfunktionen, die zur Bestimmung des Potentials benutzt wurden, darüber entschieden, ob es überhaupt ein attraktives Potential zwischen zwei Heliumatomen gibt, so wie es Slater vorhergesagt hat. Auch später waren schon kleine Unsicherheiten in den berechneten Potentialen, die aus den Näherungen resultierten, so groß, dass die Vorhersage einer Existenz des Heliumdimers schwierig war. Erst in den 1980ern und 1990ern Jahren konnte in numerische Rechnungen und Monte-Carlo-Simulationen eine Genauigkeit erreicht werden, die von theoretischer Seite eine relativ gesicherte Vorhersage erlaubte.

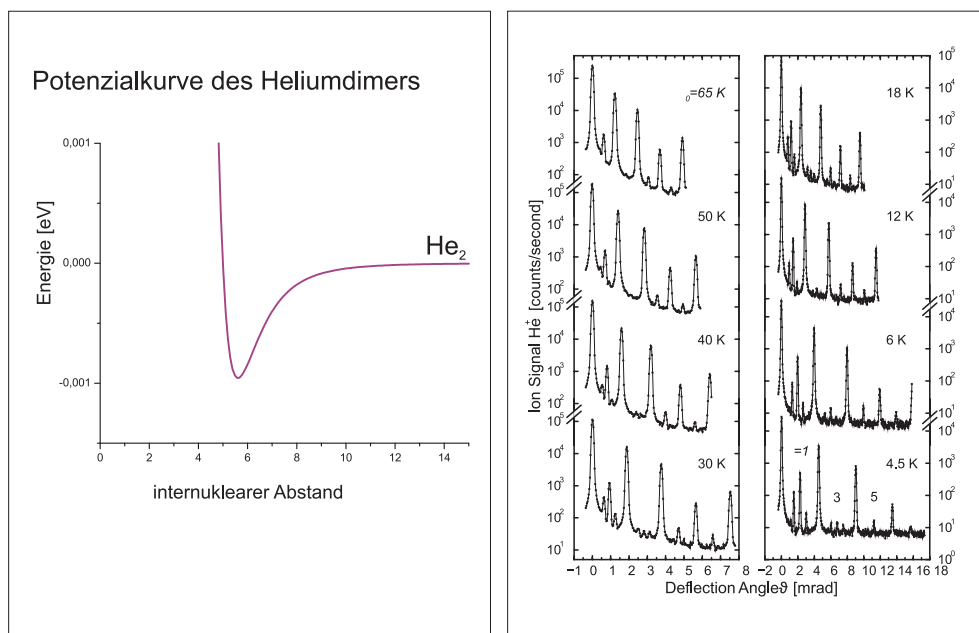


Abb. 2.13.: Links: Potenzialkurve des Heliumdimers nach Tang [Tan95]. Die komplette Tiefe des Minimums ist nur etwa 1 meV. Rechts: Ergebnisse der Diffraktionsmethode (aus [Gri00]), wie sie auch von Schöllkopf und Toennies benutzt wurde. Die neutralen Teilchen des gekühlten Überschallgasstrahls wurden an einem Gitter gestreut. Da die Dimere durch ihre andere Masse eine andere de-Broglie-Wellenlänge besitzen, werden sie unter einem anderen Winkel gebeugt. Die großen regelmäßigen Peaks stammen von den normalen Heliumatomen und können dem Beugungsgesetz entsprechend den verschiedenen Ordnungen zugeordnet werden. Die kleinen Peaks zwischen diesen großen Peaks rühren von der Beugung der Dimere. Die Spektren wurden für verschiedene Temperaturen der Düse aufgenommen.

Durch diese sehr kleine Bindungsenergie war es jahrzehntelang nicht möglich, die Existenz eines Heliumdimers experimentell nachzuweisen. Die Schwierigkeit bestand zum einen darin, die thermische Energie der Heliumatome so zu reduzieren, dass es zu einer Bindung kam. Zum anderen musste eine Nachweisteknik gefunden werden, die diese gebundenen Systeme nicht zerstört. Erst 1994 gelang es Toennies und Schöllkopf, Heliumdimere eindeutig nachzuweisen [Sch94]. Die Heliumdimere wurden in einem Überschallgasstrahl erzeugt, während

der Nachweis über die Streuung an einem Gitter erfolgte. Die Diffraktionsmuster zeigten neben Signalen, die den Trimeren zugeordnet werden konnten auch Maxima, die eindeutig von Heliumdimeren herrühren mussten. In nachfolgenden Experimenten [Gri00] konnte die Bindungsenergie auf 95 neV bestimmt werden.

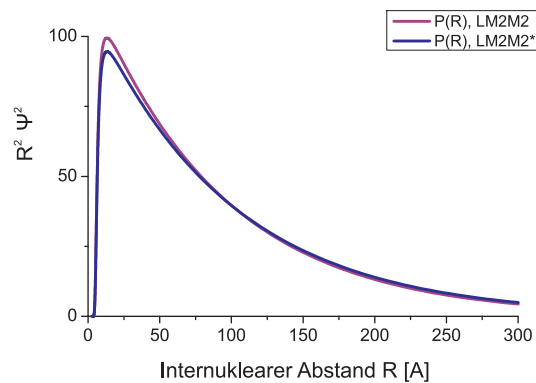


Abb. 2.14.: Abstandsverteilung wie sie aus theoretischen Berechnungen [Luo93] gewonnen wird. Durch die vorhergesagten großen Abstände der beiden atomaren Zentren erfolgt die Wechselwirkung der beiden Bindungspartner nicht unbedingt instantan, da sie maximal mit Lichtgeschwindigkeit stattfinden kann. Dieser relativistische Effekt (Retardierung) schwächt die Bindung und führt zu einer anderen Abstandsverteilung. Die rote Kurve entspricht der normalen Abstandsverteilung, die blaue Kurve zeigt die Abstandsverteilung unter Berücksichtigung dieser relativistischen Effekte.

Betrachtet man das Potenzial in Abbildung 2.13, so wird schnell klar, welche Folge diese geringe Bindungsenergie noch hat. Die Tatsache, dass der gebundene Zustand des Heliumdimers so knapp unter der Kontinuumgrenze liegt, führt dazu, dass sich die Wellenfunktion über einen sehr weiten Bereich erstreckt. Die Abstandsverteilung, die sich aus dem Quadrat der Wellenfunktion ergibt, beinhaltet dementsprechend auch für atomare Verhältnisse riesige Abstände. Nach Berechnungen von Luo et al. [Luo93] können diese mehr als 200 Å betragen. Das sind Abstände, bei denen die Wechselwirkung zwischen den beiden Zentren nicht mehr als instantan angenommen werden kann. Berechnungen zeigen, dass diese relativistischen Effekte zu einem signifikanten Unterschied in der Abstandsverteilung führen können.

Bis heute gibt es nur eine geringe Anzahl an experimentellen Ergebnissen, die Aufschluss über die Eigenschaften von Heliumdimeren geben [Kal04, Hav10b, Hav10c]. Bisher konnte nicht endgültig geklärt, welche Bindungsabstände ein Heliumdimer tatsächlich besitzt.

2.3.3. Übergänge in Molekülen

In den hier zu untersuchenden Prozessen werden durch die Wechselwirkung mit einem Ion ein oder zwei Elektronen ausgelöst. Die betrachteten Projektilenergien sind so hoch, dass man eine sehr kurze Wechselwirkungszeit annehmen kann, in denen die Kerne des Dimers in

Ruhe bleiben. Schaut man sich diesen Prozess in einem Korrelationsdiagramm (Abbildung 2.15) an, so entspricht diese Wechselwirkung also einem senkrechten Übergang bei gleichem Abstand. Dies gilt insbesondere auch dann, wenn bei dem Übergang Schwingungszustände betrachtet werden. In einer detaillierteren und quantenmechanischen Formulierung bestimmt das Betragsquadrat des Integrals

$$|\langle \chi_{\nu'} | \chi_{\nu''} \rangle|^2 = \int \chi_{\nu'} \chi_{\nu''} dV_{Molekül} \quad (2.78)$$

die Übergangswahrscheinlichkeit zwischen zwei Zuständen. Wichtig ist hierbei zu erwähnen, dass die Wellenfunktionen $\chi_{\nu'}$ (R) und $\chi_{\nu''}$ (R) Vibrationswellenfunktionen sind. Wie bereits erwähnt, lässt sich durch die Born-Oppenheimer-Näherung die Gesamtwellenfunktion in einen Kernanteil und einen elektronischen Anteil separieren. Bei einem Übergang lässt sich das Übergangsmatrixelement daher auch in zwei Integrale aufteilen, die sich auf die Elektronen bzw. Kernbewegung beziehen. Der elektronische Anteil bestimmt bei einem Photonenübergang z.B. die grundsätzlichen Auswahlregeln (Symmetrie, Drehimpuls). Für einen stoßinduzierten Übergang, wie er hier betrachtet wird, sind keine Auswahlregeln zu erwarten. Das Integral, das nur die Kernbewegung der Kerne berücksichtigt, ist unter Vernachlässigung der Rotation in obiger Gleichung zu sehen. Die beiden Vibrationswellenfunktionen beziehen sich daher auf unterschiedliche elektronische Zustände (Potenzialkurven) im Korrelationsdiagramm.

Das obige Integral entspricht anschaulich dem Überlappintegral der beiden Wellenfunktionen. Das bedeutet, dass Übergänge zwischen den Zuständen dort wahrscheinlicher sind, wo der Überlapp der beiden Wellenfunktionen des Anfangs- und Endzustands am größten ist. Dies wird als Franck-Condon-Prinzip bezeichnet. Das Überlappintegral wird daher häufig auch Franck-Condon-Faktor genannt.

Reflexionsnäherung

Im nächsten Abschnitt werden Prozesse vorgestellt, die nach der Wechselwirkung mit Projektil dazu führen, dass das Dimerion in zwei einfach geladene Heliumionen zerfällt. Dies entspricht Übergängen von verschiedenen Zwischenzuständen in einen nicht bindenden Endzustand. Im klassischen Bild ist hier durch die gleiche Ladung der beiden Bindungspartner die Abstoßung so groß, dass das doppelt geladene Heliumdimer in zwei einfach geladene Heliumionen zerfällt. Die kinetische Energie (KER, vom engl. kinetic energy release), die die beiden Ionen aus dieser so genannten Coulombexplosion erhalten, entspricht der Coulombenergie

$$KER = V_{coul} = \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0 R} \quad (2.79)$$

und ist dementsprechend vom Abstand der beiden Bindungspartner abhängig. Wenn man sich die komplette statistische Verteilung betrachtet, ergibt sich die KER-Verteilung eines Aufbruchs durch die Reflexion der Abstandsverteilung eines Zustands an der Potenzialkurve des entsprechenden Endzustands. Die Abstandsverteilung entspricht wiederum dem Betragsquadrat der entsprechenden Vibrationswellenfunktion. Diese klassische Näherung bezeichnet man auch als Reflexionsnäherung (engl. reflection approximation).

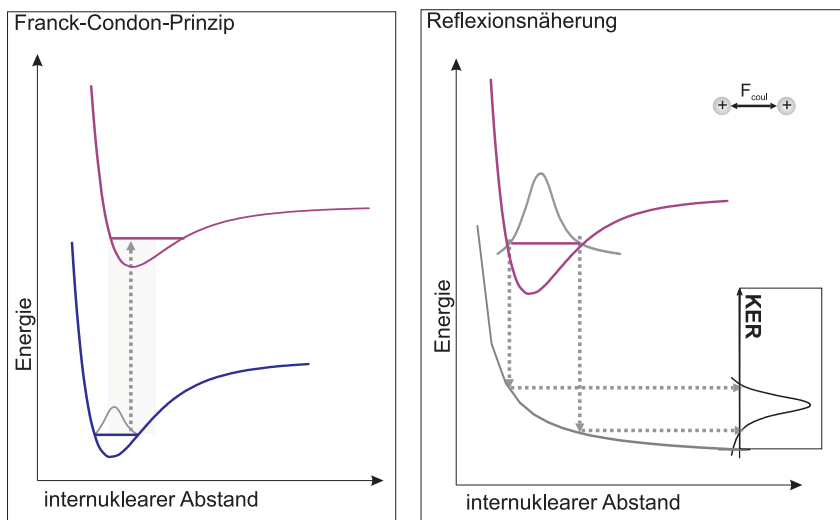


Abb. 2.15.: Links: Schematische Darstellung des Franck-Condon-Prinzips. Die Wahrscheinlichkeit für einen Übergang hängt vom Überlapp der Wellenfunktionen ab. Je größer dieser ist, desto wahrscheinlicher ist ein bestimmter Übergang. Der Abstandsbereich, in dem ein bestimmter Übergang stattfinden kann, ist der Franck-Condon-Bereich. Er ist grau markiert. Rechts: Schematische Darstellung der Reflexionsnäherung.

Die Reflexionsnäherung ist ein wichtiges Werkzeug in Molekülexperimenten (z.B. [Web04, Sta07, Sch08]), wo im Allgemeinen die kinetische Energie der Ionen gemessen wird. Sie ermöglicht nämlich umgekehrt, aus der gemessenen KER-Verteilung über obige einfache Umrechnung die ursprüngliche Abstandsverteilung zu generieren und damit Aussagen über das Molekül vor der Coulombexplosion zu machen.

Es gibt zwei Bedingungen, unter denen die Reflexionsnäherung die Realität gut abbildet: Zum einen ist sie umso besser, je mehr der tatsächliche Potenzialkurvenverlauf des Endzustands dem eines $\frac{1}{R}$ -Potenzials gleicht. Sie ist dann ungenau, wenn die restlichen Elektronen das Kernpotenzial nicht mehr so abschirmen, dass man bei beiden Bindungspartnern die effektive Ladung annehmen kann, die sich aus der Differenz der Kernladung und der Ladung aller Elektronen aus der Hülle ergibt. Zum anderen spielt es eine Rolle, über welchen Bereich des Kernabstands sich die Vibrationswellenfunktionen des Grundzustands erstrecken und wie groß damit der Überlapp zwischen den Wellenfunktionen des Grundzustands und der Kontinuumswellenfunktion des Endzustands ist. Die eigentlich korrekte quantenmecha-

nische Formulierung des Zusammenhangs zwischen Kernabstand und KER besagt nämlich, dass die KER-Verteilung durch den Überlapp der Grundzustandswellenfunktion und der Kontinuumswellenfunktion gegeben ist. Wenn die Ausdehnung des Grundzustands klein ist, wie das bei den meisten Molekülen der Fall ist, gibt es nur einen Überlapp mit dem ersten Maximum der Kontinuumswellenfunktion. Dadurch gibt es eine weitgehend eindeutige Zuordnung zwischen KER und Kernabstand, wie man dies aus der klassischen Näherung kennt. Wenn sich die Vibrationswellenfunktion über einen großen Bereich der Kernabstände erstreckt, gibt es einen Überlapp mit mehreren Maxima der Kontinuumswellenfunktion. Einem bestimmten Kernabstand kann dann nicht mehr ein fester KER zugeordnet werden. Dies ist für den Grundzustand des Heliumdimers der Fall. Hier gilt die klassische Näherung insbesondere bei großen Abständen sehr schlecht [Hav10b].

2.3.4. Intramolekulare Zerfallsprozesse

Interatomic Coulombic Decay

Der Interatomic Coulombic Decay wurde in den 1990ern zunächst in Arbeiten von Cederbaum et al. [Ced97] theoretisch vorhergesagt. Er ist im Gegensatz zu einem strahlenden Zerfall bzw. einem Auger-Zerfall nur in Van-der-Waals gebundenen Systemen zu erwarten. In diesem Prozess wird die Energie, die an einem atomaren Zentrum z.B. durch Anregung gespeichert ist, auf ein Nachbaratom übertragen, wodurch dieses ionisiert wird.

Der grundsätzliche Mechanismus ist hierbei folgender: Ein einzelnes angeregtes Atom oder Ion kann im Allgemeinen durch zwei Mechanismen in seinen Grundzustand zerfallen. Wenn ein Elektron von einer äußeren Schale in eine innere Schale wechselt, wird Energie frei. Diese kann mittels eines Photons ausgesandt werden, dann handelt es sich um einen strahlenden Zerfall. Oder sie wird auf ein gebundenes Elektron übertragen, wodurch dieses den Atomverband verlassen kann. Dann spricht man von einem Auger-Zerfall. Angeregte Zustände, die über einen Auger-Prozess zerfallen, haben tendenziell eine sehr viel kürzere Lebensdauer als jene, die strahlend zerfallen. Ob aber ein Auger-Prozess überhaupt stattfindet, hängt von der Größe der Energie ab, die beim Zerfall frei werden kann. Ist sie zu gering, um ein Elektron ins Kontinuum zu heben, wird es zu keinem Auger-Prozess kommen. Dieser Zerfallskanal ist dann geschlossen, der Zustand kann nur strahlend zerfallen. Dies ist bei einigen Systemen nach einer Innerschalen-Ionisation der Fall. Ein Beispiel hierfür ist Neon. In einem Dimer befindet sich ein zweites atomares System in unmittelbarer Nähe des ersten Atoms. Bei Neon ist es nun so, dass für die Ionisation eines weiteren Neonatoms weniger Energie benötigt wird als für die nochmalige Ionisation eines Ne^+ -Ions. Die Energie, die nach der 2s-Ionisation des einen Atoms durch den Wechsel eines Elektrons von einer äußeren in die innere Schale frei wird, reicht in diesem Fall aus, um das Nachbaratom zu ionisieren. Damit ist energetisch ein weitere Zerfallskanal möglich: der Interatomic Coulombic Decay.

Von theoretischer Seite beschreibt man die Grundzustandswellenfunktion eines Clusters bzw. Dimers, wie bereits erläutert, mit Hilfe eines Produktansatzes. Jede der einzelnen Wellenfunktionen, aus denen sich das Produkt zusammensetzt, sind Orbitalwellenfunktionen. Bei einer Ionisation, die im Allgemeinen der Ausgangspunkt des Interatomic Coulombic Decay ist, liegt kein Elektronensystem mit n Elektronen, sondern eines mit $(n-1)$ Elektronen vor. Diese Gesamtwellenfunktion lässt sich im Formalismus der 2. Quantisierung aus der n -Teilchen-Wellenfunktion näherungsweise gewinnen, indem die Basis des $(n-1)$ -Systems wie folgt gewählt wird [San02]:

$$\Psi_{n-1} := \left\{ c_i \left| \Psi_{n-1}^0 \right\rangle, c'_a c_k c_l \left| \Psi_{n-1}^0 \right\rangle (k < l), c'_a c'_b c_k c_l c_m, \left| \Psi_{n-1}^0 \right\rangle (a < b, k < l < m) \dots \right\}$$

wobei c'_a ein Erzeugungsoperator ist, der im Orbital a ein Quasiteilchen erzeugt, während c ein Vernichtungsoperator eines Elektrons im Orbital i ist. Der erste Term entspricht einfach nur einer Ionisation, die darauffolgenden Terme einer Ionisation mit einfacher, zweifacher etc. Anregung.

Wenn sich nun ein Dimerion in einem angeregten Zustand befindet, wird es nach einer gewissen Lebensdauer wieder in den Grundzustand zerfallen. Statistisch gesehen verläuft die Zerfallswahrscheinlichkeit (= Übergangswahrscheinlichkeit) exponentiell in der Zeit. Um die Wahrscheinlichkeit in Abhängigkeit der Energie darzustellen, muss eine Fourier-Transformation durchgeführt werden. Diese ergibt aufgrund des ursprünglich exponentiellen Abfalls eine Lorentz-Verteilung, die eine endliche Breite besitzt. Diese Zerfallsbreite wird im Folgenden mit Γ bezeichnet. Etwas anschaulicher lässt sich argumentieren, dass aufgrund der Heisenbergschen Unschärferelation sich eine sehr kurze Lebensdauer τ dadurch äußert, dass die Energiedifferenz zwischen angeregtem Zustand und Grundzustand nur mit einer Unsicherheit von $\Gamma = \frac{\hbar}{\tau}$ bestimmt werden kann.

Die Zerfalls- bzw. Übergangswahrscheinlichkeit ist durch das Betragsquadrat des Skalarprodukts von Anfangs- und Endzustand bestimmt. In einem störungstheoretischen Ansatz (Wigner-Weisskopf-Näherung) erhält man für den ICD Prozess in einem Dimerion [San02]:

$$P_{decay}(t) = |\langle \phi_i | \phi_f \rangle|^2 = P_0 e^{-\frac{t\Gamma}{\hbar}} \quad (2.80)$$

wobei für Γ in 1. Ordnung gilt

$$\Gamma = 2\pi \sum_{i \neq f} |\langle \phi_i | V | \phi_f \rangle|^2 \delta(E_0 - E_f) \quad (2.81)$$

Der letzte Ausdruck wird allgemein auch Fermis Goldenen Regel genannt. V ist der Coulombwechselwirkungsoperator von zwei Elektronen, die sich in den Zuständen r und s befinden. Die Deltafunktion rechts hat den Wert 1, wenn $E_0 = E_f$ gilt bzw. ist Null, wenn $E_0 \neq E_f$ ist. Sie sorgt letztendlich dafür, dass nur Zustände einen Beitrag liefern, bei denen das auch

aus Gründen der Energieerhaltung erlaubt ist. Für größere Atome wie z.B. Neon und Argon zeigt sich, dass die Zerfallsbreite in erster Ordnung näherungsweise so geschrieben werden kann, dass sie von dem Betragsquadrat des Matrixelementes $V_{ov1,ov2,[k,iv]}$ abhängt, welches sich wiederum aus zwei Matrixelementen zusammensetzt:

$$V_{ov1,ov2,[k,iv]} = V_{ov1,ov2,iv,k} - V_{ov1,ov2,k,iv} \quad (2.82)$$

die integral wie folgt geschrieben werden:

$$\begin{aligned} V_{ov1,ov2,iv,k} &= \int \int \phi_{ov1}^*(\vec{r}_1) \phi_{ov2}(\vec{r}_2) \frac{e^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \phi_{iv}^*(\vec{r}_1) \phi_k(\vec{r}_2) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \\ &= \int \int \phi_{ov1}^*(\vec{r}_1) \phi_{iv}(\vec{r}_1) \frac{e^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \phi_{ov2}^*(\vec{r}_2) \phi_k(\vec{r}_2) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \\ V_{ov1,ov2,k,iv} &= \int \int \phi_{ov1}^*(\vec{r}_1) \phi_{ov2}(\vec{r}_2) \frac{e^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \phi_k^*(\vec{r}_1) \phi_{iv}(\vec{r}_2) d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \end{aligned}$$

Die Abkürzung (ov₁) und (ov₂) meint hier zwei Elektronenzuständen in der äußersten Valenzschale (z.B. 2p), während (iv) die Abkürzung für den elektronischen Zustand einer inneren Valenzschale (z.B. 2s) ist. k bezieht sich dabei auf das emittierte Elektron. $V_{ov1,ov2,iv,k}$ entspricht der Wechselwirkung von zwei Elektronen mit dem Ortsvektor \vec{r}_1 bzw. \vec{r}_2 . Der erste Term $V_{ov1,ov2,iv,k}$ ist dabei das direkte Wechselwirkungsintegral, der zweite Term $V_{ov1,ov2,k,iv}$ entspricht dem Austauschintegral der beiden Wellenfunktionen. Wenn man diesen Ansatz mit der allgemeinen Gleichung 2.81 vergleicht, beschreibt das komplette Matrixelement $V_{ov1,ov2,[k,iv]}$ eine Überlagerung von zwei energetisch möglichen Zerfallswegen, die sich aus dem gleichen Anfangszustand (ov₁, ov₂) ergeben. Der erste Term stellt die 'direkte' Wechselwirkung dar, bei der zwischen den beiden Zentren ein virtuelles Photon ausgetauscht wird, während der zweite Term den Zerfall durch einen Elektronenaustausch zwischen beiden Zentren beschreibt. Anschaulich können Elektronen nur durch einen Überlapp der Wellenfunktionen der beiden atomaren Zentren und daher eher bei kleinen Abständen des Dimers ausgetauscht werden, während die Wechselwirkung über ein virtuelles Photon auch durchaus bei größeren Abständen zu erwarten ist [Ave04]. Jahnke et al. [Jah04] konnten am Neondimer experimentell beweisen, dass der Interatomic Coulombic Decay tatsächlich über beide Mechanismen stattfinden kann und diese über den interatomaren Abstand eindeutig getrennt werden können. Beim Heliumdimer ist aufgrund der einfachen Elektronenstruktur der Interatomic Coulombic Decay nur möglich, wenn neben der Ionisation auch eine Anregung des zweiten verbleibenden Elektrons stattfindet. Dabei ist sowohl ein Zerfall über den Austausch eines virtuellen Photons als auch ein Elektronenaustausch energetisch möglich. Im ersten Fall wird die Anregungsenergie auf das zweite Zentrum übertragen, wodurch dieses ionisiert wird. Beim Elektronenaustausch 'wechselt' ein Elektron aus dem neutralen Heliumatom auf die Seite des angeregten

ionisierten Zentrums, wodurch das angeregte Elektron ins Kontinuum gelangen kann. Beide Mechanismen sind in Abbildung 2.16 gezeigt. Da bei beiden der Endzustand gleich ist, können sie in einem Experiment nicht unterschieden werden.

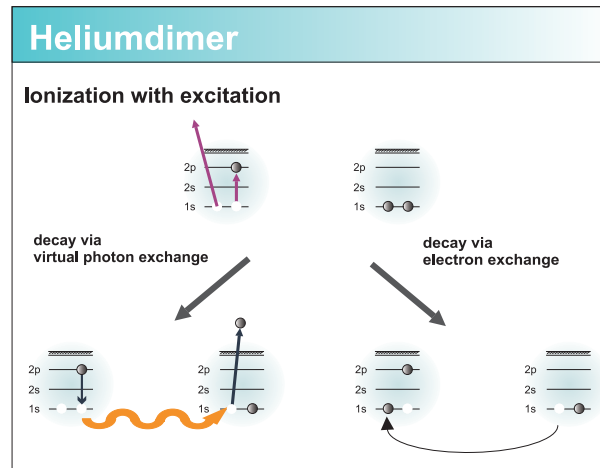


Abb. 2.16.: Zerfallsmechanismen des ICD am Beispiel des Heliumdimers. links: Das Heliumdimer kann nur über den Austausch eines virtuellen Photons zerfallen. rechts: Das Neonanion kann zusätzlich über einen Elektronenaustausch zerfallen (nach [Jah04]).

Wenn man sich die Zustände näher betrachtet, in denen das zweite nicht-ionisierte Elektron angeregt werden kann, so erkennt man, dass sowohl Anregungen in s- als auch p-Zustände möglich sind. Für das Dimerion gibt es insgesamt sechs mögliche Molekülzustände, die jedoch teilweise die gleiche Symmetrie aufweisen. Da vom Heliumdimer mit dem Gesamtspin Null ein Elektron entfernt wurde, muss es sich bei den molekularen Zuständen des Dimerions um Dublett-Zustände ($S=\pm\frac{1}{2}$) handeln. Im Detail ergibt sich:

Überlagerung der atomaren Orbitale	allg. Molekülzustand
$1s + 2p_z$	$^2\Sigma_g$
$1s + 2s$	$^2\Sigma_g$
$1s - 2p_z$	$^2\Sigma_u$
$1s - 2s$	$^2\Sigma_u$
$1s + 2p_{x,y}$	$^2\Pi_g$
$1s - 2p_{x,y}$	$^2\Pi_u$

Tab. 2.1.

Durch die Polarisation ist das Dimerions He_2^+ (Dissoziationslimit (He^0, He^+ ($n=2$))) stärker

gebunden als der Grundzustand. Das führt dazu, dass die molekularen Zustände, die mit einem 2p-Orbital gebildet wurden, acht Vibrationszustände aufweisen. Die Orbitale, die durch Überlagerung mit einem 2s-Orbital entstanden sind, haben immerhin zwei Vibrationszustände. Die Bindungsenergien für die ersten variieren zwischen 200 meV und 2 μeV , die für die zweiten liegen zwischen 310 μeV und 4 μeV [Sis10b]. Wenn nun das neutrale Heliumdimer durch die Wechselwirkung mit einem Photon oder einem Ion ionisiert und angeregt wird, können alle diese Vibrationszustände besetzt werden. Nach dem Franck-Condon-Prinzip ist hier der Überlapp der Wellenfunktionen von Anfangs- und Endzustand entscheidend. Betrachtet man die enorme Reichweite der Grundzustandswellenfunktion des Heliumdimers, wird klar, dass es den größten Überlapp bei hohen Vibrationszuständen des Dimerions geben muss. Die Abstandsverteilung dieser Vibrationszustände ergibt sich aus dem Betragsquadrat der entsprechenden Vibrationswellenfunktion. Dementsprechend treten für jeden dieser Zustände Maxima und Minima bei unterschiedlichen internuklearen Abständen auf. Unter Berücksichtigung der Besetzungswahrscheinlichkeiten bleibt jedoch bei der Überlagerung der Abstandsverteilung aller Zustände eine Vibrationsstruktur erhalten.

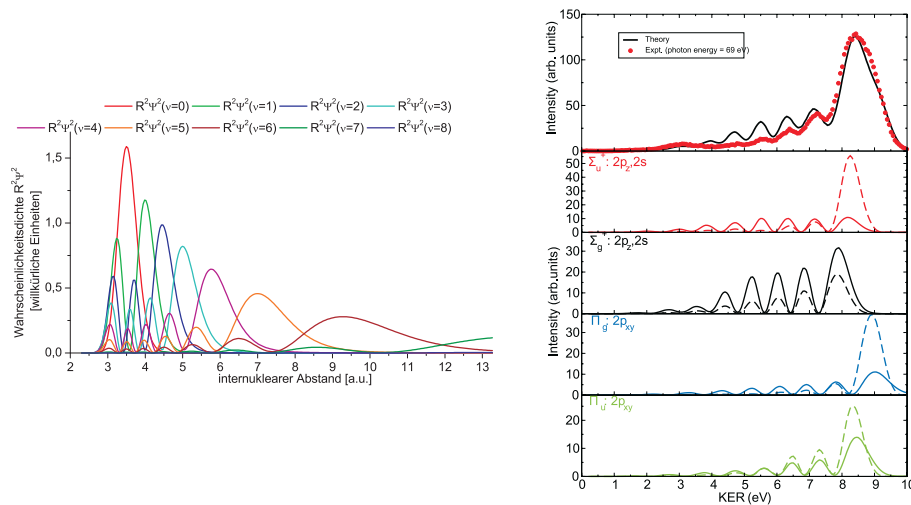


Abb. 2.17.: Strukturen der Kernschwingung in der Abstandsverteilung und im KER. Links: Entsprechend der acht Schwingungszustände des Dimerions im II-Zustand ergeben sich acht verschiedene Abstandsverteilungen (aus [Hav10a]). Die relative Wahrscheinlichkeit ergibt sich aus der Besetzungswahrscheinlichkeit beim Übergang aus dem Grundzustand. rechts: Vergleich von Theorie und Experiment aus [Sis10a]. Beim Zerfall des Dimerions erhalten die Ionen eine kinetische Energie aus der Coulombabstoßung. Die KER-Verteilung ergibt sich aus der Reflexion der Abstandsverteilungen. Da die Summe dieser Verteilungen eine Vibrationsstruktur aufweist, besitzt die komplette KER-Verteilung ebenfalls eine Schwingungsstruktur.

Wenn nun diese angeregten Zustände in einem ICD zerfallen, lässt sich im Bild der klassischen Näherung die KER-Verteilung durch die Reflexion der Abstandsverteilungen an der repulsiven Kurve des Endzustands bestimmen. Das bedeutet, dass die KER-Verteilung eben-

falls diese Vibrationsstrukturen aufweisen muss. Da der ICD sehr stark abstandsabhängig ist, muss diese Verteilung noch gewichtet werden (siehe nächster Abschnitt). Tatsächlich konnten diese Strukturen experimentell nachgewiesen werden. Havermeier et al. untersuchten den ICD am Heliumdimer nach einer Photoionisation [Hav10c]. Die Ergebnisse aus Experiment und Theorie zeigen verblüffende Übereinstimmung und machen dadurch den Einfluss der Kernbewegung auf den ICD im Heliumdimer deutlich [Sis10a].

Betrachtet man nun die Drehimpulserhaltung, die auch bei virtuellen Photonenübergängen gelten muss, so sind die Übergänge aus dem Molekülzustand, zu dem der 2s-Zustand beiträgt, für große internukleare Abstände verboten. Dennoch zeigt der Vergleich zwischen experimentellen Resultaten und Ergebnissen der Berechnungen [Hav10c, Sis10b], dass auch Übergänge aus den entsprechenden Zuständen zum IC-Zerfall beitragen. Man erklärt sich dies damit, dass die Potenzialkurven der entsprechenden molekularen Zustände sich über einen weiten Abstandsbereich kaum energetisch unterscheiden und daher molekulare Zustände, die aus dem s-Orbital gebildet werden, mit jenen, die sich aus dem p-Orbital zusammensetzen, koppeln, sofern sie die gleiche Symmetrie [Sis10a] besitzen. Das führt dazu, dass die Zerfallsrate $\frac{1}{\tau}$ für die Molekülzustände, zu denen das 2s-Orbital beiträgt, bei großen Abständen eine Abhängigkeit von R^{-8} aufweist, während sich für die dipoleraubten Übergänge die gewohnte R^{-6} -Abhängigkeit ergibt, wie sie aus der Dipol-Näherung des Van-der-Waals-Potenzial abgeschätzt werden kann [Ave04]. Die R^{-8} -Abhängigkeit der dipolverbotenen Übergänge ist nicht mit höheren Ordnungstermen des Van-der-Waals-Potenzials und damit Übergängen höherer Ordnung zu erklären. Vielmehr müssen in der störungstheoretischen Behandlung weitere Störungsterme (3. Ordnung) berücksichtigt werden, um die Abhängigkeit zu reproduzieren. Das bedeutet letztendlich, dass die beobachteten Übergänge, zu denen der atomare 2s-Zustand beiträgt, beim ICD nicht im virtuellen Photonen-Bild beschrieben werden können [Kol10].

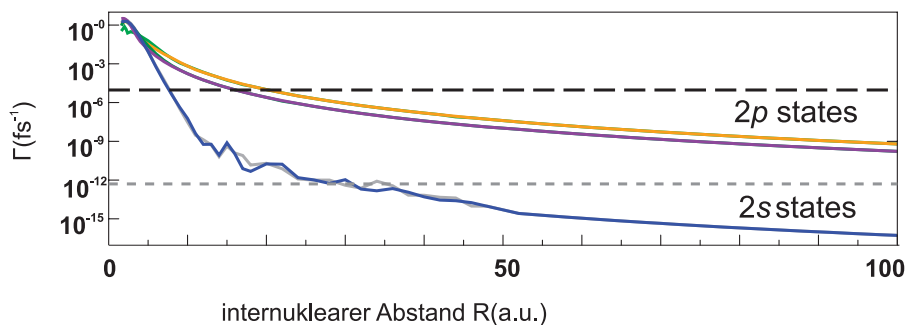


Abb. 2.18.: Zerfallsraten für den ICD im Vergleich zum strahlenden Zerfall aus [Sis10b]. Der strahlende Zerfall kann über einen großen Abstand als konstant angenommen werden kann.

Für kleine internukleare Abstände (< 12 a.u.) zeigt der Übergang aus den molekularen Zuständen, die durch den 2s-Zustand gebildet werden, einen exponentiellen Verlauf. Hier überlappen

sich die Atomorbitale, wodurch über den Gesamtdrehimpuls keine eindeutige Aussage mehr gemacht werden kann. Eine Drehimpulsänderung um $1 \hbar$ ist möglich. Je stärker sich die Atomorbitale überlappen um so größer ist die Übergangsrate für den Photonenübergang auch aus diesen molekularen Zuständen.

Neben dem ICD kann das Dimerion wie ein Atom auch strahlend zerfallen. Hier fällt das angeregte Elektron in den Grundzustand zurück. Die Energie, die dabei frei wird, wird mittels eines Photons emittiert. Diese beiden Prozesse stehen daher in Konkurrenz und es hängt von deren Zerfallsrate $\frac{1}{\tau}$ ab, welcher Prozess dominant ist. Aus Ergebnissen spektroskopischer Untersuchungen von Heliumatomen und Ionen weiß man, dass der strahlende Prozess aus dem atomaren 2p-Zustand eine Lebensdauer von etwa 100 ps und damit eine Zerfallsrate von 10^{-5} fs^{-1} besitzt [Dra92], während der Strahlungsübergang aus dem atomaren 2s-Zustand eine Lebensdauer von etwa 2 ms und damit eine Zerfallsrate von $5 \cdot 10^{-13} \text{ fs}^{-1}$ aufweist [Pri72]. Die Lebensdauer des strahlenden Zerfalls kann über einen weiten Bereich als konstant angenommen werden. Vergleicht man nun beide Ergebnisse, so zeigt sich, dass für internukleare Abstände unter 20 a.u. der ICD der dominante Prozess ist. Bei Abständen größer 20 a.u. gewinnt der strahlende Prozess relativ immer mehr an Bedeutung, ab 40 a.u. ist das Verhältnis von ICD zum strahlenden Zerfall kleiner als 0.01 [Sis10b].

Der ICD-Prozess konnte mittlerweile nicht nur an verschiedenen Edelgasclustern [Mor06, Lab07] sondern sogar an Wasserdimeren [Jah10, Muc10] experimentell nachgewiesen werden. Bisher wurden sie aber nur in Photoionisationsexperimenten beobachtet. Durch die genaue Kenntnis der Photonenenergie und dem sehr geringeren Impulsübertrag durch das Photon bieten diese im Gegensatz zu Ionenstoßexperimenten eine bessere Kontrolle über die experimentellen Parameter des 'Projektils'.

Langsame Elektronen gelten jedoch mittlerweile als Ursache für Strangbrüche in der DNA [Bou00]. Der IC-Zerfall könnte eine Quelle dieser langsamen Ionen sein. Ein sehr großer Teil der natürlichen radioaktiven Strahlung stammt jedoch vom α -Zerfall des Edelgases Radon ($^{222} \text{ Ra}$). Wenn IC-Zerfälle tatsächlich eine natürliche Quelle langsamer Elektronen sind, müssen diese auch nach Ionisation durch Ionen speziell durch Alphateilchen zu sehen sein. Dementsprechend ist es von großer Bedeutung, ob IC-Zerfälle überhaupt durch einen Ionenstoß stattfinden und welche kinetischen Zusammenhänge hier bestehen.

Ladungstransfer

Vom Ergebnis her ist ein Ladungstransfer nichts anderes als ein Elektroneneinfang bei sehr niedrigen Stoßenergien der beiden Reaktionspartner. In beiden Fällen wechselt ein Elektron von einem atomaren Zentrum zu einem ionischen Zentrum. Die beiden unterschiedlichen Begriffe stammen letztlich von den Bildern, die man sich von dem Prozess bei verschiedenen Stoßenergien macht. Wenn sich die beiden Reaktionspartner mit einer Geschwindigkeit von

einigen atomaren Einheiten aufeinanderzubewegen, wie es bei Ionenstößen der Fall ist, liegt das Bild des Einfangs nahe. Wenn die Stoßenergie jedoch nur wenige eV und kleiner ist, spricht man eher von einem Ladungstransfer. Dieser Begriff hat sich daher insbesondere in der Chemie und Biologie etabliert. Der Ladungstransfer innerhalb der DNA ist ein großes Forschungsfeld, da man glaubt, dass der schnelle Elektronentransfer zwischen so genannten Donor- und Akzeptormolekülen bei der Schädigung und Wiederherstellung geschädigter Bereiche der DNA eine große Rolle spielt (z.B. [Mur93, Cra06, Gen10]). Zudem ist die Untersuchung der Leitfähigkeit derartiger Makromoleküle für technische Anwendungen interessant.

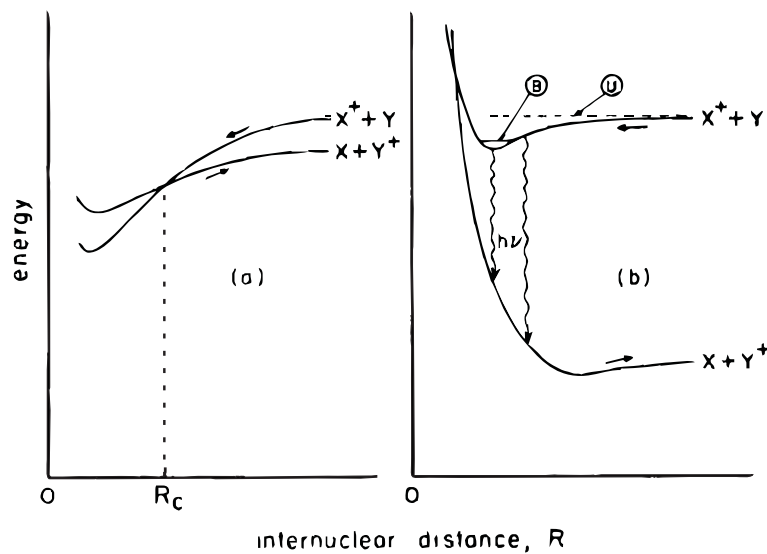


Abb. 2.19.: Schematische Darstellung der Mechanismen des Ladungstransfers aus [Joh78]. Links: Ladungstransfer am Kreuzungspunkt von zwei Potenzialkurven bzw. am energetisch kleinsten Abstand einer vermiedenen Kreuzung. Rechts: Der Ladungstransfer findet durch die Emission eines Photons statt. Man spricht vom 'radiative charge transfer'.

Beim Ladungstransfer geht man daher davon aus, dass sich entweder kurzzeitig eine Bindung ausbildet oder der Prozess innerhalb eines gebundenen Systems stattfindet, wie es hier der Fall ist. Man betrachtet den Übergang im molekularen Bild d.h. in einem Korrelationsdiagramm. Wie bei jedem Übergang müssen hier Energie-, Drehimpuls- bzw. Symmetrierhaltung gelten. Das lässt daher zwei prinzipielle Möglichkeiten zu: Zum einen können sich die beiden Potenzialkurven des Anfangs- und Endzustandes kreuzen bzw. sich an einer vermiedenen Kreuzung so nahekommen, dass ein Übergang möglich ist. Zum anderen kann das System unter Aussendung eines Photons von der Potenzialkurve des Anfangszustandes auf jene des Endzustandes wechseln. Man nennt dies dann radiativer Ladungstransfer bzw. englisch 'radiative charge transfer'.

Beim hier vorliegenden Ladungsaustausch des Dimerions He_2^{2+} wechselt das System von der Potenzialkurve mit dem Dissoziationslimit ($\text{He}^{2+}, \text{He}$) auf die repulsive Kurve mit dem Di-

soziationslimit (He^+ , He^+). Wenn man sich dies im Korrelationsdiagramm betrachtet, wird klar, dass es sich hierbei ausschließlich um einen radiativen Ladungsaustausch handeln kann. Ein strahlungsloser Übergang ist energetisch nicht möglich.

Von Johnson et al. [Joh78] konnte der radiative Ladungstransfer an Edelgasatomen (Argon, Neon, Helium, Krypton) nachgewiesen werden. Hierzu wurden die entsprechenden Edelgasionen durch Elektronenstoß in einer Quelle erzeugt. Mittels eines sehr niedrigen Driftfeldes wurden die Ionen aus der Quelle in eine Kammer gelenkt, die mit dem entsprechenden Edelgas geflutet war. Durch die Abnahme des Ionenstroms konnten die Reaktionsraten des Ladungstransfer bei thermischen Geschwindigkeiten bestimmt werden. In den letzten Jahren konnten sowohl der strahlungslose als auch der radiative Ladungstransfer an Van-der-Waals gebundenen Systemen, wie Argondimeren [Sai07, Mat10] und Neondimeren [Kre08] beobachtet werden.

Wie bei der Photoionisation auch lässt sich bei der spontanen Emission das Wechselwirkungspotenzial zwischen Anfangs- und Endzustand in einer Reihe entwickeln. Berücksichtigt man nur das erste Glied dieser Reihe, so erhält man für das Übergangsmatrixelement in der Längenform [Mey00]:

$$\vec{\mu} = \langle \phi_i | \vec{r} | \phi_f \rangle \quad (2.83)$$

Da mit der Berücksichtigung des ersten Gliedes des Wechselwirkungspotenzials nur Dipolübergänge beschrieben werden, entspricht das Matrixelement dem Dipolmoment μ . \vec{r} ist der Ortsvektor des Elektrons. Aus diesem Ausdruck ergeben sich im Allgemeinen die Auswahlregeln für einen Dipolübergang. Ebenso kann sich der Drehimpuls nur um $1 \hbar$ ändern, während der Gesamtspin erhalten bleibt.

Bei einem molekularen System, wie es hier betrachtet wird, stellt die Verbindungsachse eine Quantisierungsachse dar, wodurch der Drehimpuls keine gute Quantenzahl mehr ist. Für die Auswahlregeln bedeutet das, dass die Aussagen zur Symmetrie und zum Gesamtspin weiterhin ihr Gültigkeit haben, die Aussage zum Drehimpuls für einen Photonenübergang nicht mehr so einfach formuliert werden kann, wie bei einem atomaren System. Betrachtet man sich konkret den Übergang zwischen den Zuständen mit den Dissoziationslimits (He^{2+} , He) und (He^+ , He^+), so kann aus Symmetriegründen nur einen Strahlungsübergang zwischen den Zuständen $1 \Sigma_u$ und $1 \Sigma_g$ stattfinden. Im Limit getrennter Atome entspricht der Zustand $1 \Sigma_u$ der Drehimpuls-Konfiguration (He^{2+} , $\text{He} (1s^2)$) und der Endzustand der Konfiguration ($\text{He}^+(1s)$, $\text{He}^+(1s)$). Der Übergang scheint verboten, weil der Gesamtdrehimpuls in Anfangs- und Endzustand gleich ist. Wenn man sich jedoch die beiden Zustände im Limit vereinigter Atome anschaut, so entspricht der Zustand $1 \Sigma_u$ dem atomaren Zustand von $\text{Be}^{+2} (1s, 2p)$ und der Zustand $1 \Sigma_g$ dem atomaren Zustand von $\text{Be}^{+2} (1s^2)$. Hier ergibt sich ein Drehimpulsunterschied von $1\hbar$, ein Photonenübergang ist hier erlaubt. Im molekularen Verband kann keine definitive Aussage über den Drehimpuls gemacht werden, lediglich über seine Projektion auf die Verbindungsachse. Anschaulich präzidiert der Drehimpulsvektor hier um die

Verbindungsachse. Dadurch sind alle Einstellungen des Drehimpulses und damit Drehimpulsänderungen möglich.

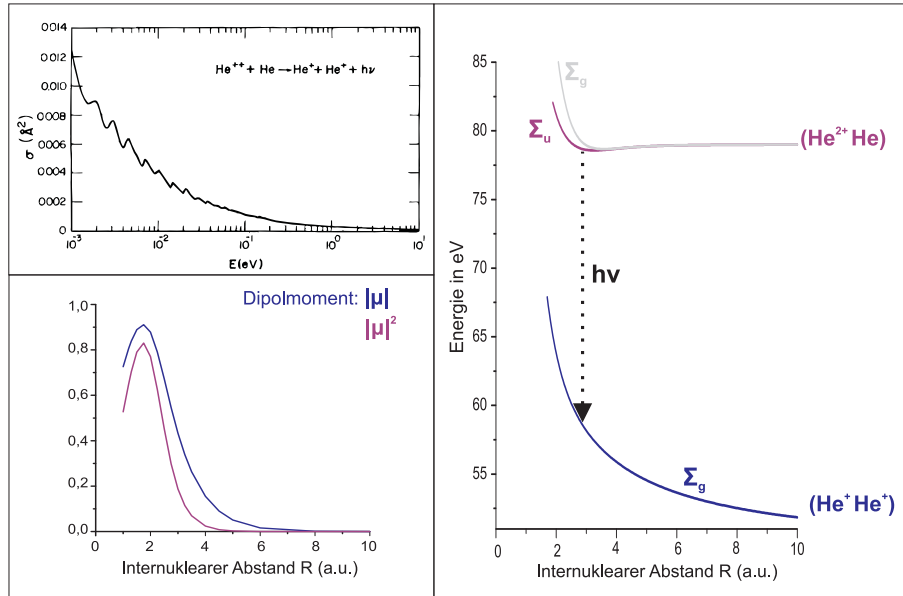


Abb. 2.20.: links oben: Wirkungsquerschnitt für den radiativen Ladungsaustausch zwischen einem Alphateilchen und einem neutralen Heliumatom [Coh78]. E ist die relative kinetische Energie der beiden Teilchen. links unten: Dipolmoment in Abhängigkeit des internuklearen Abstands [Coh78]. Das Betragsquadrat des Dipolmoments ist proportional zur Übergangswahrscheinlichkeit. rechts: Korrelationsdiagramm des He_2^{2+} . Der Pfeil zeigt den Zerfall des Molekülions durch einen radiativen Ladungstransfer. Die Potenzialkurven stammen von [Kry].

Allison und Dalgarno [All65] haben in den 1960er das erste Mal das Dipolmoment des radiativen Ladungsaustausches zwischen Alphateilchen und Heliumatomen in Abhängigkeit der Umgebungstemperatur und damit der Geschwindigkeit der Teilchen berechnet. In den 1970er Jahren folgten weitere Rechnungen von Cohen und Barsdeley [Coh78]. In beiden Fällen wurde das Dipolmoment in Abhängigkeit des internuklearen Abstands R bestimmt:

$$\vec{\mu}(R) = \langle \phi_i | \vec{r}_1 + \vec{r}_2 | \phi_f \rangle \quad (2.84)$$

wobei \vec{r}_1 und \vec{r}_2 die Ortsvektoren der beiden Elektronen darstellen. Abbildung (2.20) zeigt die berechneten Dipolmomente für den Übergang vom Zustand $1 \Sigma_u$ in den Zustand $1 \Sigma_g$. Das Quadrat des Dipolmoments ist proportional zur Übergangsrates, dem so genannten Einsteinkoeffizient, und dem differentiellen Wirkungsquerschnitt. Die Ergebnisse von Cohen und Barsdeley zeigten sehr gute Übereinstimmungen mit den Übergangsrates, die Biondi et al. experimentell für diesen Übergang bestimmten [Coh78].

Abbildung 2.20 zeigt auch die berechneten Wirkungsquerschnitte, die Cohen und Barsdeley mit Hilfe der semiklassischen JWKB-Methode [Coh78] gewonnen haben. Die JWKB-Methode

leitet ihren Namen von ihren Begründern Harold Jeffreys, Gregor Wenzel, Hendrik A. Kramer und Leon N. Brioullin ab, wobei H. Jeffreys die Methode unabhängig von den anderen entwickelt hat [?, Koi09]. Daher wird die Methode auch häufig nur als WKB-Methode [Nol04] bezeichnet. Die Grundidee beruht auf dem Korrespondenzprinzip. Es lässt sich zeigen, wenn man eine Wellenfunktion auf eine bestimmte Art und Weise in Potenzen von \hbar entwickelt, dass die Schrödinger-Gleichung in Nullter Näherung der Kontinuitätsgleichung der klassischen Mechanik entspricht. Daraus wurde ein Näherungsverfahren für zeitabhängige Probleme entwickelt, mit dem z.B. die Wellenfunktion in eindimensionalen Systemen bzw. der Radialanteil einer Wellenfunktion in einem Zentralfeld bestimmt werden kann. Cohen und Barsdeley erhalten für den Wirkungsquerschnitt:

$$\sigma(E) = \frac{\pi}{k^2} \sum (2l + 1)(1 - e^{-4\eta}) , \quad (2.85)$$

wobei η der Phasendifferenz entspricht, die durch den Ladungsaustausch entsteht. E entspricht dabei der kinetischen Energie der beiden Bindungspartner und k ist die Wellenzahl der Bewegung der beiden Kerne. Die Ergebnisse dieser Rechnung sind in Abbildung (2.20) gezeigt. Die Lebensdauer eines Zustandes, der nur über einen radiativen Ladungstransfer zerfallen kann, ist auf einer atomaren Skala sehr lange und liegt nach Johnson und Biondi bei etwa 10 ns.

3. Experiment

In dieser Messung wurde die so genannte COLTRIMS-Technik genutzt, deren Bezeichnung sich von dem englischen Ausdruck ‚COLd Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy‘ [Dör00, Ull03] ableiten lässt. Bei dieser Messtechnik können die Impulse aller Fragmente eines Ereignisses in allen drei Raumrichtungen bestimmt werden. Hierzu wird ein Ionenstrahl unter 90° mit einem Gasstrahl gekreuzt. Da die durch den Ionenstoß übertragenen Impulse im Allgemeinen kleiner sind als die Impulse, die Atome oder Moleküle durch die thermische Energie bei Zimmertemperatur besitzen, muss der Gasstrahl gekühlt werden. Dies wird mittels einer Überschallgasexpansion durch eine Düse von wenigen Micrometern erreicht. Die hier untersuchten Heliumdimere stellen hierbei eine besondere experimentelle Herausforderung dar. Die sehr geringe Bindungsenergie erfordert eine zusätzliche Kühlung der Düse bis auf einige Kelvin.

Durch den Kreuzungspunkt zwischen Gasstrahl und Ionenstrahl wird eine gut lokalisierte Reaktionszone definiert. Die geladenen Fragmente, d.h. Rückstoßionen und Elektronen, die durch Stöße der gekühlten Gasatome bzw. Dimere mit den Projektilionen in dieser Zone entstanden sind, werden auf zeit- und ortsauflösende Detektoren geführt. Für die Ionen ist hierzu lediglich ein elektrisches Feld nötig. Die entstandenen Elektronen jedoch haben aufgrund ihrer sehr viel geringeren Masse bei ähnlich großem Impulstransfer eine sehr viel höhere Geschwindigkeit. Um diese mit einem vollen Raumwinkel und ausreichend guter Auflösung auf dem Detektor nachzuweisen, wird zusätzlich ein magnetisches Feld angelegt, das die Elektronen auf Kreisbahnen zwingt [Mos96]. Die gestreuten Projektilen wiederum werden nach dem Passieren der Reaktionszone mittels eines elektrostatischen Deflektorpaars nach ihrem Ladungszustand analysiert. Die Ionen des Primärstrahles werden dabei in eine Faraday-Tasse gelenkt.

Durch diese Anordnung können die Flugzeiten und die Orte aller an einem Ereignis beteiligten Fragmente koinzident gemessen werden. Bei genauer Kenntnis der angelegten Felder können hieraus die Trajektorien der Teilchen rekonstruiert und so der Anfangsimpuls bestimmt werden. Die Ladungsanalyse der Projektilionen sowie das für die Transferionisation zusätzlich detektierte Elektron ermöglichen eine Trennung zwischen dem doppelten Elektroneneinfang und der Transferionisation.

Im Folgenden soll dieses Messprinzip detaillierter vorgestellt werden. Hierbei wird die Präparation von Gas- und Ionenstrahl näher erläutert, ebenso wie die Bewegung der geladenen Teilchen im elektrischen bzw. magnetischen Feld, die Funktionsweise der Detektoren und die

Datenaufnahme. Am Ende des Kapitels wird erklärt, wie aus den Orts- und Flugzeitinformationen der Impulsvektor aller Fragmente bestimmt werden kann.

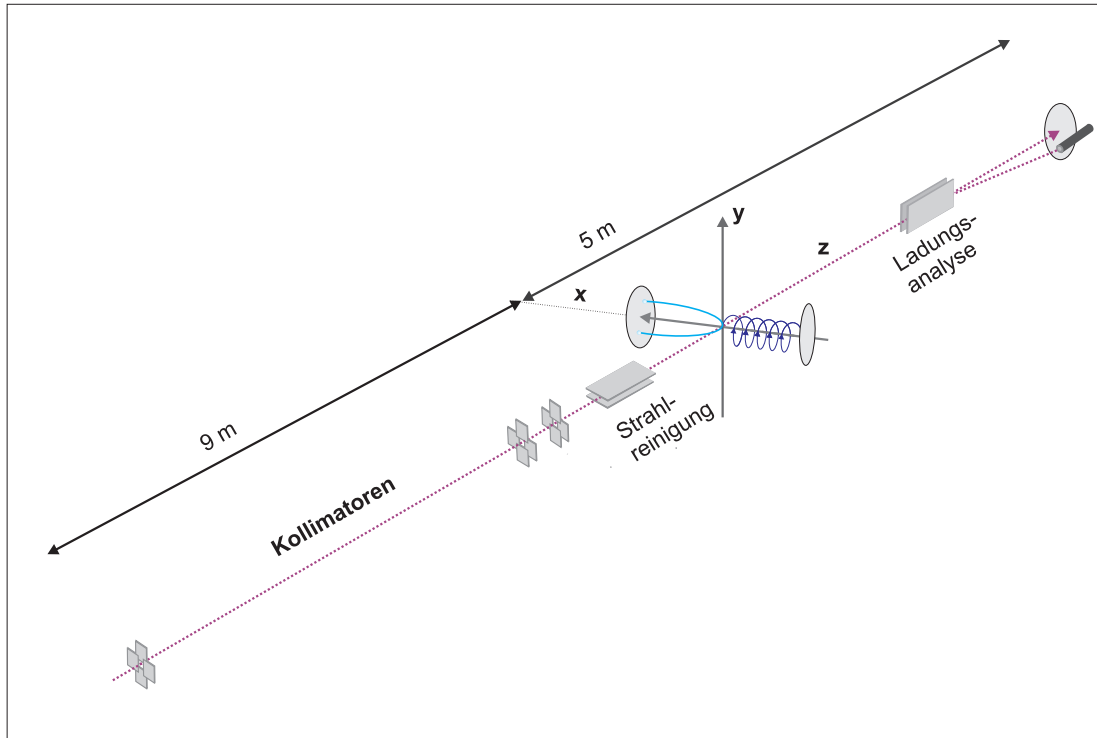


Abb. 3.1.: Der Ionenstrahl passiert vor dem Eintritt in die Kammer drei Blenden, so genannte Kollimatoren. Sie legen unter anderem die Strahlachse fest. Zudem sorgt eine elektrostatische Ablenkereinheit vor der Reaktionszone dafür, dass die bereits vorher umgeladenen Projektionen vom eigentlichen Strahl separiert werden, indem der Ionenstrahl nach oben abgelenkt wird. Elektronen und Rückstoßionen werden mit elektrischen und magnetischen Feldern auf zeit- und ortsauflösenden Detektoren geführt. Die Projektile werden hinter der Reaktionszone nach ihrer Ladung analysiert. Der Primärstrahl gelangt hierbei in eine Faradytasse. Die umgeladenen Projektionen treffen auf den entsprechenden Detektor.

3.1. Präparation des Ionenstrahls

Die Messung für diese Arbeit wurde am Strahlkanal 2 des Van-de-Graaf-Beschleunigers des Instituts für Kernphysik Frankfurt durchgeführt. Die Hochfrequenzquelle dieses Beschleunigers produziert nur einfach geladene Ionen. Nach der Beschleunigung auf die gewünschte Energie von 150 keV/u werden sie durch eine Magneten umgelenkt. Da die Umlenkung durch den Magneten mit Masse-zu-Ladungs-Verhältnis skaliert, können dadurch die gewünschten Ionen von Ionen, die in der Quelle durch die Ionisation von Restgas entstanden sind, separiert werden. Danach gelangen die Ionen in einen Strahlrohrabschnitt, in dem zusätzlich Gas eingelassen wurde und ein um etwa vier Größenordnungen höheres Vakuum (ca. 10^{-4} mbar)

herrscht. Dadurch wird ein großer Teil der einfach geladenen Heliumionen durch Stöße mit Restgasatomen nochmals ionisiert. Die entstandenen Alphateilchen werden mit einem weiteren Magneten von den restlichen Ionen getrennt und in den gewünschten Kanal gelenkt.

Dort wird der Ionenstrahl von zwei aufeinanderfolgenden Blenden, so genannten Kollimatoren, die einen Abstand von etwa 9 m haben, begrenzt. Dadurch wird zum einen eine Strahlachse festgelegt. Zum anderen wird durch die Größe der Blendenöffnung die Streuwinkelauflösung, die bei diesem Experiment erreicht werden kann, definiert. Da der Strahlstrom durch die Kollimatoren stark reduziert wird, muss hier ein für das Experiment spezifischer Kompromiss zwischen Ereignisrate und Auflösung gefunden werden. Durch die Erzeugung der zweifach geladenen Ionen mittels Stoßionisation verliert der Ionenstrahl stark an Intensität. In diesem Experiment wurde daher zu einer größeren Blendenöffnung tendiert - es wurde eine Öffnung von etwa 1 mm gewählt. Eine weitere dritte Blende sorgt dafür, dass Ionen, die an den Kanten der zweiten Blende und damit aus der Strahlachse heraus gestreut werden, und Sekundärelektronen, die durch diese Streuung entstehen, nicht in die Experimentierkammer und damit in die Reaktionszone gelangen.

In der Experimentierkammer befindet sich zunächst eine vertikale elektrostatische Ablenkeinheit für die Strahlsäuberung: Die Alphateilchen können auf ihrem Weg durch das Strahlrohr wieder Elektronen einfangen, wodurch einfach geladene Heliumionen oder sogar neutrale Heliumatome entstehen. Für die Untersuchung einer bestimmten Reaktion bedeutet dies, dass der Ladungszustand der Projektile nicht klar definiert ist und dies zu einer hohen Anzahl an Untergrundereignissen führen kann. Die elektrostatische Ablenkeinheit vor der Reaktionszone trennt die Ionen des Strahls ihrem Ladungszustand entsprechend voneinander und ermöglicht damit eine eindeutige Präparation des Projektilzustands vor der Reaktion.

Im Zentrum der Kammer wird der Ionenstrahl mit dem gekühlten Gasstrahl gekreuzt. Danach folgt eine weitere elektrostatische Ablenkeinheit, die den Strahl in horizontaler Richtung ablenkt. Diese dient dazu, den Ladungszustand der Projektile nach der Reaktion zu analysieren. Die Projektile, die nicht mit den Atomen bzw. Molekülen des Gasstrahls reagieren oder durch die Reaktion keine Umladung erfahren haben, werden dabei in eine Faraday-Tasse, dem so genannten Beamdump, gelenkt. Projektile, die nach der Reaktion neutral oder einfach geladen sind, werden mit einem Detektor nachgewiesen.

3.2. Vakuumsystem der Experimentierkammer

Um zu verhindern, dass Atome bzw. Moleküle aus dem warmen Restgas, das durch den Gasstrahl ebenfalls anfällt, mit dem Projektilstrahl wechselwirken, besteht die komplette Experimentierkammer aus vier differenziellen Pumpstufen:

- 1. Expansionsstufe (Quellkammer): Hier entsteht der Gasstrahl mittels einer Expansion

durch eine gekühlte Düse.

- 2. Expansionsstufe: Hier strömt das Gas nur hindurch. Diese zusätzliche Pumpstufe zwischen 1. Expansionsstufe und Reaktionskammer soll verhindern, dass aufgrund des schlechten Vakuums in der 1. Expansionsstufe warmes Restgas in die Reaktionskammer gelangt.
- Reaktionskammer (Targetkammer): In ihr werden Ionenstrahl und Gasstrahl gekreuzt und die Reaktionsfragmente durch die Detektoren nachgewiesen.
- Jetdump: Hierher gelangen die restlichen Atome oder Moleküle des Gasstrahls, die nicht durch ein Projektil ionisiert worden sind, und werden abgepumpt.

Jede der Kammern wird mit Turbomolekularpumpen gepumpt, deren Ausgang wiederum mit einer Vorpumpe mit einer Saugleistung von 220 m³/h gepumpt wird. Wenn ein Gasstrahl durch das Kammersystem geführt wird, werden die Ausgänge der Turbomolekularpumpen der Expansionsstufen von einer anderen Vorpumpe gepumpt als die der Reaktionskammer und des Jetdumps. Dadurch wird vermieden, dass warmes Restgas aus der ersten Expansionsstufe durch mangelnde Kompression der Turbopumpen über das Vorvakuumssystem in die Reaktionskammer strömt. Tabelle (3.1) zeigt die Vakua mit und ohne Gasstrahl sowie die Pumpleistung der verschiedenen Pumpen, die an den Kammern angeschlossen sind.

Kammerbereich	Druck	Druck mit Gasstrahl	Pumpleistung
Dump	$2.6 \cdot 10^{-8}$ mbar	$3.9 \cdot 10^{-8}$ mbar	$210 \frac{l}{s}$
Reaktionskammer	$1.1 \cdot 10^{-7}$ mbar	$1.1 \cdot 10^{-7}$ mbar	$2 \times 210 \frac{l}{s} + 230 \frac{l}{s} + 520 \frac{l}{s}$
2. Expansionsstufe	$6.0 \cdot 10^{-8}$ mbar	$1.4 \cdot 10^{-6}$ mbar	$230 \frac{l}{s}$
1. Expansionsstufe	$3.0 \cdot 10^{-8}$ mbar	$3.5 \cdot 10^{-5}$ mbar	$920 \frac{l}{s}$

Tab. 3.1.: Die Pumpleistung bezieht sich jeweils auf Stickstoff. Als Gasstrahl wurde hier Helium bei einer Temperatur von 295 K und einem Vordruck von 20 bar verwendet (unkorrigiert). Der Durchmesser der Düse betrug 5 μ m. Die Kühlfalle in der Reaktionskammer war nicht in Betrieb.

In der Reaktionskammer ist zusätzlich eine große Metalloberfläche montiert, die mit flüssigem Stickstoff von außen gekühlt werden kann. An der Oberfläche werden Restgasatome bzw. -moleküle, die auf die Oberfläche treffen, gekühlt, wodurch sie dort haften bleiben können. Hierdurch kann der Druck der Reaktionskammer um einen Faktor 10 vermindert werden. Dem Strahlverlauf folgend schließt sich nach der Reaktionskammer ein weiteres Strahlrohr an, an dessen Ende der Projektildetektor befestigt ist. Dieses Rohrstück ist etwa 5 m lang und wird von zwei Turbomolekularpumpen gepumpt. Zudem kann durch ein Ventil eine Kryopumpe

hinzugeschaltet werden. Dadurch kann dort ein Druck von $4 \cdot 10^{-8}$ mbar erreicht werden.

3.3. Präparation des Gasstrahls

In den hier zu untersuchenden Stoßexperimenten erhalten die Fragmente aus der Reaktion Impulse von einigen atomaren Einheiten. Die thermische Energie (=innere Energie) eines Heliumatoms

$$E = \frac{3}{2} k_B T \quad \text{mit} \quad k_B = 8.62 \cdot 10^{-5} \frac{\text{eV}}{\text{K}} \quad (3.1)$$

beträgt bei Zimmertemperatur jedoch fast 40 meV, was einem Impuls von mehr als 4.5 a.u. entspricht. Um eine Impulsauflösung zu erreichen, die eine Untersuchung der Stoßexperimente ermöglicht, ist es deshalb notwendig, den Gasstrahl zu kühlen. Hierbei erweist sich die Kühlung durch eine Überschallgasexpansion als eine geeignete Methode. Sie hat zudem den Vorteil, dass sie ideale Bedingungen für die Erzeugung von Clustern bietet.

Bei diesem Verfahren expandiert Gas mit einem hohen Druck von einigen Bar durch eine Düse mit einem Durchmesser von einigen Mikrometern in eine Vakuumkammer. Das Besondere an dieser Art der Expansion ist, dass aufgrund der Energieerhaltung die Enthalpie des Gases während des Prozesses in eine gerichtete Bewegung der Atome oder Moleküle umgewandelt wird. Die Gasatome bzw. -moleküle können aufgrund des Druckgradienten in und nach der Düse auf Überschallgeschwindigkeit beschleunigt werden. Dies lässt sich verstehen, wenn man sich den ersten Hauptsatz der Thermodynamik betrachtet. Er besagt, dass sich die Energie eines abgeschlossenen Systems nur ändern kann, wenn Energie von außen in Form von Wärme Q , Arbeit W etc. in das System transportiert wird [Ste09]:

$$E = Q + W + M\left(u + \frac{v^2}{2} + gz\right), \quad (3.2)$$

wobei M die Masse und (Mgz) die potenzielle Energie aller Teilchen im System ist. u entspricht der inneren Energie pro Masse (spezifische innere Energie), v stellt die Geschwindigkeit dar. Die Düse ist ein offenes System dar. Es bewegen sich Teilchen in das System hinein bzw. aus dem System hinaus. Für jedes Teilchen, das dem System zugeführt wird, muss Arbeit gegen den im System herrschenden Druck aufgewendet werden. Hierdurch wird das Medium im System um das Volumen des Teilchens V komprimiert. Die erforderliche Verschiebearbeit für die zugeführten Teilchen ist also gleich der Volumenänderungs- bzw. Kompressionsarbeit $pV\Delta M$, die dem System zugeführt wird bzw. frei wird, wenn andere Teilchen es verlassen. Es ergibt sich damit analog:

$$\dot{E} = \dot{Q} + \dot{W} + \dot{M}\left(u + pV + \frac{v^2}{2} + gz\right) \quad (3.3)$$

beit) geleistet. Wird zudem die Reibung vernachlässigt und damit der Vorgang zusätzlich als isentropisch angesehen, so lässt sich der zweite Summand in Gleichung 3.4 ebenfalls gleich Null setzen, $\dot{W} = 0$. Ferner kann die potenzielle Energie der Gasteilchen ($\dot{M} g z$) gegenüber den anderen beiden Termen vernachlässigt werden. Diese beträgt für ein Heliumatom weniger als $1 \mu\text{eV}$, während die kinetische Energie und Enthalpie im Bereich von einigen Milliektronenvolt liegen. Aus diesen Näherungen folgt:

$$\dot{E} = \dot{M} \left(h + \frac{v^2}{2} \right) \quad (3.5)$$

Bei der Expansion hat das Gas innerhalb der Düse eine Temperatur T_0 , einen Druck p_0 und damit eine spezifische Enthalpie h_0 , sowie die Strömungsgeschwindigkeit v_0 , nach der Düse in der Vakuumkammer entsprechend die Temperatur T_{end} , den Druck p_{end} und damit die spezifische Enthalpie h_{end} und die Geschwindigkeit v_{end} . Die Änderung der Massen \dot{M} muss bei konstantem Druck p_0 und konstanter Saugleistung der Pumpen an der Vakuumkammer gleich sein (Erhalt der Massen). So berechnet sich aus der Energierhaltung $\dot{E}_0 = \dot{E}_{end}$

$$\frac{m v_{end}^2}{2} - \frac{m v_0^2}{2} = m (h_0 - h_{end}) \quad (3.6)$$

Die Enthalpie eines Atoms oder Moleküls beträgt $h_{Molekuel} = m h = \frac{f}{2} k_B T + k_B T$, wobei f die Anzahl der Bewegungsfreiheitsgrade des Teilchens ist. Für Atome beträgt $f=3$, für ein zweiatomiges Molekül ergibt sich aufgrund der zusätzlichen Rotationsfreiheitsgrade für $f=5$. Der erste Term entspricht der oben angesprochenen thermischen Energie oder auch inneren Energie, der zweite Term stellt die ebenfalls bereits erwähnte Verschiebearbeit (pV) dar. Hiermit ergibt sich aus Gleichung (3.6)

$$v_{end} = \sqrt{\frac{(f+2) k_B T_0}{m} \left(1 - \frac{T_{end}}{T_0} \right) + v_0^2} \quad (3.7)$$

bzw. mit den Zusammenhang von Druck und Temperatur für eine adiabatische Zustandsänderung eines idealen Gases:

$$v_{end} = \sqrt{\frac{(f+2) k_B T_0}{m} \left[1 - \left(\frac{p_{end}}{p_0} \right)^{\frac{c_p}{R}} \right] + v_0^2} \quad (3.8)$$

Diese Gleichung macht deutlich, dass die Endgeschwindigkeit der Gasteilchen ganz entscheidend vom Unterschied der Gasdrücke abhängt: Aufgrund des Druckunterschieds in der Düse und in der Vakuumkammer bildet sich entlang der Düsenachse ein Druckgradient, wodurch die Gasteilchen in dieser Richtung auch auf Überschallgeschwindigkeit beschleunigt werden können. Wegen der Energieerhaltung kann die Beschleunigungsenergie aber nur aus der Enthalpie der Teilchen kommen, was bedeutet, dass die Enthalpie und damit auch die Temperatur

kleiner wird. Das ist das Grundprinzip eines Überschallgasstrahls.

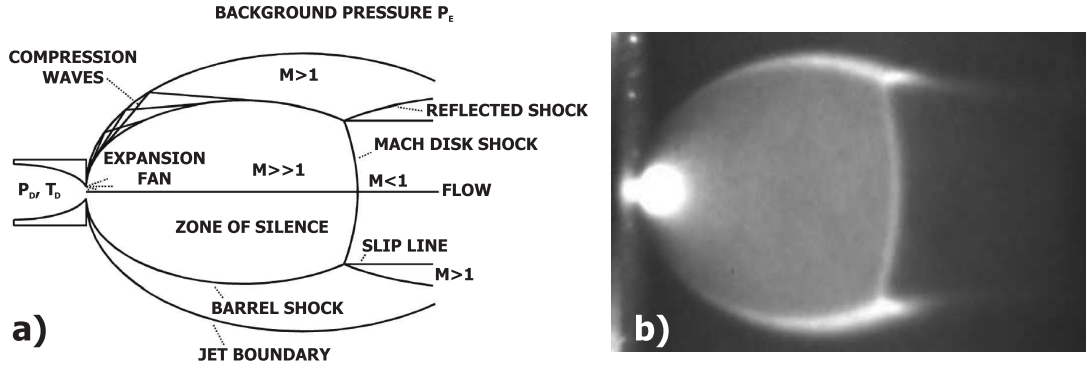


Abb. 3.3.: Darstellung des Überschallgasstrahls. Links: schematische Darstellung der verschiedenen Druckzonen (aus [Mil88]). Rechts: Fotografie eines Überschallgasstrahls (aus [Sch02]).

Wenn der Enddruck in der Expansionskammer p_{end} sehr klein gegenüber dem Vordruck p_0 ist, dann lässt sich die Anfangsgeschwindigkeit gegenüber der Endgeschwindigkeit vernachlässigen. Zudem ist der Ausdruck in der Klammer näherungsweise 1 und vereinfacht sich zu:

$$v_{end} = \sqrt{\frac{(f+2) k_B T_0}{m}} \quad (3.9)$$

In der Expansionskammer entsteht eine Region, in der sich die Gasteilchen nahezu gleich mit Überschallgeschwindigkeit bewegen. Man spricht von der so genannten 'zone of silence'. Sie ist umgeben von einem Bereich aus verschiedenartigen Druckwellen (Abb. 3.3), in dem eine hohe Dichte und Temperatur herrscht und die Gasteilchen mit den Atomen bzw. Molekülen des Restgases wechselwirken. Die Länge der 'zone of silence' l_z ist abhängig vom Düsendurchmesser, sowie von dem Hintergrunddruck in der Kammer p_{end} und dem Druck p_0 , mit dem das Gas durch die Düse expandiert:

$$l_z = \frac{2}{3} d_D \sqrt{\frac{p_0}{p_{end}}} \quad (3.10)$$

Die bei diesem Aufbau verwendete Düse hatte einen Durchmesser von $5 \mu\text{m}$. Mit einem Vordruck von etwa 8 bar und einem Druck in der ersten Expansionsstufe von $1 \cdot 10^{-3} \text{mbar}$, ergibt sich eine Länge der 'zone of silence' von etwa 9 mm. Die charakteristische Größe eines Überschallgasstrahls stellt das Speedratio dar, d.h. das Verhältnis der longitudinalen Geschwindigkeitskomponente (in Ausbreitungsrichtung) zur transversalen Geschwindigkeitskomponente. Letzere ist durch die thermische Energie und damit durch die interne Jettemperatur T_{jet} gegeben. Es gilt also:

$$S = \frac{v_{end}}{v_{trans}} = \frac{v_{end}}{\sqrt{\frac{2kT_{jet}}{m}}} \quad (3.11)$$

Um die Atome oder Moleküle herauszupräparieren, die sich nahezu mit gleicher Geschwindigkeit wechselwirkungsfrei fortbewegen, wird eine konisch geformte Blende in die 'zone of silence' eingetaucht, der sogenannte Skimmer. Seine Verarbeitung und materielle Beschaffenheit ermöglicht ein fast wirbelfreies Herausschälen des Gasstrahls. Die Öffnung des ersten Skimmers befindet sich bei dem verwendeten Aufbau etwa 5 mm oberhalb der Düse. Ihr Durchmesser beträgt $300 \mu\text{m}$. Wie bereits erwähnt, wurde bei diesem Aufbau ein zweistufiges Jetsystem genutzt. Das bedeutet, dass der Gasstrahl durch eine weitere Kammer (2. Expansionsstufe) strömt und durch eine weitere Blende beschnitten wird, bevor er in der Reaktionskammer mit dem Ionenstrahl gekreuzt wird. Die zweite Blende ist in diesem Fall ebenfalls ein Skimmer mit einem Durchmesser von $500 \mu\text{m}$. Seine Öffnung liegt etwa 33 mm oberhalb der Düse. Das Reaktionsvolumen, d.h. der Überlappbereich von Ionen- und Gasstrahl, hat eine Entfernung von etwa 118 mm von der Düse. Mit Hilfe des Strahlensatzes lässt sich damit die transversale Ausdehnung des Gasstrahls im Reaktionsvolumen berechnen. Sie beträgt von 1.83 mm. Die Impulse, die Heliumatome aufgrund der Geometrie und Kühlung des Gasjets haben, ergeben sich nach [Mer94] zu:

$$\Delta p_{Jet} = \sqrt{5 \mu k T_0} \begin{pmatrix} \frac{(d_D + d_{S2})}{l} \\ \frac{(2\sqrt{\ln 2})}{S} \\ \frac{(d_D + d_{S2})}{l} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0.008 \text{ a.u.} \\ 0.008 \text{ a.u.} \\ 0.008 \text{ a.u.} \end{pmatrix} \quad (3.12)$$

Das Speedratio wurde aus experimentell ermittelten Kurven bestimmt [GB89]. Es ergibt sich bei einer Düsentemperatur von 30 K ein Wert von etwa 150. l ist der Abstand zwischen Düse und zweitem Skimmer. Wie man erkennen kann, ergeben sich durch die Geometrie des Gasstrahls nur sehr geringe Impulse. Da die Impulsüberträge durch das Projektil einige atomare Einheiten betragen, spielen diese Impulse in der erreichten Auflösung keine Rolle.

3.3.1. Produktion von Clustern

Die interne Temperatur, die sich mit einer Überschallgasexpansion bei normaler Zimmertemperatur erzeugen lässt, liegt für Helium in einem Bereich von einigen mk bis zu einem K. Die Bindungsenergie eines Heliumdimers beträgt etwa 100 neV . Damit ein Heliumdimer entsteht, muss seine thermische Energie kleiner sein als diese Bindungsenergie. Dies entspricht einer Temperatur von 1.1 mK. Daraus folgt, dass das Gas noch zusätzlich vorher gekühlt werden muss. Dies erreicht man durch die Kühlung der Düse. Im Folgenden wird kurz erläutert, wie die Kühlung in diesem Experiment realisiert wurde und wie die Dimerrate maximiert wurde.

Kühlung

Bei diesem Aufbau wurde die Düse mittels eines Kaltkopfs (LH RGD 1245) gekühlt. Hierzu wurde an beide Seiten der Kupferlitze jeweils ein Kupferblock geschweisst. Der eine Block (Durchmesser 15 mm) wurde direkt auf den Kaltkopf montiert. Zu einer besseren Wärmeübertragung wurde zwischen Kupferblock und Kaltkopf eine Schicht Indium gelegt. Das andere Ende der Litze war so geformt, dass er um die Düsenhalterung geschraubt werden konnte.

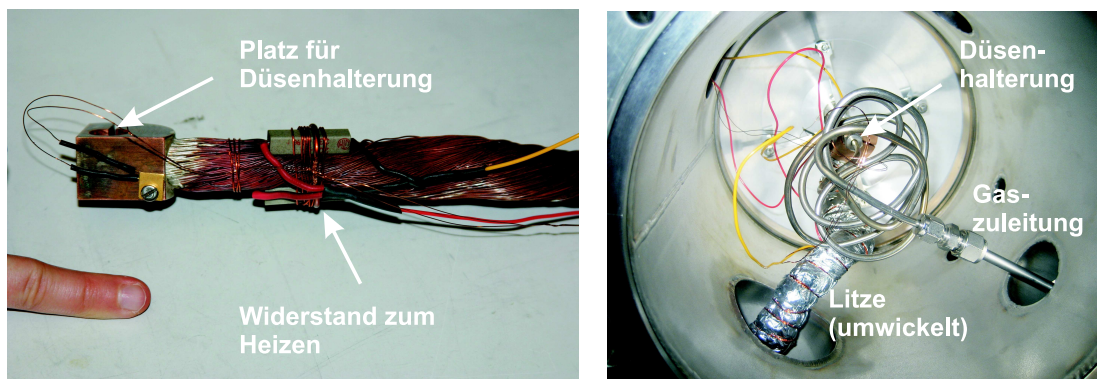


Abb. 3.4.: Kühlung der Düse. Links: die Kupferlitze mit Heizwiderstand. Die Düsenhalterung wird vorne in den Kupferblock eingespannt. Am anderen Ende wird der Kupferblock auf einen Kaltkopf geschraubt. Rechts: Düsenhalterung mit Kupferlitze (von unten fotografiert). Die Gaszuleitung kommt von rechts und mündet direkt in der Düsenhalterung. Die Kupferlitze kommt von rechts vom Kaltkopf und wird an der Düsenhalterung montiert.

Die Temperatur wurde mit Hilfe einer Halbleiter-Diode vom Typ DT 670 der Firma Lake Shore [Lak] gemessen. Sie war an der Düsenhalterung befestigt, etwa 30 mm von der Düse entfernt. Sie wurde über zwei sehr dünnen Drähte, die einen sehr geringen Eigenwiderstand besitzen, mit einer Keramikvakuumdurchführung verbunden. Die Drähte hatten etwa eine Länge von 500 mm. Der angelegte Strom betrug $10 \mu\text{A}$.

Um den Wärmeverlust durch Strahlung oder Konvektion zu minimieren, wurde die Kupferlitze mit einer isolierenden Folie zusätzlich umwickelt. Die Leistung des Kaltkopfes betrug an der ersten Stufe 45 Watt, an der zweiten 12 Watt. Anhand der Zeit, die für das Kühlen, benötigt wurde, lässt sich abschätzen, wie groß der Verlust bzw. die Verlustleistung war. Die spezifische Wärmekapazität von Kupfer hat einen Wert von etwa $385 \frac{\text{J}}{\text{kgK}}$. Die Kupferlitze besteht aus den zwei Endstücken, die zusammen etwa 0.25 kg wiegen, die Litze selbst wiegt schätzungsweise 0.3 kg. Hieraus ergibt sich eine Wärmekapazität von $212 \frac{\text{J}}{\text{K}}$. Damit lässt sich die Wärme berechnen, die benötigt wird, um die die Temperatur der Kupferlitze zu ändern:

$$dQ = C(T_1 - T_2) \quad (3.13)$$

Kennt man dann noch die Zeit t , in der die Litze abgekühlt wurde, lässt sich daraus die

Wärmeleistung bestimmen:

$$W_L = \frac{dQ}{t_1 - t_2} \quad (3.14)$$

Tabelle (3.2) zeigt die berechnete Leistung, die zum Kühlen der Kupferlitze benötigt wurde. Man erkennt, dass es etwa 2 W Verlustleistung gab, was etwa 20 Prozent entspricht. Der kritische Wert ist hier die Masse der Litze selbst, der hier eher geringer angenommen wurde. Es ist also davon auszugehen, dass die Verlustleistung tendenziell kleiner war.

Temperatur [K]	Zeit [min]	Wärmeübertrag [J]	Leistung [W]	Anteil von 12 W
250	30	10587.5		
215	42	7411.25	10.29	0.142
140	69	15881.25	9.80	0.183
21	110	25410	10.33	0.139

Tab. 3.2.: Der Vordruck war bei der Messung etwa 0 bar. Zeit und Temperaturdifferenz, die zur Berechnung der Leistung notwendig sind, beziehen sich immer auf den Wert in der Reihe vorher.

Mit der Diode konnte eine Temperatur von etwa 21 K gemessen werden. Es ist daher sinnvoll an der Düse eine etwas höhere Temperatur von etwa 25-30 K anzunehmen.

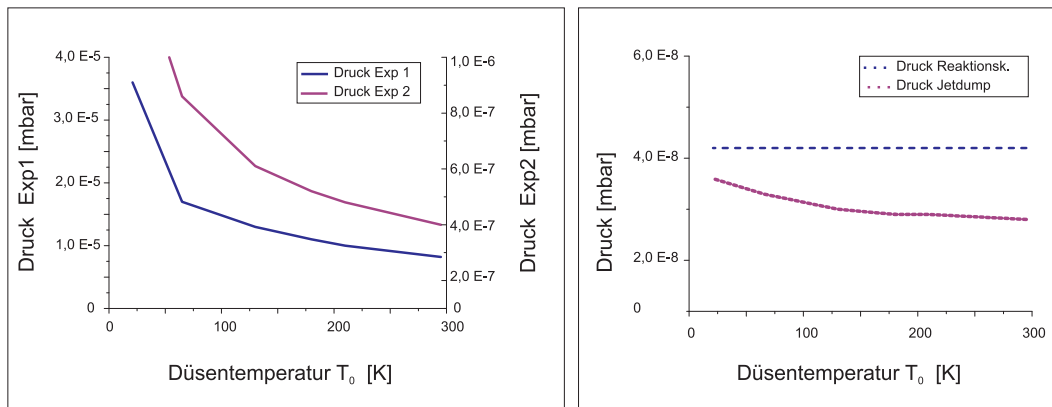


Abb. 3.5.: Verlauf des Druckes in den verschiedenen differentiellen Pumpstufen in Abhängigkeit der gemessenen Temperatur an der Düse. Die Drücke in den Expansionsstufen (links) und im Jetdump (rechts) steigt mit sinkender Temperatur, da der Gasdurchsatz ebenfalls steigt. Das Vakuum in der Reaktionskammer (rechts) ändert sich innerhalb der Messgenauigkeit kaum.

Wie man an den Graphen in Abbildung 3.5 sehen kann, steigt der Druck in den Expansionskammern und im Jetdump bei der Kühlung der Düse an. Der Gasdurchsatz \dot{M} durch den Ausgang der Düse hängt von der Endgeschwindigkeit des Gases, dem Querschnitt der Düse

und der Gasdichte ab. Wie man in Gleichung 3.8 erkennen kann, ist die Geschwindigkeit proportional zu $\sqrt{T_0}$. Man würde also zunächst erwarten, dass der Gasdurchsatz mit sinkender Temperatur auch kleiner wird. Die Gasdichte ist jedoch antiproportional zum Volumen und damit nach idealem Gasgesetz auch antiproportional zur Temperatur T_0 , so dass der Gasdurchsatz insgesamt von $\frac{1}{\sqrt{T_0}}$ abhängt und damit auch mit sinkender Temperatur steigt.

Maximierung der Dimerrate

Die Erzeugung von Heliumdimeren bzw. Maximierung der Dimerrate ist nicht trivial. Die Temperatur an der Düse, Vordruck, Druck in Expansionskammer und Düsengröße beeinflussen das jeweilige Ergebnis stark. Anschaulich wird die Bildung von Clustern und Heliumdimeren durch eine große Gasdichte begünstigt. In diesem Fall ist die Wahrscheinlichkeit höher, dass Gasatome miteinander stoßen und dadurch miteinander eine Verbindung eingehen können. Für ein ideales Gas lässt sich die Gasdichte leicht bestimmen:

$$\rho = \frac{M}{V} = \frac{MP_0}{N k_B T_0} \quad (3.15)$$

Diesem Zusammenhang folgend wird das Gas mit steigendem Druck bzw. sinkender Temperatur dichter. Man wird daher erwarten, dass die Ausbeute an Clustern in ähnlicher Weise von diesen Größen abhängt. Bruch et al. [Bru02] und Kariotis et al. [Kar04] haben Raten von kleineren Heliumclustern in Abhängigkeit des Vordruck für verschiedene Temperaturen experimentell bestimmt (Abbildung 3.6). Sie benutzten wie Toennies et al. zur Erzeugung der Cluster einen Überschallgasstrahl und ein Beugungsgitter, um die verschiedenen Clustergrößen im Gasstrahl voneinander zu trennen.

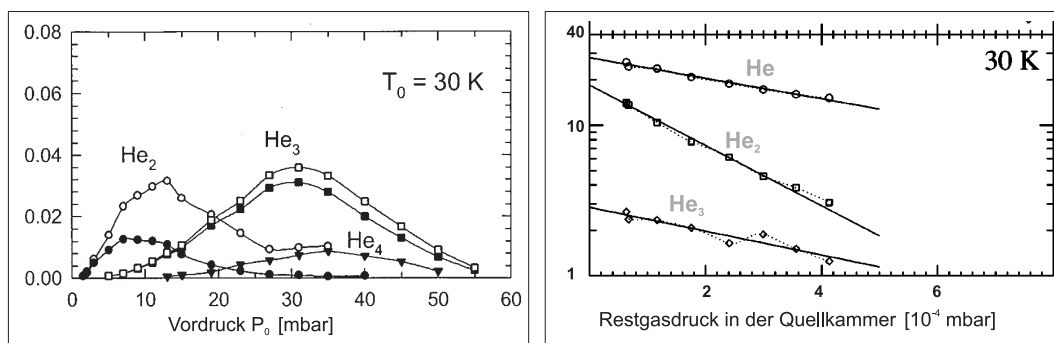


Abb. 3.6.: Links: Verlauf der Heliumclusterraten in Abhängigkeit des Vordrucks für eine Düsentemperatur von 30 K, wie sie von Bruch et al. [Bru02] gemessen wurden. Die Kurven mit gefüllten Symbolen repräsentieren die Werte, die aufgrund des Druckes in der Expansionskammer korrigiert worden sind. Rechts: Clusterraten in Abhängigkeit des Druckes in der Expansionskammer, wie sie von Kariotis et al. [Kar04] bestimmt wurden. Die unterschiedliche Steigung von Dimer- und Trimerraten wird auf die ungleichen Bindungsenergien der Cluster zurückgeführt.

Bei diesen Ergebnissen zeigt sich tatsächlich, dass die Dimerrate mit sinkender Temperatur größer wird. Für den Vordruck sind die Resultate nicht so eindeutig (Abbildung 3.6). Hier steigt der Anteil der Dimere im Gasstrahl mit steigendem Vordruck zunächst an, erreicht ein Maximum und fällt dann schnell ab. Man könnte zunächst zu dem Schluss kommen, dass die fallende Flanke der Verteilung daher rührt, dass mit steigendem Vordruck auch der Anfall an Restgas in der Expansionskammer ansteigt und dadurch die Wahrscheinlichkeit erhöht wird, dass das Dimer durch einen Stoß mit einem Restgasatom oder -molekül wieder zerfällt. Dieser nicht zu vernachlässigende Effekt wurde im Rahmen dieser Messung aber ebenfalls untersucht. Mit einem kinetischen Modell, in dem angenommen wurde, dass die Cluster (Dimere, Trimere, Tetramere) in bestimmten Drei-Körper-Reaktionen entstehen, konnten die relativen Raten berechnet werden. Es stellte sich heraus, dass selbst unter Berücksichtigung dieses Effekts die fallende Flanke nicht reproduziert werden konnte. Da im angesprochenen kinetischen Modell nur Cluster mit weniger als fünf Atomen berücksichtigt wurden, vermutete man daher, dass mit größer werdendem Vordruck die Wahrscheinlichkeit für die Bildung von größeren Clustern überwog und dadurch die Dimerrate abnahm.

In Abbildung 3.6 (rechts) sind für eine Temperatur von 30 K die Dimer- und Trimerraten in Abhängigkeit des Drucks in der Expansionskammer gezeigt, wie sie von Kariotis et al. [Kar04] gemessen wurden. Wie die Ergebnisse verdeutlichen, fällt die Rate für Dimere sehr viel stärker als für Trimere. Man geht daher davon aus, dass Trimere eine größere Bindungsenergie besitzen als Dimere. Diese Ergebnisse machen jedoch deutlich, wie wichtig der Druck in der Expansionskammer bei der Maximierung der Dimerrate ist. Die Kurven mit den geschlossenen Symbolen links repräsentieren die Ergebnisse, bei denen dieser Effekt berücksichtigt wurde. Für Heliumdimere ist der Unterschied in den Raten mit und ohne diesen Effekt sehr groß.

In dieser Arbeit wurde versucht, die Dimerrate indirekt durch die zu untersuchenden Prozesse zu bestimmen: Der Gasstrahl wurde hierzu bereits mit dem Ionenstrahl gekreuzt. Wird ein Dimer durch den Stoß mit dem Projektil zweifach ionisiert, fragmentiert es in zwei einfach geladene Heliumionen, die aufgrund des Coulombpotenzials in die entgegengesetzte Richtung bewegen. Der Summenimpuls beider Rückstoßionen muss bis auf den Impulsübertrag von Projektil und Elektron Null ergeben. Trägt man in einem Spektrum den Impuls des einen Ions gegen den Impuls des anderen Ions auf, so erhält man daher eine Linie. Dieser Zusammenhang lässt sich jedoch auch sehen, wenn man die gemessenen Flugzeiten gegeneinander aufträgt. Hier ergibt sich auch näherungsweise eine Linie. Anhand ihrer Stärke lässt sich prinzipiell die Dimerrate optimieren. Abbildung 3.7 zeigt ein solches Spektrum für verschiedene Drücke. Man erkennt, dass die Linie mit steigendem Vordruck an der Düse stärker wird und die Ausbeute bei 12 Bar am höchsten zu sein scheint.

Schaut man sich jedoch in Abbildung 3.6(links) die Kurven an, die den Restgasdruck berücksichtigen, sollte das Verhältnis von Dimeren zu Trimeren bei 12 Bar etwa 2 zu 1 betragen. Das

Problem bei der Bestimmung der maximalen Dimerrate mit der hier vorgestellten Methode ist, dass bisher nicht bekannt ist, wie Heliumtrimere aufgebaut sind bzw. wie sie zerfallen. Es ist prinzipiell möglich, dass ein Trimer in zwei He^+ -Ionen und ein drittes neutrales Heliumatom zerfällt. Letzteres trägt kaum zur Impulbilanz bei, so dass ein derartiger Trimeraufbruch im zweidimensionalen Flugzeitspektrum, wie in Abbildung 3.7 gezeigt, nicht von einem entsprechenden Dimeraufbruch zu unterscheiden wäre. Für die Messung wurde daher ein geringerer Druck von 9 Bar gewählt. Nach Abbildung 3.6 müsste die Dimerrate hier etwa 1.2 Prozent betragen, während der Trimeranteil bei weniger etwa 0.3 Prozent liegen sollte.

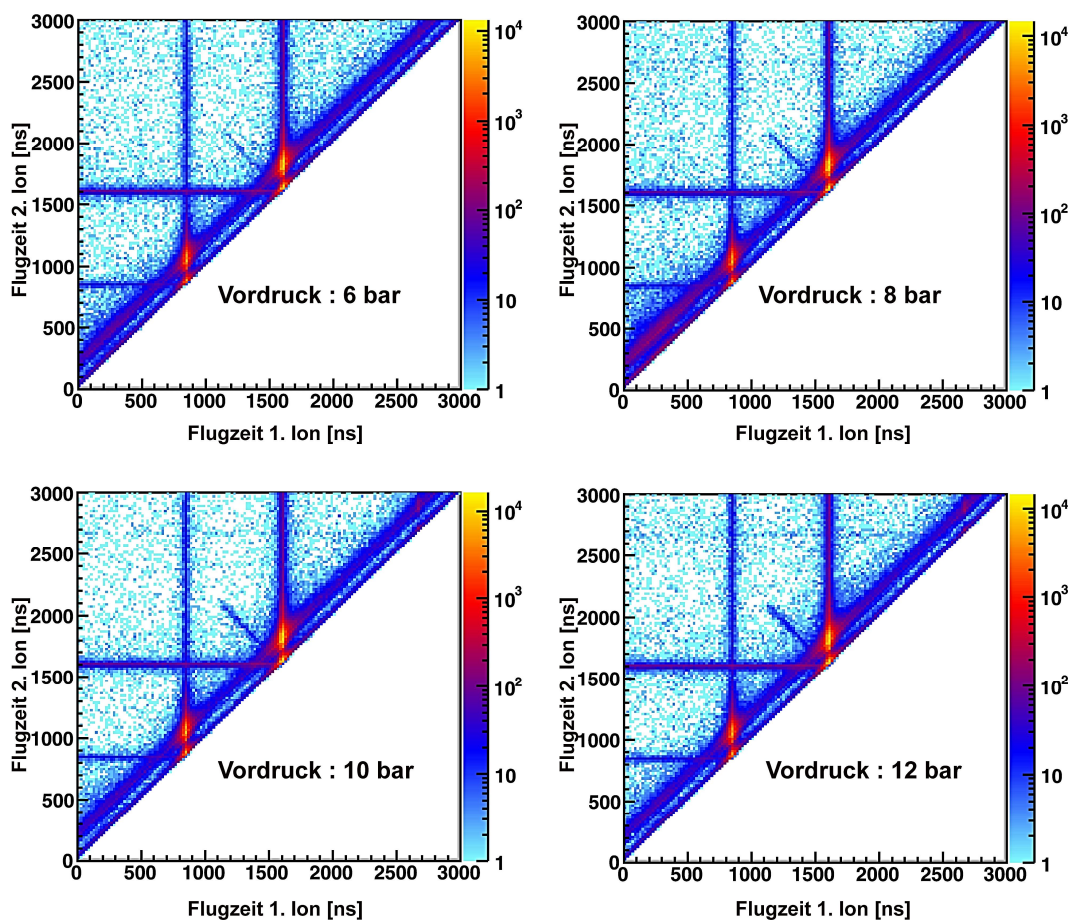


Abb. 3.7.: Zweidimensionale Flugzeitspektren für verschiedene Vordrücke: In den Spektren werden die Flugzeiten des ersten und zweiten Ions gegeneinander aufgetragen. Oben sind die Spektren für 6 bar (links) und 8 bar (rechts) gezeigt. Unten sind die entsprechenden Spektren für 10 bar (links) und 12 bar (rechts) dargestellt. In den Spektren befinden sich jeweils etwa 500.000 Ereignisse. Die Ereignisse innerhalb der Linie, die dem Aufbruch eines Heliumdimers entspricht, erhöhen sich mit steigendem Druck. Der Untergrund, der hier in Form von mehreren parallelen Linien zur Diagonalen zu sehen ist, wird in Kapitel 4 diskutiert.

3.4. Gewinnung der Orts- und Zeitinformation

Wie zu Anfang des Kapitels bereits erwähnt, besteht das Grundprinzip der Experimentier-technik darin, aus Orts- und Zeitmessung der Fragmente eines Ereignisses den dreidimensionalen Impulsvektor jedes Fragments zu erhalten. Bisher wurde erläutert, wie Ionen- und Gasstrahl präpariert werden, um generell eine Messung der Impulse von einigen atomaren Einheiten möglich zu machen. Im Folgenden wird darauf eingegangen, wie das elektrische und magnetische Feld technisch realisiert wurden, und wie durch die Detektoren Orts- und Zeitinformationen gewonnen werden konnten.

3.4.1. Das elektrische Feld

Durch ein elektrisches Feld, dessen Feldvektor transversal zum Projektilionen- und Gasstrahl steht, werden die entstandenen Fragmente (Elektronen, Rückstoßionen) nach ihrem Masse-zu-Ladungs-Verhältnis getrennt: Elektronen und positiv geladene Ionen werden in entgegengesetzte Richtungen gelenkt. Zudem werden Ionen mit unterschiedlicher Masse oder auch Ladung im elektrischen Feld anders beschleunigt, wodurch sie sich in ihrer Flugzeit und dadurch auch in ihrem Auftreffort auf dem Detektor unterscheiden. Das elektrische Feld wird hierbei durch eine Anreihung von Kupferplatten, die untereinander mit Widerständen elektrisch verbunden sind, realisiert. Zwischen den Kupferplatten befinden sich Abstandshülsen aus Keramik mit einer Dicke von 5 mm. Die Kupferplatten selbst haben eine Dicke von 1 mm und weisen in ihrer Mitte ein Loch auf, damit die Teilchen hindurchfliegen können. Die Größe der Widerstände beträgt $330\text{ K}\Omega$.

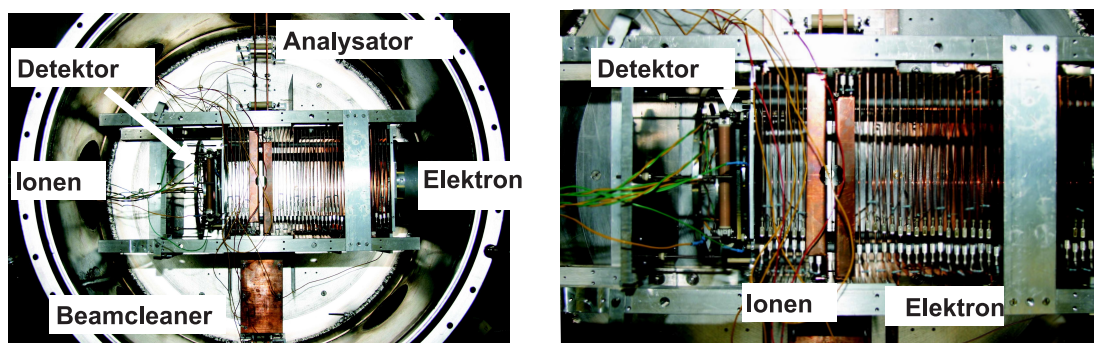


Abb. 3.8.: Fotografie der Kammer mit Spektrometer. Links: Sicht auf die Kammer. Der Projektilstrahl verläuft während der Messung von unten nach oben. Die beiden Detektoren befinden sich links und rechts. Rechts: Nähere Sicht auf das Spektrometer. Es besteht aus aneinander gereihten Kupferplatten, die über einen Widerstand elektrisch miteinander verbunden sind.

Die Seite, zu der die Ionen gelenkt werden, wird im Folgenden als Ionenweig bezeichnet und

hat eine Länge von 26 mm. Die Seite, zu der die Elektronen beschleunigt werden, der Elektronenweig, ist 200 mm lang. An diese Beschleunigungsstrecken ist auf jeder Seite eine feldfreie Driftrecke angegliedert. Auf der Elektronenseite besteht diese aus einem 400 mm langen Rohr, das auf der Innenseite mit Gold beschichtet ist. Auf der Ionenseite wird diese durch Kupferplatten, die direkt mit einem Draht verbunden und damit kurz geschlossen sind, erzeugt. Letztere hat nur eine Länge von 52 mm. Diese komplette Anordnung aus Beschleunigungs- und Driftstrecken wird im Folgenden Spektrometer genannt.

Die Notwendigkeit einer Driftstrecke resultiert aus der Unsicherheit, die durch die Ausdehnung der Reaktionszone gegeben ist. Wie in Abschnitt (3.3) bereits berechnet, wird die Breite der Reaktionszone in Flugzeitrichtung durch den Ionenstrahl bestimmt und besitzt einen Wert von etwa 1.8 mm. Teilchen mit identischer Masse und Ladung, die zudem zum gleichen Zeitpunkt und mit gleichem Impulsvektor aus der Reaktionszone beschleunigt, jedoch an verschiedenen Orten in diesem Bereich erzeugt werden, erfahren aufgrund dieser Ausdehnung nicht genau die gleiche Beschleunigung. Dadurch kann sich ihre Flugzeit je nach Anfangsimpuls bis zu einigen Nanosekunden unterscheiden. Durch eine nachfolgende Driftstrecke ist es möglich, diesen Effekt auszugleichen: Die Ionen, die sich aufgrund ihres Entstehungsortes länger im elektrischen Feld aufgehalten haben, besitzen nach der Beschleunigung auch eine höhere Geschwindigkeit. Nach einer gewissen Driftstrecke überholen sie diejenigen Teilchen, deren Beschleunigungsstrecke kürzer war. Das Verhältnis von Beschleunigungs- zu Driftstrecke, für das die Teilchen mit gleichem Startzeitpunkt und Anfangsimpuls trotz der Ausdehnung zum gleichen Zeitpunkt auf dem Detektor ankommen (Flugzeitfokus), ergibt sich zu 1:2. Man spricht in diesem Fall auch von einer flugzeitfokussierenden Geometrie [Wil55].

Zwischen den Beschleunigungs- und Driftstrecken befinden sich mit einem dünnen Draht gewebte Gitter, die einen Feldeingriff verhindern sollen. Das Problem dieser Gitter besteht darin, dass sie die Ortsauflösung begrenzen: Durch jede einzelne Gittermasche gibt es dennoch einen kleinen Feldeingriff, der zur Folge hat, dass jede einzelne Gittermasche eine kleine Linse darstellt, die Elektronen und Ionen fokussiert. Die Auflösung kann dadurch nie besser als der Gitterabstand werden. Je kleiner jedoch der Gitterabstand gewählt wird, desto mehr wird die Fläche durch Draht verdeckt, durch die die Teilchen hindurchfliegen können. Experimentell ist daher immer ein Kompromiss zwischen Gitterabstand und Transmission zu finden. In diesem Fall wurde auf beiden Seiten ein Gitter mit einer Maschenweite von $250 \mu\text{m}$ eingesetzt, sowohl am Anfang als auch am Ende der Driftstrecke.

3.4.2. Das magnetische Feld

Aufgrund ähnlicher Startimpulse aber kleinerer Masse erhalten die Elektronen gegenüber den Ionen sehr hohe Geschwindigkeiten. Um diese auf den Detektor zu projizieren, könnte man entweder das elektrische Feld stark erhöhen, was jedoch die Impulsauflösung verschlechtert, oder

sich mit einer geringeren Raumwinkelabdeckung zufrieden geben. Es gibt jedoch eine weitere Möglichkeit, die das erste Mal von Moshhammer et al. [Mos96] genutzt wurde: ein magnetisches Feld, das parallel zum elektrischen Feld geschaltet wird. Dieses zwingt die Elektronen auf Kreisbahnen und ermöglicht ohne Verlust von Raumwinkelakzeptanz oder Auflösungsvermögen eine Projektion auf den Detektor und damit auch eine Impulsbestimmung der Elektronen.

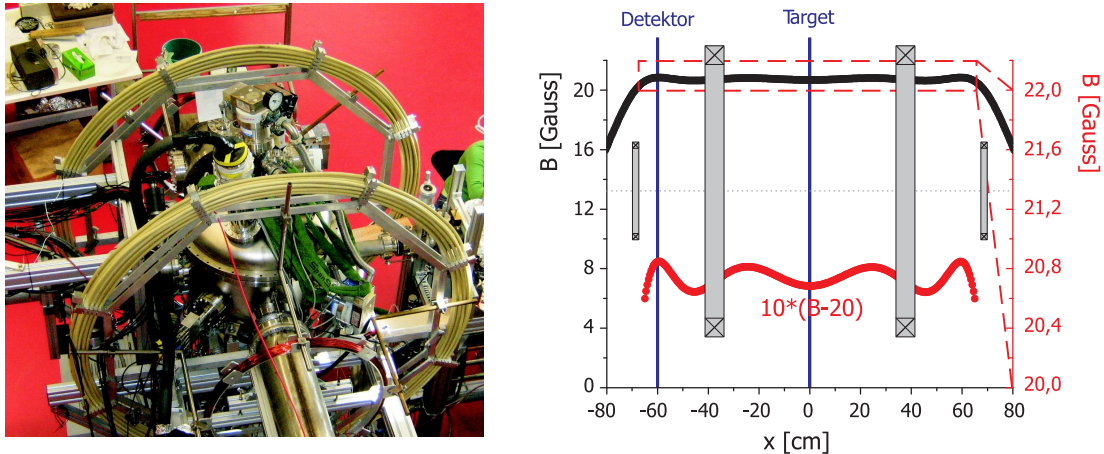


Abb. 3.9.: links: Fotografie des experimentellen Aufbaus aus der Seitenansicht (transversal zur Strahlrichtung). Die großen Spulen mit einem Durchmesser von etwa 1.50 m sind links und rechts an einem Gestell um die Kammer befestigt. Die kleineren Spulen (vorne auf dem Foto) dienen zur Erweiterung des homogenen Magnetfeldes. Dies ist in der Zeichnung rechts zu sehen (aus [Sch06]).

Dieses Magnetfeld wird in diesem Experiment durch zwei Helmholtzspulenpaare erzeugt. Das eine Paar besitzt einen Durchmesser von 152 cm und einen Abstand von ca. 70 cm. Die beiden Spulen sind mit handelsüblichem Kupferrohr hergestellt worden, um es mit durchfließendem Wasser kühlen zu können. Jede Spule hat 14 Wicklungen. Das zweite Paar besitzt einen kleineren Durchmesser von 50 cm und dient dazu, das Magnetfeld, das durch das erste Paar erzeugt wird, homogen nach außen vom Mittelpunkt der Kammer weg zu erweitern. Dementsprechend ist der Abstand dieses Paares größer, nämlich 140 cm. Die Spulen dieses Paares wurden zudem mit kaptonisolierten Draht gewickelt (60 Wicklungen). Die Reaktionszone bzw. Mitte der Kammer liegt jeweils genau zwischen den Paaren. Das erste Spulenpaar wurde mit einem leistungsstarken stromstabilisierenden Netzgerät betrieben (12 kW bei 300 A), das zweite mit einem üblichen Labornetzteil (5 A bei max. 30 V). Nähere Informationen zu Magnetfeld und zu den Spulen kann in bei Schöffler et al. [Sch06] gefunden werden.

U_R [V]	U_e [V]	d_R^{beschl} [cm]	d_e^{beschl} [cm]		
30.0	250.0	2.6	20.0		
		Strom I [A]	Radius [cm]	Windungszahl	Magnetisches Feld [Gauss]
große Spulen	60.0	76.0	14	9.6	
kleine Spulen	1.5	25.0	60		

Tab. 3.3.: Übersicht der angelegten Felder. Oben: Elektrisches Feld. Unten: Magnetisches Feld.

3.4.3. Die Detektoren

Das Spektrometer trennt die bei der Reaktion entstandenen Teilchen nach ihrem Masse-zu-Ladungs-Verhältnis, wobei die Homogenität und speziell gewählte Geometrie der Felder die Elektronen und Ionen auf wohl definierte Trajektorien zwingt. Die eigentlichen Orts- und Zeitinformationen jedoch werden durch die verwendeten Detektoren gewonnen. Diese bestehen im Allgemeinen aus zwei Teilen, den beiden Vielkanalplatten (MicroChannel Plates = MCPs) und einer Delayline-Anode. Die Vielkanalplatten sind rund und haben einen Durchmesser von einigen Zentimetern. Ihre Dicke variiert zwischen 0.5 mm und 2 mm. Zu ihrer Herstellung werden Millionen von Glaskapillaren miteinander verschmolzen und dann in dünne Platten geschnitten. Die dünnen Kapillare oder auch Kanäle besitzen einen hohen elektrischen Widerstand. Sie haben je nach MCP-Art Durchmesser zwischen 5 μm und 25 μm [Ham]. Diese verlaufen jedoch nicht senkrecht zu den Oberflächen, sondern in einem festen Neigungswinkel von wenigen Grad.

Für den Betrieb legt man zwischen Vorder- und Rückseite einer Vielkanalplatte eine positive Spannung an. Trifft nun ein Ion oder Elektron auf die Vorderseite der Platte, kann ein Elektron ausgeschlagen werden. Dieses wird durch die Spannungsdifferenz in einen der Kanäle hinein beschleunigt. Durch den Neigungswinkel des Kanals trifft es dort sehr schnell wieder auf die Wand, schlägt ein weiteres Elektron heraus, das auch beschleunigt wird und wieder auf die Kanalwand treffen kann etc. Auf diese Weise werden die Elektronen vervielfacht. Dieser Effekt kann noch verstärkt werden, indem eine zweite Platten so auf die erste montiert wird, dass die Kanäle im Zick-Zack angeordnet sind (Chevron-Anordnung) [Wiz79].

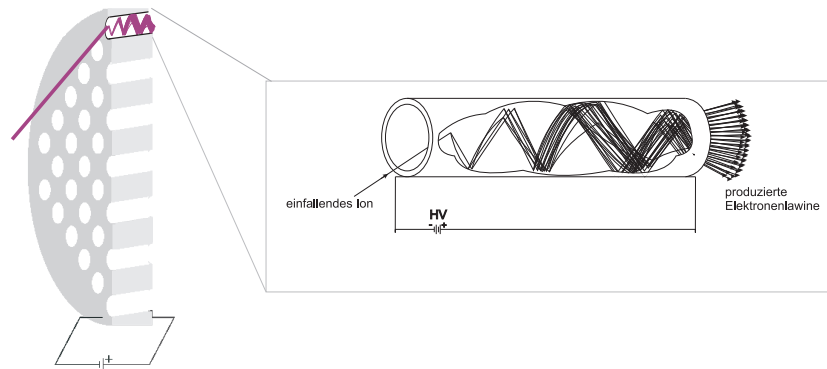


Abb. 3.10.: Schematische Darstellung des Funktionsprinzips der Vielkanalplatte. Sie sind durchzogen mit Kanälen, die einen Durchmesser von einigen μm haben. Diese Kanäle wirken wie ein Elektronenvervielfacher, wenn zwischen Ober- und Unterseite der Platte eine Spannung abfällt. Die Zeichnung enthält Bilder aus [Wiz79]

Die Anode ist bei den verwendeten Detektoren isoliert hinter den Vielkanalplatten montiert. Sie besteht im Allgemeinen aus einer quadratischen Platte aus Edelstahl oder Aluminium, um die insgesamt vier Drähte gewickelt sind. Die Wicklung von jeweils zwei Drähten verläuft parallel zu den Kanten über die ganze Anodenplatte. Es ergeben sich dadurch zwei Drahtebenen (engl. Layer), die senkrecht zueinander verlaufen. Der Wicklungsabstand beträgt 1 mm. Alle Drähte haben untereinander keinen elektrischen Kontakt. Zudem sorgen Keramikabstandshalter für die elektrische Isolation zwischen Drähten und der Metallplatte. Für eine Messung wird über den Detektor eine Spannung angelegt, so dass zwischen der ersten Vielkanalplatte und der Anode eine Spannungsdifferenz von ca. +2500 Volt herrscht. Trifft nun ein Elektron oder Ion mit einer ausreichend hohen Energie auf die erste Vielkanalplatte, so entsteht wie oben beschrieben durch die Verstärkung eine Elektronenlawine. Diese trifft auf die Drähte der Anode, wodurch es aufgrund der angelegten Spannung auf den Drähten zu einer kurzen Spannungsänderung kommt. Dieser (Spannungs-) Puls läuft zu beiden Enden eines Drahtes. Durch die Messung der Laufzeiten des Pulses zu dem einem und zu dem anderen Ende des Drahtes lässt sich direkt die Information gewinnen, wo die Ladungslawine auftraf [Roe]:

$$x = k(t_1 - t_2) \quad (3.16)$$

Die Konstante k ergibt sich aus der Ausbreitungsgeschwindigkeit des Pulses über den Draht. Die Ladungslawine besitzt nach dem zweiten MCP eine gewisse räumliche Ausdehnung, so dass sie sich auf mehrere Wicklungen verteilt und dort eigentlich mehrere Pulse starten, die sich je nach aufkommender Ladungsmenge in ihrer Höhe unterscheiden. Durch die kurze Laufzeit über eine Wicklung erscheinen diese aber als ein ganzer Puls, der ein gausförmiges Profil besitzt. Das Maximum gibt den eigentlichen Ort an. Dadurch ist es prinzipiell möglich, eine Auflösung von einigen Micrometern zu erreichen, die wesentlich kleiner ist als ein Wicklungs-

abstand von etwa 1 mm. Der Vielkanalplatte werden bei jedem Ereignis (Aufreffen eines Teilchens) sehr schnell Elektronen entzogen. Dadurch ändert sich auch dort die Spannung kurzfristig. Es entsteht ein Spannungspuls, der als Startsignal in der Datenaufnahme und als Referenzsignal zur Berechnung der Laufzeiten auf den Drähten verwendet werden kann. Das bisher erklärte Messprinzip würde auch mit jeweils einem Draht in eine Richtung funktionieren. Wie aber bereits erwähnt, sind zwei Drähte in jeder Richtung parallel gewickelt. Der Grund hierfür liegt in der Verbesserung der Signalqualität: Die beiden Drähte liegen auf einem leicht unterschiedlichen Potenzial ($\Delta U = 50 \text{ V}$), was dazu führt, dass die Ladungslawine nur auf den Draht mit höherem Potenzial trifft, während Störsignale aber auf beiden Drähten verlaufen. Durch eine Differenzbildung der Signale auf beiden Seiten der Drähte kann das Untergrundrauschen eliminiert werden. Zudem vermindert die parallele Wicklung die zeitliche Verbreiterung des Pulses während der Laufzeit über den Draht, die so genannte Dispersion (Prinzip der Lecherleitung).

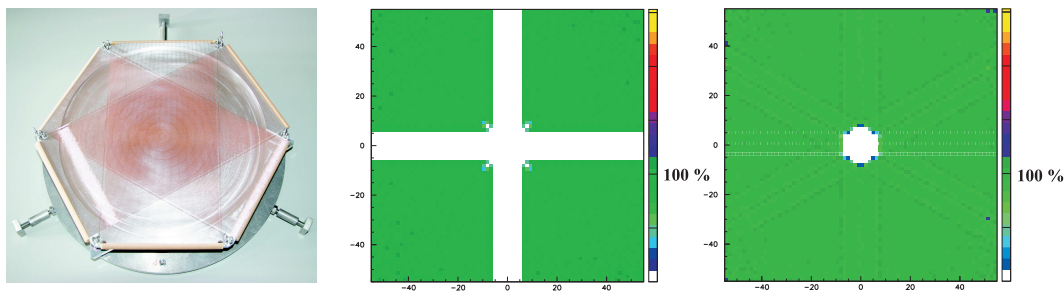


Abb. 3.11.: Links: Fotografie der verwendeten Hexanode. Vorteil einer Hexanode ist, dass ihre Anordnung den Bereich, in dem zwei kurz aufeinanderfolgende Signale getrennt voneinander nachgewiesen werden können, stark verkleinert. Dies wird mit den Bildern in der Mitte und rechts illustriert (aus [Jah05]). Mitte: Nachweiseffizienz einer quadratischen Anode für ein zweites Teilchen, das ohne zeitlichen Differenz zum ersten Teilchen ($\Delta t_{12} = 0$) auf dem Detektor aufgekommen ist. Das erste Teilchen ist hierbei mittig auf dem Detektor gelandet. Rechts: Nachweiseffizienz einer Hexanode für die gleichen Bedingungen.

In diesem Experiment wurden drei Detektoren für Projektilionen, Elektronen und Rückstoßionen genutzt. Der Detektor für die Elektronen unterscheidet sich von den anderen beiden in seiner Form. Während die Anode für Rückstoß- und Projektilionen, wie oben bereits beschrieben, eine quadratische Form besitzt, ist die Anodenform des Elektronendetektors hexagonal. Transversal zu zwei gegenüberliegenden Seiten des Sechsecks ist jeweils ein Drahtpaar gewickelt (siehe Abbildung 3.11), so dass mit insgesamt drei Drahtpaaren der Auftreffort bestimmt werden kann. Die Drahtebenen verlaufen demnach in einem Winkel von 60° . Die Grundidee besteht nun darin, die Fläche, auf der kein weiterer Puls innerhalb einer gewissen Totzeit eindeutig gemessen werden kann, zu minimieren. Dies ist in Abbildung 3.11 gut zu erkennen. Wenn zwei Teilchen zur gleichen Zeit auf den Detektor treffen, können die beiden Signale, die durch das Auftreffen ausgelöst werden, bei einer quadratischen Anode innerhalb eines

breiten Kreuzes nicht unterschieden werden. Bei einer Hexanode gibt es durch eine weitere Drahtebene eine zusätzliche Ortsinformation, wodurch sich der Bereich auf einen Fleck in der Mitte der Anode reduzieren lässt.

Die Ortsinformationen durch die drei Drahtebenen ergeben sich analog zu denen einer quadratischen Anode. Für jede Drahtebene erhält man über die Laufzeitdifferenz und einen Umrechnungsfaktor (siehe Gleichung 3.16) eine Ortsinformation u , v , w , wobei der Winkel zwischen den Ortsrichtungen immer 60° beträgt. Um diese Ortsinformationen in ein kartesisches Koordinatensystem mit den Koordinaten x und y zu transformieren, ergeben sich drei Möglichkeiten [Roe]:

$$x_{uv} = u \quad (3.17)$$

$$y_{uv} = \frac{1}{\sqrt{3}}(u - 2v) \quad (3.18)$$

$$x_{uw} = u \quad (3.19)$$

$$y_{uw} = \frac{1}{\sqrt{3}}(2w - u) \quad (3.20)$$

$$x_{vw} = v + w \quad (3.21)$$

$$y_{vw} = \frac{1}{\sqrt{3}}(w - v) \quad (3.22)$$

Wenn der Auftreffort (x,y) nicht eindeutig aus einem der Paare (uv) , (uw) oder (vw) bestimmt werden kann, weil die Signale auf einer Drahtebene zeitlich zu nah sind, kann dementsprechend eines der anderen Paare zur Ortsbestimmung genutzt werden. Diese Redundanz verkleinert den Bereich der Totzeit drastisch.

3.4.4. Die Datenaufnahme

Die Zeit- und damit auch Ortsinformationen der Detektoren müssen in einer Form gespeichert d.h. digitalisiert werden, die eine Weiterverarbeitung (Berechnung der Impulse) ermöglicht. Dies ist die Aufgabe der Datenaufnahme. Die analogen Anoden- und MCP-Signale von etwa 30 mV werden kapazitiv ausgekoppelt und in einen schnellen Verstärker geleitet. Danach werden die ca. 300 mV hohen Pulse mittels eines Constant Fraction Discriminators in (negative) digitale Rechtecksignale umgewandelt. Die Rechtecksignale werden dabei so erzeugt, dass die wichtige Zeitinformation, die durch das Maximum des analogen Signals gegeben war, nun in der fallenden Flanke des Rechteckpulses enthalten ist.

Danach gelangen die Signale in eine TDC-Karte (TDC = Time to Digital Converter), die mit einem Computer verbunden ist. Vereinfacht formuliert wird dort die Information gespeichert, dass es ein Signal gab, und gleichzeitig für jedes dieser Signale eine Zeitmessung gestartet. Erhält die Karte ein Triggersignal, so werden die Zeiten relativ zu diesem Triggersignal be-

rechnet und dann im Listmode-Verfahren abgespeichert. Da die Zeitmessung ähnlich wie in einem Schieberegister an eine feste Taktung, also ein wiederkehrendes festes Zeitintervall gebunden ist, ist die zeitliche Auflösung begrenzt. Sie beträgt bei der verwendeten TDC-Karte 25 ps. Das Programm, das zur Datenaufnahme im Listmodefile genutzt wurde, war Cobold 2005 [Roe06]. Das Triggersignal war bei dieser Messung das MCP-Signal des Projektils. Der Grund hierfür liegt in der niedrigen Rate auf diesem Detektor und im geringen Untergrund.

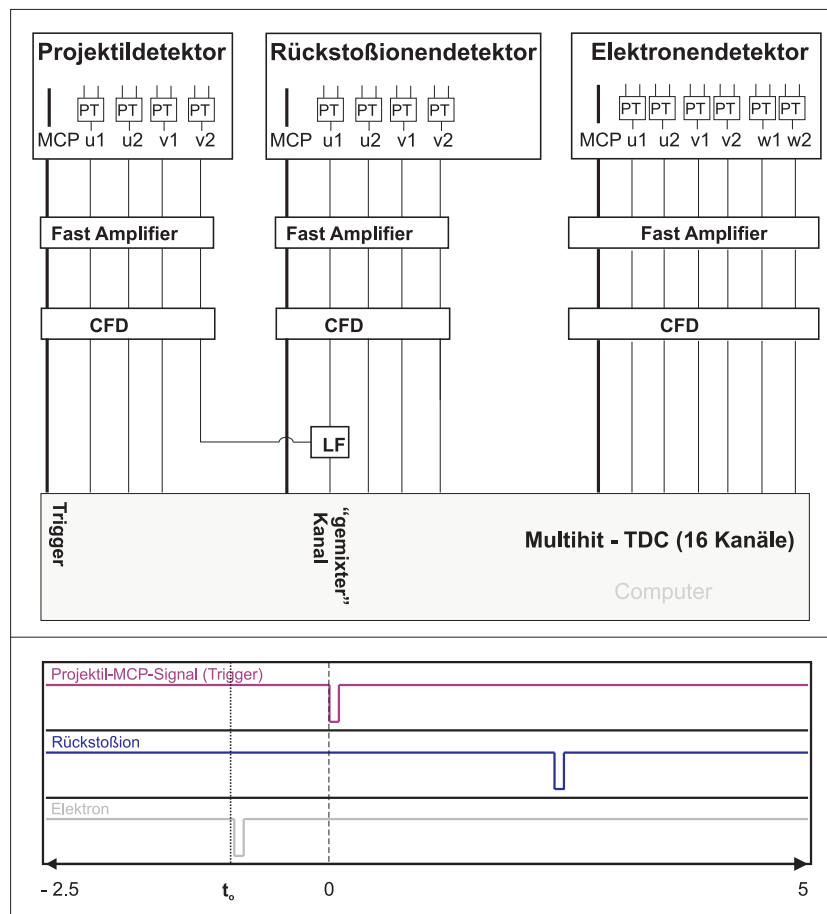


Abb. 3.12.: Zur Differenzbildung von Signal- und Referenzdraht wird ein Pulstransformator (PT) benutzt. Diese analogen Signale gelangen zunächst in einen schnellen Verstärker (engl. Fast Amplifier) und danach in einen Constant Fraction Discriminator (CFD) bis ihr zeitlicher Abstand zu einem Triggersignal (Projektil-MCP-Signal) in einem Time-to-Digital-Converter (TDC) bestimmt wird. Da die drei Detektoren insgesamt 17 Signale liefern, der TDC aber nur 16 Kanäle besaß, wurden 2 Signale in einem 'Linear Fan' (LF) zusammengeführt. Hier wurde ein Anodenende des Projektils und eins des Rückstoßions gewählt, da diese zeitlich weit genug auseinanderlagen. In der Offline-Analyse konnten die Signale der unterschiedlichen über diesen zeitlichen Abstand wieder getrennt werden. Unten: Aufnahmeintervall. In Bezug zum Triggersignal wurde ein Zeitfenster von $(-2.5 \mu\text{s}, 5 \mu\text{s})$ gewählt. t_0 bezeichnet den realen Reaktionszeitpunkt.

Das Zeitintervall, in dem die Daten weggeschrieben wurden, war insgesamt $7.5 \mu\text{s}$ lang. Das

Besondere an der verwendeten TDC-Karte war, dass sie nicht wie bei anderen TDC-Systemen im Common-Start oder Common-Stop-Modus betrieben wurde, sondern Beginn und Ende des Zeitintervalls in Bezug auf das Triggersignal unabhängig angegeben werden konnten: So wurde der Beginn $-2.5 \mu\text{s}$ vor dem Triggersignal und das Ende $5.0 \mu\text{s}$ nach dem Triggersignal gesetzt, um das zu einem Ereignis gehörende Elektron und die Ionen aus den Dimeren mit aufzunehmen. Abbildung 3.12 zeigt das Aufnahmeintervall, dass für beide aufgenommene Prozesse gleich ist, und die Flugzeitunterschiede der Fragmente, die zu einem Ereignis gehören.

3.5. Der Impulsvektor

In den folgenden Unterkapiteln wird kurz beschrieben, wie aus diesen Orts- und Zeitinformationen und den bekannten Feldern die Trajektorien der Fragmente rekonstruiert und die Impulse berechnet werden.

3.5.1. Der Impulsvektor des Projektils

Aus den Ortsinformationen des Projektils lassen sich die Impulskomponenten in x- und y-Richtung berechnen. Die umgeladenen Projektilen (He^0 oder He^+) werden durch den Stoß abgelenkt und gelangen nach einer Ladungsanalyse auf den Detektor. Die Energie, die sie bei dem Stoß verlieren, ist gegenüber ihrer Gesamtenergie vernachlässigbar klein. Es lässt sich daher davon ausgehen, dass die Geschwindigkeit bzw. der Impuls p_z^{proj} in Strahlrichtung nach dem Stoß nahezu gleich ist und sich aus der ursprünglichen Beschleunigungsenergie ergibt. Mit dem Abstand des Detektors von der Reaktionszone z_D ergeben sich dann für die Impulse:

$$\begin{pmatrix} p_x^{proj} \\ p_y^{proj} \\ p_z^{proj} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{p_z^{proj}}{z_D} x_{proj} \\ \frac{p_z^{proj}}{z_D} y_{proj} \\ \sqrt{2 m_{proj} E_{acc}} \end{pmatrix} \quad (3.23)$$

Meistens ist der der Abstand des Detektors von der Reaktionszone nicht genau bekannt. Die Impulse des Projektils in x- und y-Richtung können daher auch unabhängig von den gemessenen Ortsinformationen ganz über die Impulserhaltung berechnet werden. Welcher Weg für die Berechnung gewählt wird, hängt von der Auflösung ab, die für Projektil bzw. für Rückstoßionen und ,falls gegeben, Elektron in den beiden Richtungen erreicht wird.

3.5.2. Der Impulsvektor des Rückstoßions

Die Flugzeit der Ionen setzt aus der Zeit t_a , die für die Bewegung durch das elektrische Feld benötigt wird, und der Zeit t_d zusammen, die der Flugzeit durch die Driftstrecke entspricht:

$$t_{ges} = t_a + t_d \quad (3.24)$$

Die Flugzeit durch das elektrische Feld hängt zum einen vom Anfangsimpuls p_0 , den die Ionen aus der Reaktion erhalten, aber auch von ihrer Masse m , ihrer Ladung q , der Länge der Beschleunigungsstrecke s_a und der Größe des E-Feldes $|E|$ ab. Sie lässt sich über die Bewegungsgleichung einer beschleunigten Bewegung berechnen (z.B. [Web03, Tit05, Sch06]). Die Flugzeit durch die Driftstrecke kann prinzipiell aus dem Quotienten von Driftstreckenlänge s_d und der Endgeschwindigkeit nach der Beschleunigung v_a bestimmt werden. Letztere wiederum erhält man zum Beispiel aus der kinetischen Energie, die das Ion nach der Beschleunigung besitzt. Damit ergibt sich für die Gesamtflugzeit :

$$t_{ges} = \frac{-p_0 + \sqrt{p_0^2 + 2 s_a q m |E|}}{q |E|} + \frac{m s_d}{\sqrt{p_0^2 + 2 q m |E|} s_a} \quad (3.25)$$

Nach Umformen und Umstellen nach p_0 zeigt diese Gleichung eine kubische Form [Kre05, Fou03]. Ihre Lösung ist dementsprechend nicht ganz trivial. In der Praxis wird daher häufig auf ein Verfahren zurückgegriffen, das den Anfangsimpulse über obige Gleichung iterativ bestimmt. Dieses Verfahren ist auf alle Spektrometergeometrien anwendbar. Es wird daher auch für die Bestimmung der Impulse der Ionen in Flugzeitrichtung benutzt.

Wenn die Anfangsenergien der Ionen klein gegenüber der im Feld aufgenommenen Energie sind, kann Gleichung 3.25 linear genähert werden. Das bedeutet, dass alle quadratischen Terme des Anfangsimpulses vernachlässigt werden. Für eine flugzeitfokussierende Geometrie des Spektrometers ist zudem die Driftstrecke doppelt so lange wie die Beschleunigungsstrecke [Wil55]. Damit vereinfacht sich Gleichung 3.25 zu:

$$t_{ges} = \frac{-p_0}{q |E|} + \sqrt{\frac{8 s m}{q |E|}} \quad (3.26)$$

Die Flugzeit für den Fall, dass das Ion keinen Anfangsimpulse ($p_x = 0$) in dieser Richtung hat, ist demnach:

$$t_{ges}^{p_x=0} = \sqrt{\frac{8 s m}{q |E|}} \quad (3.27)$$

Durch Umstellen der Gleichung ergibt sich dann der Anfangsimpuls in x-Richtung:

$$p_x = p_0 = q |E| (t_{ges} - t_{ges}^{p_x=0}) \quad (3.28)$$

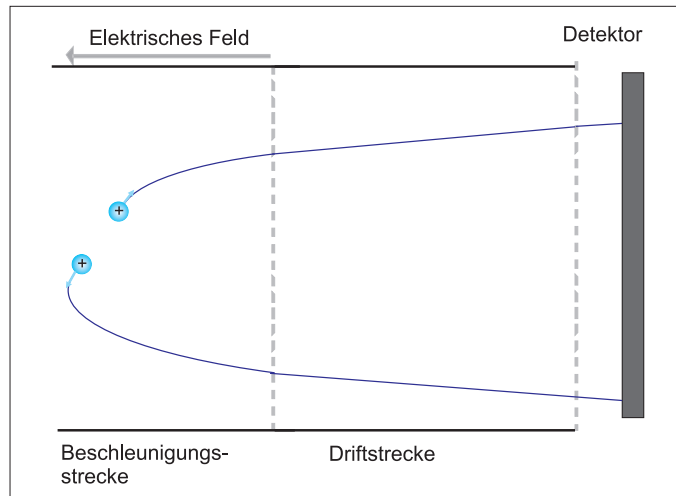


Abb. 3.13.: Schematische Darstellung des Ionenwegs. Wenn das Dimer in zwei einfach geladene Heliumionen aufbricht, werden diese in Richtung des Detektors beschleunigt. Nach der Beschleunigungsstrecke schließt sich eine Driftstrecke an, die doppelt so lange ist wie die Beschleunigungsstrecke. Die Gesamtflugzeit berechnet sich dementsprechend aus den Flugzeiten, die die Ionen für die Beschleunigungs- und Driftstrecke benötigen.

Für das angelegte Feld und die Energie der Heliumionen, die aus dem Aufbruch des Dimers stammen, kann die lineare Näherung noch genutzt werden. Um die Auflösung der Impulssumme der beiden Ionen zu verbessern, wird dennoch auf das oben beschriebene iterative Verfahren zurückgegriffen. In den anderen beiden Richtungen werden die Ionen nicht beschleunigt, sie vollführen eine gleichförmige Bewegung, was bedeutet, dass der Zusammenhang zwischen Impuls und Ort linear ist. Es gilt für den Impulsvektor eines Rückstoßions mit der linearen Näherung in Flugzeitrichtung:

$$\begin{pmatrix} p_x^{rec} \\ p_y^{rec} \\ p_z^{rec} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} q |E| (t_{ges} - t_{ges}^{p_x=0}) \\ m_{rec} \left(\frac{y}{t_{ges}} \right) \\ m_{rec} \left(\frac{z}{t_{ges}} \right) \end{pmatrix} \quad (3.29)$$

Der Impulsvektor der Rückstoßionen im Schwerpunktssystem

In den zu untersuchenden Reaktionen wird das Dimer zweifach ionisiert, so dass sich die beiden Ionen in Folge dessen abstoßen. Man spricht von einer Coulombexplosion. Für die Rückstoßionen können die Impulse wie im vorigen Kapitel besprochen einzeln berechnet werden. Die Ergebnisse dieser Rechnung entsprechen jedoch den Impulsen im Laborsystem, die sich aus der Coulombexplosion und dem Stoß ergeben. Um die Impulse im dimerfesten System zu berechnen, die nur den Aufbruch berücksichtigen, können jedoch die entsprechenden Grö-

ßen im Laborsystem benutzt werden. Mit der reduzierten Masse $\mu = \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2}$ gilt für Impulse im dimer- oder molekülfesten System in der linearen Näherung für die Flugzeitrichtung:

$$\begin{pmatrix} p_x^{rec,Mol} \\ p_y^{rec,Mol} \\ p_z^{rec,Mol} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mu(v_{x,1} + v_{x,2}) \\ \mu(v_{y,1} + v_{y,2}) \\ \mu(v_{z,1} + v_{z,2}) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mu |E| \left(\frac{q_1}{m_1} (t_1 - t_1^{p_x=0}) + \frac{q_2}{m_2} (t_2 - t_2^{p_x=0}) \right) \\ \mu \left(\frac{y_1}{t_1} + \frac{y_2}{t_2} \right) \\ \mu \left(\frac{z_1}{t_1} + \frac{z_2}{t_2} \right) \end{pmatrix} \quad (3.30)$$

Für einen Aufbruch wie er hier betrachtet wird, sind Masse und Ladung der beiden Ionen gleich. Dadurch sind auch die Flugzeitmittelpunkte gleich. Es gilt $t_1^{p_x=0} = t_2^{p_x=0}$. Der Impulsvektor im dimerfesten System lässt sich dann stark vereinfachen:

$$\begin{pmatrix} p_x^{rec,Mol} \\ p_y^{rec,Mol} \\ p_z^{rec,Mol} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{2} |E| q (t_1 - t_2 - 2 t_1^{p_x=0}) \\ \frac{1}{2} (m \frac{y_1}{t_1} + m \frac{y_2}{t_2}) \\ \frac{1}{2} (m \frac{z_1}{t_1} + m \frac{z_2}{t_2}) \end{pmatrix} \quad (3.31)$$

Um die tatsächlichen Auftrefforte der Ionen y_1 und z_1 zu erhalten, müssen die zunächst gemessenen Orte y_1^{roh} und z_1^{roh} um einen Nullpunkt korrigiert bzw. verschoben werden. Normalerweise lässt dieser sich aus den Ortsverteilungen anderer Ionen, die auch vermessen wurden, ermitteln. Bei (zweifach geladenen) Dimeren wie in diesem Experiment wird der Nullpunkt über die einfach geladenen Monomere bestimmt. Aufgrund des gleichen Masse-zu-Ladungs-Verhältnisses und damit gleichem Flugzeitmittelpunkt entspricht der Schwerpunkt ihrer Ortsverteilung auch dem Nullpunkt der Ortsverteilung der beiden Ionen aus dem Dimer. In Streuexperimenten mit Photonen ist der Impuls auf den Schwerpunkt des Moleküls bzw. Dimers vernachlässigbar klein. Wenn zudem die Impulse aller Fragmente einer Reaktion unabhängig und mit hinreichend guter Auflösung bestimmt werden können, ist es möglich, den Impuls im dimerfesten System aus der Differenz der Rückstoßionenimpulse im Laborsystem und der Impulse von Elektron und Jet zu berechnen:

$$m_{rec1} \left(\frac{y_1^{roh} - y_0}{t_1} \right) - m_{rec2} \left(\frac{y_2^{roh} - y_0}{t_2} \right) = 0 \quad (3.32)$$

$$m_{rec1} \left(\frac{z_1^{roh} - z_0}{t_1} \right) - m_{rec2} \left(\frac{z_2^{roh} - z_0}{t_2} \right) = 0, \quad (3.33)$$

Daraus lassen sich die Koordinaten (y_0, z_0) des Entstehungsortes bestimmen, wodurch eine bessere Auflösung auf dem Summenimpuls der beiden Ionen erreichen werden kann [Jah05]. In Ionenstoßexperimenten trägt das Projektilion stets zur Impulsbilanz bei. In der Ebene transversal zur Bewegungsrichtung der Projektilionen konnten bei diesem Experiment die

Projektilimpulse nur mit schlechter Auflösung unabhängig gemessen werden, die Projektilimpulsänderung längs der Strahlrichtung ließ sich mit dem verwendeten Aufbau nicht bestimmen. Daher war hier ein solches Verfahren nicht möglich.

3.5.3. Impulsvektor der Elektronen

Das Magnetfeld zwingt die Elektronen auf Kreisbahnen, während das elektrische Feld die Elektronen transversal zu dieser Kreisbewegung auf den Detektor beschleunigt. Die Elektronen bewegen sich dadurch auf Schraubenbahnen auf den Detektor zu. In Flugzeitrichtung wird der Impuls der Elektronen ebenfalls über das bereits angesprochene iterative Verfahren gelöst [Sch]. Die Impulse transversal zur Beschleunigungsrichtung, d.h. in der yz -Ebene werden nur durch das Magnetfeld beeinflusst. Der Impulsvektor, den die Elektronen durch den Stoß in dieser Ebene erhalten, wird durch das Magnetfeld gedreht, wobei sein Betrag erhalten bleibt. Der Drehwinkel hängt dabei vom Quotienten aus Elektronenflugzeit und voller Umlaufzeit einer Drehung ab. Die Bestimmung des Startimpulses in dieser Ebene besteht daher aus zwei Schritten: Zunächst werden die Impulskomponenten aus den gemessenen Ortskoordinaten berechnet, anschließend werden diese gedreht, um die ursprüngliche Richtung des Vektors zu erhalten.

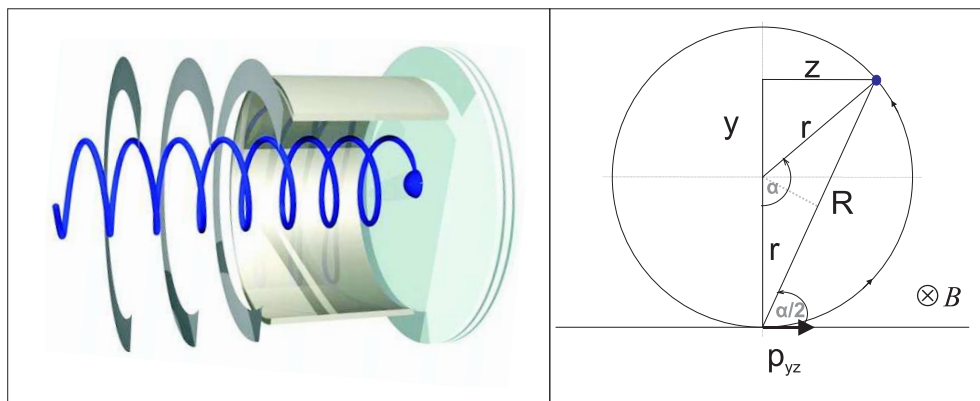


Abb. 3.14.: Die Elektronen werden durch das angelegte Magnetfeld auf Schraubenbahnen gezwungen. Schaut man sich nur die Ebene transversal zum elektrischen Feld an, das die Elektronen auf den Detektor beschleunigt, so vollführen sie eine Kreisbewegung. Der Betrag des gemessene Impulsvektors in dieser Ebene kann aus dem Magnetfeld und dem Gyrationradius r bestimmt werden. Um den ursprünglichen Impulsvektor zu erhalten, muss der Vektor der Gyrationperiode entsprechend gedreht werden.

Abbildung 3.14 zeigt die Projektion der Trajektorien von Elektronen mit verschiedenen Anfangsimpulsen auf die Detektorebene. Dadurch dass das Magnetfeld die Elektronen auf eine Kreisbahn zwingt, müssen Lorentzkraft und Zentripedalkraft gleich sein. Hieraus lässt sich für den Impulsbetrag in dieser Ebene ein Ausdruck finden, der den Radius r der Kreisbewegung

und den Betrag der magnetischen Feldstärke B enthält:

$$|p_{yz}| = qBr , \quad (3.34)$$

wobei q die Ladung des Elektrons ist. Wie man in Abbildung 3.14 erkennen kann, stimmt der Ursprung des Vektors r nicht mit dem Ursprung des Impulsvektors $|p_{yz}|$ und damit dem Ursprung des Koordinatensystems überein, in dem die Orte y und z bestimmt werden. Mit einfachen geometrischen Überlegungen ergibt sich jedoch für den Radius der Schraubenbahn

$$r = \frac{\frac{R}{2}}{\sin(\frac{\alpha}{2})} \quad (3.35)$$

und damit für den Transversalimpuls

$$|p_{yz}| = eB \frac{\sqrt{y^2 + z^2}}{2 |\sin(\frac{\alpha}{2})|} \quad (3.36)$$

Um die ursprüngliche Richtung des Impulsvektors zu erhalten, muss nun dieser Vektor um den Winkel $\frac{\alpha}{2}$ gedreht werden. Dies lässt sich mit einer Drehmatrix D realisieren. Für die beiden Impulskomponenten ergibt sich also:

$$\begin{pmatrix} p_z \\ p_y \end{pmatrix} = D (\vec{e} |p_{yz}|) = \begin{pmatrix} \cos(\frac{\alpha}{2}) & -\sin(\frac{\alpha}{2}) \\ \sin(\frac{\alpha}{2}) & \cos(\frac{\alpha}{2}) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} z \\ y \end{pmatrix} \frac{eB}{2 |\sin(\frac{\alpha}{2})|} \quad (3.37)$$

Der Faktor $\sqrt{y^2 + z^2}$ konnte durch die Verwendung des Einheitsvektors gekürzt werden. Alternativ erhält man mit einem einfachen Additionstheorem:

$$\begin{pmatrix} p_z \\ p_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{\sin(\alpha)}{1-\cos(\alpha)} & -1 \\ 1 & \frac{\sin(\alpha)}{1-\cos(\alpha)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} z \\ y \end{pmatrix} \frac{eB}{2} \quad (3.38)$$

So stellt sich das Ergebnis dar, wenn die Differentialgleichungen der Bewegung direkt gelöst werden [Fou03, Hat04].

4. Auswertung und Kalibration

Im vorigen Kapitel wurde prinzipiell erläutert, wie aus den Signalen der Detektoren Orts- und Zeitinformationen gewonnen wurden und wie daraus wiederum die Impulse aller Fragmente berechnet werden können. Wie bereits erwähnt, ist es hierzu notwendig, die physikalischen Nullpunkte im Ort und in der Flugzeit genau zu ermitteln, um die Impulse bestimmen zu können. Zudem ist die genaue Kenntnis der elektrischen und magnetischen Feldstärke wichtig. Im Folgenden soll nun erläutert werden, wie diese Informationen aus den aufgenommenen Daten gewonnen werden. Weiterhin werden in diesem Kapitel der Herkunft und Abzug des Untergrunds diskutiert, der sich in den Daten gezeigt hat.

Das Koordinatensystem, das im Folgenden benutzt wird, wurde in Kapitel 3 einführend vorgestellt. Die z-Achse wird durch die Projekttilstrahlrichtung definiert. Die y-Achse wird durch die Richtung des Gasstrahl festgelegt, während die x-Achse in Richtung des elektrischen Feldes zeigt und damit die Richtung der Flugzeit definiert. Die Detektorebene entspricht der (yz)-Ebene, y- und z-Richtungen werden daher im Folgenden auch Ortsrichtungen genannt.

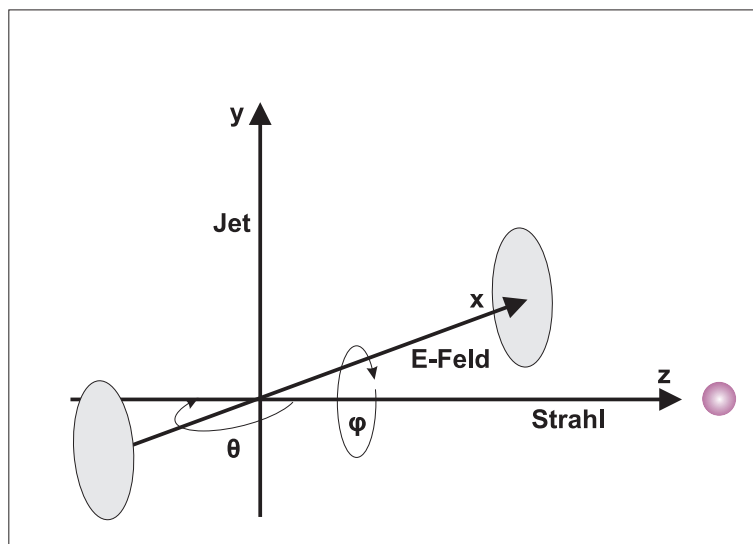


Abb. 4.1.: Schematische Darstellung des Koordinatensystems: Die Projekttilstrahlrichtung definiert die z-Achse. Die x-Achse ist durch das elektrische Feld gegeben, die y-Achse entspricht der Ausbreitungsrichtung des Gasstrahls.

4.1. Bestimmung des absoluten Nullpunktes der Flugzeit

Wie im vorigen Kapitel besprochen, hängt die Ionenflugzeit vom Masse-zu-Ladungsverhältnis ab. Das hat zur Folge, dass ein normales Ionen-Flugzeitspektrum aus mehreren Maxima besteht, die einem bestimmten $\frac{m}{q}$ -Verhältnis zugeordnet werden können. Abbildung 4.2 zeigt das Flugzeitspektrum der Rückstoßionen, die als erstes nach einem Projektil auf dem entsprechenden Detektor nachgewiesen wurden. In einer linearen Skala lassen sich zunächst drei Maxima erkennen, die wie in der Abbildung angedeutet durch Photonen bzw. durch He^+ -, He^{2+} -Ionen entstanden sind. In der logarithmischen Skala zeigen sich noch weitere Maxima, die Wasserstoffionen und Stickstoffmolekülionen zugeschrieben werden können. Die Wasserstoffionen stammen aus dem Zerfall eines Wasserstoffmoleküls. Die einfach geladenen Protonen erhalten hier durch die Dissoziation bzw. Coulombexplosion einen Impuls von mehreren atomaren Einheiten (ca. 50 a.u.), was zu einer breiten Verteilung führt. Die Breite der Verteilung der anderen Ionen (He^+ , He^{2+}) werden durch die Impulsüberträge bestimmt, die die Ionen durch Projektil bzw. Elektron erhalten. Diese sind bei den hier betrachteten Projektilgeschwindigkeiten kleiner als 5 a.u.. Deshalb sind sie schmaler.

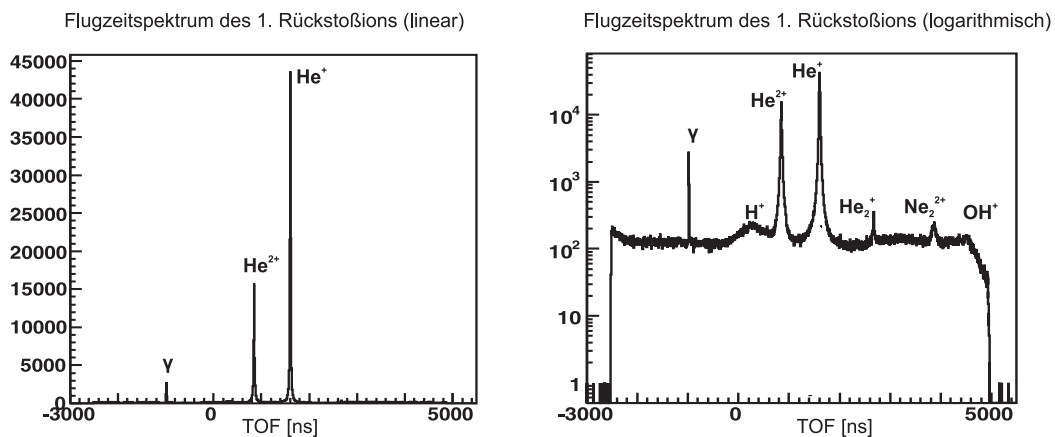


Abb. 4.2.: Gemessenes Flugzeitspektrum des ersten Rückstoßions. Projektil und Rückstoßion wurden in Koinzidenz gemessen. Man erhält dadurch die die Flugzeit des Rückstoßions in Referenz zum Projektil. Dadurch ist die komplette Verteilung um die Projektilflugzeit verschoben. Bei -978 ns ein Photonenpeak (γ) zu sehen. Die anderen Maxima rühren von Ionen mit anderen Masse-zu-Ladungs-Verhältnissen. Die Flugzeitspektren ergibt sich nach einer Sortierung der Daten, siehe hierzu Abschnitt 4.5.

Die Flugzeiten skalieren linear mit $\sqrt{\frac{m}{q}}$. Wenn man nun dieses Verhältnis für verschiedene Flugzeitmaxima gegen den jeweiligen Mittelpunkt des Maximums aufträgt, entsteht eine Gerade, deren y-Achsenabschnitt genau dem Nullpunkt in der Flugzeit entspricht. Ein solches Diagramm ist in Abbildung 4.3 zu sehen. Als Messpunkte wurden nur die Mittelpunkte der einfach und zweifach geladenen Heliumionen genutzt, da diese am schärfsten ausgeprägt sind. Mit dieser Methode konnte ein Flugzeitnullpunkt von -978.5 ns ermittelt werden. Fehler, die

sich durch die Energieunschärfe des Beschleunigers ergeben, fallen bei beiden Flugzeitmaxima in gleichem Maß ins Gewicht. Es ergibt sich jedoch die Möglichkeit eines Ablesefehlers bzw. ein Fehler in der Bestimmung des Maximums. Nimmt man hier einen Wert von 0.5 ns an, so ergibt sich für Bestimmung des Nullpunkts mit dieser Methode ein Fehler von etwa 1 ns.

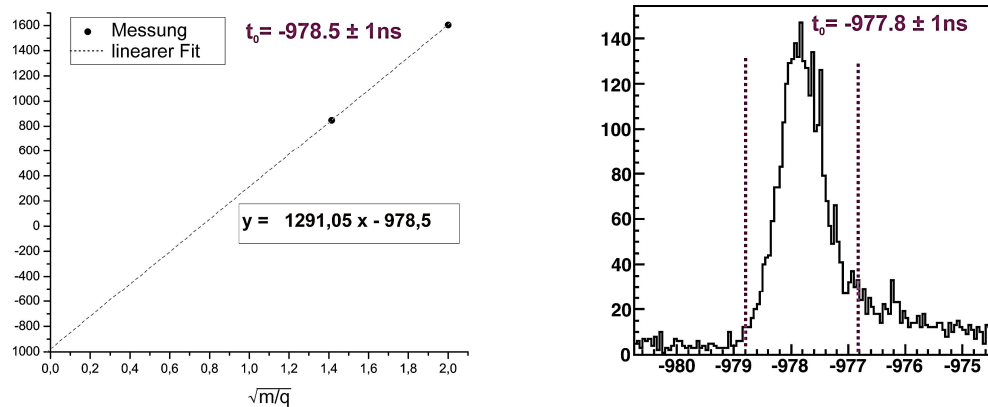


Abb. 4.3.: Bestimmung des Flugzeitnullpunkts. Links: Auf der x-Achse ist die Wurzel aus dem Masse-über-Ladungs-Verhältnis geplottet, auf der y-Achse ist die Flugzeit in Nanosekunden aufgetragen. In dieser Darstellung müssen die Mittelpunkte der Flugzeitverteilung der verschiedenen Ionen auf einer Geraden liegen. Hier wurden nur die Mittelpunkte der He^+ - und He^{2+} -Verteilungen verwendet, die Mittelpunkte der anderen Verteilungen waren nicht scharf genug. Der y-Achsenabschnitt der Geraden gibt den absoluten Zeitnullpunkt wieder. Rechts: Flugzeitspektrum des Photonenpeaks. Da die Photonen ohne große Zeitverzögerung auf dem Rückstoßionendetektor landen, gibt ihre Verteilung den Zeitpunkt der Reaktion an. Ihre Breite wird durch die Energieauflösung des Beschleunigers und die Schlitzbreite der Kollimatoren bestimmt.

Der Flugzeitnullpunkt kann allerdings noch auf eine andere Weise bestimmt werden: Wenn bei einer Reaktion oder kurz nach der Reaktion ein Photon ausgesandt wird, so kann dieses ebenfalls auf dem Rückstoßionendetektor nachgewiesen werden. Bei den Zeiten und Längen, die hier betrachtet werden, kann man davon ausgehen, dass dies so schnell geschieht, dass das nachgewiesene Photon den Zeitpunkt der Reaktion bestimmt. Schaut man sich dagegen die Flugzeitverteilung der ausgesandten Photonen an (Abbildung 4.3), so fällt auf, dass ihre Verteilung eine endliche Breite von etwa 2 ns besitzt. Nimmt man eine Kollimatoröffnung von etwa 1 mm an, so lässt sich aufgrund des Feldes des letzten Magneten und des Radius eine Energieunsicherheit von etwa 2 keV abschätzen, wobei es sich um eine sehr grobe Abschätzung handelt. Damit berechnet sich ein Unterschied in der Flugzeit des Projektilions von etwa 2 ns. Aufgrund der Fehler der beiden Varianten wird ein Nullpunkt von 977.8 ns angenommen.

4.2. Identifizierung von Molekülaufbrüchen durch die Flugzeit

Wie in Kapitel 3.4.4 erklärt wurde, wird durch ein Signal der Multikanalplatten des Projektil-detektors die Datenaufnahme durch den Computer gestartet. Dadurch können die Zeitdifferenzen aller Signale zu diesem Startsignal, die auf den angeschlossenen Detektoren innerhalb eines bestimmten Aufnahmeintervalls nachgewiesen wurden, aufgenommen und gespeichert werden. Mit dem verwendeten Aufbau und der entsprechende Messtechnik war es möglich, innerhalb dieses Zeitfensters mehrere aufeinanderfolgende Signale zu detektieren. Das bedeutet, dass zu einem bestimmten Ereignis auch prinzipiell mehr als ein Ion auf einem Detektor nachgewiesen werden konnte. Limitierender Faktor war hierbei natürlich die Totzeit des jeweiligen Detektors. Mit den aufgenommenen Zeitdifferenzen, die sich durch die Signale eines zweiten, dritten etc. Ions ergeben, ließen sich in der Offline-Analyse in gleicher Weise wie für das erste Ion Flugzeiten und Detektororte berechnen.

Zwei Ionen, die zeitlich nacheinander auf einen Detektor getroffen sind und durch die Datenaufnahme einem Ereignis zugeordnet wurden, können tatsächlich physikalisch an ein und dem gleichen Stoß mit einem Projektil bzw. an ein und der gleichen Reaktion beteiligt gewesen sein. Statistisch ist es aber auch möglich und abhängig vom Wirkungsquerschnitt auch meistens auch am wahrscheinlichsten, dass die beiden Teilchen aus zwei verschiedenen Reaktionen bzw. Stößen stammen. Der Unterschied zwischen dem ersten und dem zweiten Fall besteht darin, dass zwischen den Teilchen aus der selben Reaktion die Impulserhaltung gelten muss. Und genau dieser Umstand kann in der hier verwendeten Impulsspektroskopie genutzt werden.

Zerfällt ein Molekül oder Dimer durch die Wechselwirkung mit einem Projektil in zwei ionische Fragmente, werden diese durch die gegenseitige Coulombkraft voneinander abgestoßen und beschleunigt. Würde das Projektil durch die Wechselwirkung keinen Impuls auf den Schwerpunkt des Moleküls übertragen, ergäbe die Impulssumme der beiden Molekülfragmente genau Null. Im realistischen Fall eines Impulsübertrags auf den Molekülschwerpunkt muss die Impulssumme der Molekülfragmente genau mit diesem Impulsübertrag übereinstimmen. Betrachtet man dies in der statistischen Gesamtheit einer Messung, so entspricht also die Verteilung der Impulssumme der der Projektilimpulsüberträge. Sie weist dadurch eine endliche Breite auf.

Dieser Sachverhalt macht sich auch in einem zweidimensionalen Flugzeitspektrum bemerkbar, in dem auf der einen Achse die Flugzeit des ersten Ions und auf der anderen Achse diejenige des zweiten Ions aufgetragen ist. Ein solche Spektrum ist in Abbildung 4.4 zu sehen. Es lassen sich horizontale und vertikale Linien erkennen. Diese stammen von zufälligen unabhängigen Ereignissen. Wenn das erste Ion ein He^+ oder He^{2+} -Ion war und das zweite eines mit einer beliebigen Flugzeit, so ergibt sich bei der entsprechenden Flugzeit auf der x-Achse eine vertikale Linie. Im umgekehrten Fall (1. Ion: beliebig, 2. Ion: He^+ - oder He^{2+} -Ion) zeigt sich bei der entsprechenden Flugzeit auf der y-Achse eine horizontale Linie.

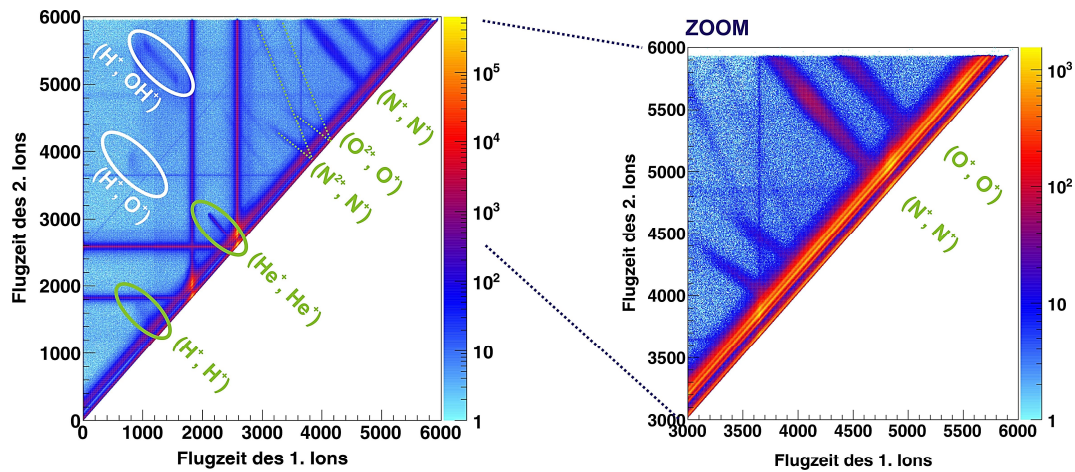


Abb. 4.4.: Zweidimensionales Flugzeitspektrum: Auf der x-Achse ist die Flugzeit des ersten Ions, auf der y-Achse die Flugzeit des zweiten Ions aufgetragen. Aufgrund der Impulserhaltung lassen sich Molekül- bzw. Dimeraufbrüche durch Linien mit negativer Steigung identifizieren. Durch Reaktionen mit dem Restgas sind neben dem Aufbruch der Heliumdimere in zwei einfach geladenen Heliumionen auch unterschiedliche Aufbrüche des Stickstoff- (N_2) und Sauerstoffmoleküls (O_2) zu sehen. Auch diese Spektren ergeben sich nach einer Sortierung der Daten (siehe 4.5).

Des Weiteren sind in diesem Spektrum Linien sowohl mit einer positiven als auch mit einer negativen Steigung zu sehen. Die Linien mit einer positiven Steigung rühren von zusätzlichen Schwingungen auf den analogen MCP-Signalen. Die Linien mit einer negativen Steigung stammen von tatsächlichen Dimer- oder Molekülaufbrüchen. Hier sind drei Linien zu erkennen, die dem (He^+, He^+) -, dem (N^+, N^+) - und dem (O^+, O^+) -Aufbruch zugeordnet werden können. Diese Linien liegen nicht genau auf einer Geraden, sondern auf einer leicht gekrümmten Kurve. Der Grund hierfür liegt darin, dass der Zusammenhang zwischen Flugzeit und Startimpuls nicht linear ist.

Um den Dimeraufbruch (He^+, He^+) von den zufälligen Koinzidenzen zu trennen und damit den Untergrund zu unterdrücken, wird im Folgenden eine Bedingung auf die entsprechende Linie im zweidimensionalen Flugzeitspektrum gelegt. Zunächst wird jedoch die Eichung des elektrischen Feldes beschrieben. Hierzu wird eine Bedingung auf die Linie des (N^+, N^+) -Aufbruchs, d.h. dem Aufbruch eines Stickstoffmoleküls, gesetzt.

4.3. Eichung des elektrischen Feldes

In diesem Abschnitt geht es darum, das angelegte elektrische Feld genauer zu bestimmen. Die Grundidee ist dabei folgende: Wenn ein Molekül oder Dimer in zwei einfach geladene Ionen

aufbricht, gewinnen die Fragmente aufgrund der Coulombexplosion an Energie. Diese ist typisch für das jeweilige Molekülsystem und stellt deshalb eine fixe physikalische Größe dar, die nicht von Parametern der Messapparatur abhängt. Durch die hier verwendete Methode der Impulsspektroskopie kann diese Energie aus den Impulsen bestimmt werden. Ein Vergleich dieser Energieverteilung mit den Ergebnissen einer bereits gemachten hochauflösenden Messung ermöglicht schließlich eine genaue Bestimmung des elektrischen Feldes.

Das Molekülsystem, das sich für diese Eichung am besten eignet, ist das Stickstoffmolekül. Dies ist in den meisten Fällen als Restgas in der Kammer zu finden. Zudem haben Lundqvist et al. [Lun96] in einem Elektronenstoßexperiment die Aufbruchsenergie des Stickstoffmoleküls in zwei einfach geladene Stickstoffionen sehr genau bestimmen können. Das Spektrum dieser vermessenen Aufbruchsenergie weist mehrere Maxima auf, wodurch ein sehr genauer Vergleich mit den vorliegenden Messergebnissen möglich ist.

Setzt man eine Bedingung auf die entsprechende Linie im zweidimensionalen Flugzeitspektrum, kann man mit den entsprechenden Flugzeiten und Auftrefforten die Impulse der N^+ -Ionen eines Aufbruchs bestimmen. Aus diesen lassen sich nun die Impulse im Molekülsystem berechnen, in dem für jede Richtung die Differenz aus dem Impuls des ersten und zweiten Ions gebildet und diese durch zwei geteilt wird. Der Gesamtimpuls im Molekülsystem ermittelt sich wiederum aus der Summe der Quadrate der x-, y- und z-Komponente:

$$p_{Mol} = \sqrt{\left(\frac{p_{1x} - p_{2x}}{2}\right)^2 + \left(\frac{p_{1y} - p_{2y}}{2}\right)^2 + \left(\frac{p_{1z} - p_{2z}}{2}\right)^2} \quad (4.1)$$

Aus diesem lässt sich dann die kinetische Energie, die die Ionen aus der Coulombabstoßung beim Aufbruch erhalten, bestimmen:

$$E = KER = \frac{p_{Mol}^2}{2\mu} \quad (4.2)$$

Die Einzelimpulse der Rückstoßionen in der (y,z)-Ebene ergeben sich hierbei, wie in Abschnitt 3.5.2 erläutert, aus den Orten und der Masse der entsprechenden Ionen, während die Einzelimpulse in Flugzeitrichtung mit einem iterativen Verfahren bestimmt werden [Sch].

Ziel der Eichung ist es nun, dass die gemessene KER-Verteilung für alle Raumrichtungen gleich aussieht und absolut der gemessenen KER-Verteilung von Lundqvist et al. entspricht. Zwei Dinge spielen hier eine wichtige Rolle: Zum einen müssen die Nullpunkte in der Ortsverteilung y_0 und z_0 (Detektorebene) richtig bestimmt werden, zum anderen müssen die Richtungen zueinander richtig kallibriert werden, d.h. ins richtige Größenverhältnis gesetzt werden. Das angenommene elektrische Feld bestimmt dabei mit bekannter Masse und Ladung die Größe des Impulses in Flugzeitrichtung.

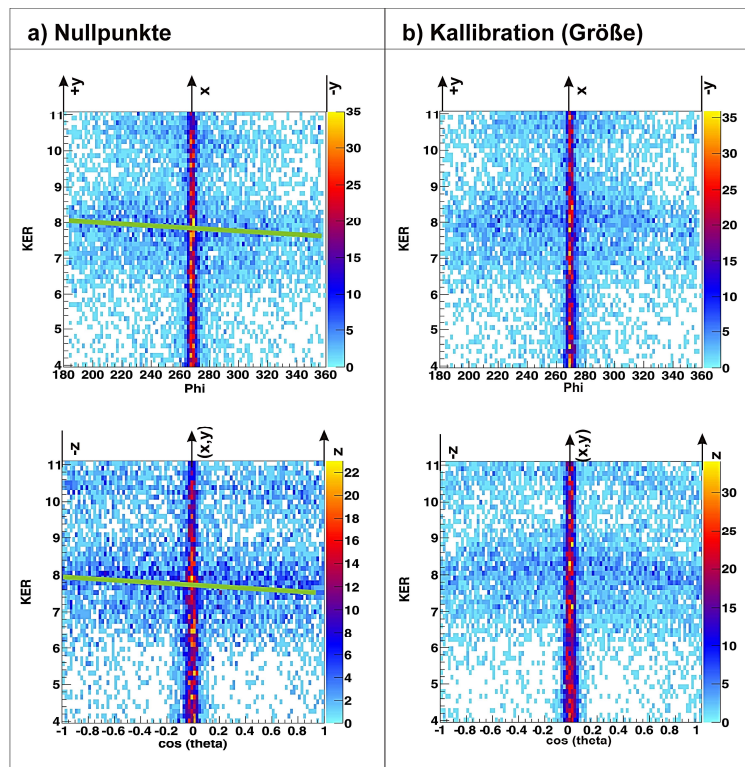


Abb. 4.5.: KER gegen den Winkel ϕ (um die Strahlachse) und den Kosinus des Winkels θ : Es wurde ein zu großes elektrisches Feld angenommen. Dadurch erscheint die Flugzeitrichtung größer als die anderen beiden Richtungen. Das führt zu der Verbiegung der Verteilung zu größeren KER-Werten hin. Die Spektren können daher zur Kallibration der Impulse benutzt werden.

Die Nullpunkte in der Orts- bzw. Impulsverteilung in der (yz) -Ebene lassen sich auf folgendem Weg bestimmen: Wenn der KER gegen den Winkel um die Strahlachse ϕ bzw. zur Strahlachse $\cos \theta$ aufgetragen wird, so ist, wenn der Ortsnullpunkt in y -Richtung nicht richtig gewählt wurde, eine Verkippung zu sehen (Spalte a in Abbildung ??). Ziel ist es, die Ortsnullpunkt so zu variieren, dass die Verteilung für beide Winkel flach und gerade ist.

Diese Spektren lassen sich ebenfalls dazu benutzen, das richtige Größenverhältnis der Impulse in den einzelnen Raumrichtungen zu ermitteln. Wenn die Größenverhältnisse der einzelnen Raumrichtungen zueinander nicht stimmt, ist diese Verteilung nicht flach, sondern verbogen. Um dies zu korrigieren, wird für die Flugzeitrichtung das angenommene E-Feld geändert. Zudem können die y - und z -Richtung angepasst werden, d.h. verkleinert oder vergrößert werden, in dem die Einzelimpulse des ersten und zweiten Ions mit einem Faktor multipliziert werden. Das E-Feld konnte mit dieser Methode auf $13.0 \frac{V}{cm}$ bestimmt werden.

Abbildung 4.6 zeigt das Ergebnis der Eichung, den Vergleich zwischen der gemessenen KER-Verteilung und der von Lundquist et al.. Die Intensitätsverhältnisse der Maxima sind bei beiden nicht gleich. Der Grund hierfür liegt zum einen darin, dass die Maxima verschiedenen Potenzialkurven mit dem Dissoziationslimit (N^+ , N^+) d.h. verschiedenen Endzuständen

zugeordnet werden können. Diese werden in einem Elektronen- und Ionenstoß sicherlich unterschiedlich populiert. Zum anderen werden Ionen, die beim Aufbruch einen größeren KER als 8 eV gewinnen, nicht mit dem vollen Raumwinkel 4π detektiert. Dennoch ist die Übereinstimmung sehr gut.

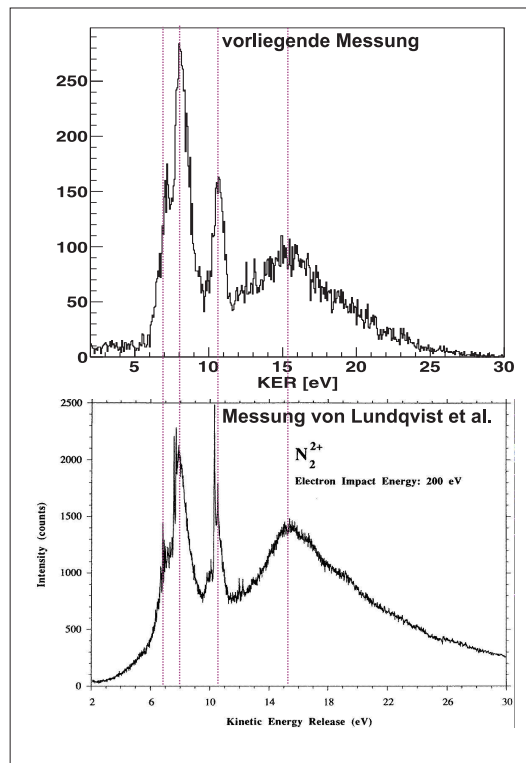


Abb. 4.6.: Ergebnis der Eichung: Die Impulse der Ionen wurden so kalibriert, dass die Maxima der absoluten KER-Verteilung mit denen von Lundqvist et al. übereinstimmen. Ionen, die durch die Coulombexplosion einen KER größer 8 eV erhalten, werden nicht mehr mit einem vollen Raumwinkel 4π detektiert. Ionen, die einen KER größer 12 eV bekommen, werden überhaupt nicht mehr nachgewiesen.

4.4. Kallibration der Impulse des He₂-Aufbruchs

Aufgrund der Eichung mit Stickstoff konnten das elektrische Feld und die Kallibrationsfaktoren der Impulse in den verschiedenen Raumrichtungen gefunden werden. Diese Werte werden direkt für den (He⁺, He⁺)-Aufbruch übernommen. Da die einfach geladenen Heliumionen ein anderes Ladungs-zu-Masse-Verhältnis und dadurch eine andere Flugzeitverteilung besitzen, unterscheiden sich ihre Impulsschwerpunkte von denen der einfach geladenen Stickstoffionen. Die Ortsnullpunkte sind daher von denen der einfach geladenen Stickstoffionen verschieden.

Diese wurden jedoch genau wie bei den Stickstoffionen gefunden, indem der KER der Heliumionen gegen den entsprechenden Winkel aufgetragen wurde. Der Nullpunkt in z-Richtung wurde zusätzlich mit den Impulsen der Monomere (He^+ -Ionen) in der Richtung überprüft.

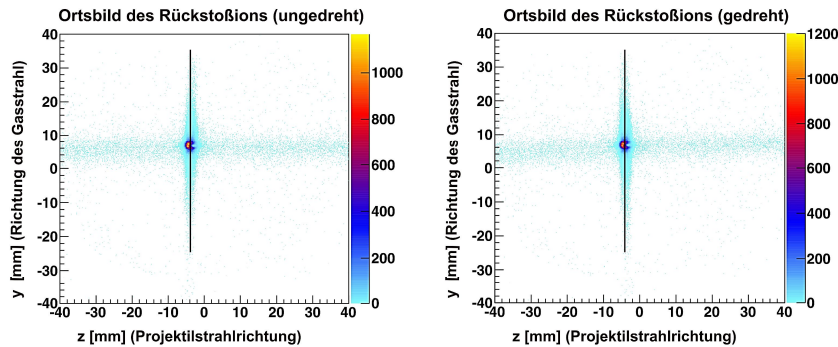


Abb. 4.7.: Ortsbild des Rückstoßions für die Bedingung eines einfachen Elektroneneinfangs. Die Bilder zeigen eine typische Capture-Linie (vertikale Linie). Die breite horizontale Linie ergibt sich aus Stoßreaktion mit dem warmen Restgas entlang der Ausbreitungsrichtung des Projektilstrahl (Strahlstrich).

Zudem werden noch eine weitere Korrekturen vorgenommen: Das zusätzlich angelegte Magnetfeld lenkt auch die Ionen ab. Da diese jedoch viel schwerer sind als die Elektronen, war der Ablenkwinkel für alle Heliumionen nahezu gleich ist. Um diese Drehung zu korrigieren, wurde die Ortsverteilung der Monomere benutzt. Für Rückstoßionen, die bei einem einfachen Einfang aus einem Atom entstehen, ist die Ortsverteilung in Strahlrichtung durch Energie- und Impulserhaltung des Einfangs gegeben und damit unendlich schmal. In Realität wird sie durch die Auflösung der Messanordnung begrenzt. In Richtung des Gasstrahls ist die Verteilung wiederum sehr breit, weil sich bei einem Einfangprozess die beiden Kerne von Targetatom und Projektilion sehr nahe kommen. Ein Einfangprozess führt daher zu einer linienartigen Struktur im Ortsbild (Abbildung 4.7)). Durch diese Struktur kann der Drehwinkel, der aus dem Magnetfeld resultiert, bestimmt werden und durch eine Drehung der Ortsverteilung mithilfe einer Drehmatrix korrigiert werden. Es ergibt sich Winkel von 1.1° .

4.5. Die Signale auf dem Rückstoßionendetektor

Im zweidimensionalen Flugzeitspektrum, in dem die Flugzeit des ersten Ions gegen die Flugzeit des zweiten Ions aufgetragen wird, sind einige intensitätsreiche Linien zu sehen, die eine positive Steigung haben. Diese stammen von elektronischen Signalen, die nicht vom Auftreffen eines Ions, sondern von Störsignalen auf den Signalleitungen der Multikanalplatten herrühren. Tatsächlich wurden die Daten für die Darstellung der bisherigen Spektren bereits sortiert. Die

Spektren vor der Sortierung zeigen, welchen Einfluss diese Störsignale haben. Abbildung 4.8 zeigt das eindimensionale Flugzeitspektrum des ersten und zweiten Ions vor der Sortierung. Es lässt sich erkennen, dass beide Spektren an den Stellen, wo einzelne Flugzeitmaxima der Ionen sein sollten, mehrere aufeinanderfolgende Maxima aufweisen.

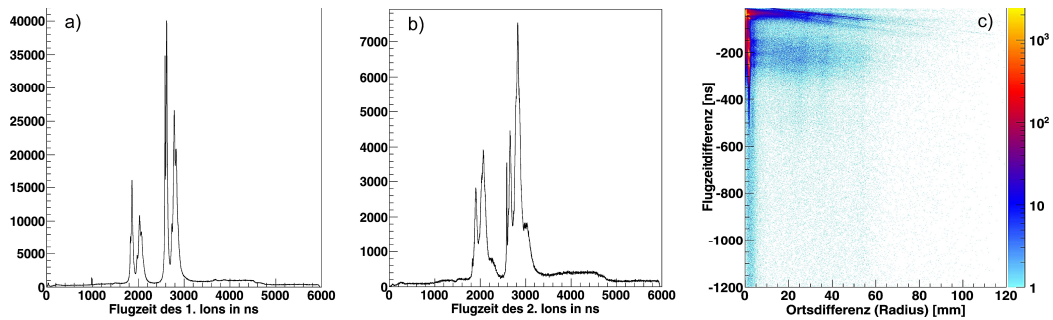


Abb. 4.8.: Störsignale auf den Signalleitung: a) Flugzeit des ersten Ions (ohne Rekonstruktion). b) Flugzeit des zweiten Ions (ohne Rekonstruktion). In beiden Spektren sind statt den normalen Maxima, die sich durch die Reaktion der Projektile mit Heliumatomen ergeben, an den entsprechenden Stellen mehrere Maxima zu sehen. c) Ortsdifferenz zweier aufeinanderfolgender Signale gegen die Flugzeitdifferenz.

Die Formen dieser Maxima gleichen sich und deuten daraufhin, dass die Maxima von Schwingungen stammen, die zeitlich einen festen Abstand zu einem ersten echten Signal haben, das auf den Multikanalplatten ausgelöst wurde. Wenn die Zeitdifferenz zweier aufeinanderfolgender Signale gegen deren Ortsdifferenz auf der Anode aufgetragen wird, so zeigt sich, dass es unabhängig vom Ort in der Flugzeitdifferenz mehrere Maxima gibt. Der Grund hierfür ist, dass durch die Datenaufnahme für das zweite detektierte Ereignis auf dem Detektor zu vier Anodensignalen, die die Ortsinformationen liefern, eben ein nicht physikalisch zugehöriges Signal der Multikanalplatten registriert wurde. Da die meisten Ionen nicht aus Molekülaufbrüchen, sondern aus zwei zeitlich aufeinanderfolgenden unabhängigen Reaktionen mit Atomen insbesondere mit Heliumatomen stammen, die aufgrund des geringen Anfangsimpulses in der Mitte des Detektors landen, werden daher die meisten Maxima bei kleinen Abständen detektiert.

Diese zeitlich festen Signale auf dem Rückstoßionendetektor haben eine wichtige Konsequenz: Werden nur das erste und zweite detektierte Ereignis betrachtet, gehen Ereignisse verloren, da als vermeintlich zweites Ion eine zeitlich nahe Schwingung durch die Datenaufnahme registriert wird. Die Gesamtheit der aufgenommenen Ereignisse, die den Aufbruch eines Heliumdimers beinhalten, wird reduziert. Bei dieser Messung konnten für ein Ereignis bis zu acht aufeinanderfolgende Signale auf dem Rückstoßionendetektor nachgewiesen werden. Und tatsächlich zeigt sich, dass, wenn man die Flugzeit des ersten Ions gegen ein mögliches drittes, viertes bzw. fünftes Ion aufträgt, stets die Linie zu sehen ist, die den Aufbruch eines Heliumdimers anzeigt.

Um diese Ereignisse auch für die Auswertung zu gewinnen, wurde ein Programmabschnitt geschrieben, in dem die Ionenpaare, die bei einem Molekül- und Dimeraufbruch entstehen, mittels Impulserhaltung einander zugeordnet wurden. Der Programmcode ist im Anhang in Abschnitt C zu finden.

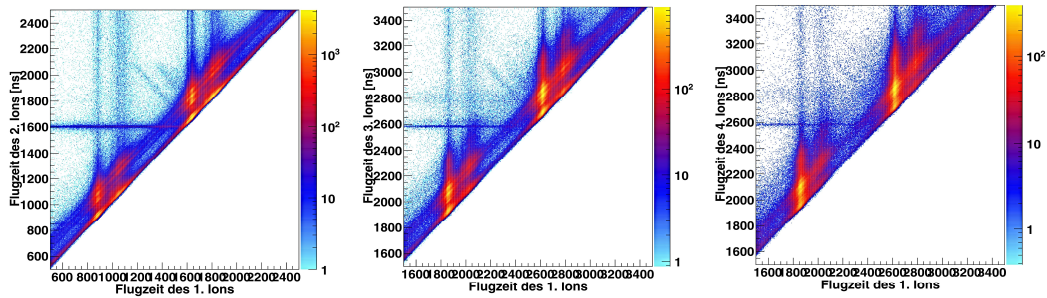


Abb. 4.9.: Zweidimensionale Flugzeitspektren für mehr als zwei hintereinander aufgenommene Ionen. Links: für das erste und zweite Ion (ohne Rekonstruktion). Mitte: für das erste und dritte Ion. Rechts: für das erste und dritte Ion. In allen drei Spektren ist eine Linie zu sehen, die auf einen $(\text{He}^+, \text{He}^+)$ -Aufbruch hindeutet. Parallel zur Linie zeigt sich eine weitere Linie, die ebenfalls zu einem $(\text{He}^+, \text{He}^+)$ -Aufbruch gehört. Hier ist für das erste Ion zu den 4 Anodensignalen ein falsches Signal aus den Multikanalplatten registriert worden.

Vorraussetzung für eine solche Vorgehensweise ist jedoch, dass die vier Anodensignale und das Signal der Vielkanalplatten (MCP) physikalisch zusammengehören, d.h. von dem Auftreffen eines Ions herrühren. Um dies sicher zu stellen, wurde eine Sortierungs- und Rekonstruktionsroutine genutzt [Roe]. In dieser wurden, wie der Begriff es schon sagt, Anodensignale und Signale der Vielkanalplatten richtig zueinander zugeordnet. Wichtige Größen waren hierbei die Zeitsummen der verschiedenen Drahtlagen und die aus den Signalen berechneten Auftrefforte selbst, die aufgrund der Größe des Detektors nur innerhalb eines bestimmten Bereiches liegen können. Zusätzlich rekonstruierte die Routine aus diesen Informationen fehlende Signale.

Um einen Überblick darüber zu erhalten, welche Signale bzw. wieviele Signale im Nachhinein berechnet wurden, wurde für jedes Ion (4 Anodensignale plus 1 MCP-Signal) eine bestimmte Zahl ausgegeben. So wurde beispielsweise für den Fall, dass alle vier Anodensignale und das Signal von den Vielkanalplatten bereits vorhanden waren und kein Signal berechnet wurde, die Zahl 3 ausgegeben. Wenn zu vier Anodensignalen kein MCP-Signal gefunden wurde, und dieses aus den Zeitsummen rekonstruiert wurde, so wurde diesem Signal die Zahl 10 zugeordnet. Dadurch war es möglich, einen Überblick über den Fehler und die Qualität der sortierten Signale zu bekommen. Denn je mehr Signale ursprünglich vorhanden waren, desto mehr Tests konnten benutzt werden, um Signale zuzuordnen. Dementsprechend war die Sortierungs- bzw. Rekonstruktionsmethode 3 am sichersten.

In Abbildung 4.10 ist für das erste detektierte Ion die Verteilung der eben erwähnten Zahlen und damit der Sortierungs- bzw. Rekonstruktionsmethoden zu sehen. Das Spektrum für das zweite Ion weist in etwa die gleiche Verteilung auf. Die meisten Ereignisse gab es, wie zu erwarten war, für den Fall, dass alle fünf Signale für ein Auftreffen eines Ions registriert wurden. Mit Hilfe dieser Verteilung lässt sich nun wieder das Spektrum anschauen, in dem Orts- und Zeitdifferenz gegeneinander aufgetragen sind. Die Zahlen über den Spektren zeigen, auf welche Sortierungs- bzw. Rekonstruktionsmethode beim zeitlich vermeintlich ersten und zweiten Ion die Bedingung gesetzt wurde. So bedeutet die Bezeichnung (3,3), dass für beide Ionen alle fünf Signale (vier Anodensignale plus MCP-Signal) vorhanden waren.

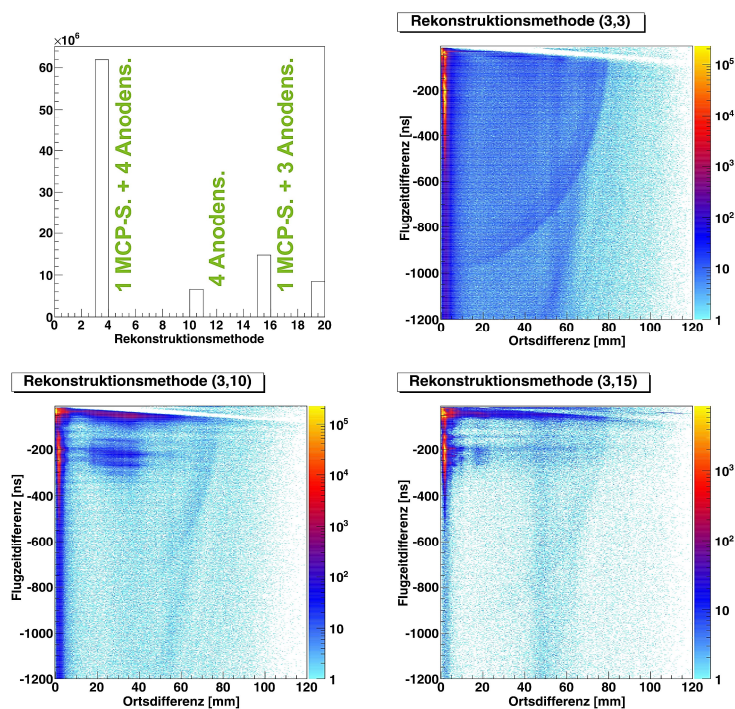


Abb. 4.10.: Orts- und Zeitdifferenz der ersten zwei Ionen für verschiedene Sortierungs- bzw. Rekonstruktionsmethoden. Oben links ist die Verteilung der Methoden gezeigt. Die Zahl gibt Informationen darüber, wieviele Signale vorhanden waren und zueinander zugeordnet werden konnten bzw. welches Signal rekonstruiert wurde. Erklärung siehe Text.

In den Spektren zeigt sich, dass sich nur für diesen Fall keine zeitlich konstanten Strukturen ergeben. Bereits bei der Variante (3,10), bei der für das zweite Ion nur vier Anodensignale detektiert wurden und ein MCP-Signal rekonstruiert wurde, zeigen sich horizontale Linien, die von zeitlich konstante Untergrundsignalen auf den Multikanalplatten stammen, und eine breite Verteilung bei einer Ortsdifferenz von etwa 30 mm. Diese rührt von zusätzlichen Untergrundschwingungen auf den Anodendrähten her, wodurch sich auch eine falsche Ortsberechnung ergibt. Aufgrund dieser Analyse würde man die Bedingung für beide detektierten

Signale auf die Sortierungs- und Rekonstruktionsmethode 3 setzen. Tatsächlich zeigt sich aber, dass durch diese Bedingung auch Orte in y -Richtung, die größer als 40 mm bzw. kleiner als -40 mm sind, unterdrückt werden. Zudem stellt sich heraus, dass die zeitlich konstanten Strukturen für Ortsdifferenzen größer 5 mm für den Aufbruch des Dimers verschwinden, wenn eine Bedingung auf die Impulserhaltung in allen drei Raumrichtungen gesetzt wird.

Um die jeweiligen Ionen eines Aufbruchs in der Offline-Analyse einander zuzuordnen, wurde im betreffenden Programmabschnitt die Bedingung auf die Sortierungs- und Rekonstruktionsmethode 3 und 10 gesetzt. Dadurch wurde die Gesamtzahl der nachgewiesenen Dimeraufbrüche um zehn Prozent erhöht.

4.6. Kallibration der Elektronenimpulse

Bei der Kallibration der Elektronenimpulse spielt neben dem elektrischen Feld, dem Orts- und Flugzeitnullpunkt das magnetische Feld eine entscheidende Rolle. Wie in Kapitel 3.5.3 beschrieben vollführen die Elektronen auf dem Weg zum Detektor eine Schraubenbewegung. In Flugzeitrichtung wird der Geschwindigkeits- bzw. Impulsvektor bei fester Spektrometergeometrie durch das elektrische Feld bestimmt. Durch die Kallibration der Stickstoffionen ist dieser Wert bereits bekannt. Der Nullpunkt in der Flugzeit ist im Idealfall bei Ionen und Elektronen gleich. Bei einer Messung werden die Signale jedoch auf abgeschirmten Kabeln zum Aufnahmesystem transportiert. Unterscheiden sich die Kabellängen zwischen Ionen- und Elektronendetektor, bestehen je nach Längenunterschied auch Laufzeitunterschiede zwischen den MCP-Signalen der beiden Detektoren von wenigen Nanosekunden. Daher kann man für die Elektronen nicht unbedingt den gleichen Flugzeitnullpunkt wie bei den Ionen annehmen. In den Ortsrichtungen erscheint die Nullpunktsbestimmung ebenfalls nicht trivial. Da die Größe der Impuls in Ortsrichtung durch das magnetische Feld bestimmt wird, muss sein Wert genau ermittelt werden.

Diese Informationen lassen sich mit einiger Mühe und den entsprechenden physikalischen Strukturen in den Elektronenimpulsen aus den Messergebnissen herleiten. Eine etwas einfachere Methode ist eine zusätzliche Eichmessung, in der bei festem magnetischen Feld das elektrische Feld variiert wird. Für diese Arbeit wurden zwei Messungen durchgeführt. Bei einer von beiden wurde versäumt, eine derartige Eichmessung durchzuführen. Es werden daher im Folgenden die Kallibration der Nullpunkte und des magnetisches Feldes mit und ohne Eichmessung kurz beschrieben.

4.6.1.ohne Eichmessung

Mit der gegebenen Spektrometergeometrie (20 cm Beschleunigungsstrecke, 40 cm Driftstrecke) und dem bekannten elektrischen Feld ließ sich die Flugzeit für die Elektronen mit einem Impuls von 0 a.u. bestimmen. Der Flugzeitnullpunkt wurde daher zunächst so gewählt, dass auch der Mittelpunkt der gemessenen Flugzeitverteilung bei diesem Wert lag. Hier ließ sich gegenüber dem Zeitnullpunkt, der durch die Ionen ermittelt werden konnte, eine Differenz von -3.5 ns errechnen. Betrachtet man die Signallaufwege der beiden Detektoren und die Signallaufzeit von etwa 1 ns pro 20 cm Kabellänge, erscheint diese Differenz realistisch.

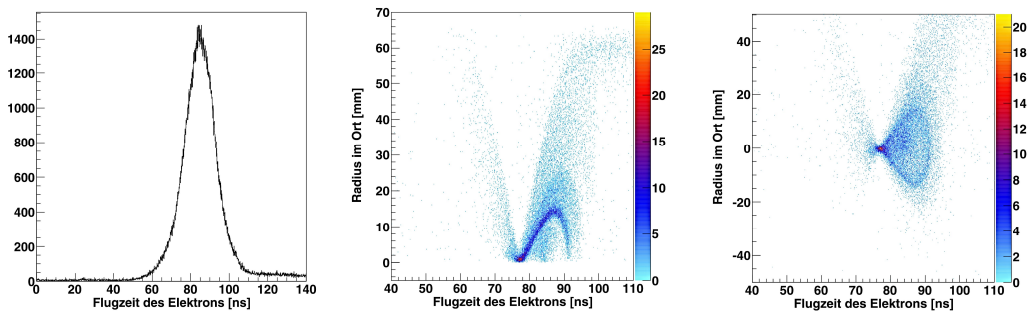


Abb. 4.11.: Flugzeit- und Ortsnullpunkt der Elektronen. Links: Flugzeit des Elektrons. Der Flugzeitnullpunkt wurde so gewählt, dass der Mittelpunkt der Verteilung bei gegebener Spektrometergeometrie und elektrischem Feld dem berechneten Wert entspricht. Mitte: Flugzeit des Elektrons gegen den Radius im Ort. Der Knoten gibt Aufschluss über das angelegte magnetische Feld. Rechts: Flugzeit des Elektrons gegen eine Ortsrichtung. Durch die Lage des Knotens kann der Ortsnullpunkt bestimmt werden.

In Abbildung 4.11 ist ein Spektrum zu sehen, in dem die Flugzeit der Elektronen gegen den Radius in der Detektorebene aufgetragen ist. Es lässt sich bei etwa 77 ns eine punktförmige Struktur (Knoten) erkennen. Diese entstand dadurch, dass bei gegebener Feldgeometrie alle Elektronentrajektorien nach einer festen Gyrationperiode wieder in einem Punkt zusammenliefen. Aus diesem Zeitpunkt konnte daher direkt das Magnetfeld berechnet werden. Es ergab sich ein Wert von 9.4 Gauss. Die physikalischen Nullpunkte in den Ortsrichtungen wurden ermittelt, indem die beiden Ortsrichtungen einzeln gegen die Flugzeit aufgetragen wurden. Die punktförmige Struktur, die auch in diesem Spektren sichtbar war, gab den jeweiligen Nullpunkt an. Mit diesen Informationen konnten die Impulse des Elektrons berechnet werden. Das Vorzeichen des magnetischen Feldes liess sich dadurch bestimmen, dass man sich die Impulse in den einzelnen Richtungen betrachtete. Aus Messungen, in denen bei gleicher Stoßenergie Reaktionen von Heliumatomen mit Alphateilchen untersucht wurden, war bekannt, dass die Elektronenimpulse in Strahlrichtungen eine längliche Verteilung aufwies, während die Impulse transversal zur Strahlrichtung rotationssymmetrisch sein müssen. Dadurch konnte ein negatives Vorzeichen für das Magnetfeld bestimmt werden.

Aus den Impulsen kann die kinetische Energie der Elektronen bestimmt werden:

$$E = \frac{p^2}{2m_e} \quad (4.3)$$

Wie bereits erwähnt, werden durch den beobachteten IC-Zerfall hauptsächlich Elektronen emittiert, die unabhängig von der Raumrichtung eine Energie zwischen 7-8 eV besitzen. Dies gibt wie bei den Ionen auch die Möglichkeit, sich die Energie gegen die verschiedenen Winkel des Koordinatensystems anzuschauen. Dies ist in Abbildung 4.12 zu sehen. Dadurch konnten die Richtungen zueinander kalibriert werden. Der absolute Wert ergab sich aus der Energieerhaltung, die für diesen Prozess zwischen KER und kinetischer Energie der Elektronen gelten muss. Diese führt zu einer diagonale Struktur im entsprechenden Spektrum (4.12, rechts), die beide Achsen etwa bei 16.2 eV schneidet. Eine nähere Erklärung hierzu findet sich im Kapitel 5. Dadurch konnten Nullpunkte und das magnetische Feld genauer bestimmt werden.

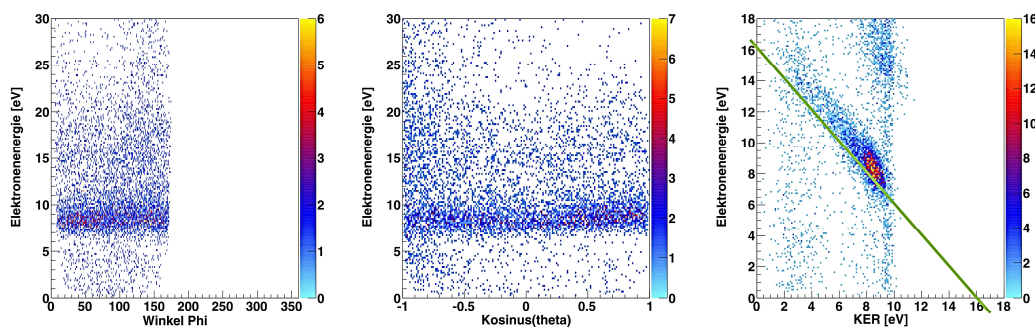


Abb. 4.12.: Kallibration der Elektronenimpulse mit einer festen Elektronenenergie. Links: Winkel ϕ in Grad (xy-Ebene) gegen die Elektronenenergie. Elektronen mit Emissionswinkeln größer 180° wurden für die Energieberechnung nicht benutzt, da ihre Flugzeit in der Nähe des Knotens liegen. Mitte: $\cos(\theta)$ gegen die Elektronenenergie. Rechts: KER gegen die Elektronenenergie. Für den IC-Zerfall ergibt sich aus Gründen der Energieerhaltung eine konstante Summe zwischen KER und Elektronenenergie. Das führt in diesem Spektrum zu einer Diagonalen, die die Achsen 16.2 eV schneiden sollte.

Für Elektronen, deren Flugzeit in bzw. in der Nähe des Knoten liegt, fehlt die Ortsinformation, die für eine Bestimmung der Startimpulse notwendig ist. Daher werden die Impulse dieser Elektronen für eine Darstellung des Datensatzes im Folgenden nicht genutzt.

4.6.2.mit Eichmessung

Mit einer Eichmessung ist die Kallibration wesentlich einfacher. In der Eichmessung wird zunächst für ein gegebenes magnetisches Feld die Stärke des elektrischen Feldes variiert. Je nach elektrischer Feldstärke ist die Flugzeit der Elektronen, die bei den Reaktionen entstehen, auch unterschiedlich lang. Ist die Gyrationperiode kleiner als der Flugzeitbereich, der

durch die Änderung des elektrischen Feldes abgedeckt wird, enthält dieser Bereich mindestens zwei Zeitpunkte, an denen die Elektronen wieder an den Ausgangspunkt transversal zu ihrer Flugzeitrichtung zurückkehren. Anders formuliert bedeutet das, dass ein Spektrum, in dem die Flugzeit des Elektrons gegen den Radius im Ort aufgetragen wird, mehrere Knoten enthält. Aus dem Abstand lässt sich direkt die Gyrationperiode und damit das magnetische Feld bestimmen. Zudem kann dadurch sehr präzise der Nullpunkt in der Flugzeit ermittelt werden. Er entspricht dem ersten Knoten in diesem Spektrum.

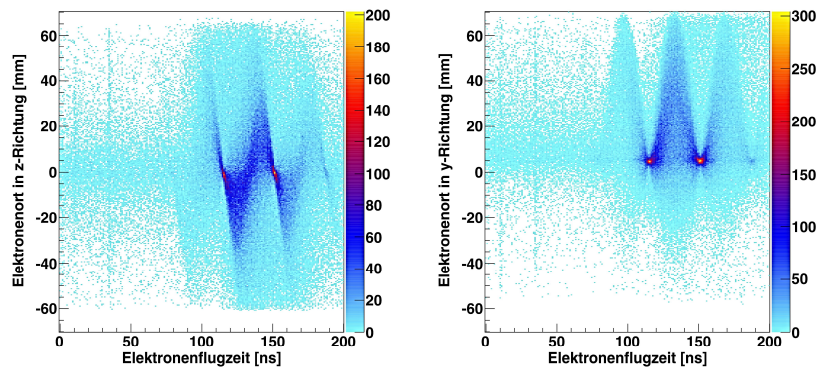


Abb. 4.13.: Eichmessung zur Kallibration der Elektronenimpulse. Links: Flugzeitrichtung des Elektrons gegen den Radius im Ort. Durch die Variation des elektrischen Feldes machen sich mehrere Knoten bemerkbar. Zu diesen Zeitpunkten kehren die Elektronen wieder zu ihrer Startposition transversal zur Flugzeitrichtung zurück. Rechts: Flugzeitrichtung des Elektrons gegen eine Ortsrichtung. Durch die Position der Knoten können die Nullpunkte im Ort bestimmt werden.

Wird nur eine Ortsrichtung aufgetragen, so geben auch hier die Knoten den Nullpunkt im Ort wieder. Häufig stehen das elektrische Feld und das magnetische Feld nicht genau senkrecht aufeinander. Dies kann man daran erkennen, dass verschiedene Knoten auch andere Ortskoordinaten besitzen. Durch diesen Unterschied lässt sich für jede Ortsrichtung eine Steigung finden, mit der die Kippung korrigiert werden kann.

5. Ergebnisse

Im folgenden Kapitel werden die Ergebnisse dieser Arbeit vorgestellt. Zu diesem Zweck werden die Ionen- und Elektronenimpulse näher präsentiert, um zu zeigen, wie damit einzelne Prozesse identifiziert werden können. In den weiteren Abschnitten werden für diese Prozesse Winkelverteilungen, sowie die Darstellung der Rückstoßionenimpulse im Projektilsystem beschrieben. Doch zunächst soll die Auflösung, die für die unterschiedlichen Fragmente erreicht wurde, diskutiert werden.

5.1. Auflösung

5.1.1. Auflösung der Rückstoßionen

Für die Impulsauflösung der einzelnen Rückstoßionen in den Ortsrichtungen sind die bestimmenden Faktoren die Anodenauflösung, die Maschenweite des Gitters und die Unsicherheits des Startortes durch die Ausdehnung des Reaktionsvolumens. Die Anodenauflösung ist letztendlich durch die Auflösung durch die Elektronik (E) begrenzt. Nimmt man hier einen Wert von 0.5 ns an, so ergibt sich aus den Umrechnungsfaktoren von etwa $0.7 \frac{mm}{ns}$ eine Auflösung von etwa 0.35 mm. Die Maschenweite des Gitters (G) beträgt 0.25 mm. Die Ausdehnung des Reaktionsvolumens entspricht in y-Richtung der des Ionenstrahls. Dieses wird aufgrund der Kollimatoreinstellungen auf etwa 1 mm geschätzt wird. In z-Richtung wird das Reaktionsvolumen durch die Skimmergeometrie des Gasstrahls limitiert, wodurch sich eine Ausdehnung von 1.8 mm ergibt. Aus diesen Werten lässt sich die Impulsauflösung der He^+ -Ionen berechnen:

$$\Delta p_y^R = 1.3(\sqrt{\Delta y_E^2 + \Delta y_G^2 + \Delta y_{Target}^2}) = 1.4 \text{ a.u.} \quad (5.1)$$

$$\Delta p_z^R = 1.3(\sqrt{\Delta z_E^2 + \Delta z_G^2 + \Delta z_{Target}^2}) = 2.4 \text{ a.u.} \quad (5.2)$$

Der Umrechnungsfaktor von 1.3 a.u./mm ergibt sich aus der Masse der Teilchen, dem elektrischen Feld, der Detektorgröße und der Spektrometergeometrie. In Flugzeitrichtung kann die Impulsauflösung für ein einzelnes Ion über die lineare Näherung abgeschätzt werden:

$$\Delta p_x^R = qE\sqrt{\Delta t_E^2 + \Delta t_{R,Target}^2 + \Delta t_{P,Target}^2 + \Delta t_{P,Beschl}^2} = 0.08 - 0.45 \text{ a.u.} \quad (5.3)$$

Für die durch die Elektronik gegebene zeitliche Auflösung wird ebenfalls ein Wert von 0.5 ns angenommen. Bei einer flugzeitfokussierenden Geometrie sollte der zweite Term im Idealfall Null ergeben. In der Realität haben Drift- und Beschleunigungsstrecke nicht genau ein Verhältnis von 2:1. Dadurch befindet sich der Detektor auch nicht ganz im Flugzeitfokus. Hier wurde eine Unsicherheit von etwa 0.5 ns abgeschätzt. Der dritte Term entspricht der Unsicherheit, die sich aus der Flugzeit des Projektils durch die Reaktionszone ergibt. Mit einer Ausdehnung des Gasstrahls von 1.8 mm berechnet sich hier ein Wert von 0.3 ns. Der vierte Term wiederum ergibt sich aus der Energieunsicherheit durch den Beschleuniger. Er ist der begrenzende Faktor in der hier betrachteten Richtung. Es wurde ein Wert zwischen 1 keV und 5 keV angenommen. Dadurch berechnet sich mit einem elektrischen Feld von $12.9 \frac{V}{cm}$ der oben angegebene Wertebereich für die Impulsauflösung in Flugzeitrichtung.

Diese Auflösung entspricht der Impulsauflösung der einzelnen Rückstoßionen. Hier wurden jedoch Ionen aus einem Aufbruch eines zweiatomigen Moleküls bzw. Dimers untersucht. Betrachtet man für eine der beiden Ortsrichtungen die Impulsgleichung für ein homonukleares Molekül oder Dimer

$$p_y^{Mol} = \mu \frac{y_1 - y_0}{t_1} - \frac{y_2 - y_0}{t_2} = \frac{1}{2} \left(m \frac{y_1}{t_1} - m \frac{y_2}{t_2} + m \left(\frac{y_0}{t_2} - \frac{y_0}{t_1} \right) \right) \quad (5.4)$$

und führt eine Gaußsche Fehlerfortpflanzung durch

$$\Delta p_y^{Mol} = \frac{1}{2} \sqrt{(1.3 \Delta y_1)^2 + (1.3 \Delta y_2)^2 + (1.3 (\Delta y_0 - \Delta y_0))^2}, \quad (5.5)$$

so zeigt sich, dass der Term, der die Auflösung durch die Ausdehnung der Reaktionszone beschreibt, Null ergibt. Lediglich die Auflösung, die durch Elektronik und Gitter gegeben ist, spielt eine Rolle. Für den Impuls in x-Richtung gilt das Gleiche, hier ist nur die durch die Elektronik gegebene Auflösung wichtig. Für die Impulse der He^+ -Ionen im molekül- bzw. dimerfesten System ergibt sich daher folgende Auflösung:

$$\Delta p_y^{Mol} = \Delta p_z^{Mol} = \frac{1}{2} \sqrt{2 (1.3 \Delta y_{E,G})^2} = 0.22 \text{ a.u.} \quad (5.6)$$

$$\Delta p_x^{Mol} = qE(\sqrt{\Delta t_E^2}) = 0.04 \text{ a.u.} \quad (5.7)$$

Daraus berechnet sich eine Gesamtauflösung für den Impuls im Molekülsystem von 0.32 a.u.. Für die kinetische Energie der Ionen im Molekül- bzw. Schwerpunktssystem (KER) kann der Fehler ebenfalls aus der Gaußschen Fehlerfortpflanzung ermittelt werden:

$$\Delta KER = \frac{p^{Mol}}{\mu} \Delta p \quad (5.8)$$

Die Auflösung der Energie ist abhängig vom Gesamtimpuls des Molekülsystems und steigt dementsprechend mit größer werdenden Energiewerten. Abbildung 5.1 zeigt die Auflösung

des KER für den hier vermessenen Energiebereich. Bei einem KER von 1 eV ergibt sich eine Auflösung von 0.03 eV, während sich bei einem KER von 10 eV eine Auflösung von 0.12 eV berechnen lässt.

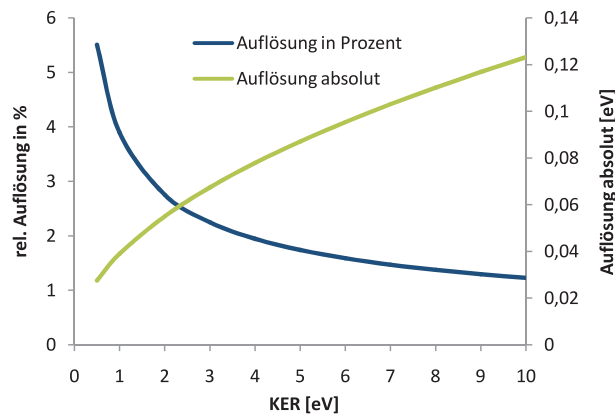


Abb. 5.1.: Auflösung der kinetischen Energie der Ionen im Molekülsystem absolut und relativ.

5.1.2. Auflösung der Projektile

Die Impulsauflösung des Projektils wird durch die transversale Ausdehnung des Ionenstrahls auf dem Detektor gegeben. Diese wird durch die Größe der Schlitze, durch die der Ionenstrahl begrenzt wird, aber auch durch die Aufweitung bzw. die Divergenz des Strahls festgelegt. Die Divergenz entspricht einem Winkel, der von der Schlitzgröße des zweiten Kollimators und dem Abstand zwischen den beiden begrenzenden Kollimatoren abhängt.

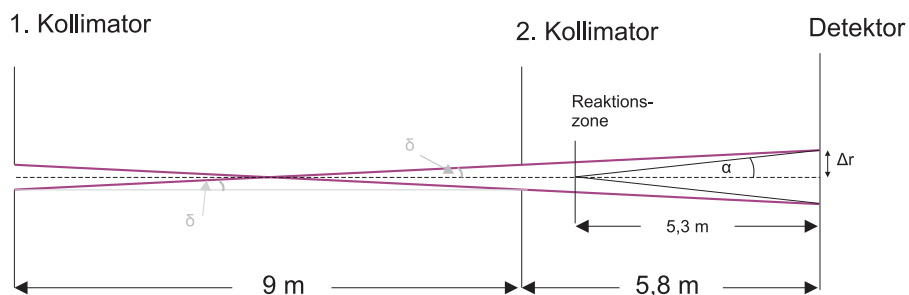


Abb. 5.2.: Schematische Darstellung der Kollimationsstrecke. Die Impulsauflösung des Projektils in der (xy)-Ebene wird durch die Aufweitung des Strahl auf dem Detektor begrenzt. Diese Aufweitung ergibt sich aus der Öffnung des zweiten Kollimators und der Divergenz des Ionenstrahls. Die Divergenz wird durch den Winkel δ gegeben, der sich durch die Abstände der beiden Kollimatoren bestimmen lässt. Die Streuwinkelauflösung kann aus der Aufweitung Δr und dem Abstand zur Reaktionszone berechnet werden.

Nimmt man für die Schlitzgröße 1 mm, wie sie bei dem Experiment in etwa gewählt wurde, berechnet sich hieraus eine Ausdehnung Δr (Abbildung 5.2) des Ionenstrahls auf dem Detektor von 1.1 mm. Innerhalb dieses Bereiches kann die Ablenkung der Projektile nicht gemessen werden. Mit dem Abstand zwischen Detektor und Reaktionszone lässt sich daraus die Streuwinkelauflösung α ermitteln. Es ergibt sich ein Wert von etwa 0.2 mrad. Mit Hilfe des Longitudinalimpulses der Projektile ($p_z = 17993$ a.u.) kann daraus die Impulsauflösung in transversaler Richtung bestimmt werden:

$$\Delta p_t^p = 2 \tan(\alpha) p_z^p = 7.4 a.u. \quad (5.9)$$

Um diesen Wert zu überprüfen, kann die Projektilimpulsverteilung, die durch Reaktionen mit Monomeren zustande kommt, betrachtet werden. Wenn ein Elektron aus einem Heliumatom von einem Alphateilchen eingefangen wird, gibt es im Ausgangskanal nur zwei Teilchen. Für diese muss Impulserhaltung gelten. Wenn daher der Impuls des Projektils gegen den Impuls des Rückstoßions in einer Richtung aufgetragen wird, muss dies im Idealfall eine Gerade mit negativer Steigung ergeben. In der Realität besitzt diese eine endliche Breite, die durch die Auflösung der Impulse von Projektil und Rückstoßion bestimmt ist:

$$\Delta_y = \sqrt{(\Delta p_y^p)^2 + (\Delta p_y^r)^2} \quad (5.10)$$

In Abbildung 5.3 wird die Impulserhaltung für beide Richtungen gezeigt. Aufgrund der Tatsache, dass die Impulsauflösung des Rückstoßions sehr viel besser ist als in den anderen beiden Richtungen, sehen die Verteilungen unterschiedlich aus. Die Breite der Geraden ist unter dem jeweiligen Spektrum zu sehen. Mit obiger Gleichung lässt sich aus diesem Wert und der Impulsauflösung der Rückstoßionen die Projektilimpulsauflösung berechnen. Man erhält in x-Richtung eine Auflösung von 8.2 a.u. und in y-Richtung eine Auflösung von 5.4 a.u.. Das zeigt, dass die Öffnung des zweiten Kollimators in y-Richtung kleiner als 1 mm war, während sie in x-Richtung größer als 1 mm gewesen sein muss.

Welche Qualität diese Auflösung hat, lässt sich an der Graphik rechts in Abbildung 5.3 sehen. Hier sind die Wirkungsquerschnitte des einfachen Elektroneneinfangs durch ein Alphateilchen in Abhängigkeit des Streuwinkels aufgetragen. Die Daten stammen von Schöffler et al. [Sch06] und sind aufgeschlüsselt nach verschiedenen Endzuständen. SC1 beschreibt den Einfang in den Grundzustand, SC2 den Einfang in den ersten angeregten Zustand etc. Wie sich erkennen lässt, besitzen insbesondere die beiden wahrscheinlichsten Einfänge ein Maximum, das bei einem Streuwinkel von etwa 0.35 mrad endet. Mit einer Auflösung von 0.23 mrad lässt sich der Streuwinkel daher nur unzureichend vermessen.

Bei einem Molekül bzw. Dimeraufbruch gibt es die Möglichkeit, die Projektilimpulse über die Summenimpulse der Rückstoßionen, die aus einem Molekül bzw. Dimer entstanden sind, und dem Impuls des eventuell beteiligten Elektron zu berechnen. Die Auflösung für den Summen-

impuls der Rückstoßionen ergibt sich aus den Einzelimpulsen:

$$\Delta p_y^{sum} = \sqrt{(\Delta p_{y1}^R)^2 + (\Delta p_{y2}^R)^2} = \sqrt{(2 (1.4 a.u.))^2} = 2.1 a.u. \quad (5.11)$$

$$\Delta p_x^{sum} = \sqrt{(\Delta p_{x1}^R)^2 + (\Delta p_{x2}^R)^2} = 0.11 - 0.64 a.u. \quad (5.12)$$

Wenn nur Rückstoßionen und Projektil an der Reaktion beteiligt sind, ergibt sich hieraus eine Streuwinkelaufösung von 0.06 mrad. Wird wie bei der Transferionisation ein Elektron frei, so muss in der Auflösungsbilanz der Elektronenimpuls berücksichtigt werden.

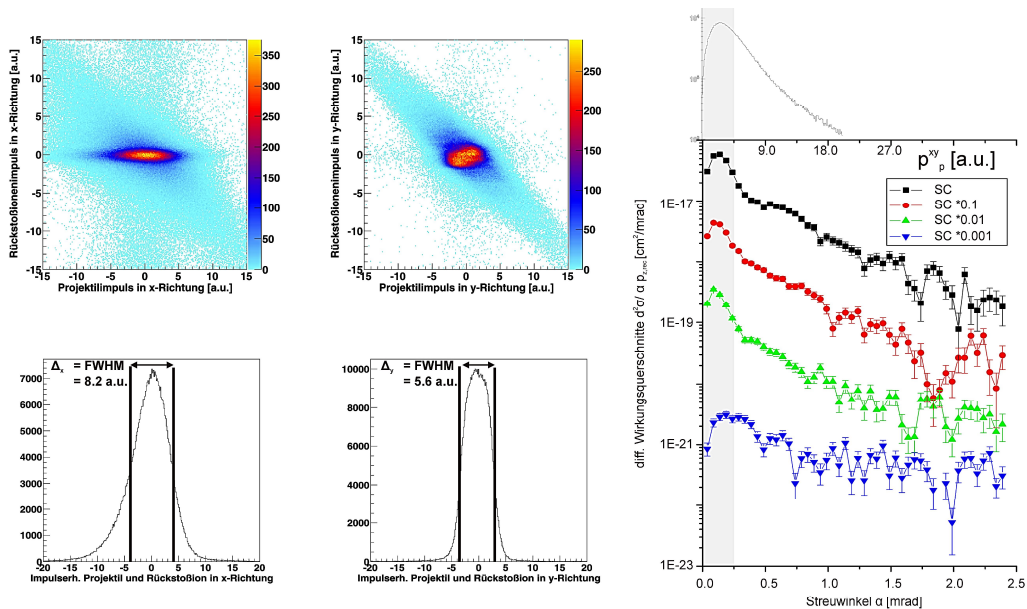


Abb. 5.3.: Impulsauflösung des Projektils für den Elektroneneinfang an einem Heliumatom. Links und Mitte oben: Impulserhaltung zwischen Rückstoßion und Projektilion. Links und Mitte unten: Projektion der Summe von Projektil- und Rückstoßionenimpuls. Rechts: Vergleich der hier erreichten Auflösung mit Daten von Schöffler et al. [Sch06]. SC1 beschreibt die Kurve für einen Elektroneneinfang in den Grundzustand, während SC2 den Wirkungsquerschnitt für den Einfang in den ersten angeregten Zustand darstellt.

5.1.3.der Elektronen

Die Impulsauflösung der Elektronen lässt sich in Flugzeitrichtung ebenfalls mit der linearen Näherung abschätzen. Hier ergibt sich wie bei den Rückstoßionen ein Wert zwischen 0.08 - 0.45 a.u. Für die Ortsrichtungen lässt sich die Impulsauflösung aus Gleichung 3.38 mit der

Gaußschen Fehlerfortpflanzung berechnen:

$$\Delta p_y^e = \frac{qB}{2 - 2 \cos \alpha} \sqrt{\left(\cos\left(\frac{\alpha}{2}\right) \Delta z_e\right)^2 + \left(\sin\left(\frac{\alpha}{2}\right) \Delta y_e\right)^2} \quad (5.13)$$

$$\Delta p_z^e = \frac{qB}{2 - 2 \cos \alpha} \sqrt{\left(\sin\left(\frac{\alpha}{2}\right) \Delta z_e\right)^2 + \left(\cos\left(\frac{\alpha}{2}\right) \Delta z_e\right)^2} \quad (5.14)$$

Die Ortsauflösung in den unterschiedlichen Richtungen Δy und Δz berechnet sich wie bei den Ionen auch aus der Unsicherheit der Anode und der Ausdehnung der Reaktionszone. Mit einem magnetischen Feld von 9.3 Gauss lassen sich hier je nach Winkel α für die verschiedenen Ortsrichtungen zwischen 0.05 und 0.2 a.u. ermitteln.

In Abbildung 5.4 wird die Winkelabhängigkeit der Energieauflösung der Elektronen gezeigt. Der dargestellte Winkel ist der Winkel zwischen Elektronenimpuls und Spektrometerachse. Der helle Bereich für Winkel, die kleiner als 90° sind, entsteht dadurch, dass die Elektronen in diesem Bereich durch das Magnetfeld nach einer Kreisbewegung in einem Punkt in der (yz)-Ebene zusammenlaufen und in diesem Moment auf den Detektor treffen. Man erhält keine Ortsinformation bzw. eine Ortsinfirmation mit einem entsprechend großen Fehler, was sich auch in der Energieauflösung widerspiegelt. Aufgrund der Auflösung werden in diesem Kapitel nur Spektren für Elektronen, die unter einem größeren Winkel als 90° emittiert sind, präsentiert.

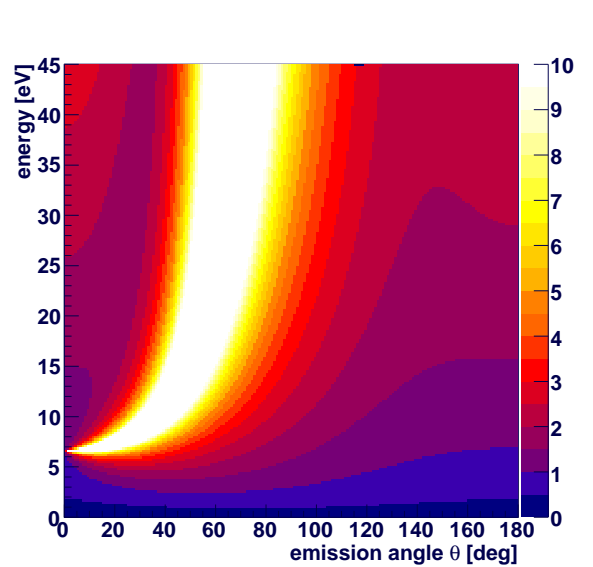


Abb. 5.4.: Energieauflösung des Elektrons in Abhängigkeit des Winkels zur Spektrometerachse. Bei einem Winkel von 0° starten die Elektronen in Richtung des Detektor, bei 180° entgegen die Richtung des Detektors. Das Bild wurde vom Programm MrSimulizer erstellt. Der helle Bereich entspricht im Flugzeitspektrum einem Knoten. Für Elektronen mit dieser Flugzeit ist die Ortsberechnung mit einem sehr großen Fehler behaftet, wodurch die Energieauflösung entsprechend schlecht ist.

5.2. Energie und Impuls der He^+ -Ionen aus dem Dimeraufbruch

Berechnet man für die Rückstoßionen die Relativimpulse bzw. die Impulse im molekülfesten System, so lassen sich die verschiedenen Richtungen gegeneinander auftragen. Dies ist in Abbildung 5.5 dargestellt. Für alle Richtungen ergibt sich eine kreisförmige Verteilung. Die Ionen erhalten durch die Coulombabstoßung eine Energie, die einem bestimmten Impuls entspricht. Die Relativimpulse liegen innerhalb einer Kugel, deren Maximalimpulse durch die kinetische Energie gegeben ist, die die Ionen durch die Coulombexplosion gewinnen. Schaut man sich die Impulse in zwei Raumrichtungen in Abbildung 5.5 an, sieht man die Projektion dieser kugelförmigen Verteilung. Zusätzlich zu dieser Projektion lassen sich in den Spektren b) in Abbildung 5.5 entlang der Achse der Projektilionen und bei kleinen Impulsen vermehrt Ereignisse erkennen. Das deutet daraufhin, dass es vermehrt Aufbrüche des Dimers gibt, bei denen sich die Dimerachse zur Zeit des Aufbruchs in einem gewissen Winkelbereich um die Projektilachse stand.

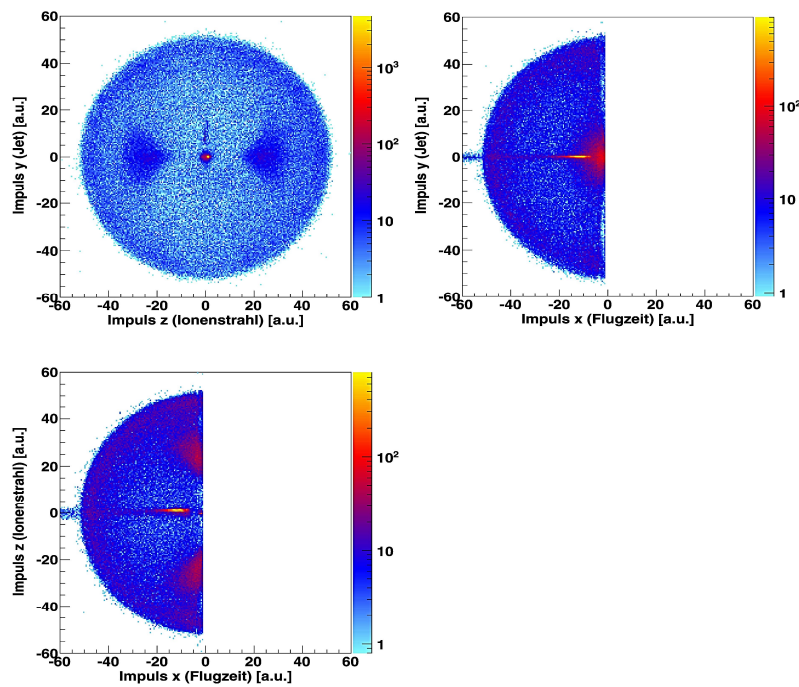


Abb. 5.5.: Impuls der Rückstoßionen (He^+) im Schwerpunktssystem des Dimers für die verschiedenen Raumrichtungen. Für die Impulsverteilung in Flugzeitrichtung (x-Richtung) ergibt sich aus der Messung immer nur die Hälfte einer kugelförmigen Verteilung. Da die beiden Ionen des Aufbruchs gleiche Masse und Ladung besitzen, wird das Ion, das einen Startimpuls in Richtung des Detektors besitzt, wird auch immer als erstes detektiert. Für das andere Ion gilt Entsprechendes. Der Relativimpuls hat daher immer das gleiche Vorzeichen. Der Streifen bei $p_y^{cm}=0$ bzw. $p_z^{cm}=0$ stammen von Untergrundereignissen. Um diese Spektren darzustellen, wurden Bedingungen auf die entsprechende Linie im zweidimensionalen Flugzeitspektrum, die Impulserhaltung der beiden Ionen in jeder der drei Raumrichtungen gesetzt.

Aus den Relativimpulsen kann die kinetische Energie im Schwerpunktsystem (KER)

$$KER = \frac{p_{Mol}^2}{2\mu} \quad \text{mit} \quad (5.15)$$

$$p_{Mol} = \sqrt{p_{Mol,x}^2 + p_{Mol,y}^2 + p_{Mol,z}^2} \quad (5.16)$$

berechnet werden. In Abbildung 5.5 ist die aus dieser Messung gewonnene Verteilung der kinetischen Energie im Schwerpunktsystem zu sehen. Man erkennt drei Maxima. Ein sehr breites Maximum liegt zwischen 1 eV und 5 eV, zwei weitere schmale Maxima sind bei einem KER von 8.5 eV und 9.5 eV zu finden.

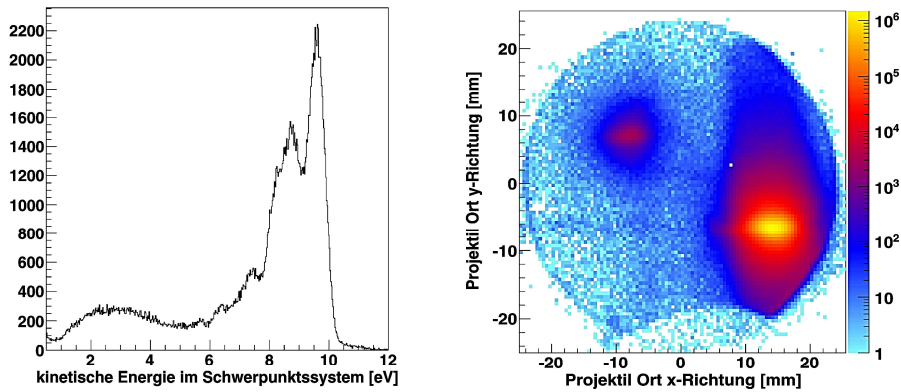
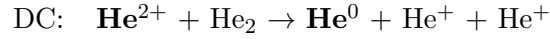


Abb. 5.6.: Links: Kinetische Energie der Ionen im Schwerpunktsystem des Dimers. Es sind drei Maxima zu erkennen, die einen Hinweis auf drei verschiedenen Zerfallsprozesse geben. Um dieses Spektrum darzustellen, wurde eine Bedingung auf die Impulserhaltung in allen drei Raumrichtungen gesetzt, sowie Untergrundereignisse, wie sie in Abbildung 5.5 zu sehen sind, durch einen Kegelschnitt ($\pm 4^\circ/\pm 8^\circ$) in Flugzeitrichtung zusätzlich unterdrückt. Rechts: Ortsbild des Projektildetektors. Links ist die Ortsverteilung der He^0 -Projektilionen, rechts die der He^+ -Projektilionen zu sehen.

In dieser Messung flogen die Projektile nach der Reaktion durch eine elektrostatische Ablenkung. Dadurch erfuhren Ionen mit unterschiedlichen Ladungszuständen auch eine andere Kraft und damit eine andere Ablenkung. Das elektrische Feld wurde dabei so gewählt, dass Alphateilchen in eine Farradaytasse gelenkt wurden, während die einfach geladenen Heliumionen und die neutralen Heliumatome auf dem Detektor landeten. Da die Position dieser Teilchen jedoch unterschiedlich ist, lassen sich mit einer Bedingung auf das Ortsbild des Projektildetektors zwei verschiedene Endzustände des Projektils auswählen. Dadurch ist es möglich, zwischen Aufbrüchen, die durch eine Transferionisation bzw. einen doppelten Elektroneneinfang entstanden sind, zu unterscheiden. Während nämlich bei einer Transferionisation (TI) nur ein Elektron des Dimers eingefangen wird und das zweite ins Kontinuum gelangt, wechseln bei einem zweifachen Elektroneneinfang (DC) beide Elektronen in einen gebundenen Zustand

des Projektils:



Durch eine Bedingung auf den entsprechenden Bereich im Projektilortsbild (siehe Abb. 5.6) kann die jeweilige Reaktion ausgewählt werden. Impuls und Energie des Dimeraufbruchs können demzufolge getrennt für die Transferionisation und den zweifachen Elektroneneinfang dargestellt werden. Diese Spektren werden in Abbildung 5.7 präsentiert.

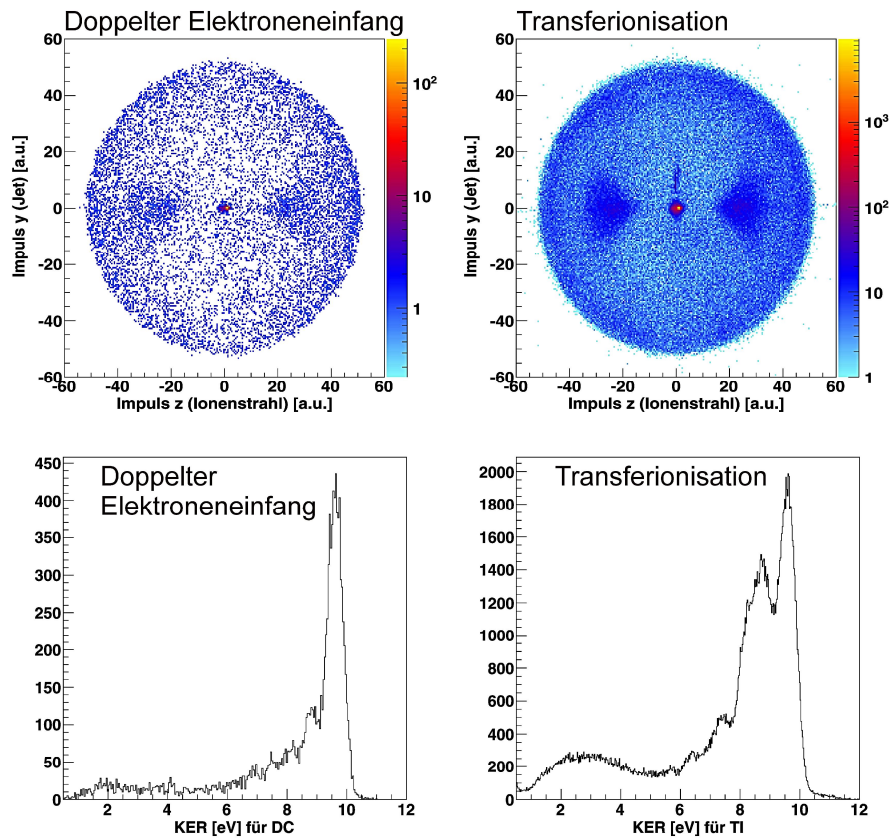


Abb. 5.7.: Impuls- und Energieverteilung im Schwerpunktsystem für den doppelten Elektroneneinfang und die Transferionisation. Um die Spektren zu plotten, wurde zu den Bedingungen der Abbildungen 5.5 und 5.6 eine Bedingung auf die Orts- bzw. Impulsverteilung des entsprechenden Projektils gesetzt. Wie sich erkennen lässt, gibt es in beiden Fällen vermehrt Ereignisse um die Projektillachse. Auch das scharfe Maximum bei 9.5 eV ist in beiden Fällen zu sehen. Das Maximum bei 8.5 eV ist allerdings nur im Fall der Transferionisation zu sehen.

Vergleicht man die KER-Verteilungen für die beiden Reaktionen, so zeigt sich zunächst, dass das Maximum bei 8.5 eV nur im Energiespektrum der Transferionisation zu sehen ist. Zudem

ist das breite Maximum zwischen 1 eV und 5 eV im KER-Spektrum des zweifachen Elektroneneinfangs nicht so ausgeprägt wie im entsprechenden Spektrum der Transferionisation. In den Impulsverteilungen wird deutlich, dass bei der Transferionisation mehr Ereignisse um die Projektalachse zu sehen sind als beim zweifachen Elektroneneinfang. In beiden Impuls- und Energiespektren lässt sich erkennen, dass die Ereignisanzahl für die Transferionisation generell größer ist als für den zweifachen Einfang.

Innerhalb der in Kapitel 2.3.3 beschriebenen Reflexionsnäherung, ergibt sich die KER-Verteilung eines Aufbruchs durch die Reflexion der Kernwellenfunktion an der repulsiven Kurve des Endzustands. Betrachtet man sich die strukturlose Kernwellenfunktion des Grundzustands des Heliumdimers, erscheint die hier gemessene KER-Verteilung ungewöhnlich. Außerdem würde man bei einem direkten Aufbruch des Grundzustands davon ausgehen, dass die KER-Verteilungen für die Transferionisation und den zweifachen Elektroneneinfang gleich aussehen. Da dies nicht der Fall ist und Anfangs- bzw. Endzustand durch die Messmethode bekannt ist, liegt es nahe, dass die verschiedenen Strukturen in Impuls- und Energieverteilungen des Schwerpunktsystems von verschiedenen Reaktionspfaden und damit verschiedenen Prozessen stammen. Im nächsten Abschnitt wird gezeigt, dass diese verschiedenen Prozessen eindeutig identifiziert werden können.

5.2.1. Die Identifikation der verschiedenen Prozesse

Wie bereits im vorigen Abschnitt erläutert, sehen die KER-Verteilungen für den zweifachen Elektroneneinfang und die Transferionisation unterschiedlich aus. Bei der Transferionisation wurde ein weiteres Elektron emittiert und auch nachgewiesen. Für dieses lässt sich ebenfalls der Impuls und die kinetische Energie berechnen. Diese Energie kann gegen den KER aufgetragen werden. Dieses Spektrum wird in Abbildung 5.8 gezeigt. Man erkennt eine diagonale Struktur, die ihren Schwerpunkt bei einem KER von etwa 8.5 eV besitzt, eine sehr schmale vertikale Linie bei einem KER von 9.5 eV und eine breite vertikale Verteilung zwischen 1 eV und 6 eV. Hieraus lässt sich zunächst schließen, dass die kinetische Energie des Elektrons bei den letztgenannten Verteilungen unabhängig vom KER ist. Bei der diagonalen Struktur dagegen muss zwischen den beiden Größen der Energieerhaltungssatz gelten, da aus dieser folgt:

$$E_e + KER = c \rightarrow E_e = -c KER \quad (5.17)$$

Dieser Zusammenhang ist typisch für den Interatomic Coulombic Decay (IC-Zerfall). Bei diesem Prozess wird Energie von einem Zentrum zum anderen transferiert, wodurch dort ein Elektron emittiert werden kann, selbst wenn die Zentren mehrere Angstrom auseinander liegen. Beim Heliumdimer läuft dieser wie folgt ab: Das Projektil stößt mit einem der atomaren Zentren zusammen, fängt dort das Elektron ein und regt zusätzlich das zweite Elektron an. Das angeregte Elektron relaxiert nach einer gewissen Zeit wieder in den Grundzustand. Die

frei gewordene Energie wird auf das zweite atomare Zentrum übertragen, wodurch es ionisiert wird. Es sind zwei Heliumionen entstanden, die sich aufgrund der Coulombkraft abstoßen.

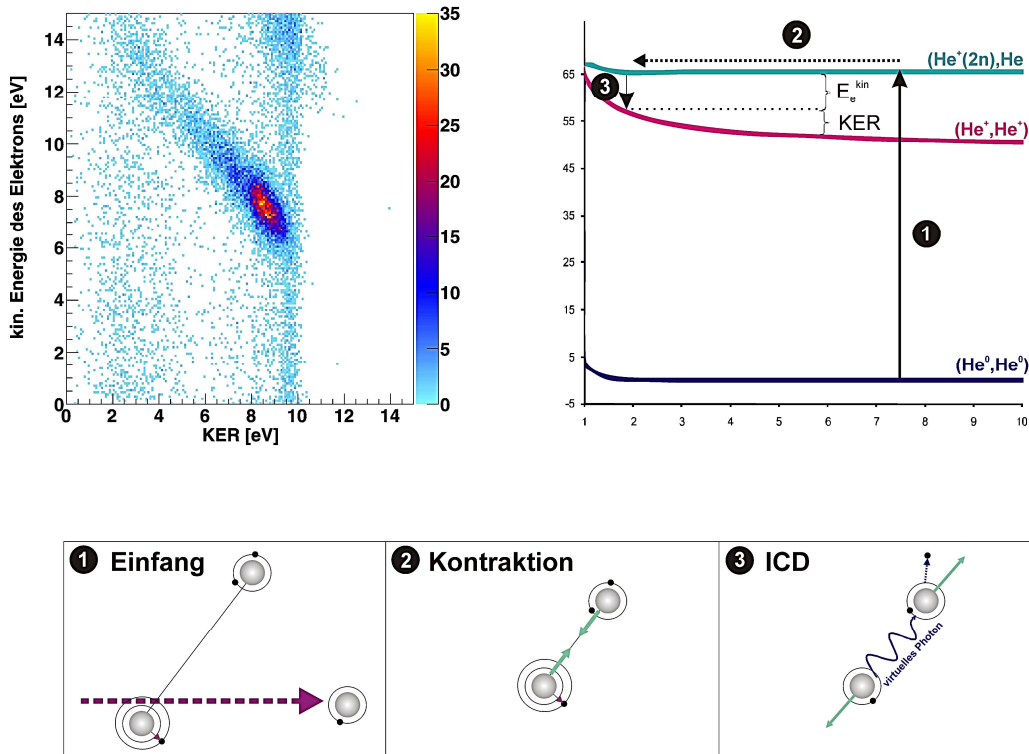


Abb. 5.8.: Oben links: Energieverteilung des IC-Prozesses. Die diagonale Struktur ergibt sich aus der Energieerhaltung, die bei diesem Prozess zwischen Elektron und Ionen gelten muss. Oben rechts: Ablauf des Prozesses im Korrelationsdiagramm. Das System wechselt vom Anfangszustand durch die Wechselwirkung mit dem Projektil in den Zustand mit dem Dissoziationslimit ((He⁺(2n), He⁰)). Das Dimerion beginnt zu kontrahieren. Bei einem Abstand von 2 Åzerfällt das Dimerion über einen IC-Zerfall. Die Ionen stoßen sich gegenseitig ab. Unten: dazugehörige schematische Darstellung des Prozesses.

Betrachtet man diesen Ablauf in einem Korrelationsdiagramm, so wechselt das System zu nächst in die Zustände, deren Dissoziationslimit (He⁺(2n), He⁰) ist. Von dort geht es dann in den Endzustand (He⁺, He⁺) über. Die Energie, die bei dem letzten Übergang frei wird, wird nicht nur auf das Elektron übertragen. Ein Teil der Energie geht auch in die Bewegung der beiden Kerne über. Diese Anteile variieren je nach Abstand der beiden Kerne. Die Summe der beiden Energien ist jedoch dadurch immer gleich, da sie der Energiedifferenz zwischen den Potenzialkurven (He⁺(2n), He⁰) und (He⁺, He⁰) entspricht. Die Anregungsenergie des verbleibenden Elektrons beträgt 40.8 eV, während sich die Bindungsenergie des Elektrons auf der Seite des neutralen Heliumatoms zu 24.6 eV ergibt. Daraus berechnet sich eine Energiedifferenz von 16.2 eV, die sich auf die kinetische Energie des emittierten Elektrons und dem

KER verteilt. Statistisch finden die Übergänge verstärkt in einem bestimmten Kernabstandsbereich statt, daher ergibt sich der Schwerpunkt der Verteilung zwischen 7 eV und 8.5 eV. Näheres folgt im Unterkapitel 5.4.

Das Maximum bei etwa 8 eV kann aufgrund der Energieerhaltung eindeutig dem IC-Zerfall zugeordnet werden. Aber wie entstehen die beiden anderen KER-Maxima? Wenn man mit der Reflexionsnäherung

$$KER[a.u.] = \frac{1}{R} \quad (5.18)$$

aus dem KER die Abstände berechnet (Abbildung 5.9), so erkennt man, dass das schmale Maximum bei 9.5 eV einem Abstand von 2.9 a.u. entspricht. Der kleinste Abstand der berechneten Abstandsverteilung des Grundzustands des Heliumdimers beträgt jedoch 5 a.u.. Der Zerfall, der zu einem KER von 9.5 eV führt, muss ebenfalls über einen Zwischenzustand verlaufen. Da dieser Prozess sowohl unter der Bedingung der Transferionisation als auch der Bedingung des zweifachen Elektroneneinfangs zu beobachten ist, muss hier das Dimer beide Elektronen durch die Reaktion mit dem Projektil verlieren. In Abbildung 5.9 sind die Polardarstellungen des Winkels zwischen Dimerachse und Projektilstrahlrichtung gezeigt. Die Winkelverteilung ist für die Transferionisation für einen KER größer 9.1 vollständig rotationsymmetrisch, genau wie beim IC-Zerfall auch. Dies lässt darauf schließen, dass das Projektil auch hier nur mit einem Zentrum des Dimers wechselwirkt. In einem klassischen Bild bedeutet das, dass das Dimer durch die Reaktion mit dem Projektil an einem Zentrum zwei Elektronen verliert. Aufgrund der Polarisierung ist das Potenzial zwischen den beiden Zentren attraktiver als der Grundzustand des Heliumdimers. Das führt auch hier dazu, dass die beiden Zentren sich anziehen und damit der Kernabstand kleiner wird. Bei etwa 2.9 a.u. wird zwischen den beiden Zentren ein Elektron ausgetauscht. Dabei wird ein Photon frei. Die beiden He⁺-Ionen stoßen sich daraufhin ab. Der letzte Schritt, der zum Zerfall führt, ist also ein 'radiative charge transfer' oder auch strahlender Ladungstransfer. Für den doppelten Elektroneneinfang ist die Winkelverteilung für den Ladungstransfer nicht vollständig rotationssymmetrisch. Hierauf wird in Abschnitt 5.5.2 näher eingegangen.

Setzt man auf das breite Maximum der KER-Verteilungen, das zwischen 1 eV und 5.5 eV liegt, eine Bedingung und schaut sich die Impulsverteilung der Fragmente an, so zeigen sich verstärkt Ereignisse um die Projektilachse. Das bedeutet, dass die Dimerachse zur Zeit des Aufbruchs in einem kleinen Winkel zur Projektilstrahlachse stand. Dies wird etwas deutlicher, wenn man den Winkel zwischen Projektilachse und Dimerachse berechnet und in einem Polarplot darstellt. Dies ist ebenfalls in Abbildung (5.9) dargestellt.

Es lässt sich klar eine Keulenstruktur erkennen, sowohl für den doppelten Elektroneneinfang wie für die Transferionisation. Eine solche Struktur ist nur mit einer zweifachen Wechselwirkung des Projektils zu erklären: Damit das Projektil mit den beiden atomaren Zentren des Dimers einzeln wechselwirken kann, muss das Projektil den beiden Zentren sehr nahe kommen können. Anschaulich geht das nur, wenn die Verbindungsachse zwischen den Zentren einen

kleinen Winkel um die Projektionstrahlachse aufweist. Die keulenartige Winkelverteilung stellt damit einen eindeutigen Beweis für einen Zwei-Zentren-Prozess dar.

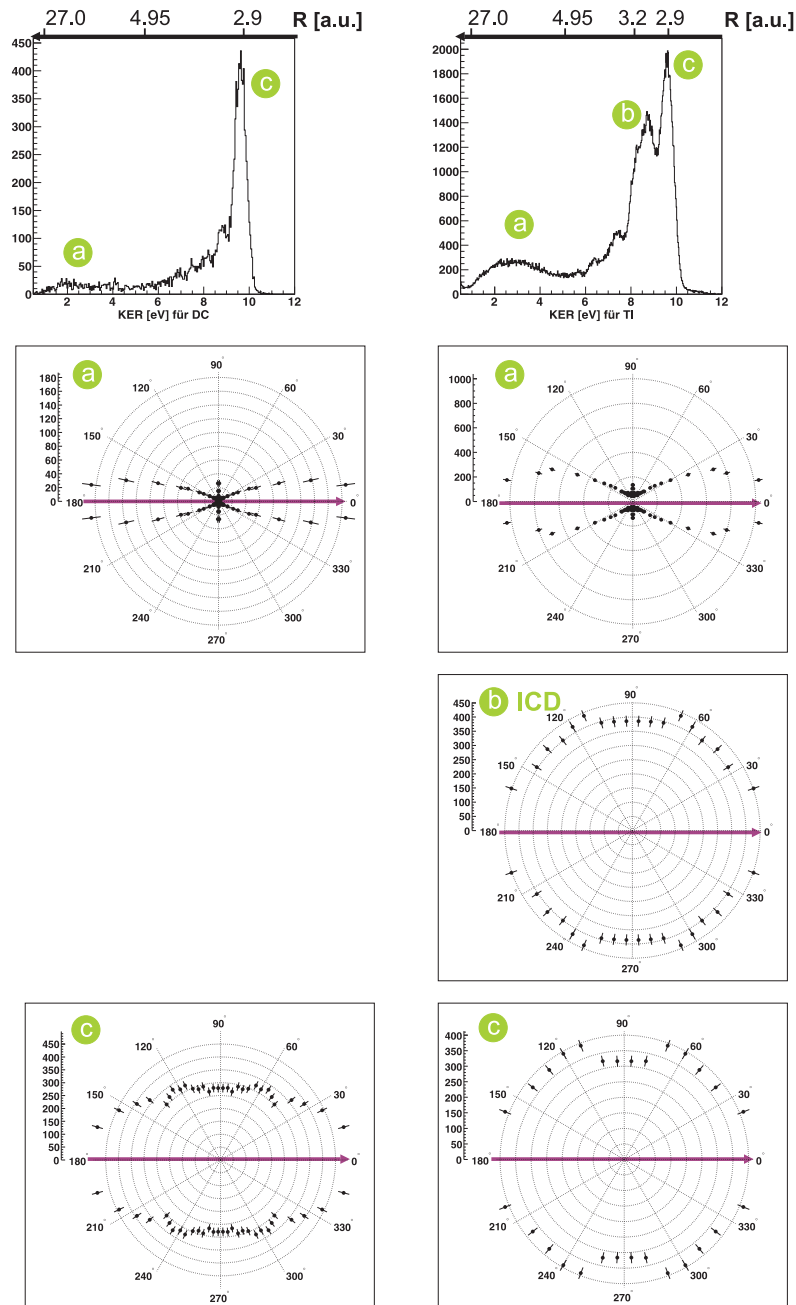


Abb. 5.9.: Polardarstellung des Winkels zwischen Dimerachse und Projektionstrahlachse für die verschiedenen Prozesse (a,b,c). Links: für den doppelten Elektroneneinfang. Rechts: Für die Transferionisation. Für KERs kleiner als 5.5 eV (a) lässt sich eine klare Keulenstruktur in den Winkelverteilungen erkennen. Dies ist nur durch einen Zwei-Zentren-Prozess erklärbar. Die KERs entsprechen in der Reflexionssnäherung bestimmten internuklearen Abständen zum Zeitpunkt des Aufbruchs.

Die Tatsache, dass dieser Prozess zu kleineren KERs führt, ist damit auch klar. Im Gegensatz zu den anderen beiden Prozessen geschehen die aufeinanderfolgenden Einfänge bzw. Ionisationen so schnell, dass sich die beiden Zentren des Dimers zwischen den beiden Stößen nicht aufeinander zu bewegen können. Damit besitzen sie zum Zeitpunkt der Coulombexplosion etwa den gleichen Abstand wie vor den beiden Stößen. Da die beiden atomaren Zentren im Grundzustand des Heliumdimers laut Berechnungen weiter als 5 a.u. entfernt sein sollen, muss der KER in der klassischen Abschätzung (Reflexionsnäherung) kleiner als 5.5 eV sein. Und genau das lässt sich in den Spektren beobachten.

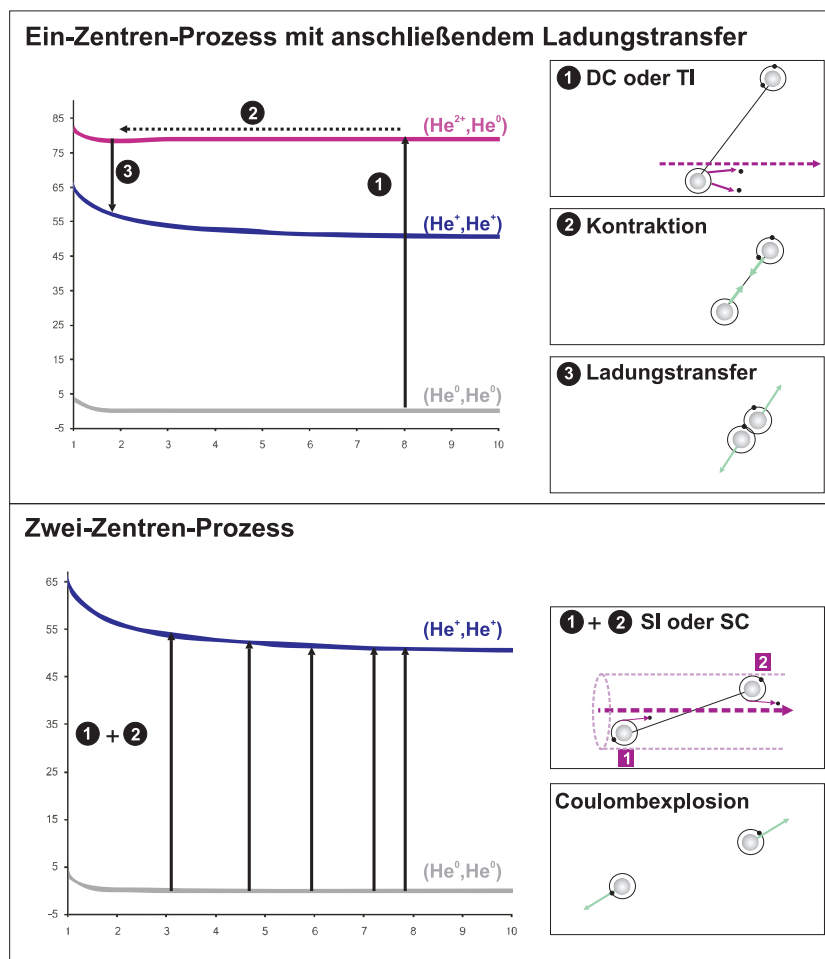


Abb. 5.10.: Ablauf des Ein- und Zwei-Zentren-Prozesses. Links: im Korrelationsdiagramm. Rechts: Beim Ein-Zentren-Prozess verliert das Dimer durch die Wechselwirkung mit dem Projektil (DC = 'Double Capture', TI = 'Transfer Ionization') zwei Elektronen. Danach kontrahiert das Dimerion. Bei einem Abstand von etwa 3 a.u. findet ein Ladungsaustausch statt. Beim Zwei-Zentren-DC-Prozess finden an jedem Zentrum des Dimers eine Einfangreaktion (SC) statt, bei der Zwei-Zentren-Transferionisation findet an einem Zentrum eine Ionisation (SI), am anderen Zentrum ein Einfang (SC) statt. Dies kann bei verschiedenen Abständen passieren (angedeutet durch mehrere Pfeile). Dadurch ergibt sich eine breite Abstands- bzw. KER-Verteilung für diesen Prozess.

In den folgenden Abschnitten werden die eben benannten Prozesse genauer analysiert und herausgestellt, welche neuen Erkenntnisse man aus ihnen gewinnen kann. Hierbei werden nicht nur die Rückstoßionenimpulse berücksichtigt, sondern für den Fall der Transferionisation auch die Impulse des gemessenen Elektrons diskutiert. Zunächst soll jedoch kurz darauf eingegangen werden, auf welche Weise die einzelnen Reaktionskanäle getrennt werden können.

5.3. Trennung der Reaktionskanäle

Im Gegensatz zum zweifachen Elektroneneinfang konnten bei der Transferionisation noch die Orte und Flugzeiten des frei gewordenen Elektrons gemessen werden, wodurch auch sein Impulsvektor bestimmt werden konnte. Dieses Elektron bietet die Möglichkeit eines zusätzlichen 'Fingerabdrucks', um einen Prozess eindeutig zu identifizieren. Im Fall des IC-Zerfalls zeigt die diagonale Struktur im zweidimensionalen Energiespektrum von Rückstoßionen und Elektron seine Existenz. Impuls und Energie der Elektronen sind daher eine wichtige Informationsquelle, um weitere grundlegende Kenntnisse über die Physik der Prozesse zu sammeln. In dieser Messung ergaben sich jedoch Schwierigkeiten, die Elektronenimpulse klar und eindeutig für jeden der drei identifizierten Prozesse (Zwei-Zentren-Prozess, Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem Ladungstransfer, Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem IC-Zerfall) darzustellen. Diese waren und sind zum Teil in messtechnischen Gegebenheiten, zum Teil aber auch in der Physik der Prozesse selbst begründet und sollen im Folgenden kurz diskutiert werden. Von der messtechnischen Seite ist zunächst anzumerken, dass das Magnetfeld etwas geringer gewählt wurde als es bei dem betrachteten Stoßsystem (He^{2+} , He^0 , $E_p = 150 \text{ keV/u}$) üblich ist. Der Grund bestand darin, eine bessere Auflösung für die Elektronen in den Ortsrichtungen zu erreichen. Durch die Wahl von nur etwa 9.6 Gauss wurden Elektronen bis etwa 60 eV vermessen. Durch die Kinematik der Ionisation können die Elektronen jedoch durchaus Energien bis zu etwa 85 eV. Aufgrund der Auflösung wurde daher auf einen Teil der Statistik (etwa 10-15 Prozent) verzichtet. Durch die beiden Gitter (Transmission: ca. 0.7), die am Anfang und Ende der Driftstrecke der Elektronenseite der Spektrometer montiert waren, wurde zudem nur zu etwa 50 Prozent der Ionen ein Elektron nachgewiesen. Beide Effekte sind in den Spektren links in Abbildung 5.11 zu erkennen.

Hinzu kam hier, dass ein Teil der Elektronenflugzeitverteilung in einem Knoten lag. Dadurch konnte für die Impulsberechnung nur etwa die Hälfte der Ereignisse, bei denen ein Elektron detektiert wurde, überhaupt verwendet werden. Zudem war der Ionenzweig sehr kurz gewählt, um ein möglichst geringes elektrisches Feld anzulegen und damit eine gute Impulsauflösung für die Rückstoßionen zu erreichen. Dies führte dazu, dass vermutlich nicht alle Elektronen, die einen Startimpuls zum Ionendetektor hin gerichtet besaßen, umgelenkt werden konnten, bevor sie den Ionendetektor erreichten. Auch hier wurden Ereignisse verloren. Insgesamt führ-

te das dazu, dass durch den Ionen- und den Projektildetektor etwa 190.000 Dimeraufbrüche für die Transferionisation nachgewiesen werden konnte, aber hierzu nur etwa 20.000 Elektronen detektiert wurden. Das entspricht etwa 10 Prozent. Dieses Ergebnis ist in Abbildung 5.11 mittig und rechts zu sehen. Hier lässt sich zudem erkennen, dass sich das Verhältnis der beiden Maxima bei 8.5 eV und 9.5 eV ändert. Dies liegt daran, dass für den Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem Ladungstransfer höhere Elektronenimpulse und damit auch höhere Elektronenenergien zu erwarten sind, die durch die Wahl des magnetischen Feldes nicht nachgewiesen werden konnten.

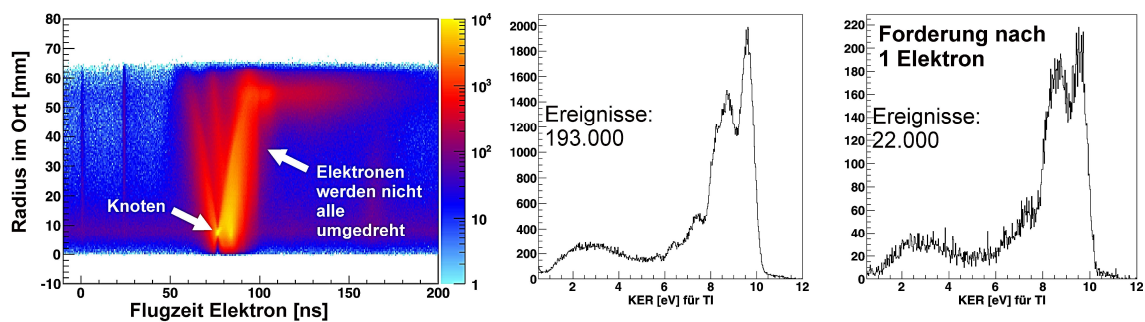


Abb. 5.11.: Nachweiseffizienz der Elektronen. Links: Elektronenflugzeit gegen den Radius im Ort des Elektrons. Man erkennt, dass ein Knoten, der aus der Gyrationbewegung der Elektronen resultiert, innerhalb der Flugzeitverteilung liegt. Dadurch kann nur ein Teil der Flugzeitverteilung zur Impulsberechnung genutzt werden. Mitte und Rechts: Kinetic Energy Release (KER) in eV für die Transferionisation. Für die Darstellung des Spektrums in der Mitte wurde eine Bedingung auf die Impulserhaltung der ionischen Fragmente und den Ort der He⁺-Projektion gesetzt. Für die Darstellung des Spektrums rechts wurde zusätzlich ein Elektron gefordert.

Wie im vorigen Abschnitt gezeigt wurde, führen die unterschiedlichen Prozesse zwar zu verschiedenen Maxima in der KER-Verteilung, doch liegen die Ereignisse des Ein-Zentren-Prozesses mit anschließendem ICD auf einer diagonalen Linie im zweidimensionalen Energiespektrum. Um die Elektronenimpulsspektren der einzelnen Prozesse darzustellen, würde man daher zunächst einen Schnitt entlang dieser Diagonalen zur Trennung der Prozesse nutzen. Es ergibt sich hierbei jedoch eine Schwierigkeit: Die diagonale Verteilung des IC-Zerfalls besitzt ein Maximum bei einem KER von etwa 8.5 eV, was aus Gründen der Energieerhaltung in einer Elektronenenergie von etwa 8 eV resultiert. Die ICD Elektronen liegen daher auf einer schmalen Kugelschale im Impulsraum bei etwa 0.75 a.u. (Abb. 5.12). Wenn nun die Impulsspektren der anderen beiden Prozesse so erzeugt werden, dass die Ereignisse des IC-Zerfalls durch die Bedingung auf die diagonale Struktur von den ursprünglichen Impulsspektren abgezogen werden, wird dadurch auch im Impulsraum der Elektronen geschnitten.

Es wäre daher von Vorteil, eine andere Größe zu finden, mit denen man die drei Prozesse für die Transferionisation trennen kann. Wie in Abschnitt 5.2.1 erläutert wurde, führt der Zwei-

Zentren-Prozess bezüglich der Ionenstrahlachse zu einer deutlich anderen Winkelverteilung der Dimerachse. Allerdings kann mit Hilfe dieses Winkels nicht zwischen dem Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem IC-Zerfall und dem Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem Ladungstransfer unterschieden werden.

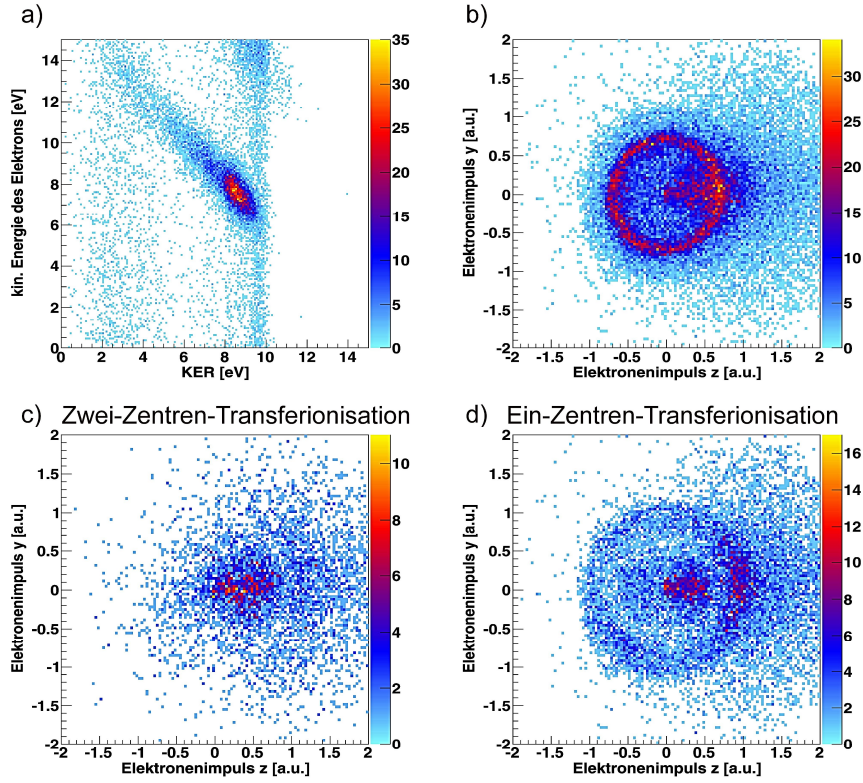


Abb. 5.12.: Darstellung der Elektronenimpulse für die einzelnen Prozesse. a) zweidimensionale Energieverteilung. Die Diagonale, auf der die Ereignisse des Ein-Zentren-Prozesses mit anschließendem IC-Zerfall liegen, hat ihren Schwerpunkt bei einer Elektronenenergie von etwa 8.5 eV. Um die Spektren c) und d) darzustellen, wurden die Ereignisse auf der Diagonalen von dem Spektrum abgezogen. b) Impulsverteilung der Elektronen in der (zy)-Ebene. Die Ereignisse des IC-Zerfalls müssen auf einer Kugelschale im Impulsraum liegen. In der zweidimensionalen Impulsverteilung deutet sich dies durch einen Ring an. c) und d) Elektronenimpulsverteilung in der (zy)-Ebene für die Ein-Zentren- und Zwei-Zentren-Transferionisation. Hier wurden die Ereignisse des IC-Zerfalls abgezogen. Es lässt sich dadurch ein deutlicher Schnitt im Impulsraum erkennen.

Eine weitere Möglichkeit zur Trennung der Prozesse stellt der Summenimpuls der Rückstoßionen in Strahlrichtung dar. Wie in Abschnitt 2.2 erläutert, hängt dieser Summenimpuls von Impuls- und Energieerhaltung ab. Es ergibt sich für einen Einfang plus Ionisation:

$$p_z^{sum} = -\frac{Q_c}{v_p} - \frac{m_e v_p}{2} + \frac{\epsilon + E_{bind}}{v_p} - \frac{m_e v_p}{2} + \frac{KER}{v_p} \left(+ \frac{E_\gamma}{v_p} \right) \quad (5.19)$$

Diese Formel gilt für den Zwei-Zentren-Prozess, den Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem

dem Ladungstransfer und den Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem IC-Zerfall. Bei letzterem muss der zweite Term $\frac{m_e v_p}{2}$ ebenfalls in die Rechnung miteinbezogen werden, auch wenn das Elektron nicht mit dem Projektil wechselwirkt, da er sich aus der Umrechnung der Elektronenenergie im Laborsystem in die entsprechende Energie im Projektilsystem ergibt. Beim Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem Ladungstransfer muss in der Energiebilanz zusätzlich die Energie des emittierten Photons E_γ berücksichtigt werden. In der vorliegenden Messung konnten die Elektronenenergie im Projektilsystem und der KER aus den Impulsen bestimmt werden, wodurch die jeweiligen Terme von dem gemessenen Summenimpuls abgezogen werden können. Dadurch lässt sich die Gleichung für den longitudinalen Summenimpuls vereinfachen:

$$p_z^{sum}(SC, I) = -\frac{Q_{SC, I}}{v_p} - m_e v_p \left(+\frac{E_\gamma}{v_p} \right) \quad (5.20)$$

Bei allen drei Prozessen befinden sich die vier Elektronen des Dimers im jeweiligen Grundzustand, so dass sich eine Bindungsenergie von 2 (-79.0) eV ergibt. Im Endzustand, wenn das Dimer zerfallen ist, sind in allen drei Fällen nur noch drei Elektronen jeweils mit (-54.4) eV gebunden. Dadurch ergibt sich für die Differenz der Bindungsenergien von 5.2 eV. Für den Fall des Ladungstrfers muss zum Vergleich mit den experimentell bestimmten Summenimpulsen der letzte Term, der die Photonenenergie enthält, addiert werden. Wenn das Elektron von einem zum anderen Zentrum des Dimerions wechselt, werden 29.8 eV frei. Dies teilt sich auf KER und Photonenenergie auf. Da der KER für diesen Prozess im Mittel 9.5 eV beträgt, wird eine Photonenenergie von 20.3 eV angenommen. Die berechneten Werte sind in Tabelle 5.1 zusammengefasst.

Prozess	$Q_c - E_{Bind}$ [eV]	Q [a.u.]	p_z^{sum} [a.u.]
Ein-Zentren-TI plus Ladungstransfer	$2(-79.0) - 3*(-54.4)$	0.08	-2.2
Zwei-Zentren-TI	$2(-79.0) - 3*(-54.4)$	0.08	-2.5
SC plus ICD	$2(-79.0) - 3*(-54.4)$	0.08	-2.5

Tab. 5.1.

Wie sich aus den Werten erkennen lässt, sollten alle drei Prozesse etwa den gleichen Summenimpuls besitzen. In den Ergebnissen zeigt sich jedoch, dass für beide Ein-Zentren-Prozesse das Maximum gegenüber dem berechneten Wert verschoben ist. Das Maximum des Summenimpulses liegt für den Prozess mit Ladungstransfer bei (-1.3) a.u. und für den Prozess mit IC-Zerfall bei etwa (-1.8) a.u., wodurch der Abstand zwischen beiden Maxima etwas vergrößert wird. Aufgrund der schlechten Auflösung und der geringen Statistik reicht dies aber dennoch nicht aus, um die Prozesse zu trennen. Daher wird sich bei der Darstellung der Elek-

tronenimpulsverteilungen des jeweiligen Prozesses darauf beschränkt, eine Bedingung auf das entsprechende Maximum in der KER-Verteilung zu setzen.

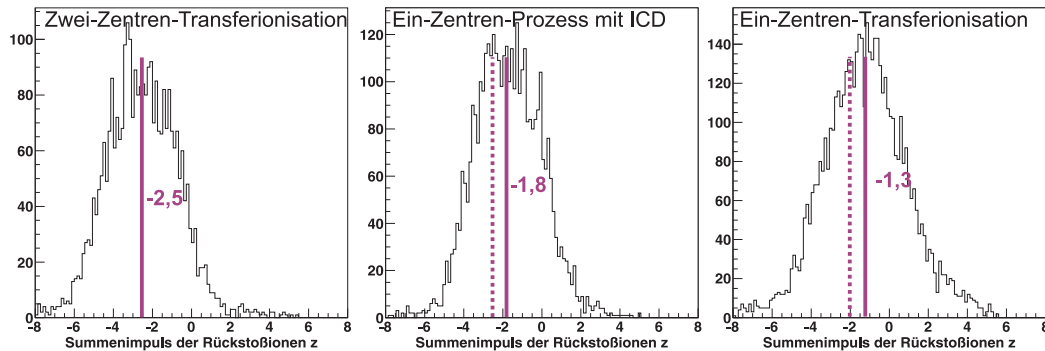


Abb. 5.13.: Longitudinalsummenimpulse der Rückstoßionen für die einzelnen Prozesse. Die gestrichelte Linie zeigt den errechneten Wert an, bei dem das Maximum liegen sollte. Für die Ein-Zentren-Prozesse (mitte, rechts) stimmt das gemessene Maximum nicht mit dem berechneten Wert überein. Aufgrund der Auflösung reicht dieser Abstand dennoch nicht aus, die Prozesse über den longitudinalen Summenimpulse zu trennen.

5.4. Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem ICD

Der Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem IC-Zerfall unterscheidet sich von den anderen beiden Prozessen der Transferionisation klar, da das emittierte Elektron nicht mit dem Projektil in Wechselwirkung getreten ist, sondern erst nach einem bestimmten Zeitabstand nach dem Stoß emittiert wird. Seitens des Ionenstoßes handelt es sich dementsprechend lediglich um einen Einfang (mit Anregung), nicht um einen Einfang und Ionisation wie bei den anderen beiden Prozessen. Der IC-Zerfall ist, wie diese Arbeit bestätigt, ein Zerfall, der sowohl durch Photonen als auch Teilchen induziert werden kann. Er ist daher typisch für Van-der-Waals-gebundene Systeme. Der folgende Abschnitt ist daher so gegliedert, dass zunächst kurz die Größen betrachtet werden, die sich auf die Kinematik des Ionenstoßes beziehen (Winkel zwischen Projektil und Rückstoßionen, Impulsübertrag). Danach werden Parameter besprochen, die sich als Maß für innere Strukturen und Abläufe eignen (KER, Elektronenimpulse, -winkel), wobei beide Teile nicht vollständig unabhängig voneinander betrachtet werden können.

Die Kinematik eines Ein-Zentren-Prozesses zwischen Dimer und Projektil sollte sich per Definition nicht der eines einfachen Ion-Atom-Stoßes unterscheiden. Man erwartet daher, dass die Richtung der Dimerachse bei der Wechselwirkung des Projektils keine Vorzugsrichtung besitzt. Wie bereits in Abschnitt 5.2.1 kurz erläutert wurde, ist der Winkel zwischen Dime-

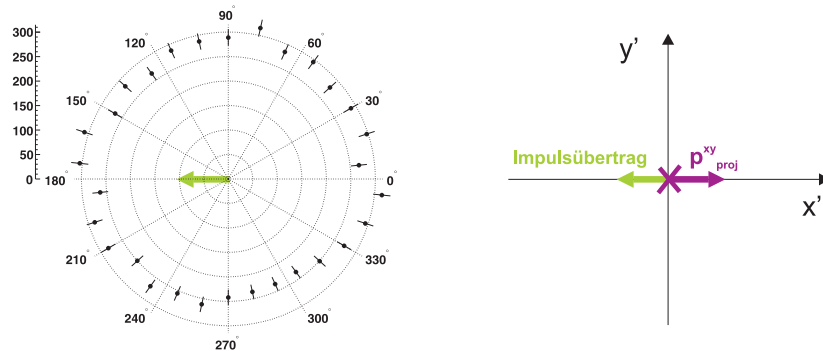
achse und Ionenstrahlachse tatsächlich rotationssymmetrisch (siehe auch Abbildung 5.14). Betrachtet man sich den Winkel transversal zum Ionenstrahl und dreht die Molekülachse stets so, dass der Impuls des Projektils in dieser Ebene nach rechts zeigt (Abbildung 5.14a), so lässt sich auch hier eine Rotationssymmetrie beobachten. Interessant ist es allerdings nun, sich die Ausrichtung der Molekülachse zum kompletten Impulsübertrag zu betrachten. Dieser wurde aus dem Summenimpuls auf den Schwerpunkt des Dimers berechnet. Mittels des Skalarprodukts kann nun der Winkel bestimmt werden:

$$\cos \theta_p = \frac{\vec{p}_M \vec{p}_p}{|\vec{p}_M| |\vec{p}_p|} \quad (5.21)$$

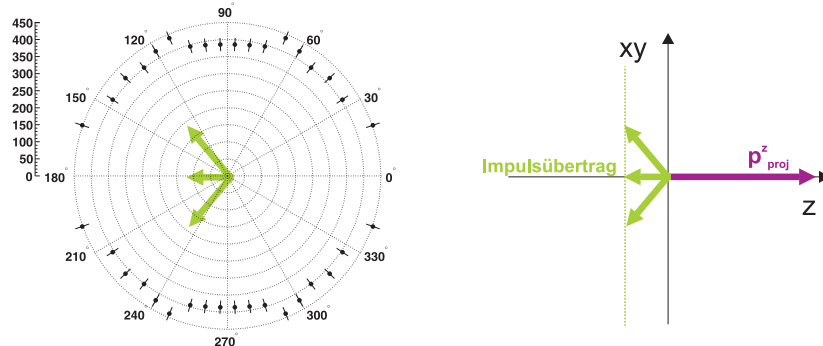
Die Winkelverteilung ist in Abbildung 5.14 unten gezeigt. Man erkennt hier eine klare Ausrichtung der Dimerachse gegenüber dem Projektilimpuls. Eine mögliche Erklärung für diesen Effekt ist, dass der Impulsübertrag bzw. Rückstoß auf eines der atomaren Zentren des Dimers dazu führt, dass es sich auf das zweite Zentrum zu- oder von ihm wegbewegt.

Nach Berechnungen sollten IC-Zerfälle in einem Heliumdimerion bis zu einem Abstand von 20 a.u. dominant gegenüber dem strahlenden Zerfall und daher bis zu einem Abstand von etwa 40 a.u. noch zu beobachten sein. Wenn man den IC-Zerfall in einem klassischen Bild betrachtet, so schrumpft das Dimerion aufgrund des attraktiven Potentials nach der Wechselwirkung mit dem Projektil und zerfällt schließlich bei einem Abstand von etwa 3 a.u. Bis 40 a.u. scheint das Potenzial zwischen den beiden Zentren steil genug zu sein, dass das Dimerion zumindest mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit schnell genug kontrahieren kann, so dass der Abstand von 3 a.u. erreicht wird, bevor ein strahlender Zerfall stattfinden kann. Wenn nun aber eines der atomaren Zentren einen Impulsübertrag erhält, kann sich diese Situation ändern. Zeigt der Impulsübertrag nämlich in Richtung des zweiten Zentrums, so können die Dimerionen schneller kontrahieren, so dass auch Dimerionen, deren Abstand ursprünglich größer als 40 a.u. war, durch einen ICD zerfallen können. Umgekehrt kann ein Impulsübertrag entgegengesetzt zum Schwerpunkt dazu führen, dass die beiden Zentren auseinander getrieben werden. Betrachtet man sich die Potenzialkurve des Dimerions ($\text{He}^+(2n)$, He^0), das durch die Wechselwirkung mit dem Projektil entsteht, so zeigt sich, dass ihre Steigung bei 40 a.u. etwa $1 \frac{\mu\text{eV}}{\text{a.u.}}$ und die komplette Energiedifferenz zum Dissoziationslimit etwa $10 \mu\text{eV}$ beträgt. Ein Impulsübertrag von 0.1 a.u. auf ein Atom des Dimers entspricht jedoch bereits einer kinetischen Energie von etwa $18.5 \mu\text{eV}$. Dementsprechend würden alle Dimerionen mit einem größeren Abstand zum Schwerpunkt hin beschleunigt werden. Ob schließlich ein IC-Zerfall stattfindet, hängt jedoch davon ab, wie schnell die entsprechenden Abstände erreicht werden. Ein Impulsübertrag von 0.1 a.u. resultiert in einer Relativgeschwindigkeit von $0.4 \frac{\text{a.u.}}{\text{ps}}$. Vergleicht man dies mit der Zerfallszeit des strahlenden Übergangs ($\text{He}^+(2p)$: 100 ps, $\text{He}^+(2s)$: 2ms), kann allein mit diesem Anfangsimpuls in der Zeit eine Distanz von 40 a.u. zurückgelegt werden.

a) Ionenstrahl verläuft in die Ebene, das Projektil fliegt aber immer nach rechts



b) Ionenstrahl verläuft von links nach rechts



c) Molekülsystem

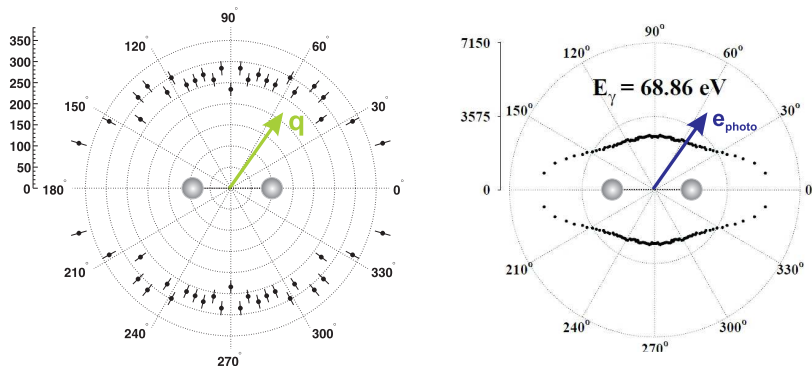


Abb. 5.14.: Winkel der Molekülachse für den IC-Zerfall. a) transversal zur Strahlrichtung. Die Impulse der Rückstoßionen wurden dabei so gedreht, dass der Impuls des Projektils immer nach rechts zeigt. Es lässt sich eine leichte Ausschmierung erkennen. Dies ist durch einen Rückstoß zu erklären. b) zur Strahlrichtung. Die Verteilung ist rotationssymmetrisch. Der Impulsübertrag des Projektils zeigt aufgrund der Kinematik des Ion-Atom-Stoßes immer nach hinten, allerdings mit unterschiedlichen Winkeln zur Strahlachse. c) Rechts: Richtung des Impulsübertrags bezüglich der Molekülsystem beim ICD. Links: Emissionsrichtung des Photoelektrons im Molekülsystem beim ICD. Die Daten stammen von Havermeier et al. [Hav10a]. Der Impulsübertrag wurde aus den Summenimpulsen der Rückstoßionen ermittelt $\vec{q} = (p_{sum}^x, p_{sum}^y, p_{sum}^z)$.

Der umgekehrte Effekt, nämlich dass die beiden Zentren durch einen Impulsübertrag in entgegengesetzte Richtung beschleunigt werden, ist bei einem angenommenen Impulsübertrag von

0.1 a.u. bei Abständen von etwa 35 a.u. und bei einem Impulsübertrag von 0.5 a.u. bei etwa 20 a.u. zu erwarten. Effektiv werden jedoch durch Impulsübertrag in Richtung des Schwerpunktes mehr Ereignisse gewonnen als durch den einen entgegengesetzten Übertrag verloren gehen.

Dieser so genannte Recoil-Effekt wurde in einigen Photoionisationsexperimenten beobachtet [Kre09], wo der Rückstoß vom Photoelektron ausgeübt wurde. Auch Havermeier et al. [Hav10a] konnten einen sehr deutlichen Recoil-Effekt beim IC-Zerfall des Heliumdimers nach einer Photoionisation beobachten (Abbildung 5.14).

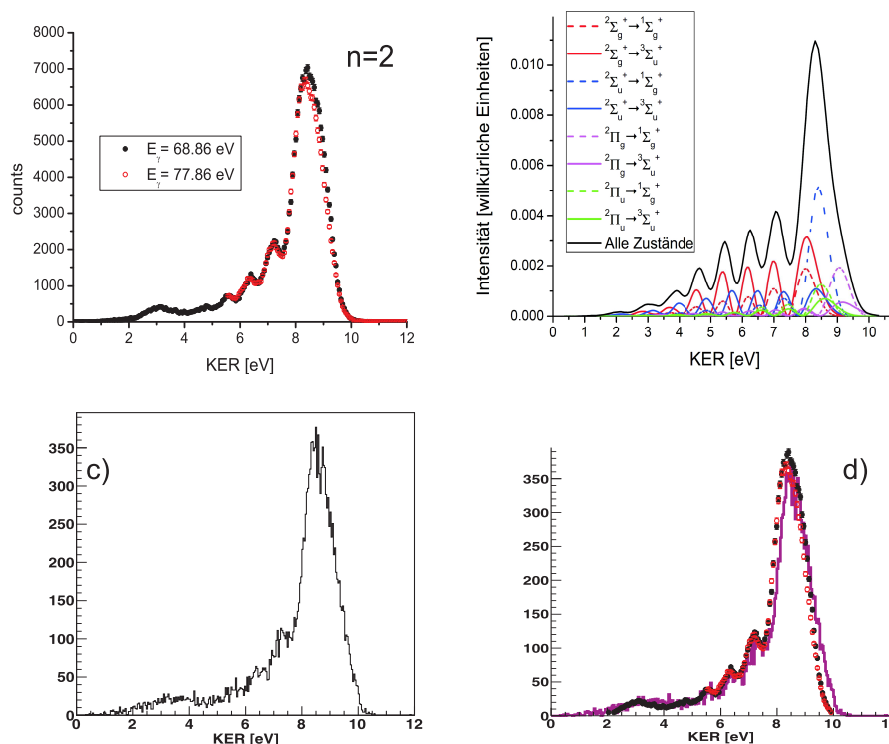


Abb. 5.15.: KER-Verteilung beim ICD. a) die gemessene KER-Verteilung aus dem Photoionisationsexperiment von Havermeier et al. [Hav10c] b) die hierzu berechnete KER-Verteilung. c) gemessenen KER-Verteilung des hier beschriebenen Experiments. d) Vergleich der KER-Verteilungen aus Ionenstoß und Photoionisation.

Ein Parameter, der etwas über die inneren Strukturen bzw. Prozesse aussagt, ist die Energie im Schwerpunktsystem (KER). In Abbildung 5.15 ist ihre Verteilung dargestellt, wie sie sich aus den Ergebnissen dieser Messung bestimmen lässt. Es deuten sich Strukturen an, die wie in Kapitel 2.3.4 beschrieben von Vibrationszuständen des Dimerions ($\text{He}^+(2n)$, He^0) stammen. Zum Vergleich sind in Abbildung 5.15 oben auch die Ergebnisse aus dem Photoionisationsexperiment von Havermeier et al. [Hav10c] gezeigt, sowie die dazugehörigen quantenmechanischen Rechnungen. Letztere machen deutlich, wie sich die Strukturen im KER durch die

besetzten Vibrationszustände des Dimerions zusammensetzen. Die einzelnen Kurven dieses Spektrums sind mit der entsprechenden Besetzungswahrscheinlichkeit, die sich für die Photoionisation mit Anregung ergeben, gewichtet.

Ein direkter Vergleich zwischen den Ergebnissen dieser Arbeit und denen von Haveremeier et al. zeigt, dass die Maxima bei kleineren KERs (< 7.5 eV) nicht so ausgeprägt sind wie bei den Ergebnissen des Photoionisationsexperiments, was vermutlich statistische Ursachen hat. Allerdings ist auch das Hauptmaximum der KER-Verteilung dieser Messung leicht zu größeren Werten verschoben (ca. 0.3 eV). Eine Ursache hierfür könnte sein, dass durch den Ionenstoß andere Zustände populiert werden als durch eine Photoionisation. Im Bild gut separierter Atome kann das zweite Elektron an dem atomaren Zentrum, an dem die Wechselwirkung stattfindet, in einen 2s- oder auch 2p-Zustand angeregt werden. Dabei können Σ -Molekülorbitale sowohl von s- als auch p-Atomorbitalen gebildet werden, während Π -Molekülorbitale nur durch p-Atomorbitale entstehen können. In der Photoionisationsmessung von Havermeier et al. betrug das Verhältnis von einer Anregung des zweiten Elektrons in einen 2p-Atomorbital zu einer Anregung in den 2s-Zustand etwa 2.3. Für die vorliegende Messung gibt es Rechnungen, die ein Verhältnis der Wirkungsquerschnitte von 10 zu 1 vorhersagen [Muk73]. Für die vorliegende Messung würde man daher in der Tendenz eine höheren Besetzungswahrscheinlichkeit der Π -Molekülorbitale vorhersagen. Schaut man sich die quantenmechanischen Rechnungen an, so trägt der Zustandsübergang von ${}^2\Pi_g$ in den Endzustand zu größeren KERs bei. Dies könnte die Verschiebung erklären.

Des Weiteren konnte beim ICD nach einer Photoionisation eine starke KER-Abhängigkeit der Winkelverteilung des Photoelektrons festgestellt werden. Hierbei wurde der Winkel des Photoelektrons zur Polarisationsrichtung für verschiedene KER-Bereiche dargestellt. Die Form dieser Winkelverteilungen änderte sich sehr stark. Zudem konnte ein Unterschied in den Spektren beobachtet werden für die Fälle, dass die Dimerachse parallel bzw. senkrecht zum Polarisationsvektor stand [Hav10d]. Die Statistik dieser vorliegenden Messung ist leider nicht ausreichend, um für verschiedene KER-Bereiche Winkelverteilungen zu plotten. Zudem ist auch die Frage, ob sich dieser Effekt in einem Ionenstoß auch in dieser Weise äußern würde: In einer Photoionisation wird durch das Photon ein fester Drehimpuls von einem \hbar im System deponiert. Die Winkelverteilung des Elektrons ist ein Resultat der Drehimpulserhaltung des gesamten Systems (Dimerion, Elektron und Photon). Es wird daher in diesem Fall einen Unterschied machen, ob das Elektron parallel oder senkrecht zum Polarisationsvektor emittiert wird, da die Projektion des Drehimpulses auf die Dimerachse in beiden Fällen unterschiedlich ist. In dem vorliegenden Experiment wird ein Elektron mit einer sehr großen Wahrscheinlichkeit in den Grundzustand eingefangen, während das verbleibende Elektron in einen 2p-Zustand angeregt [Muk73] wird. Hier wird zwar im elektronischen Zustand auch nur ein Drehimpuls von \hbar 'gespeichert'. Allerdings kann das Projektil beim Stoß jeden Drehimpuls auf die Dimerachse übertragen. Dadurch besitzt der Gesamtdrehimpuls, der auf das System

übertragen wird, keinen festen Wert.

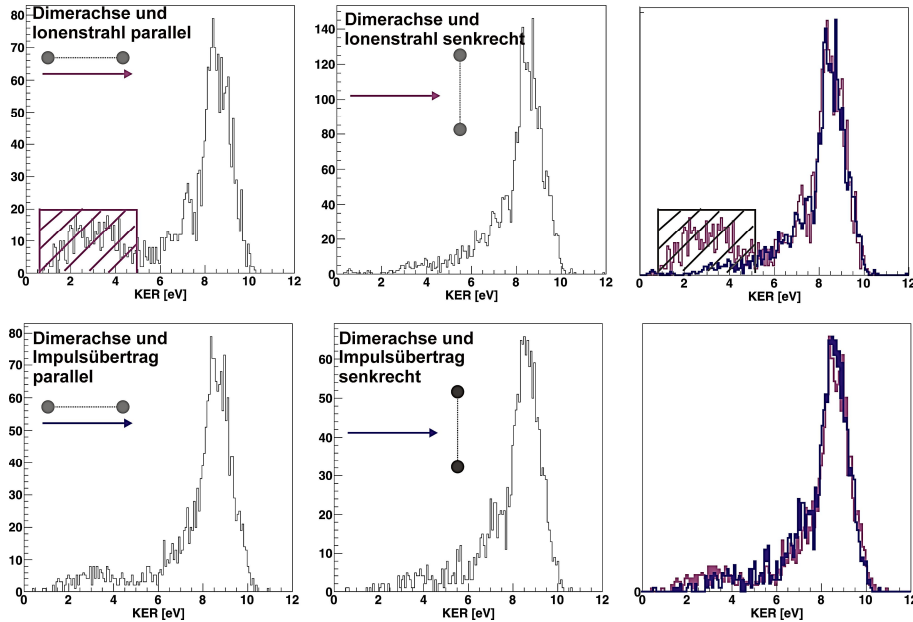


Abb. 5.16.: KER-Verteilung für verschiedene Bedingungen auf Winkel zwischen Dimerachse und Strahlrichtung (Winkel: $\pm 30^\circ$). Der Untergrund bei einem KER kleiner 5.5 eV stammt vom Zwei-Stufen-Prozess, der bei diesen Winkeln sehr dominant ist. Links: Dimerachse und Ionenstrahl stehen parallel zueinander (Winkel: $\pm 20^\circ$). Mitte: Dimerachse steht senkrecht zum Ionenstrahl. Rechts: Direkter Vergleich zwischen den beiden Ergebnissen.

In Abbildung 5.16 oben ist die KER-Verteilung des IC-Zerfalls für verschiedene Winkel zwischen Dimer- und Ionenstrahlachse dargestellt, während in der Abbildung unten die KER-Verteilung mit der Bedingung auf verschiedenen Winkeln zum Impulsübertrag gezeigt ist. Links ist der Fall zu sehen, dass die Dimerachse parallel zur Ionenstrahlachse bzw. zum Impulsübertrag stand. Rechts ist die Bedingung darauf gesetzt worden, dass sie senkrecht zur Ionenstrahlrichtung stand. In beiden Fällen ist kein Unterschied zu beobachten. Es ließ sich hier also keine Abhängigkeit der KER-Verteilung von Winkel der Dimerachse zur Ionenstrahlachse feststellen.

5.4.1. Elektronenimpulse beim ICD

Wie bereits erwähnt, vergeht zwischen der Wechselwirkung mit dem Projektil und dem IC-Zerfall eine gewisse Zeit. Zwischen Projektil und Elektron ist daer kein Vorzugswinkel zu erwarten. Dies wird durch die Winkelverteilungen in Abbildung 5.17 a) und Abbildung 5.17 b) bestätigt. Abbildung 5.17 c) zeigt den Zwischenwinkel von Dimerachse und Emission-

richtung des Elektrons in der transversalen Ebene zum Ionenstrahl. Auch hier erkennt man zunächst eine Rotationssymmetrie. Das Problem bei dieser Darstellung ist jedoch, dass über alle Stellungen der Molekülachse zur Ionenstrahlachse integriert wurde.

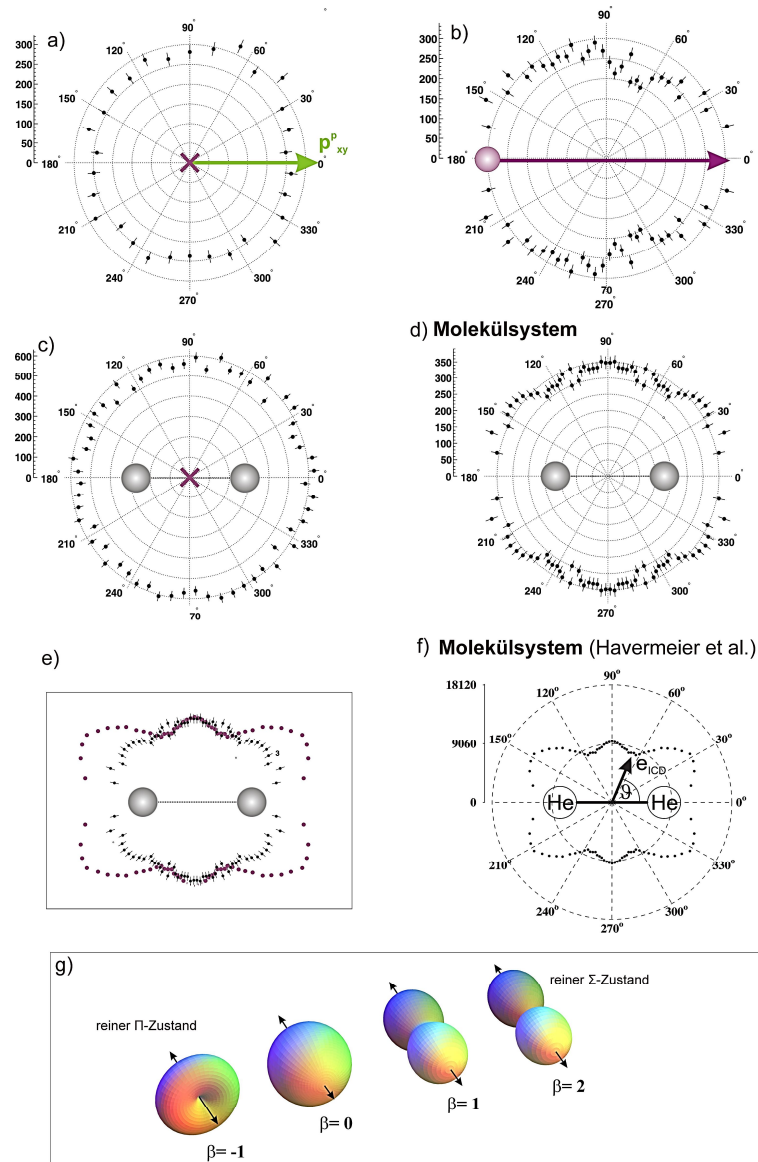


Abb. 5.17.: Abhängigkeit der Emissionsrichtung des ICD-Elektrons. a) + b) in Abhängigkeit des Projektils. c) + d) in Abhängigkeit der Dimerachse. d) Die Emissionsrichtung ist komplett im Molekülsystem dargestellt. f) Daten von Havermeier et al. [Hav10d]. e) direkter Vergleich zwischen beiden Ergebnissen aus d und f. g) Elektronenwinkelverteilung bei einer Photoionisation für verschiedene Anisotropieparameter β .

Sinnvoller ist es, die Emissionsrichtung des Elektrons komplett im Molekülsystem darzustellen.

Dies erreicht man wieder mittels des Skalarproduktes der beiden Impulsvektoren:

$$\cos\theta_e = \frac{\vec{p}_M \vec{p}_e}{|\vec{p}_M| |\vec{p}_e|} \quad (5.22)$$

Die entsprechende Winkelverteilung ist in Abbildung 5.17 d) gezeigt. Es lässt sich eine leichte Verbreiterung in Richtung der Molekülachse erkennen. Das bedeutet, dass das Elektron, das beim IC-Zerfall frei wird, bevorzugt in Richtung der Molekülachse emittiert wird.

Das ist ein typisches Verhalten, das bereits beim IC-Zerfall an Neondimeren beobachtet wurde [Jah07]. Auch in den Photoionisationsmessungen von Havermeier et al. [Hav10d] zeigte sich in den entsprechenden Winkelverteilungen des ICD-Elektrons dieser Effekt (5.17 f)). Vergleicht man jedoch die Ergebnisse dieses Experiments mit den Resultaten der vorliegenden Messung, so sind durchaus Unterschiede zu erkennen. Die Winkelverteilung des Photoionisationsexperiments ist bezüglich der Dimerachse viel breiter. Der Grund hierfür ist die unterschiedliche Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten Elektrons, die sich jeweils aus der Photoionisation bzw. aus dem betrachteten Ionenstoß ergibt. Wenn die Anregung in den p-Zustand wahrscheinlicher ist, wie das nach Berechnungen in diesem Experiment der Fall sein soll, sind reine Σ -Zustände ($\beta=2$), die aus atomaren s-Zuständen gebildet werden, unwahrscheinlicher. Wenn sich die Winkelverteilung des ICD-Elektrons genau wie die des Photoelektrons aus der Drehimpulserhaltung des Systems ergibt (virtuelles Photon), so fehlt in der ICD-Elektronenwinkelverteilung dieser Arbeit die typische Dipolstruktur, die aus den reinen Σ -Zuständen folgt (siehe (5.17 g)). Dadurch wirkt die Winkelverteilung insgesamt runder.

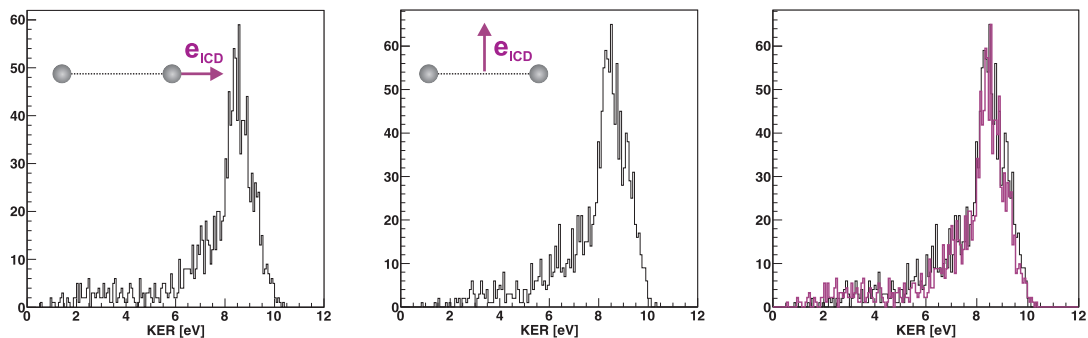


Abb. 5.18.: KER-Verteilungen für verschiedene Winkel des ICD-Elektrons zur Dimerachse. Links: ICD-Elektron verlässt parallel zur Dimerachse das Dimerion. Mitte: Der Impuls des Elektrons steht senkrecht auf der Dimerachse. Rechts: Direkter Vergleich der beiden Verteilungen.

Die Frage, die sich nun stellt, ist, ob es einen Zusammenhang zwischen dem KER und der Winkelverteilung des ICD-Elektrons gibt. Im Fall der Photoionisation konnte eine solche Abhängigkeit beobachtet werden. Aufgrund der Statistik wurde sich in diesem Messung darauf

beschränkt, eine Bedingung auf den Winkel zwischen ICD-Elektron und Dimerachse zu setzen und sich die KER-Verteilung anzuschauen. Dies ist in Abbildung 5.18 zu sehen. Die Bedingung wurde so gewählt, dass einmal entlang der Dimerachse und einmal transversal geschnitten wurde. Es lässt sich jedoch kein signifikanter Unterschied erkennen. Es ist allerdings auch fraglich, ob ein großer Unterschied zu erwarten ist, da die Maxima einiger Übergänge aus Π - und Σ -Zuständen teilweise an der gleichen Stelle im KER-Spektrum liegen.

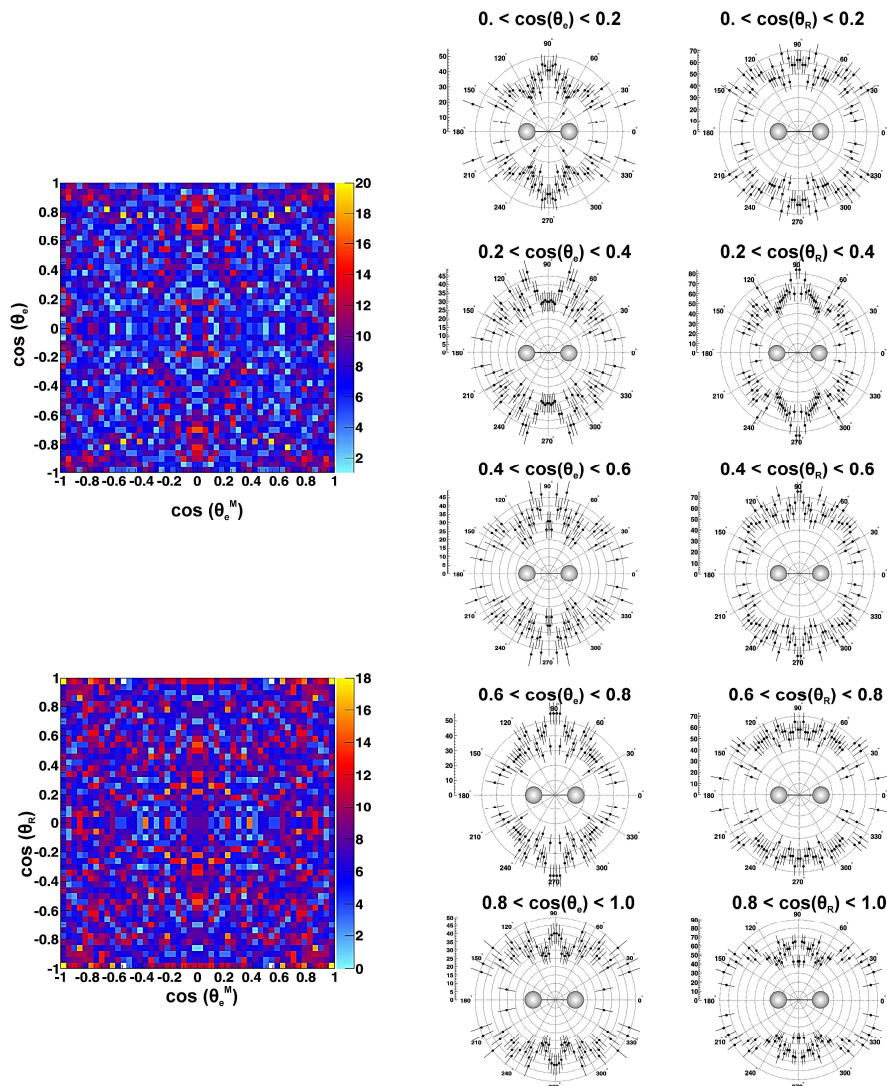


Abb. 5.19.: Links oben: Emissionswinkel des Elektrons im Molekülsystem ($\cos(\theta_e^M)$) gegen den Emissionwinkel im Laborsystem ($\cos(\theta_e)$). Links unten: Emissionswinkel des Elektrons im Molekülsystem ($\cos(\theta_e^M)$) gegen den Winkel der Dimerachse im Laborsystem ($\cos(\theta_R)$). Die Verteilungen sind für $\cos(\theta_R) < 0$. bzw. $\cos(\theta_e) < 0$. sowie $\cos(\theta_e^M) < 0$. gespiegelt worden. Mitte und rechts: Emissionswinkel des ICD-Elektrons im Molekülsystem für verschiedenen Winkel der Dimerachse bzw. des Elektronenimpulses im Laborsystem.

Interessant ist aber nun, den Emissionswinkel im Molekülsystem gegen einen im Laborsystem aufzutragen. Es zeigt sich hierbei, dass es einen Zusammenhang zwischen dem Referenzwinkel von Elektron und Dimerachse und dem Winkel zur Projektilachse besteht. In Abbildung 5.19 ist diese Abhängigkeit in einem zweidimensionalen Winkelspektrum dargestellt. Auf der x-Achse ist der Relativwinkel zwischen Dimerachse und ICD-Elektron dargestellt, während auf der y-Achse der Winkel des Elektrons zur Ionenstrahlachse (links oben) bzw. der Winkel der Dimerachse zur Ionenstrahlachse (links unten) aufgetragen ist. In beiden Fällen sieht man eine Veränderung des Zwischenwinkels von Elektron und Dimerachse, wenn der Winkel zur Ionenstrahlachse sich ändert. Dies ist in den Winkelverteilungen rechts noch einmal explizit verdeutlicht. Es handelt sich hierbei um die Emissionrichtung des Elektrons im Molekülsystem. Bei jedem dieser Spektren wurde eine andere Bedingung auf den Winkel des Elektrons zur Ionenstrahlachse gesetzt.

Man erkennt deutlich, dass sich die Form der Winkelverteilungen je nach Bedingung ändert. Eine Erklärung für dieses Verhalten könnte sein, dass es bei der Wechselwirkung mit dem Projektilion vom Winkel zwischen Projektilion und Dimerachse abhängt, in welchen molekularen Zustand das Dimer wechselt. Bei einer Wechselwirkung des Projektilions mit einem Atom ergibt sich eine Vorzugsrichtung durch die Verbindungslinie der beiden Kerne während des Stoßes. Bei einem atomaren Zentrum eines Dimer existiert bereits durch das zweite Atom eine Vorzugsrichtung. In einem vereinfachten Bild wird diese Vorzugsrichtung jedoch aufgehoben, wenn das Projektil sich dem atomaren Zentrum nähert. Beim Stoß kommt es dann zu einer Anregung in einen atomaren Zustand, die sich in ihrer räumlichen Struktur eher aus der Verbindungslinie zum Projektil ergibt. Entfernt sich das Projektil wieder, so gewinnt die Verbindungslinie zum Bindungspartner wieder an Bedeutung und die räumliche Struktur der Orbitale wird wieder neu definiert. Die Projektion des Drehimpulses auf die Dimerachse ändert sich damit, was durch die Kernbewegung ausgeglichen wird. Diese Projektion wird dementsprechend vom Winkel der Dimerachse zur Ausbreitungsrichtung des Projektilions abhängen. Die Frage, sie sich dabei jedoch stellt, ist, warum diese Information erhalten bleibt, wenn zwischen Wechselwirkung mit dem Projektil und Emission des ICD-Elektrons einige Pikosekunden vergehen. Man würde in diesem Fall zunächst erwarten, dass sich die Dimerionen in dieser Zeit so gedreht haben, dass sich diese Strukturen 'auswaschen'. Die Antwort ist vermutlich darin begründet, dass es sich hierbei um eine Drehung in drei Dimensionen handelt. Weber et al. [Web01] konnten bei einem Photoionisationsexperiment mit CO-Molekülen zeigen, dass bei einer solchen Drehung eine Vorzugsrichtung erhalten bleibt, auch wenn zwischen Photoionisation und Aufbruch des Molekülions CO^{2+} eine gewisse Zeit vergeht. Hierzu wurde die Drehung der Molekülionen simuliert, indem für jedes Molekülion eine Drehachse in der Ebene transversal zur Dimerachse und ein Drehwinkel zufällig ausgewählt wurden. Mit dieser Simulation konnte die Winkelverteilung des Photoelektrons im molekülfesten System für den Zerfall des CO^{2+} -Molekülions in sehr guter Übereinstimmung rekonstruiert werden. Vermut-

lich bleibt im statistischen Mittel auch bei dem vorliegenden Experiment die ursprüngliche Richtung zumindest teilweise erhalten, was zu diesen Strukturen in den Winkelverteilungen des ICD-Elektrons führt.

5.4.2. ICD durch höher angeregte Zustände

Bisher wurde nur der IC-Zerfall diskutiert, bei dem das verbleibende Elektron in einen 2s- oder 2p-Zustand angeregt wurde. Wird jedoch die Energie im Schwerpunktsystem gegen die kinetische Energie des Elektrons dargestellt, erkennt man noch eine weitere diagonale Verteilungen, die sich aus der Anregung in höhere Zustände ergeben. Die Bindungsenergie des emittierten Elektrons beträgt 24.6 eV. Dementsprechend ergeben sich für die Summen aus kinetischer Energie des Elektrons und KER der verschiedenen Anregungszustände folgende Werte:

$$E(2l)_{sum} = 40.8 \text{ eV} - 24.6 \text{ eV} = 16.2 \text{ eV} \quad (5.23)$$

$$E(3l)_{sum} = 48.4 \text{ eV} - 24.6 \text{ eV} = 23.8 \text{ eV} \quad (5.24)$$

$$E(4l)_{sum} = 51.0 \text{ eV} - 24.6 \text{ eV} = 26.4 \text{ eV} \quad (5.25)$$

$$E(6l)_{sum} = 52.3 \text{ eV} - 24.6 \text{ eV} = 27.7 \text{ eV} \quad (5.26)$$

$$E(5l)_{sum} = 52.9 \text{ eV} - 24.6 \text{ eV} = 28.3 \text{ eV} \quad (5.27)$$

Das bedeutet, dass die Diagonalen für den IC-Zerfall aus dem (3l)-Zustand bei 23.8 eV, während die für die Zerfälle aus den höheren Zuständen zwischen 26.4 eV und 28.3 eV liegen sollte. Abbildung 5.20 rechts zeigt die Energiesumme. Die Ergebnisse stimmen gut mit diesen Werten überein. Integriert man über die Maxima lässt sich ein Verhältnis der höher angeregten Zustände zum Zustand (n=2) von 0.28 feststellen. Nach Ergebnissen von Schöffler et al. [Sch06] müsste das Verhältnis zwischen der Anregung in die Zustände (n>3) zur Anregung in den (2l)-Zustand folgenden Wert haben:

$$\frac{\sigma_{SC,exc}(n \geq 3)}{\sigma_{SC,exc}(2l)} = 0.86 \quad (5.28)$$

Das in dieser Messung ermittelte Verhältnis ist daher viel zu niedrig. Die Impulse des Elektrons für die höher angeregten Zustände liegen zwischen 0.93 a.u. und 1.03 a.u. Ein Grund könnte hierfür sein, dass die Zerfallswahrscheinlichkeiten für die einzelnen Anregungszustände unterschiedlich sind. Hierzu gibt es aber bislang keine weiteren Ergebnisse zum Vergleich. Havermeier et al. [Hav10c] konnten aufgrund der Nachweiseffizienz die Raten der Anregungszustände, die sich aus dem IC-Zerfall ergaben, nicht mit denen der Monomeren vergleichen. Auch in dieser Messung war es nicht möglich, aufgrund der Nachweiseffizienz und der Auflösung des longitudinalen Rückstoßionenimpulses einen Vergleich dieser Raten vorzunehmen.

Dadurch ist es nicht auszuschließen, dass messtechnische Gegebenheiten das oben genannte Verhältnis bestimmen.

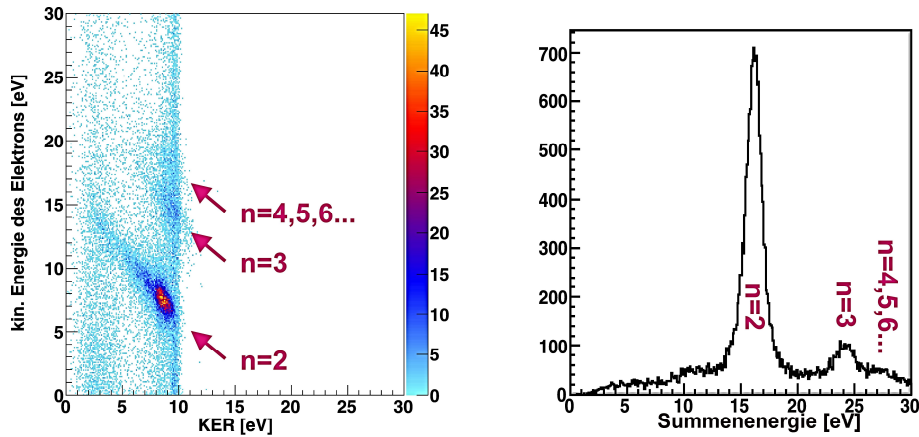


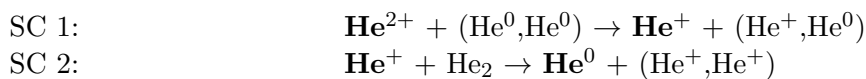
Abb. 5.20.: Links: zweidimensionales Energiespektrum. Auf der x-Achse ist der KER aufgetragen. Auf der y-Achse ist die kinetische Energie des Elektrons dargestellt. Rechts: Summen aus beiden Energien.

5.5. Der Ein- und Zwei-Zentren-Prozess

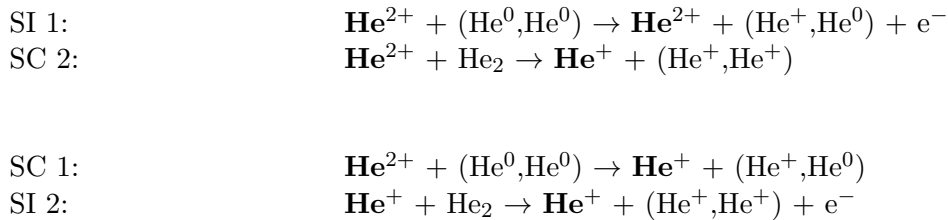
Wie im vorigen Kapitel beschrieben, stellt der Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem IC-Zerfall unter den Prozessen, die im Reaktionskanal der Transferionisation vermessen wurde, eine Ausnahme dar, da das Elektron nicht mit dem Projektil wechselwirkt. Im Folgenden sollen nun die Prozesse diskutiert werden, bei denen das Elektron aufgrund der Wechselwirkung mit dem Projektil emittiert wird. Parallel zur Ein-Zentren-Transferionisation bzw. Zwei-Zentren-Transferionisation wird auch stets der jeweilige Prozess des doppelten Elektreneinfangs besprochen.

5.5.1. Zwei-Zentren-Prozess

Wenn der zweifache Elektroneneinfang (SC) an zwei Zentren stattfindet, fängt das Projektil an beiden Zentren jeweils ein Elektron ein:



Der Ablauf ist dementsprechend beim doppelten Elektroneneinfang an zwei Zentren festgelegt. Bei der Transferionisation ergeben sich beim Zwei-Zentren-Prozess jedoch zwei Möglichkeiten, je nachdem ob die Ionisation (SI) als erstes oder als zweites stattfindet:



Wie in Kapitel 5.2.1 bereits geschildert wurde, muss die Molekülachse beim Zwei-Zentren-Prozess aufgrund der Kinematik hier in einem bestimmten Winkelbereich zur Ionenstrahlachse ausgerichtet sein. Es ist daher zu erwarten, dass dieser Winkel neue Informationen über den Ionenstoß selbst liefern kann. Umgekehrt finden die beiden Stöße mit den Zentren sehr schnell hintereinander statt. Mit einer Geschwindigkeit von 2.45 a.u. kann das Projektil eine Strecke von 10 a.u. in etwa 100 as zurücklegen. Vibrationsperioden von normalen Molekülen liegen meist im Bereich von einigen Femtosekunden. Der Zeitabstand zwischen den Stößen an den einzelnen Zentren bzw. zwischen dem Stoß und der darauffolgenden Coulombexplosion ist auch bei größeren Abständen so klein, dass die Kernbewegung als quasi 'eingefroren' angesehen werden kann. Das gibt im Gegensatz zu den anderen beiden Ein-Zentren-Prozessen, bei denen zwischen Wechselwirkung mit dem Projektil und Coulombexplosion mindestens Pikosekunden vergehen, die Möglichkeit aus der Energie im Schwerpunktsystem (KER) Informationen über den Grundzustand des Heliumdimers zu erhalten.

Der folgende Abschnitt ist daher ähnlich gegliedert wie der vorherige: Es werden zunächst die Größen besprochen, die sich auf die Kinematik des Ionenstoßes beziehen (Winkelverteilung, Stossparameterabhängigkeit). Danach wird die gemessene KER-Verteilung als ein Parameter der inneren Struktur des Dimers diskutiert. Die Elektronenimpulsverteilung der Zwei-Zentren-Transferionisation wird in einem späteren Abschnitt vorgestellt.

In Abbildung 5.21 sind die Winkelverteilungen für den Zwei-Zentren-Prozess sowohl für die Transferionisation als auch für den zweifachen Elektroneneinfang dargestellt. Bei der Winkelverteilung transversal zum Ionenstrahl lässt sich in beiden Fällen keine Abhängigkeit gegenüber dem Impulsübertrag erkennen. Ein Recoil-Effekt ist hier zudem auch nicht zu erwarten, da zwischen der ersten Wechselwirkung mit dem Projektil und der Coulombexplosion kaum Zeit vergeht. Aufgrund der Vollständigkeit ist in Abbildung 5.21 noch einmal die Winkelverteilung zur Ionenstrahlachse dargestellt. Die klare Ausrichtung der Dimerachse wurde in Abschnitt 5.2.1 als Beweis angeführt, dass es sich hier um einen Zwei-Zentren-Prozess handelt. Im Folgenden soll nun erläutert werden, welche quantitativen Rückschlüsse man aus dieser Winkelverteilung der Dimerachse ziehen kann. Zentrale Größe wird hierbei der Stoßparameter

sein. Im nächsten Abschnitt wird eine Simulation vor gestellt, die aus einer gegebenen Stoßparameterverteilungen die aus dem Experiment gewonnen Winkelverteilung rekonstruiert.

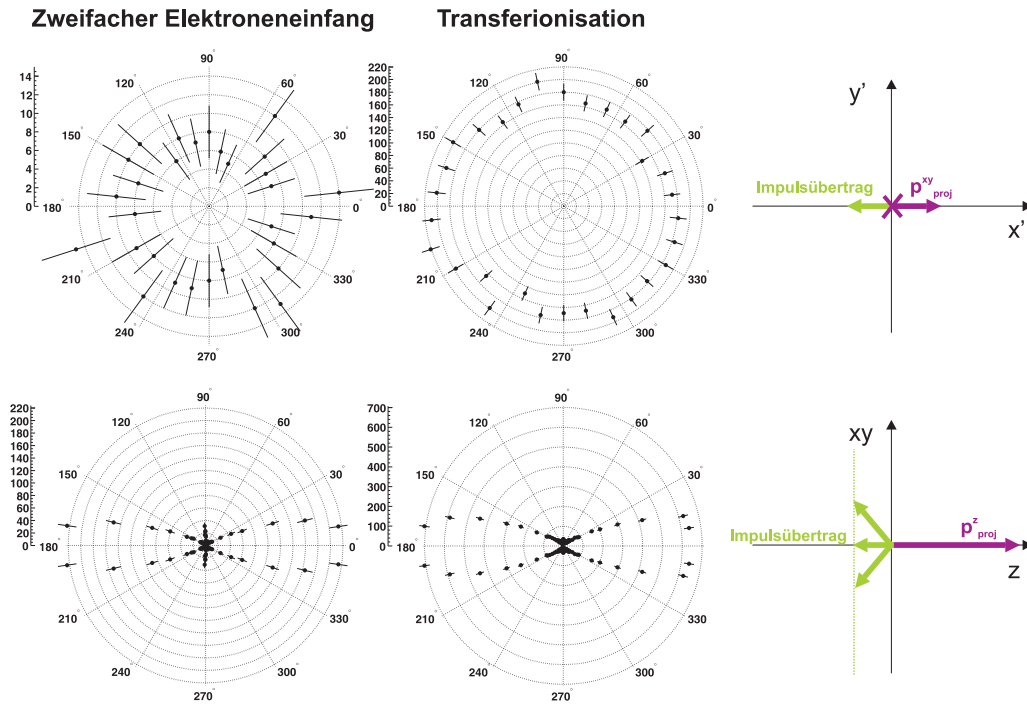


Abb. 5.21.: Oben: Winkelverteilung der Dimerachse für den Zwei-Zentren-Prozess in der Ebene senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Ionenstrahls. Der Impuls wurde hier aus der Ortsverteilung der Projektile berechnet. Unten: Winkelverteilung der Dimerachse zum Ionenstrahlachse.

Die Stoßparameterabhängigkeit des Zwei-Zentren-Prozess

Bei der elastischen Coulombstreuung zweier Teilchen lässt sich in einem gegebenen Streupotenzial $V(r)$ und einer bekannten Anfangsenergie E_0 zwischen dem Streuwinkel θ und dem Stoßparameter b folgender Zusammenhang finden [Dem05]):

$$\theta = \pi - 2b \int_{r_{min}}^{\infty} \frac{dr}{r^2 \sqrt{1 - \frac{b^2}{r^2} + \frac{E_{pot}}{E_0}}} \quad (5.29)$$

r_{min} ist dabei der kleinste Abstand zwischen den beiden Stoßpartnern. Wichtig ist hierbei, dass es für ein rein abstoßendes Coulombpotenzial ($\propto \frac{a}{r}$) einen eindeutigen Zusammenhang zwischen Stoßparameter und Streuwinkel gibt, d.h. jedem Stoßparameter nur ein bestimmter Streuwinkel zugeordnet werden kann. Genau dieser Zusammenhang ermöglicht es prinzipi-

ell mit Rutherfords Ansatz, bei der Kern-Kern-Streuung aus dem Streuwinkel, den jeweiligen Stoßparameter zu bestimmen. Da der Streuwinkel letztendlich aus dem Impulstransfer berechnet werden kann und hier bisher nur von Impulsen die Rede war, lässt sich auch alternativ sagen, dass sich bei einer Kern-Kern-Streuung die Stoßparameterverteilung über die Impulsverteilung transversal zur Ausbreitungsrichtung der streuenden Teilchen generieren lässt. Bei einer inelastischen Streuung, wie sie zwischen Ionen und Atomen bzw. Ionen und Molekülen stattfinden kann, hängt es von deren Relativgeschwindigkeit, Kernladung und dem konkreten Prozess ab, inwieweit dieser Zusammenhang wenigstens näherungsweise gilt. Bei mittleren Projektilenergien und kleinen Kernladungen, wie sie hier betrachtet werden, müssen sich die Kerne bei einem Einfangprozess sehr nahe kommen, damit sich in einem vereinfachten Bild die Elektronenhüllen überlappen können und dadurch das Elektron vom Ion eingefangen werden kann. Hier wird dieser Zusammenhang näherungsweise seine Gültigkeit haben. Bei einer Ionisation erhält das emittierte Elektron jedoch ebenfalls einen Impuls, der in der gleichen Größenordnung liegt, wie der dazugehörige Kern. Hier ist nicht mehr zu erwarten, dass aus der transversalen Impulsverteilung Informationen über den Stoßparameter bzw. umgekehrt aus einer Stoßparameterverteilung keine realistischen Impulse des Projektilions gewonnen werden können (siehe z.B. [Dör89, Ull89]).

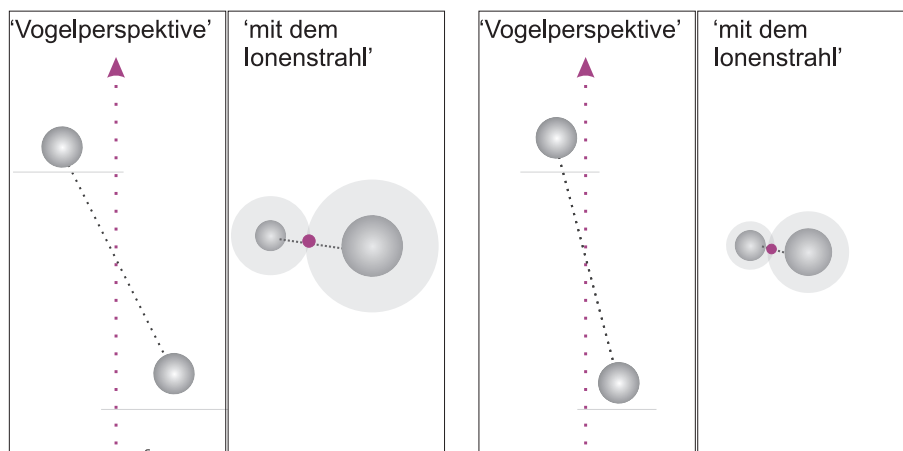


Abb. 5.22.: Veranschaulichung des Zusammenhangs zwischen Stoßparameter und Winkel der Dimerachse zum Ionenstrahl. links: für eine breite Stoßparameterverteilung. Rechts: für eine schmale Stoßparameterverteilung.

Betrachtet man sich den hier vorliegenden Zwei-Zentren-Prozess, so müssen per Definition zwei Stöße berücksichtigt werden. Stellt man sich in einem vereinfachten Bild den Wirkungsquerschnitt wirklich als Fläche um das jeweilige Streuzentrum vor, so kommt es nur dann zu einer Wechselwirkung an beiden Zentren, wenn sich die beiden Flächen in der transversalen Ebene zur Ausbreitungsrichtung überschneiden (Abbildung 5.22). Wenn die Flächen verkleinert werden, muss auch der Kippwinkel des Dimers zur Ausbreitungsrichtung verklei-

wert werden. Da man den Wirkungsquerschnitt geometrisch als eine Kreisfläche mit dem maximalen Stoßparameter als Radius darstellen kann, wird schnell klar, dass dieser Winkel eine Funktion des Stoßparameters sein muss. An den Ergebnissen dieser Messung lässt sich das direkt erkennen.

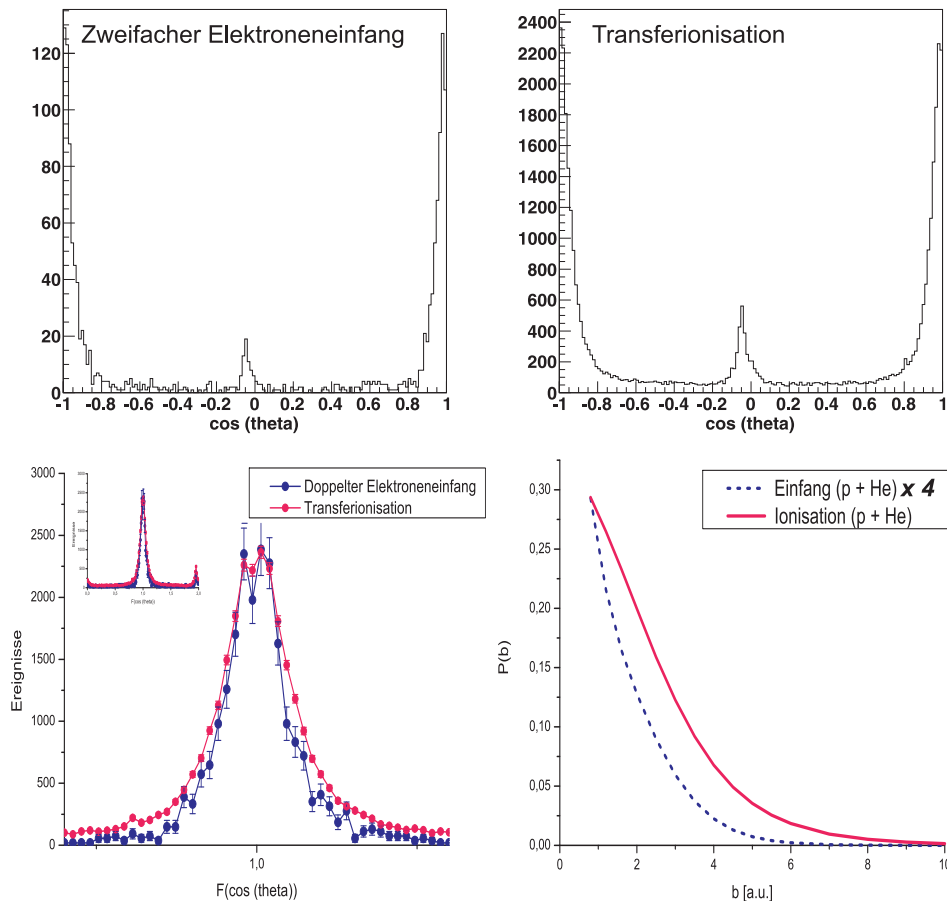


Abb. 5.23.: Oben: Kosinus des Zwischenwinkels von Dimerachse und Ionenstrahlachse. Unten links: Vergleich der beiden Winkelverteilungen. Der kleine Peak bei $\cos(\theta) = 0$ stammt vom Untergrundereignissen. Hierzu wurde die Verteilung für $\cos(\theta) < 0$ um $(+2.)$ verschoben. Unten rechts: Stoßparameterverteilung für die Ionisation und Einfang. Die Verteilung für eine Ionisation ist in der Regel breiter.

In Abbildung 5.23 ist der Kosinus des Winkels zwischen Dimerachse und Strahlenachse dargestellt. Ein Vergleich zwischen den Ergebnissen für Transferionisation und zweifachem Elektroneneinfang zeigt, dass das Maximum für den doppelten Elektroneneinfang viel schmäler ist als das Maximum für die Transferionisation. Die Ursache hierfür liegt in den Stoßparameterverteilungen der einzelnen Prozesse. Bei zwei aufeinander folgenden Elektroneneinfängen müssen sich das Projektil und das jeweilige Stoßzentrum sehr nahe kommen, damit das Elektron in einen gebundenen Zustand des Projektilions wechseln kann. Die Stoßparameterverteilung ist

für beide Einfänge sehr schmal (Abbildung 5.23). Das hat zur Folge, dass die beiden Zentren in der transversalen Ebene zur Ausbreitungsrichtung nicht weit auseinander liegen können, damit es an beiden Zentren zu einer Wechselwirkung kommt. Und das ist gleich bedeutend mit einem engen Winkelbereich um die Strahlachse.

Bei der Transferionisation ist eine der beiden Wechselwirkungen eine Ionisation. Die Stoßparameterverteilung von Ionisationsprozessen ist tendenziell breiter, da hier das Projektilion im vereinfachten Bild des 'binary encounter' mit dem Elektron stößt und sich die Kerne nicht so nahe kommen müssen. Die beiden Streuzentren können in der transversalen Ebene zum Strahl weiter auseinander liegen, was bedeutet, dass auch der Winkel zwischen Dimerachse und Strahlachse größer sein kann. Dadurch sind die Winkel für die beiden Prozesse unterschiedlich.

Der Zusammenhang zwischen dem Relativwinkel von Dimer- und Ionenstrahlachse und dem Stoßparameter ist jedoch nicht eindeutig. Das wird deutlich, wenn man sich den Sachverhalt für zwei fixe Stoßparameter b_1 und b_2 betrachtet. In einem vereinfachten Bild können diese als Kreise veranschaulicht werden. Hier kommt es dann zu einer Wechselwirkung an beiden Zentren, wenn sich die Kreise schneiden. Für diese beiden festen Parameter ist dies über einen sehr breiten Winkelbereich der Fall.

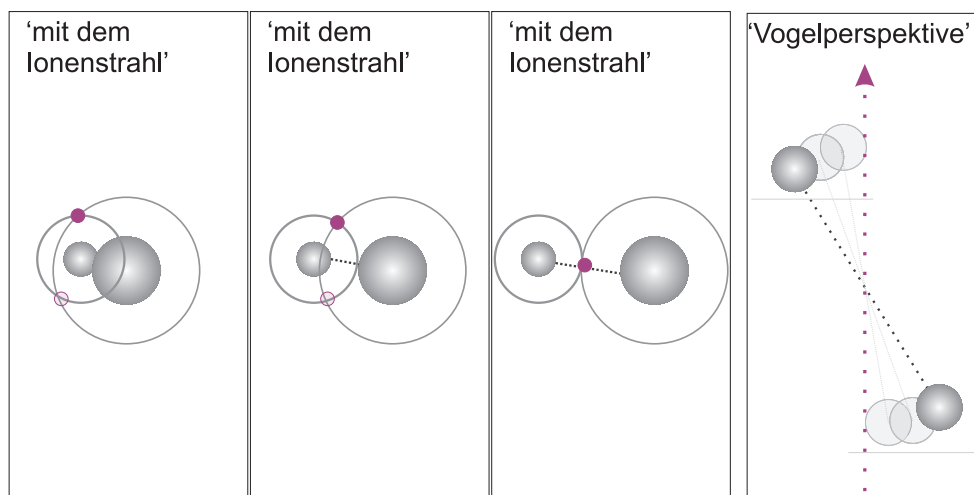


Abb. 5.24.: Zusammenhang von Stoßparameter und Winkel der Dimerachse. Einem Stoßparameter können mehrere Winkel zugeordnet werden. Daher ist eine direkte Berechnung des Stoßparameters aus dem Winkel nicht möglich.

Dennoch bietet die Winkelverteilung die Möglichkeit, Informationen über die Stoßparameterverteilung zu erhalten, indem der umgekehrte Weg beschritten wird: Mittels einer berechneten Stoßparameterverteilung wird versucht, die Winkelverteilung des Experiments zu reproduzieren. Dies wurde hier mit einer Monte-Carlo-Simulation erreicht. In dieser Simulation werden aus der Abstandsverteilung des Dimers und einer gleichmäßigen Winkelverteilung zufällig

Werte ausgewählt, um die räumliche Anfangskonfiguration (1. atomares Zentrum (r_x^1, r_y^1) , 2. atomares Zentrum (r_x^2, r_y^2)) des Dimers festzulegen, wobei das Dimer in einer Richtung festgehalten wird und damit $r_y^1 = r_y^2 = 0$ gilt. Ebenso werden aus einer Gleichverteilung die Ortskoordinaten des Projektils (p_x, p_y) zufällig ausgewählt. Für jede 'gewürfelte' Kombination werden durch eine Differenzbildung die beiden Stoßparameter bestimmt:

$$b_{1,2}(x, y) = \sqrt{(p_x - r_x^{1,2})^2 + (p_y - r_y^{1,2})^2} = \sqrt{\left(p_x - \frac{R}{2} \cos(\theta) + (p_y)^2\right)} \quad (5.30)$$

und die Wahrscheinlichkeiten für diese aus einer gegebenen Stoßparameterverteilung ermittelt. Das Produkt dieser Wahrscheinlichkeiten wird für den zu Anfang ermittelten Winkelwert in ein Spektrum gefüllt. Lässt man die Simulation diesen Rechenschritt sehr häufig wiederholen, erhält man je nach angenommener Stoßparameterverteilung Winkelverteilungen, die sich mit den Ergebnissen des Experiments vergleichen lassen. Der Programmcode der Simulation ist im Anhang E zu finden.

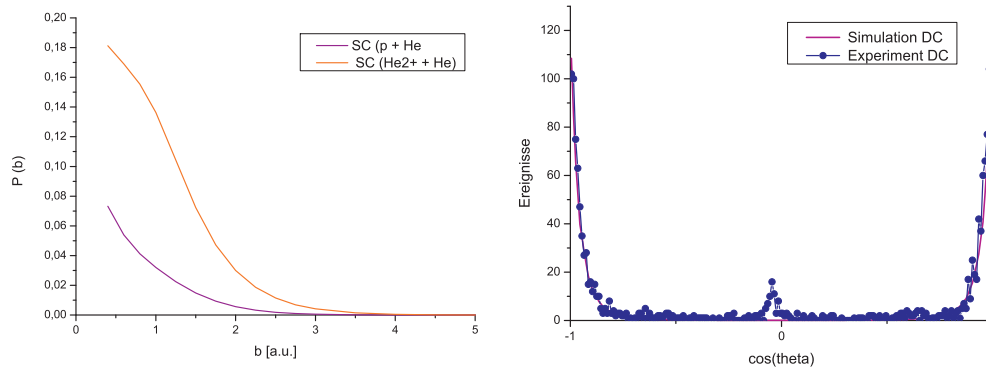


Abb. 5.25.: Vergleich der Simulation mit den experimentellen Ergebnissen für den doppelten Elektroneneinfang (rechts). Links: Stoßparameter, die für die Simulation benutzt wurden (siehe Kapitel 2.1.3). Für den Vergleich wurde eine Bedingung auf die KER-Verteilung gesetzt (Bereich: 3.5 - 5 eV), die einem Abstandsbereich (Reflexionssnäherung) von 5 - 7.8 a.u. entspricht.

Durch diese Simulation wird ein dreifaches Integral über die verschiedenen Dimerabstände und die beiden Ortsrichtungen berechnet:

$$F(\cos(\theta)) = \int \int \int P(R) P(b_1(x, y)) P(b_2(x, y)) dx dy dR \quad (5.31)$$

In diesem Integral stehen nach obigen Ausführungen die jeweiligen Wahrscheinlichkeiten für die Stoßparameter $P(b_1)$ und $P(b_2)$. Für den zweifachen Elektroneneinfang an zwei Zentren müssen das die Wahrscheinlichkeiten für den Einfang des (atomaren) Stoßsystems ($\text{He}^{2+} + \text{He}^0$) und den Einfang des Stoßsystems ($\text{He}^+ + \text{He}^0$) sein. Das Ergebnis der Simulation ist in Abbildung 5.25 links zu sehen. Es zeigt eine sehr gute Übereinstimmung mit dem Experiment.

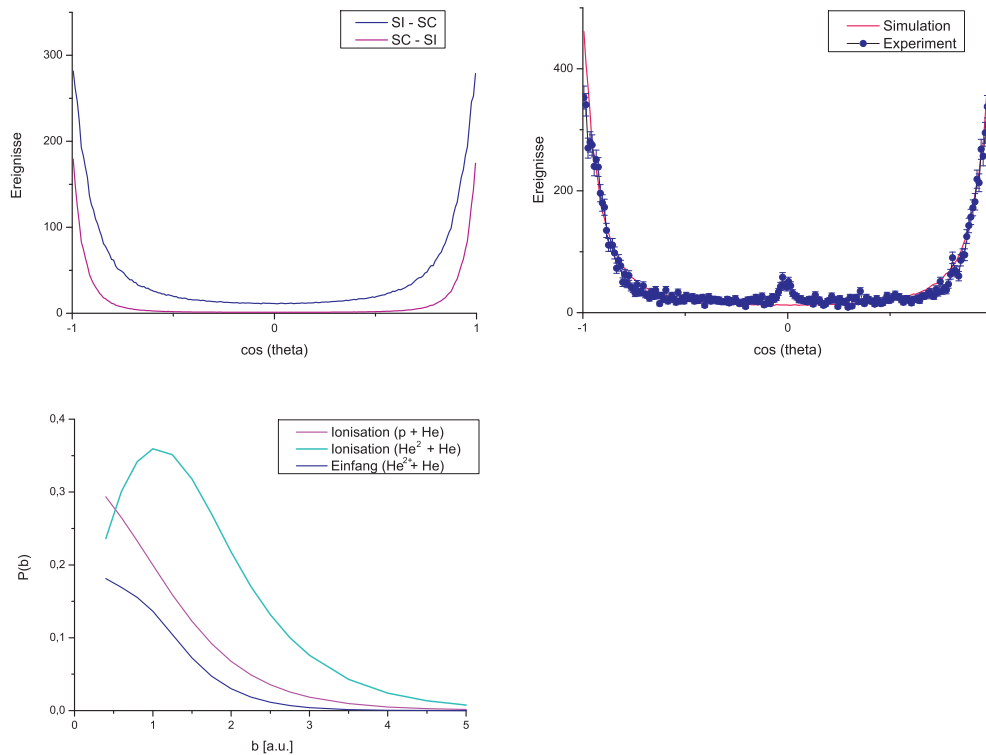


Abb. 5.26.: Rechts oben: Vergleich der Ergebnisse aus Simulation und Experiment für die Transferionisation. Links oben: simulierte Verteilungen, die sich für die Fälle ergeben, dass zuerst die Ionisation (SI) und dann der Einfang (SC) oder erst der Einfang und dann die Ionisation (SC - SI) stattfinden. Die simulierte Gesamtverteilung setzt sich aus diesen zusammen, wobei sich das Verhältnis durch die jeweiligen Stoßparameterverteilungen ergibt. Unten: die benutzten Stoßparameterverteilungen. Für den Vergleich wurde auch hier eine Bedingung auf die KER-Verteilung gesetzt (Bereich: 3.5 - 5 eV).

Für die Transferionisation an zwei Zentren gibt es, wie zu Anfang des Kapitels erwähnt, zwei Möglichkeiten: erst eine Ionisation und dann ein Einfang und umgekehrt. Dies sind zwei mögliche Reaktionswege, die sich überlagern. Die quantenmechanisch richtige Lösung wäre hier, die Wellenfunktionen zunächst zu addieren und dann erst das Betragsquadrat und damit die Wahrscheinlichkeitsamplitude zu bilden:

$$|\Psi_{TI}|^2 = |\Psi_{SI,SC} + \Psi_{SC,SI}|^2 = |\Psi_{SI,SC}|^2 + |\Psi_{SC,SI}|^2 + 2 \operatorname{Re} |\Psi_{SI,SC} \Psi_{SC,SI}| \quad (5.32)$$

Durch den dritten Term werden hier auch die Phasen zwischen den möglichen Wegen zu berücksichtigt. Es wurde hier durch die Simulation jedoch ein anderer Weg beschritten: Es wurden für die beiden Kombinationen die Verteilungen für eine feste Anzahl an Ereignissen berechnet. Dadurch ergab sich ein Verhältnis zwischen diesen beiden Reaktionsmöglichkeiten. Dann wurde die Simulation so angepasst, dass unter Berücksichtigung dieses Verhältnisses die Gesamtereignisanzahl der Simulation des Experimentes entsprach. Im Prinzip wurden auf

diese Weise nur die Quadrate der einzelnen Wellenfunktionen (die ersten beiden Summanden in Gleichung 5.32) und damit die Wahrscheinlichkeitsamplituden ohne Berücksichtigung der Phase berechnet. In Abbildung 5.26 ist das Ergebnis der Simulation für die Transferionisation an zwei Zentren dargestellt. Es zeigt ebenfalls eine sehr gute Übereinstimmung. Besonders hervorzuheben ist, dass hier auch die Ereignisse zwischen den Maxima reproduziert werden konnten. Das macht deutlich, dass eine Berücksichtigung der Phasen nicht nötig ist.

Die Abstandsverteilung, die in der Simulation (Gleichung 5.31) benutzt wurde, wurde aus dieser Messung bestimmt. Es ist zu erwähnen, dass in beiden Fällen zum Vergleich zwischen experimentellen Ergebnissen und Simulation eine Bedingung auf den KER und damit die Abstandsverteilung gesetzt wurde. Das bedeutet, dass in der Simulation nicht über die komplette Abstandsverteilung integriert wurde, sondern nur ein Abstandsbereich bis etwa 8 a.u. ausgewählt wurde. Die Gründe werden im Folgenden erläutert.

Die KER-Verteilung und Probleme bei der Bestimmung der Abstandsverteilung des He₂-Grundzustands

In Kapitel 2.3.3 wurde die so genannte Reflexionsnäherung vorgestellt. Mit Hilfe dieser klassischen Näherung wird üblicherweise in Experimenten, in denen der Zerfall von Molekülen in ionische Fragmente untersucht wird, der Abstand bestimmt. Wenn man die beiden Ionen als Punktladung nähert, ergibt sich für ein Molekül, das in zwei einfach geladene Ionen zerfällt, folgender Ausdruck:

$$R[a.u.] = \frac{1}{KER[a.u.]} \quad (5.33)$$

Beim Zwei-Zentren-Prozess kann man erwarten, dass sich aus der KER-Verteilung prinzipiell Informationen über die Abstandsverteilung des Dimers ableiten lassen.

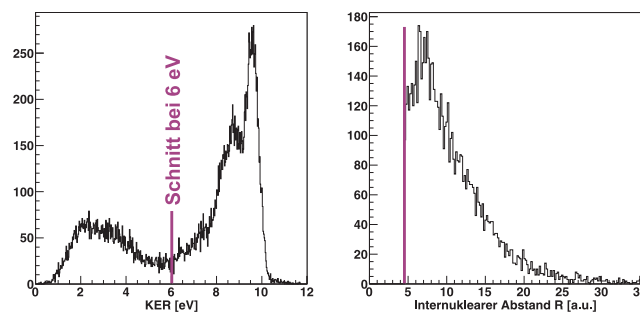


Abb. 5.27.: Links: KER-Verteilung mit der Bedingung, dass die Dimerachse in einem Winkel von 30° zur Ionenstrahlachse stand. Um die Abstandsverteilung (rechts) darzustellen wurden KERs < 6 eV ausgewählt. Rechts: entsprechende Abstandsverteilung in atomaren Einheiten. Es wurde eine Bedingung auf das jeweilige Projektil und im Fall der Transferionisation auf ein Elektron gesetzt.

Abbildung 5.27 zeigt die durch obige Formel berechnete Abstandsverteilung, die durch den Zwei-Zentren-Prozess gewonnen wird. Diese Abstandsverteilung kann in dieser Form aufgrund der speziellen Kinematik des Zwei-Zentren-Prozesses jedoch nicht der Abstandsverteilung des Dimers entsprechen. Diese Wechselwirkungsbereiche um die beiden atomaren Zentren wurden im letzten Abschnitt als Kreise dargestellt. In diesem vereinfachten Bild kann es nur zu einer Wechselwirkung kommen, wenn es einen Überlapp dieser Bereiche gibt. Der Überlapp hängt jedoch nicht nur vom Winkel, sondern auch vom Abstand der beiden atomaren Zentren ab. Dieser Zusammenhang ist in Abbildung 5.28 erläutert.

Auf der linken Seite der Abbildung steht ein Dimer mit einem Abstand R_1 bezüglich der Strahlachse so, dass das Projektilion tatsächlich mit beiden Zentren wechselwirken kann. Wenn nun der Abstand der beiden Zentren größer ist ($R_2 > R_1$), so vergrößert sich auch der Abstand der beiden Streuzentren in der transversalen Ebene zum Strahl. Die beiden Kreise überlappen sich nicht mehr, es kommt dementsprechend zu keinem Zwei-Zentren-Prozess. In diesem Bild werden daher mit großem Winkel zwischen Dimer- und Strahlachse durch die Kinematik kleine Dimerabstände selektiert. Umgekehrt werden bei kleineren Zwischenwinkel auch Dimere mit größeren Abständen detektiert. Die gemessene Abstandsverteilung wird dementsprechend eine starke Winkelabhängigkeit aufweisen. Dies wird in Abbildung 5.28 auf der rechten Seite gezeigt. In diesem Spektrum ist auf der x-Achse der Kosinus des Zwischenwinkels von Dimer- und Strahlachse aufgetragen, auf der y-Achse ist der nach der Reflexionsnäherung berechnete Abstand dargestellt. Man sieht hier eindeutig eine Abhängigkeit des Abstands, die die bisherigen Ausführungen gut wiedergibt und bestätigt.

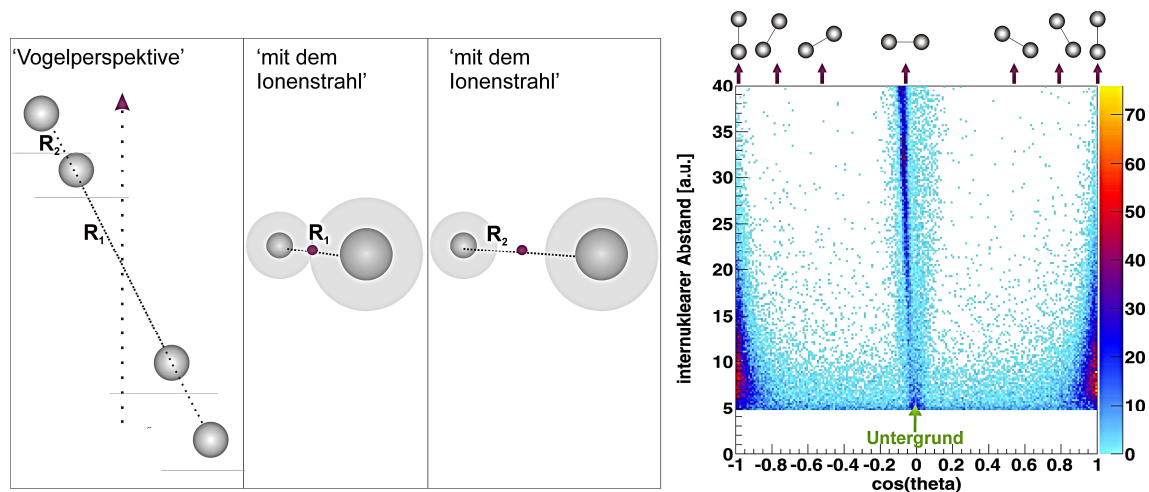


Abb. 5.28.: Links: Schematische Darstellung der Winkelabhängigkeit der Abstandsverteilung. Durch größere Winkel werden in der Tendenz kleinere Abstände selektiert, bei kleineren Winkel können in zunehmenden Maße auch Dimere mit größeren Abständen nachgewiesen werden. Rechts: Der Kosinus des Zwischenwinkels von Dimerachse und Ionenstrahlachse.

Dieser Argumentation folgend müssten die Abstandsverteilungen (Abbildung 5.28) für die Transferionisation und den doppelten Elektroneneinfang unterschiedlich aussehen, da beim doppelten Elektroneneinfang die Stoßparameterverteilungen sehr viel schmäler sind. Dadurch ergibt sich für den Zwei-Zentren-Prozess ein kleinerer Bereich für den Zwischenwinkel von Dimer- und Ionenachse. Dies sollte wiederum dazu führen, dass für den Einfang kleine Abstände stärker unterdrückt werden. Die beiden Abstandsverteilungen sind in Abbildung 5.29 oben gezeigt.

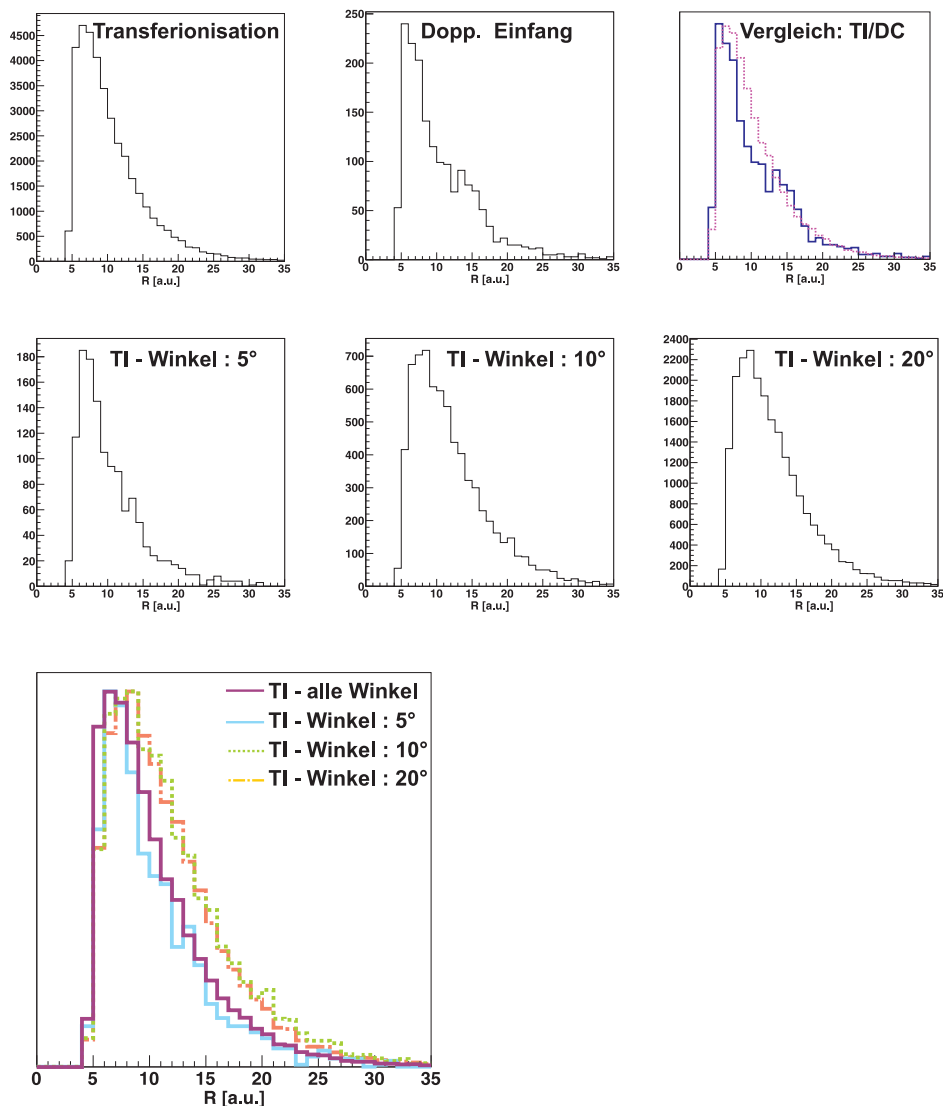


Abb. 5.29.: oben: Abstandsverteilung in atomarem Einheiten für die Transferionisation und den zweifachen Elektroneneinfang. Mitte und unten: Abstandsverteilung im Fall der Transferionisation für verschiedene Winkel der Dimerachse zur Ionenstrahlachse.

Wie sich erkennen lässt, ist die Verteilung des doppelten Elektroneneinfangs jedoch zu kleineren Abständen verschoben und weist damit genau das entgegengesetzte Verhalten auf. Ähnliches zeigt sich auch bei der Transferionisation, wenn man Bedingungen auf verschiedenen große Zwischenwinkel von Dimer- und Ionenachse setzt (Abb. 5.29 mitte und unten). Bei Zwischenwinkeln von 20° und 10° lässt sich ein Trend erkennen, wie er zu erwarten ist. Für kleinere Winkel werden zunehmend auch größere Abstände selektiert, was zu einer Verschiebung der Verteilung zu größeren Abständen führt. Für einen Zwischenwinkel von 5° ist die Verteilung jedoch zu kleineren Winkeln verschoben. Generell sind in den Ergebnissen keine Abstände, die größer als 40 a.u. sind, zu beobachten. Dies ist sehr ungewöhnlich, da die berechnete Verteilung Abstände von mehr als 400 a.u. vorhersagt. Die Gründe für diese Abweichungen sollen im Folgenden diskutiert werden.

Zunächst kann angemerkt werden, dass die Reflexionsnäherung, wie sie oben gemacht wurde, nach heutigem Kenntnisstand für das Heliumdimer nicht gültig ist. Havermeier et al. [Hav10b] konnten in einem Photoionisationexperiment an Heliumdimeren einen Zerfallskanal identifizieren, in dem das Photoelektron, das an einem Zentrum emittiert wurde, durch einen Stoß ein Elektron am zweiten Zentrum herauschlug. Das Photoelektron hatte in dieser Messung eine Energie von 39.3 eV und damit eine Geschwindigkeit von etwa 1.7 a.u. Das Elektron bewegt sich damit etwas langsamer als das hier betrachtete Projektilion, dennoch ist auch dieser so genannte 'Knock-Out'-Prozess schnell genug, dass die KER-Verteilung der ionischen Fragmente Aussagen über die Abstände des Dimers enthalten sollte. Beim Vergleich der KER-Verteilung, die sich aus dem 'Knock-Out'-Prozess ergab, mit der Verteilung aus der Reflexionsnäherung zeigten sich deutliche Unterschiede. Die Ergebnisse einer voll quantenmechanischen Rechnung stimmten dagegen mit der gemessenen KER-Verteilung ab 2 eV sehr gut überein (siehe Abb. 5.30). Aufgrund der Ausdehnung der Kernwellenfunktion des Grundzustands scheint die Reflexionsnäherung für den Zerfall eines Heliumdimers nicht mehr zu gelten. Diese Ausdehnung führt dazu, dass einem KER-Wert nicht nur ein Abstandswert, wie es in der klassischen Näherung der Fall ist, sondern mehrere Abstände zugeordnet werden (Abb. 5.30 links). In Abbildung 5.30 unten ist ebenfalls die KER-Verteilung des hier diskutierten Zwei-Zentren-Prozesses dargestellt. Um dieses Spektrum zu erstellen, wurde die Bedingung gesetzt, dass der Zwischenwinkel von Dimer- und Ionenstrahlachse kleiner als 10° ist. Vergleicht man diese Verteilung hier mit den Ergebnissen von Havermeier et al., zeigt sich bei größeren KERs tatsächlich eine gute Übereinstimmung, sofern man annimmt, dass Ereignisse, die zu einem KER kleiner als 2.7 eV führen, nicht vollständig nachgewiesen werden können also in dieser Messung unterdrückt werden. Dass diese Annahme zulässig ist, wird nun näher erläutert.

Durch die Tatsache, dass die Reflexionsnäherung beim Heliumdimer ihre Gültigkeit verliert, lässt sich jedoch nicht erklären, warum sich die Verteilungen für den doppelten Elektroneneinfang und die Transferionisation auch in der Tendenz nicht so verhalten, wie man es

physikalisch erwarten würde. Außerdem erklärt sie auch nicht, warum keine kleinen KERs (in der Reflexionsnäherung großen Abstände) zu beobachten sind.

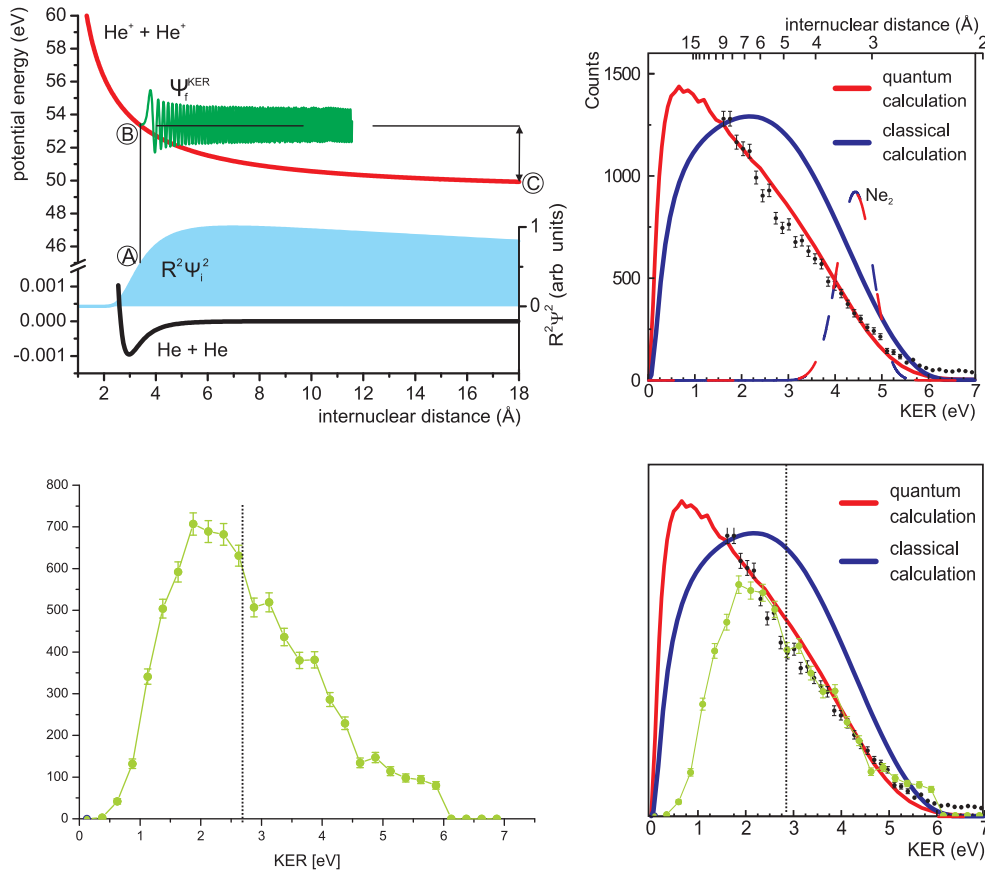


Abb. 5.30.: Links oben: Darstellung der Ergebnisse von Havermeier et al. [Hav10b]. Beim beobachteten Knock-Out-Prozess schlug das Photoelektron beim zweiten atomaren Zentrum des Dimers ein weiteres Elektron aus. Rechts: Vergleich von Theorie und Ergebnissen des Photoionisationsexperiments. Links unten: Die KER-Verteilung dieser Arbeit für die Transferionisation und unter Bedingung, dass die Dimerachse mit einem Winkel von 10° zur Ionenstrahlachse stand. Rechts unten: Vergleich der Ergebnisse von Ionenstoß- und Photoionisationsexperiment.

In dem Photoionisationsexperiment von Havermeier et al. konnten die kleinen KERs wegen Effizienzproblemen des entsprechenden Detektors nicht nachgewiesen werden. Daher wurden Werte kleiner 1 eV für den Vergleich nicht berücksichtigt. In diesem Experiment gab es vergleichbare Schwierigkeiten: Wie in Kapitel 3.4.3 erläutert, führt die Totzeit eines Delay-linedetektors bei einer quadratischen Anode dazu, dass zwei Ionen, die in einem Zeitraum von 25 ns auf dem Detektor aufkommen, in einem breiten Kreuz nicht voneinander getrennt detektiert werden können. Bei dem hier benutzten Rückstoßionendetektor verläuft der Ionenstrahl entlang einer Seite dieses Kreuzes, so dass zwei Ionen, die entlang dieser Strahlachse entstehen und einen Flugzeitunterschied von weniger als 25 ns besitzen, nicht nachgewiesen

werden. Da ein Zwei-Zentren-Prozess nur stattfinden kann, wenn das Dimer in einem schmalen Winkel zur Achse stehen muss, hat die Totzeit hier einen großen Effekt. Gerade Dimere mit einem großen Abstand müssen genau entlang der Achse stehen und werden durch das Totzeitproblem unterdrückt.

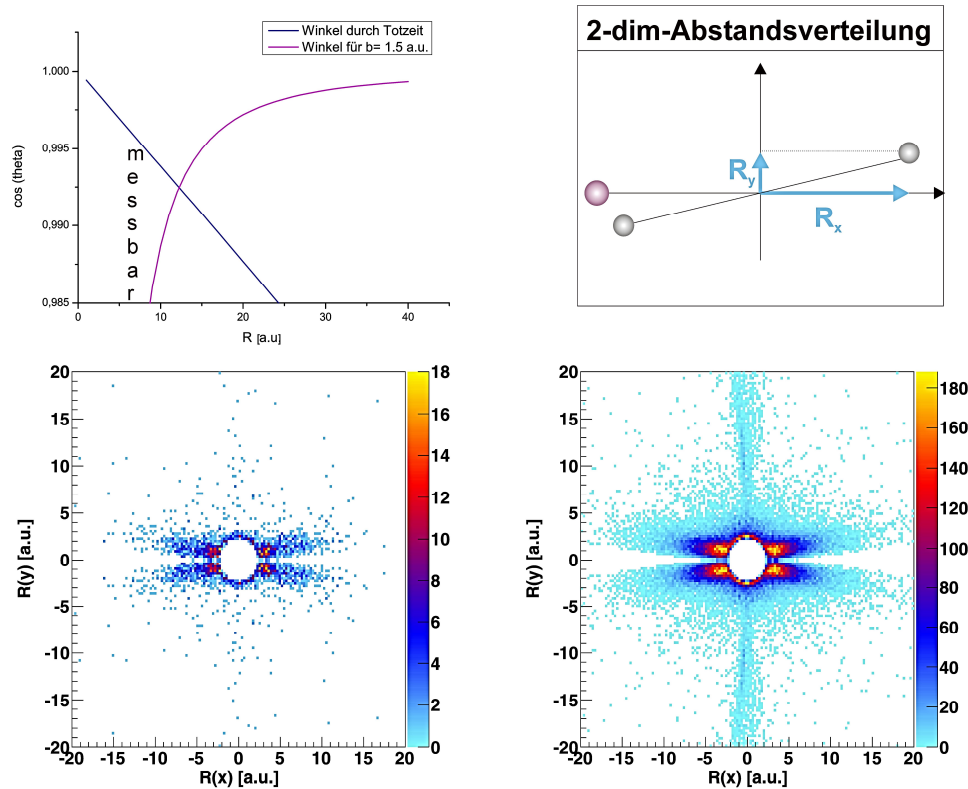


Abb. 5.31.: Darstellung der Ausmaße des Totzeitproblems. Oben links: Kosinus des Zwischenwinkels von Dimer- und Ionenstrahlachse, wie es sich aus der Totzeit des Rückstoßionendetektors (25 ns) ergibt (blaue Linie). Die Totzeit entspricht etwa einer Impulsdifferenz von 3 a.u. Mit dieser lässt sich für jeden Abstand und damit jeden KER (Reflexionsnäherung) ein Winkel berechnen. Die rote Linie stellt den Winkel dar, wie er sich aus einem festen Stoßparameter von 1.5 a.u. ergibt. Die Kurven schneiden sich bei etwa 12 a.u. Damit lässt sich abschätzen, welche Abstände noch vollständig nachgewiesen werden können. Oben rechts: Schematische Darstellung der zweidimensionalen Abstandsverteilung, wie sie unten dargestellt ist. Unten: Zweidimensionale Anstandsverteilung wie sie sich aus dem Experiment ergibt. Links: für den doppelten Elektroneneinfang. Rechts: für die Transferionisation. In beiden Fällen wurden Bedingungen auf die Impulserhaltung der Ionen, die Ortsverteilung des entsprechenden Projektilions und den KER-Bereich von 0 eV bis 6 eV gesetzt.

Abbildung 5.31 zeigt die Ausmaße des Totzeitproblems. Oben links ist eine klassische Abschätzung zu sehen, welche Abstände durch die Totzeit unterdrückt werden. Die blaue Linie zeigt den Zusammenhang von Dimerabstand und Zwischenwinkel von Dimer- und Ionen-

strahlachse. Hierzu wurde angenommen, dass ein Flugzeitunterschied von 25 ns zu einem Impulsunterschied von etwa 3 a.u. führt. Mit dieser Größe ließ sich zu jedem KER und damit zu jedem Abstand ein Winkel berechnen. Ereignisse mit Winkeln, die oberhalb dieser Kurve liegen, können mit dem hier vorgestellten Aufbau und Einstellungen nicht nachgewiesen werden. Die rote Linie zeigt den Zusammenhang von Dimerabstand und Zwischenwinkel für einen festen Stoßparameter von 1.5 a.u. Um diesen zu erhalten, wurde der Abstand der beiden Zentren transversal zum Ionenstrahl auf einem Wert von 1.5 a.u. festgehalten und für jeden beliebigen Abstand der Winkel berechnet. Ereignisse mit Winkeln, die oberhalb der roten Kurve liegen, werden durch einen kleinen Stoßparameter selektiert. Beide Kurven schneiden sich bei etwa 12 a.u. Der Bereich zwischen den Kurven links neben dem Schnittpunkt stellt den tatsächlichen Messbereich dar. Für kleinere bzw. größere Stoßparameter ergeben sich dementsprechend Schnittpunkte weiter links bzw. weiter rechts. Für einen Stoßparameter von 3.5 a.u. ergibt sich ein Schnittpunkt bei etwa 22 a.u. (Reflexionsnäherung KER = 1.2 eV). Das erklärt, warum zumindest tendenziell auch in diesem Experiment keine kleinen KERs beobachtet werden konnten.

In Abbildung 5.31 wird oben rechts eine schematische Darstellung einer zweidimensionalen Abstandsverteilung gezeigt, die sich aus der Reflexionsnäherung berechnen lässt. Hier wird der Abstand und die Ausbruchsrichtung des Dimers in einem Spektrum dargestellt. Die Skala ist dabei so gewählt, dass die Mitte der beiden atomaren Zentren bei $x = 0$ liegt. Unten sind die zweidimensionalen Abstandsverteilungen, wie sie sich aus dem Experiment ergeben, präsentiert (links: für den doppelten Elektroneneinfang, rechts: für die Transferionisation). Die beiden Abstandskomponenten wurden dabei wie folgt berechnet:

$$R_x = \frac{R}{2} \cos(\theta) \quad (5.34)$$

$$R_y = \frac{R}{2} \sin(\theta) , \quad (5.35)$$

wobei θ aus den Impulsen im Relativimpulsen bestimmt wurde:

$$\theta = \arccos\left(\frac{p_R^{z,M}}{p_R^M}\right) \quad (5.36)$$

Die Verteilungen wurden für $R_y < 0$. gespiegelt. Was sich an diesen beiden Spektren sehr gut erkennen lässt, ist, dass die Verteilung für den doppelten Elektroneneinfang in y-Richtung sehr viel schmäler als die Verteilung für die Transferionisation. Das ist eine direkte Konsequenz der schmalen Stoßparameterverteilung für den zweifachen Elektroneneinfang. Das Spektrum zeigt jedoch auch sehr deutlich das Totzeitproblem und macht das Verhalten der Abstandsverteilungen in Abbildung 5.29 klar. Das Totzeitproblem hat aufgrund der Stoßparameterabhängigkeit beim doppelten Elektroneneinfang einen sehr viel größeren Effekt als bei der Transferionisation. Die Verteilung des Einfangs wird daher maßgeblich von der Totzeit

bestimmt, was dazu führt, dass die Abstandsverteilung bei kleinen Abständen ihr Maximum hat. Bei der Transferionisation ist dies nicht der Fall. Wenn man jedoch kleinere Zwischenwinkel betrachtet, wird auch hier der Schnitt durch die Totzeit bei kleiner werdendem Winkel dominanter. Daher zeigt die Abstandsverteilung für einen Zwischenwinkel von 5° ein anderes Verhalten als bei größeren Winkeln.

Zusammenfassend lässt sich also sagen, dass die Ergebnisse dieser Arbeit für große KERs denen von Havermeier et al. entsprechen. Auch in dieser Arbeit gab es allerdings ein Effizienzproblem, das die Messung der KER-Verteilung stark beeinflusst hat. Aufgrund der speziellen Kinematik des Zwei-Zentren-Prozesses kann jedoch kein Wert benannt werden, ab dem die Effizienz so stark verringert ist, dass man den Daten keinen Glauben mehr schenken sollte. Betrachtet man den Vergleich der KER-Verteilung mit der des Photoionisationsexperiment, so lässt sich vermuten, dass KER-Werte kleiner 2.8 eV durch die mangelnde Effizienz zu stark beeinträchtigt werden.

5.5.2. Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem Ladungstransfer

Das folgende Kapitel wird sich wie die Abschnitte davor auch zunächst auf die Kinematik des Ionenstoßes konzentrieren und dann auf Größen eingehen, die etwas über den im System ablaufenden Prozess, in diesem konkreten Fall der Ladungstransfer, aussagen. Größen, die Informationen über den Stoß selbst enthalten, sind hier ebenfalls die Winkelverteilungen der Dimerachse zum Projektilion. Diese sind in Abbildung 5.32 dargestellt. Da der Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem Ladungstransfer in beiden Reaktionskanälen, doppelter Elektroneneinfang und Transferionisation, stattfindet, wurden die Winkelverteilungen zum Vergleich gegenüber gestellt. Die Pfeile zeigen die Richtung des Impulsübertrags an.

In der transversalen Ebene zum Ionenstrahl zeigen die Winkelverteilungen für beide Fälle eine Rotationssymmetrie. Die Verteilung des Winkels zwischen Ionen- und Dimerachse ist für den doppelten Elektroneneinfang im Gegensatz zu der der Transferionisation nicht vollständig rotationssymmetrisch. Berechnet man auch hier wieder den kompletten Impulsübertrag aus dem Summenimpuls der Rückstoßionen, so lässt sich auch hier der Zwischenwinkel von Dimerachse und diesem Übertrag bestimmen. Die entsprechenden Winkelverteilungen sind in Abbildung 5.32 unten zu sehen. Hier erkennt man in beiden Fällen vermehrt Aufbrüche entlang der Dimerachse. Dieses Verhalten ist wieder mit einem Rückstoß auf eines der beiden Zentren zu verstehen: Wie beim Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem IC-Zerfall findet die Coulombexplosion des Dimerions beim Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem Ladungstransfer auch erst nach einer gewissen Zeit statt. Das Potenzial dieses Dimerions führt ebenfalls dazu, dass es kontrahiert, bis es bei einem Abstand von 2.9 a.u. zu einem Ladungstransfer zwischen den beiden Zentren kommt. Ein Rückstoß durch Projektil und Elektron kann, je nach dem in welche Richtung er zeigt, dieses Zusammenlaufen beschleunigen bzw. ein Auseinander-

derlaufen der beiden Zentren zur Folge haben. Aufgrund des Potentials, der ursprünglichen Abstandsverteilung und der großen Zerfallszeiten ist jedoch die Anzahl der Dimerionen, die durch den zusätzlichen Rückstoß kleine Abstände erreichen und über einen Ladungstransfer zerfallen, größer als die Zahl derjenigen Dimerionen, bei denen es durch einen entgegengesetzten Rückstoß zu keinem Ladungstransfer kommt. Es ist daher davon auszugehen, dass der Rückstoßeffekt für die vermehrten Ereignisse entlang des Impulstransfers verantwortlich ist.

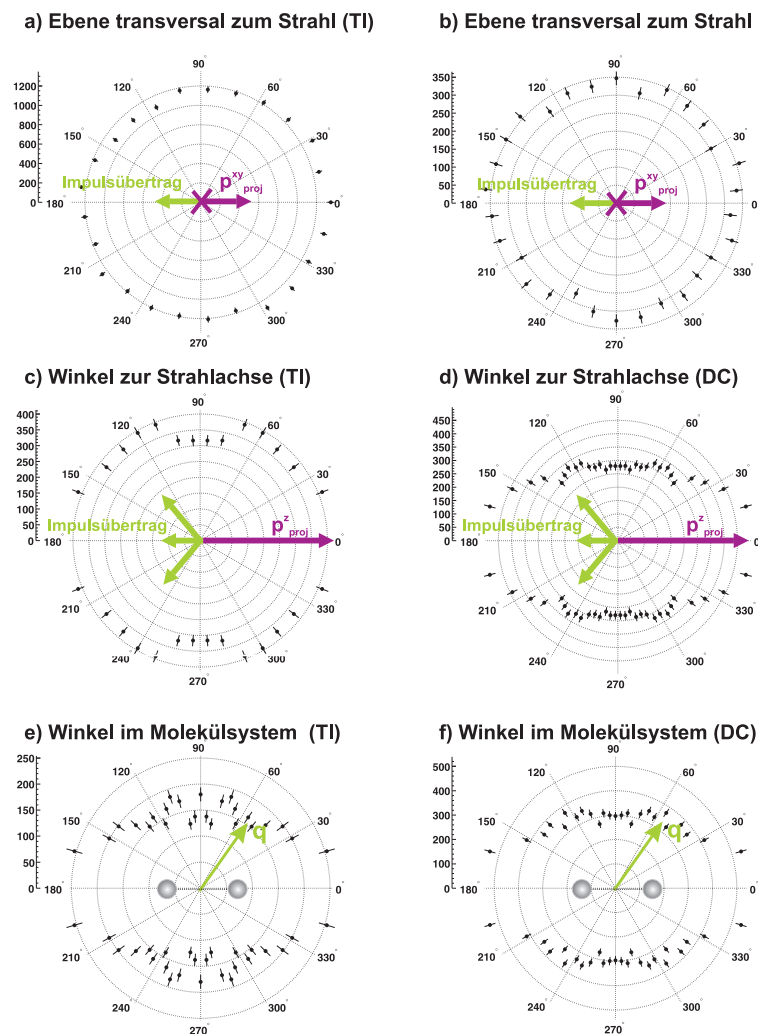


Abb. 5.32.: Winkelverteilung der Dimerachse beim Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem Ladungstransfer. Links für den Fall der Transferionisation. Rechts für den doppelten Elektroneneinfang. In a) und b) Winkelverteilung bezüglich der Impulsrichtung des Projektils in der Ebene transversal zur Ausbreitungsrichtung des Projektilenstrahls (xy -Ebene) dargestellt. c) und d) zeigen die Ausrichtung bezüglich der Ionenstrahlachse. e) und f) zeigt die Winkelverteilung des Impulsübertrags $\vec{q} = (p_{x,sum}^R, p_{y,sum}^R, p_{z,sum}^R)$ im Molekülsystem.

Dass man bei der Transferionisation keine vermehrten Ereignisse entlang der Ionenstrahlachse sieht, hängt damit zusammen, dass das Elektron zur Impulsbilanz beiträgt. Im Fall des doppelten Elektroneneinfangs kommt der Impulsübertrag auf das Dimer komplett vom Projektil. Berechnet man den KER und die Photonenenergie mit ein, so ergibt sich longitudinal zum Strahl ein Impulsübertrag von

$$p_z^{sum} = \frac{Q_c}{v_p} - m_e v_p + \frac{KER}{v_p} + \frac{E_\gamma}{v_p} > 2.0 a.u. \quad (5.37)$$

Er ist größer als in den beiden anderen Richtungen. Dadurch zeigt der resultierende Impulsübertrag nie senkrecht zum Ionenstrahl. Aufgrund des Rückstoß-Effekts kommt es damit entlang der Achse zu vermehrten Zerfällen. Im Fall der Transferionisation kann das Elektron auch einen Impuls auf das Dimer übertragen. Dadurch ist eine Ausrichtung gegenüber der Strahlachse nicht mehr so deutlich zu sehen. Man erkennt aber, wenn man sich den kompletten Impulstransfer (\vec{q}) auf das Dimer anschaut, dass es entlang dieses Vektors zu vermehrten Aufbrüchen kommt. Betrachtet man sich die Zerfallszeiten von einigen Nanosekunden, die Johnson et al. [Joh78] für den Ladungstransfer bestimmt haben, erscheint es auch hier wieder seltsam, dass überhaupt eine Vorzugsrichtung erhalten bleibt. Vermutlich ist dies auch hier wieder damit zu erklären, dass bei einer Drehung im Raum diese nicht komplett verloren geht.

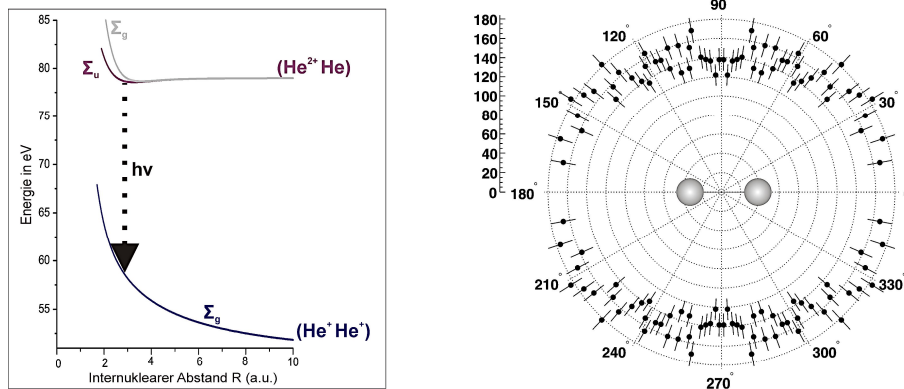


Abb. 5.33.: Links: Radiativer Ladungstransfer im Potenzialdiagramm. Rechts: Emissionsrichtung des Elektrons im dimerfesten System.

Bei der Transferionisation wird während der Wechselwirkung mit dem Projektil noch zusätzlich ein Elektron emittiert. Wie beim IC-Zerfall auch lässt sich die Emissionsrichtung des Elektrons im dimerfesten System darstellen. Abbildung 5.33 zeigt die Winkelverteilung des Elektrons in Bezug zur Dimerachse. Es zeigt sich jedoch auch hier eine Vorzugsrichtung. Dies bestätigt nochmal des Rückstoß-Effekt, hier in diesem Fall vom Elektron.

Im Potenzialdiagramm (Abb.5.32) entspricht der radiative Ladungstransfer einem Übergang

von der Potenzialkurve mit dem Dissoziationslimit ($\text{He}^0, \text{He}^{2+}$) auf die Potenzialkurve mit dem Dissoziationslimit (He^+, He^+). Die KER-Verteilung muss ähnlich wie beim IC-Zerfall auch dementsprechend Informationen über den Zwischenzustand des Dimerions enthalten. Wie man in Abbildung 5.34 erkennen kann, besitzt die KER-Verteilung neben dem Hauptmaximum auch kleinere Nebenmaxima. Zum anderen lässt sich ein klarer Abfall der Kurve bis etwa 6 eV beobachten. Vergleicht man die Tiefe der Potenzialkurve mit dem Dissoziationslimit ($\text{He}^0, \text{He}^{2+}$) mit derjenigen, die vor dem IC-Zerfall populiert wird (Dissoziationslimit ($\text{He}^0, \text{He}^{+*}$)), so fällt auf, dass beide etwa die gleiche Tiefe besitzen. Es ist daher zu erwarten, dass vor dem Ladungstransfer verschiedene Vibrationslevel besetzt wurden und dass die KER-Verteilung daher einer Überlagerung von Übergängen aus diesen verschiedenen Schwingungszuständen entspricht.

Da der radiative Ladungstransfer bei kleinen Abständen stattfindet, lassen sich die Abstände mit der Reflexionsnäherung berechnen. Der Übergang vom Zwischenzustand in den Endzustand geschieht durch Aussenden eines Photons. Wie in Kapitel 2.3.4 erläutert, lässt sich hierfür das Dipolmoment berechnen. Das Quadrat dieses Dipolmoments ist proportional zur Übergangswahrscheinlichkeit. Vergleicht man die berechnete Abstandsverteilung mit dem Quadrat des Dipolmoments, lässt sich sehr deutlich erkennen, dass der Abfall der Abstandsverteilung tatsächlich durch diese Verteilung gegeben wird.

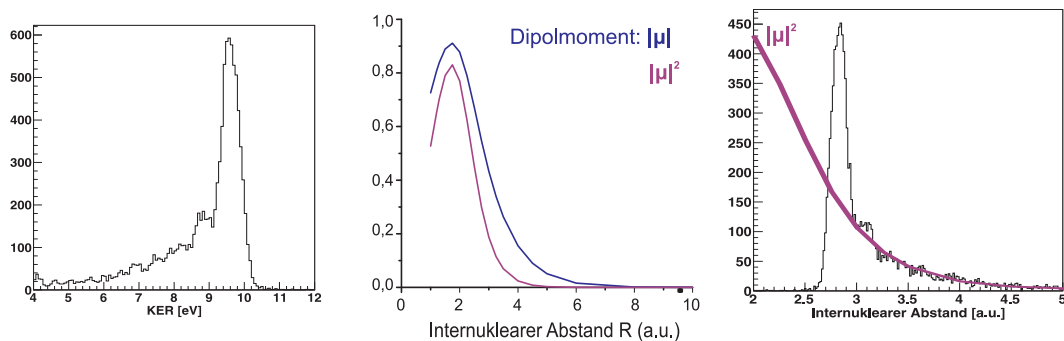


Abb. 5.34.: KER- und Abstandsverteilung beim radiativen Ladungstransfer. Links: Zur Darstellung der KER-Verteilung wurde nur die Verteilung genutzt, die sich aus dem soppelten Elektroneneinfang ergab, da sich hier die Reaktionskanäle besser trennen liessen. Mitte: Dipolmoment und Quadrat des Dipolmoments für den radiativen Elektroneneinfang [Coh78]. Rechts Vergleich der Abstandsverteilung, die mit der Reflexionsnäherung aus der KER-Verteilung rechts gewonnen wurde, mit dem Quadrat des Dipolmoments.

In Kapitel 4.1 wurde das Maximum, das vom Photon stammt, zur Bestimmung des Flugzeitnullpunkts benutzt. Natürlich liegt es nahe, dass dieses Photon von dem radiativen Ladungstransfer stammt. Über die Breite dieses Maximums wäre es möglich, die Zerfallszeit abzuschätzen, die von Johnson et al. [Joh78] auf bis zu 10 ns bestimmt wurde. Daher wurde eine Bedingung auf das entsprechende Flugzeitmaxima gesetzt, um das zweidimensionale

Flugzeitspektrum des zweiten und dritten nachgewiesenen Rückstoßions darzustellen. Leider konnte hier keine entsprechende Linie des (He^+ , He^+) beobachtet werden. Vermutlich war die Nachweiseffizienz von drei Teilchen (Photon, Ion, Ion) auf dem Ionendetektor zu gering.

5.5.3. Elektronenimpulse der Ein- und Zwei-Zentren-Transferionisation

Sowohl bei der Ein-Zentren- als auch bei der Zwei-Zentren-Transferionisation wird ein Elektron durch die Wechselwirkung mit dem Projektil emittiert. Der Unterschied in beiden Prozessen besteht jedoch darin, dass die Wechselwirkung beim Zwei-Zentren-Prozess aus einer reinen Ionisation besteht, während beim Ein-Zentren-Prozess die Ionisation gleichzeitig mit einem Einfang stattfindet, was teilweise zu unterschiedlichen Impulstransfers auf das Elektron führen sollte. Die Ein- und Zwei-Zentren-Transferionisation eignet sich daher prinzipiell gut, um eventuelle Unterschiede der Ionisationsprozesse zu untersuchen. Allerdings gibt es hier einige Probleme. Zum einen können die beiden Ionisationsprozesse beim Zwei-Zentren-Prozess, die je nach Reihenfolge stattfinden, nicht unterschieden werden. In Abschnitt 5.5.1 hat sich jedoch gezeigt, dass der Prozess, in dem zunächst die Ionisation stattfindet und danach der Einfang, stark überwiegt. Dadurch kann man zumindest näherungsweise davon ausgehen, dass hier die Impulsverteilungen der Ionisation (He^{2+} , He^0) und der Transferionisation (He^{2+} , He^0) verglichen werden können. Zum anderen führt die Bedingung (Energierhaltung Elektron und Rückstoßionen), mit denen die Prozesse untereinander getrennt werden, zu einem Schnitt im Impulsraum der Elektronen.

Generell sollten die Ergebnisse der Ein-Zentren-Transferionisation dieser Arbeit mit den Ergebnissen der Transferionisation an einem atomaren Zentrum vergleichbar sein. In Abbildung 5.35 (oben links) sind Resultate von Schöffler et al. [Sch06] zu sehen. Die Impulse des Elektrons sind hierbei in der so genannten Streuebene dargestellt. Die x-Achse dieser Ebene wird durch den Impulsvektor des Projektilions in der Transversalebene (xy-Ebene) p_{xy}^p definiert, die y-Achse entspricht der Ionenstrahlachse (z-Richtung). Die Impulse, die aus dieser Arbeit gewonnen wurden, wurden ebenfalls in dieser Ebene dargestellt (Abb. 5.35 oben rechts). Man erkennt in beiden Fällen, dass das Elektron in der x-Richtung entgegengesetzt zum Projektil gestreut wird. Allerdings ist dies in den Daten hier nicht so deutlich zu sehen wie in denen von Schöffler et al. Gründe hierfür sind die bereits angesprochene Überlagerung der Elektronen des IC-Zerfalls (Ringstruktur) und hier erreichte Auflösung. In der z-Richtung wird der größte Teil der Elektronen, wie man es in der Binary-Encounter-Näherung erwarten würde, nach vorne gestreut. Man erkennt, dass die hier gemessene Verteilung bei etwa 2.5 a.u. endet, während von Schöffler et al. auch Impulse bis 5 a.u. gemessen wurden. Der Grund hierfür liegt in der Größe des Magnetfeldes, das hier gewählt wurde. Mit diesem konnten nur Impulse bis 2.5 a.u. vermessen werden. Sonst lassen sich jedoch keine Unterschiede in den beiden Spektren erkennen.

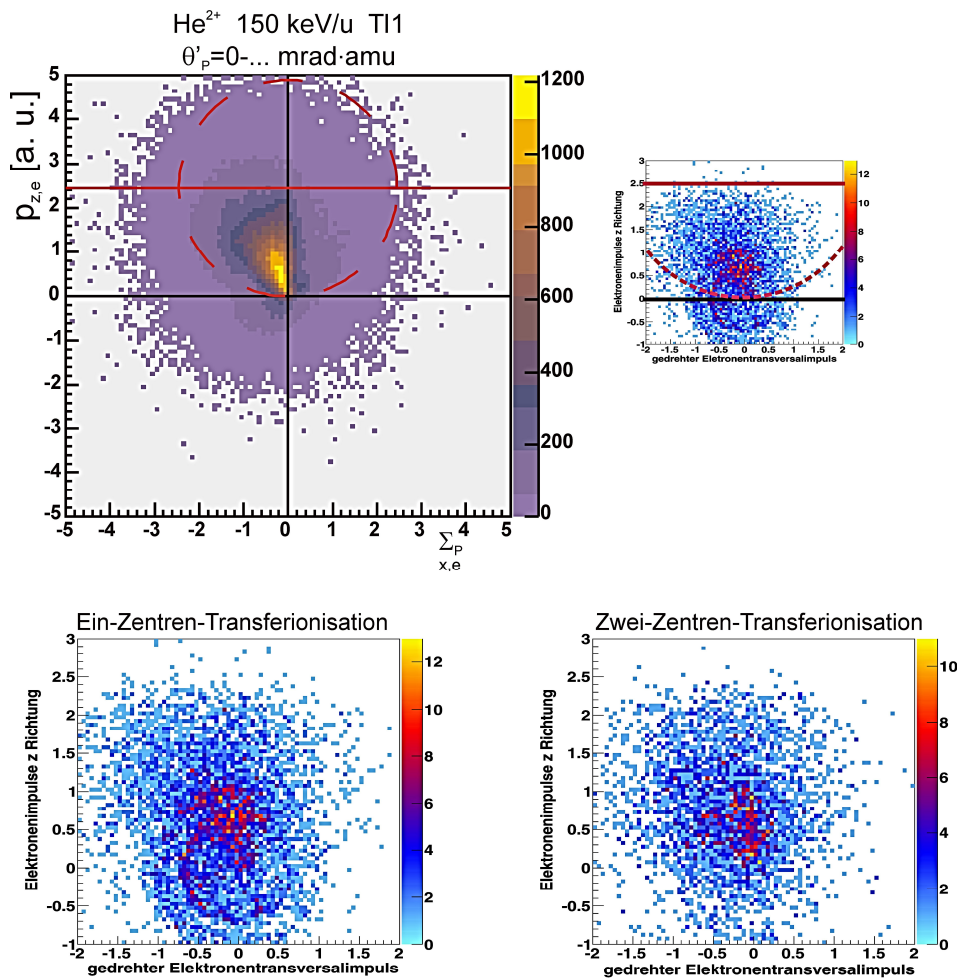


Abb. 5.35.: Darstellung der Elektronenimpulse in der Streuebene. Oben links: Die Ergebnisse im atomaren Streusystem (He²⁺, He⁰), 150 keV/u von Schöffler et al. [Sch06]. Oben rechts: die Ergebnisse dieser Arbeit für die Ein-Zentren-Transferionisation. Zum besseren Vergleich ist das Spektrum im gleichen Maßstab dargestellt wie das Spektrum links. Unten: Elektronenimpulse der Ein- und Zwei-Zentren-Transferionisation (vergrößert). Die ringartigen Verteilungen stammen von den Elektronen aus den IC-Zerfällen, die sich durch die gesetzte Bedingung auf einen festen KER-Bereich nicht unterdrücken ließen.

Vergleicht man nun die Ergebnisse zwischen der Ein- und Zwei-Zentren-Transferionisation dieser Arbeit (Abbildung 5.35 unten), so zeigen diese keine großen Unterschiede sowohl in der Streuebene, als auch im Spektrum, in dem nur der z-Impuls dargestellt ist (siehe Abb. 5.36). Im zweidimensionalen Impulsspektrum könnte man vermuten, dass der Impulsübertrag in der transversalen Ebene beim Zwei-Zentren-Prozess etwas geringer ist. Betrachtet man sich jedoch die Winkelspektren in der entsprechenden Ebene, so lassen sich hier keine Abweichungen erkennen. Bei genauerem Betrachten lassen sich beim z-Impuls der Ein-Zentren-Transferionisation bei $p_z = 0$. mehr Ereignisse beobachten als bei der Zwei-Zentren-

Transferionisation. Diese stammen vermutlich von einem Shake-off-Prozess. Nach bisherigen Erkenntnissen führt dieser zu einer Verteilung um den Impuls Null. Wie in Kapitel 2.1.2 erklärt, handelt es sich hierbei um einen Korrelationsprozess, bei dem durch den Einfang des einen Elektrons sich das Potenzial des Atoms so ändert, dass ein zweites Elektron emittiert bzw. 'abgeschüttelt' wird. Bei einer reinen Einfachionisation, wie sie beim Zwei-Zentren-Prozess stattfindet, ist ein solcher Prozess und damit eine entsprechende Verteilung nicht zu erwarten.

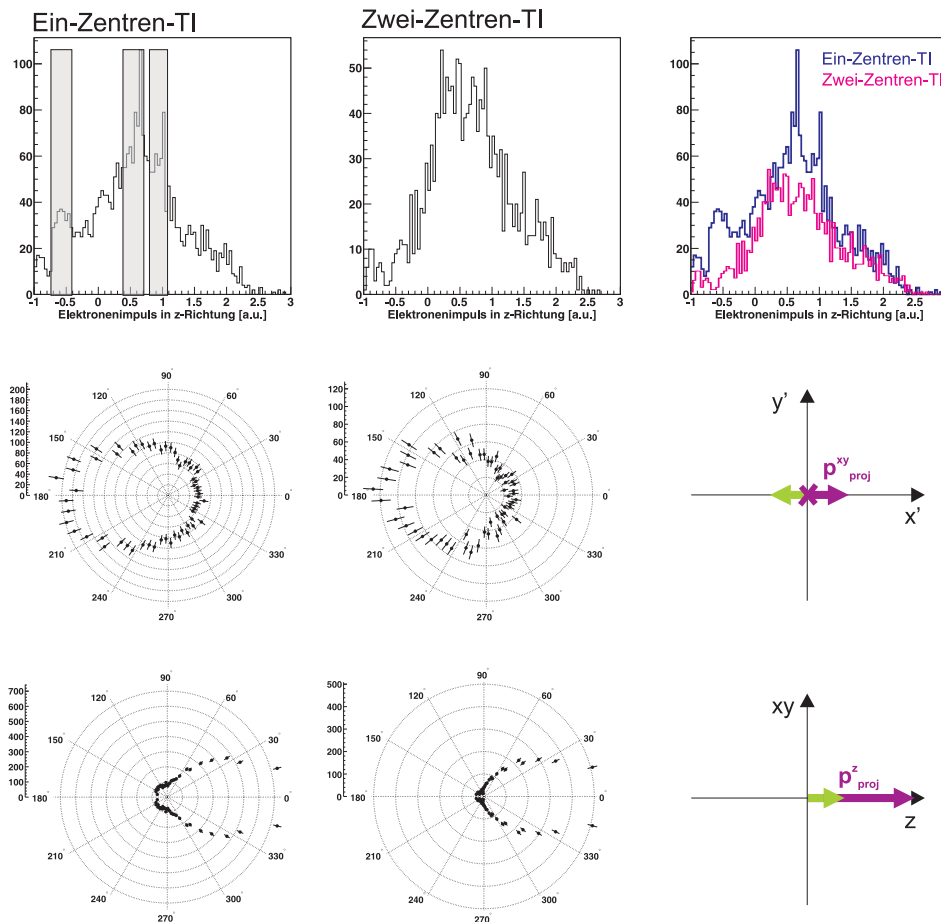


Abb. 5.36.: Vergleich der Ein- und Zwei-Zentren-Transferionisation. Oben: Longitudinalimpuls des Elektrons. Beim Ein-Zentren-Prozess ist dieser überlagert durch die Elektronenverteilung der IC-Zerfälle (graue Balken). Dennoch kann man erkennen, dass es bei der Ein-Zentren-Transferionisation mehr Ereignisse um die Null gibt. Diese stammen vermutlich von Elektronen aus einem Shake-off-Prozess, der nur aufgrund von Korrelationseffekten stattfinden kann. Mitte: Winkelverteilung in der transversalen Ebene zum Strahl. Das Projektil wird immer nach rechts gestreut. Unten: Winkelverteilung bezüglich der Strahlachse.

5.6. Diskussion der Wirkungsquerschnitte

Die Bestimmung bzw. Kallibration der Wirkungsquerschnitte der einzelnen Prozess ist nicht einfach. Prinzipiell benötigt man hier einen Wirkungsquerschnitt eines Prozesses, der in dieser Arbeit vollständig vermessen wurde und aus der Literatur bekannt ist. Relativ zu diesem Wert lassen sich die anderen Wirkungsquerschnitte bestimmen bzw. überprüfen. Bei dieser Messung gibt es hierbei jedoch mehrere Schwierigkeiten, die bereits in den Kapiteln davor erläutert wurden. Sie sollen hier dennoch noch einmal aufgelistet werden, um ihren Einfluss auf die Bestimmung des Wirkungsquerschnitts deutlich zu machen:

- Die Multikanalplatten besaßen mittig einen Bereich, in dem die Nachweiseffizienz geringer war. Dies ist der Bereich, in dem hauptsächlich die Monomere auf die Platten getroffen sind. Dadurch ist ein Vergleich mit den Wirkungsquerschnitten der Reaktionen mit den Monomeren nur erschwert möglich.
- Durch die Totzeit des Detektors wird ein Teil der Dimeraufbrüche nicht nachgewiesen. Durch die Tatsache, dass die Rückstoßionenimpulsverteilung des Zwei-Zentren-Prozesses eine sehr starke Ausrichtung gegenüber der Projektilstrahlachse hat und der Totzeitbereich genau um die Strahlachse liegt, ist der Verlust an Ereignissen für diesen Prozess anteilmäßig höher als für die anderen Prozesse.
- Sowohl beim anschließenden IC-Zerfall als auch beim radiativen Ladungstransfer ergeben sich die gemessenen Raten aus dem Wirkungsquerschnitt des Ionenstoßes und der Zerfallswahrscheinlichkeit des anschließenden Prozesses. Die Wirkungsquerschnitte des Ionenstoßes, die dem eines einfachen Ion-Atom-Stoßes entsprechen, sind bereits vermessen worden und hinreichend bekannt. Der angeregte Zustand ($\text{He}^{*+}(2n), \text{He}$) kann insbesondere bei größeren Abständen auch strahlend zerfallen. Beim radiativen Ladungstransfer ist es auch denkbar, dass das Dimerion ($\text{He}^{2+}, \text{He}^0$) durch die attraktive Potenzialkurve in diesem Verbund zusammenbleibt. Da dieses molekulare System das gleiche Masse-zu-Ladungs-Verhältnis besitzt wie die He^+ -Ionen, ist diese Rate auch nicht durch die Messung zu bestimmen. Die Zerfallsraten können in beiden Fällen nur abgeschätzt werden.
- Die Wirkungsquerschnitte der Zwei-Stufen-Prozesses sind nicht bekannt. Auch diese können nur durch die berechnete Abstandsverteilung und die Wirkungsquerschnitte der entsprechenden Ion-Atom-Stoßreaktionen abgeschätzt werden.

Im Folgenden soll dennoch versucht werden, die Verhältnisse der verschiedenen Wirkungsquerschnitte zumindest in ihrer Größenordnung abzuschätzen. In Abschnitte 2.3.4 wurden die KER-Verteilungen gezeigt, die sich für den doppelten Elektroneneinfang und die Transferionisation ergeben. Aus diesen Abbildungen lässt sich das Verhältnis der Einstufenprozesse

mit anschließendem Ladungstransfer für den doppelten Elektroneneinfang und die Transferionisation berechnen:

$$\frac{\sigma_{CT,DC}}{\sigma_{CT,TI}} = 0.2 \quad (5.38)$$

Betrachtet man sich die Wirkungsquerschnitte, die sich aus dem Stoß mit einem He^{2+} ergeben, (Tabelle 5.2 oben) so zeigt sich ein Verhältnis von 0.15. Wie zu erwarten war, wird die Anzahl der Zerfälle durch den Wirkungsquerschnitt der vorangegangenen Reaktion mit dem Projektil beeinflusst.

Stoßsystem	Prozess	Wirkungsquerschnitt	Zerfallsprozess
$\text{He}^{2+} + \text{He}$	Transferionisation	$1.0 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$	CT
$\text{He}^{2+} + \text{He}$	Doppelter Elektroneneinfang	$1.5 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$	CT
$\text{He}^+ + \text{He}$	Elektroneneinf. mit Anregung (P o. T)	$5.0 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$	ICD
$\text{He}^{2+} + \text{He}$	Elektroneneinfang	$3.0 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$	direkt
$\text{He}^{2+} + \text{He}$	Einfachionisation	$2.0 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$	direkt
$\text{He}^+ + \text{He}$	Elektroneneinfang	$1.0 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$	direkt
$\text{He}^+ + \text{He}$	Einfachionisation	$1.0 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$	direkt

Tab. 5.2.: Wirkungsquerschnitte für Ion-Atom-Stöße. Oben sind diejenigen aufgetragen, die für den Ein-Zentren-Prozess mit anschließendem Ladungstransfer (CT) wichtig sind. In der Mitte ist der Wirkungsquerschnitt des Einfangs mit Anregung gezeigt, der zu einem IC-Zerfall (ICD) führt (aus ([Sch06])). Für den Einfang mit Anregung des Targetatoms wurde ein Anteil von 0.5 angenommen. Unten sind die Wirkungsquerschnitte aufgetragen, die für den Zwei-Zentren-Prozess relevant sind.

Vergleicht man jedoch den Wirkungsquerschnitt der Transferionisation mit anschließendem Ladungstransfer mit dem eines Einfangs mit anschließendem IC-Zerfall, ergibt sich:

$$\frac{\sigma_{SC*,ICD}}{\sigma_{CT,TI}} = 2.1 \quad (5.39)$$

Aus den Wirkungsquerschnitte aus Tabelle 5.2 würde ein Verhältnis von 0.5 folgen. Berücksichtigt man, dass der ICD nur stattfinden kann, wenn das entsprechende Zentrum im Dimer angeregt ist, er also nur bei einer Targetanregung stattfindet, würde man einen noch kleineren Wert erwarten. Hinzu kommt noch, dass das Dimerion nach der Reaktion auch strahlend zerfallen kann. Real müsste der Wirkungsquerschnitt für den Einfang mit Anregung und anschließendem ICD eher bei $1.0\text{-}3.0 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$ liegen, woraus sich sogar ein Verhältnis zwischen 0.1 - 0.3 berechnen lässt. Das bedeutet im Umkehrschluss, dass ein Dimerion He_2^{2+} (Dissoziationslimit: He^{2+} , He^0) nach einer Einzentren-Transferionisation bzw. einem Einzentren-Doppeleinfang eher die Tendenz besitzt, im Molekülverbund zu bleiben als

über einen Ladungstransfer zu zerfallen. Aus dem Vergleich mit dem Ein-Zentren-Prozess mit anschließenden Zerfallsprozess und dem zu erwartenden Wirkungsquerschnitt für eine Einzentren-Transferionisation (Tabelle 5.2 oben) würde sich eine Zerfallswahrscheinlichkeit von 5-15 Prozent ergeben.

Für den Zwei-Zentren-Prozess ist die Bestimmung des Wirkungsquerschnitts nicht so einfach. Zunächst lässt sich das Verhältnis aus der Zwei-Zentren-Transferionisation und dem Zwei-Zentren-Doppeleinfang bilden:

$$\frac{\sigma_{TS,DC}}{\sigma_{TS,TI}} = 0.038 \quad (5.40)$$

Bei einem Zwei-Zentren-Doppeleinfang findet zunächst ein Einfacheinfang ($\text{He}^{2+} + \text{He}$) und danach ein weiterer Einfacheinfang ($\text{He}^+ + \text{He}$) statt. Der Wirkungsquerschnitt, der diesen Prozess bestimmt ist der erste Einfang. Bei der Transferionisation kommt es an einem atomaren Zentrum zu einer Ionisation und am anderen zu einem Einfang. Wie die Simulation der Winkelverteilung in Kapitel 5.5.1 gezeigt hat, überwiegt jedoch der Fall, dass es erst zu einer Ionisation und dann zu einem Einfang kommt.

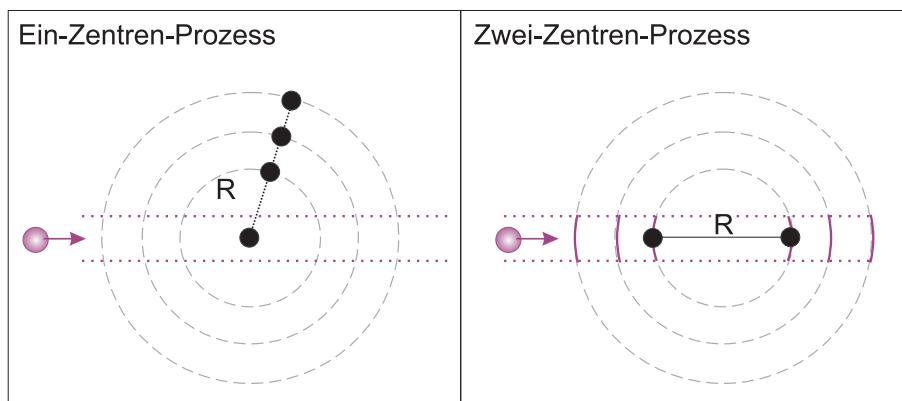


Abb. 5.37.: Schematische Darstellung des Wirkungsquerschnitts im Fall des Ein-Zentren- und Zwei-Zentrenprozesses.

Um den Wirkungsquerschnitt für diesen Prozess zu berechnen, kann man folgende geometrische Überlegung anstellen: Im Normalfall ist die internukleare Achse des Heliumdimers statistisch im Raum verteilt. Je nach Abstand liegen die beiden Zentren auf einer Kugel mit dem Radius R und der Kugeloberfläche ($4\pi R^2$). Wie viele Heliumdimere auf einer solchen Kugeloberfläche 'liegen', hängt von der Wahrscheinlichkeitsverteilung des Abstands ab. Bei einem Ein-Zentren-Prozess entspricht der Wirkungsquerschnitt dem Wirkungsquerschnitt, den man über einen Stoß mit einem Atom bestimmen kann. Das Dimer kann in alle Richtungen zeigen und alle Abstände besitzen. Bei einem Zwei-Zentren-Prozess wird immer nur ein Teil der oben beschriebenen Kugeloberflächen selektiert. Dieser Teil berechnet sich aus dem Verhältnis

der beiden Ein-Zentren-Wirkungsquerschnitte zur kompletten Kugeloberfläche. Da dieses für jeden Dimerabstand unterschiedlich ist, muss über die Abstandsverteilung integriert werden und mit der jeweiligen Abstandswahrscheinlichkeit $P(R)$ gewichtet werden:

$$\beta = \int_R P(R) \frac{\sigma_1 + \sigma_2}{4 \pi R^2} dR \quad (5.41)$$

Die Funktion $P(R)$ ist aus der Kernabstandsverteilung von Luo et al. [Luo93] generiert worden, in dem diese auf 1 normiert wurde. β lässt sich sowohl für die Zwei-Zentren-Transferionisation als auch den Zwei-Zentren-Doppeleinfang aus den Wirkungsquerschnitten aus Tabelle 5.2 berechnen:

$$\beta_{TS,DC} = 1.7 \cdot 10^{-4} \Rightarrow \sigma_{TS,DC} = \beta_{TS,DC} \cdot 2 \cdot \sigma_{1SC} = 1.0 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^2 \quad (5.42)$$

$$\beta_{TS,TI} = 8.4 \cdot 10^{-4} \Rightarrow \sigma_{TS,DC} = \beta_{TS,TI} \cdot 2 \cdot \sigma_{1SI} = 3.4 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2 \quad (5.43)$$

Der Faktor 2 ergibt sich durch die Möglichkeit mit den beiden Zentren wechselzuwirken. Aus diesen Werten ergibt sich ein Verhältnis der Wirkungsquerschnitte von 0.034.

5.6.1. Abschätzung der Dimerrate

Um die Dimerrate abzuschätzen, wurde ein Flugzeitspektrum erstellt, bei dem die Bedingung auf das umgeladenen Projektion He^+ gesetzt wurde. Abbildung 5.38 zeigt das Ortsbild des Projektildetektors (xy-Ebene) mit der entsprechenden Bedingung sowie das dazugehörige Flugzeitspektrum. Es lassen sich im Flugzeitspektrum zwei Maxima erkennen, die aufgrund der bekannten elektrischen Feldstärke dem Masse-zu-Ladungs-Verhältnis von 2 bzw. 4 und damit He^{2+} -Ionen bzw. He^+ -Ionen zugeordnet werden können. Die He^+ -Ionen können in diesem speziellen Fall (Bedingung: He^+ -Projektilionen) nur durch einen Elektroneneinfang entstanden sein, während die He^{2+} -Ionen in einer Transferionisation noch ein weiteres Elektron verloren haben müssen. Integriert man über die beiden Maxima (He^{2+} : 1.8 Mio., He^+ : 4.5 Mio.), so lässt sich das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte von Transferionisation und Elektroneneinfang berechnen. Es ergibt sich ein Wert von 0.4. Aus den Wirkungsquerschnitten, die im letzten Abschnitt dargestellt wurden, berechnet sich etwa ein Wert 0.33. Die Abweichung könnte darin begründet sein, dass der Wirkungsquerschnitt für den Einfang des Stoßsystems (He^{2+} , He) aus einer Interpolation abgeschätzt wurde.

Für die Abschätzung der Dimerrate ist nun ein weiteres Maximum interessant, dass rechts neben dem der He^+ -Ionen liegt (siehe Zoom in Abbildung 5.38). Dieses muss aufgrund der Flugzeit ein Masse-zu-Ladungs-Verhältnis von 8 besitzen. Zweifach geladene Sauerstoffionen haben ein solches Verhältnis. Ein zweifach geladenes Sauerstoffion kann jedoch nur durch eine Dissoziation eines Moleküls entstehen. In diesem Fall müsste das Flugzeitmaximum viel

breiter sein. Es ist daher anzunehmen, dass es sich hier um die Verteilung der He_2^+ -Ionen handelt, die ebenfalls durch einen Einfang an einem Zentrum des Dimers entstanden sind. Der Wirkungsquerschnitt sollte dem des entsprechenden Ion-Atom-Stoßes entsprechen. Dadurch sollte es möglich sein, durch das Verhältnis der Ereignisse der He_2^+ -Flugzeitverteilung (Ereignisse: 30000) und der He^+ -Flugzeitverteilung den Dimeranteil grob zu bestimmen.

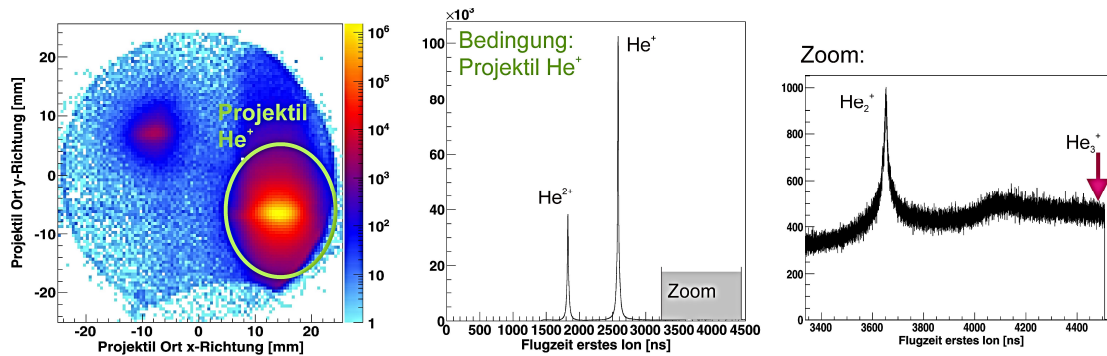


Abb. 5.38.: Spektren zur Abschätzung der Dimerrate. links: Ortsbild des Projektils (xy -Ebene). Um die Spektren in der Mitte bzw. rechts darzustellen, wurde eine Bedingung auf die Ortsverteilung der He^+ -Projektilionen gesetzt. Mitte: Flugzeitspektrum des ersten Rückstoßions mit der Bedingung auf die Ortsverteilung der He^+ -Projektilionen. Rechts: Flugzeitverteilung der He_2^+ -Rückstoßionen. Dieser Teil wurde aus dem Spektrum in der Mitte vergrößert. Zudem ist der Punkt markiert, wo nach dem Masse-zu-Ladungs-Verhältnis eines Trimerions (He_3^+) liegen müsste.

Hierbei sollte man jedoch bedenken, dass die He^+ -Ionen durch den Einfang selbst auch angeregt sein können. Schöffler et al. konnten für den Einfang vom Grundzustand in den Grundzustand des Projektils einen Anteil von 40 Prozent bestimmen, während für den Anteil, bei dem es beim Einfang zu einer Projektil- oder Targetanregung kommt, ein Wert von 55 Prozent ermittelt wurde. Beim Referenzmaximum der He^+ -Ionen kann die Targetanregung teilweise vernachlässigt werden, da ein Teil der angeregten Dimerionen über einen ICD zerfallen. vernachlässigt werden. Der entsprechende Anteil für den Einfang wird hier mit etwa 67.5 Prozent abgeschätzt (40 Prozent + 55 Prozent $3/4$). Zur Berechnung des Verhältnisses der beiden Flugzeitmaxima werden dementsprechend nur 81.5 Prozent der Ereignisse der He^+ -Flugzeitverteilung berücksichtigt. Damit ergibt sich für das Verhältnis:

$$\Gamma = \frac{E(\text{He}_2^+)}{E(\text{He}^+)} = 0.0082 \quad (5.44)$$

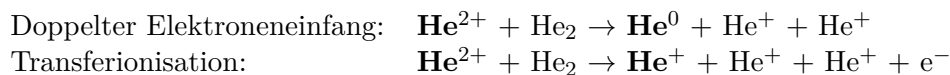
Das Ergebnis entspricht etwa dem Prozent, das mit Vordruck und Druck in der Expansionskammer aus Ergebnissen anderer Arbeiten bestimmt wurde. Es soll hier dennoch noch einmal betont werden, dass es sich um eine grobe Abschätzung handelt. Zum einen ist der Anteil der angeregten Heliumdimerionen, die strahlend zerfallen, nicht genau bekannt. Zudem landeten alle eben erwähnte Ionen etwa in der Mitte des Detektors und damit teilweise in einem

Bereich mit geringerer Nachweiseffizienz. Mit dieser Abschätzung wurde angenommen, dass dieser Bereich die Aufnahmearten der verschiedenen Ionen gleich beeinflusst hat, was nur näherungsweise gilt, da die Auftrefforte für die jeweiligen Ionen etwas unterschiedlich waren. Weiterhin wurde vorausgesetzt, dass He_2^+ -Ionen nicht durch den Aufbruch von Heliumtrimeren entstehen. Wenn man sich jedoch das Flugzeitspektrum in Abbildung 5.38 betrachtet, so ist bei 4500 ns kein Maximum der He_3^+ -Trimerionen zu sehen, was dafür spricht, dass ihr Anteil im Gasstrahl sehr gering war.

6. Zusammenfassung und Ausblick

6.1. Zusammenfassung

Mit dieser Arbeit konnte zum ersten Mal der Zerfall von Heliumdimeren in einem inelastischen Stoß mit schnellen Alphateilchen untersucht werden. Der Schwerpunkt lag hierbei auf der Erforschung des doppelten Elektroneneinfangs bzw. der Transferionisation, in denen das Dimer durch die Wechselwirkung zwei Elektronen verliert und in der Folge in zwei einfach geladenen Heliumionen fragmentiert:



Von experimenteller Seite bestand die besondere Herausforderung darin, aufgrund ihrer sehr geringen Bindungsenergie von nur 95 neV überhaupt erst Heliumdimere zu erzeugen. Dies wurde mittels einer Überschallexpansion von Heliumgas durch eine zusätzlich gekühlte Düse erreicht. Der so entstandene Gasstrahl enthielt etwa 1 Prozent Heliumdimere und wurde nach einer speziellen Kollimation mit dem Ionenstrahl gekreuzt. Mit Hilfe der Coltrims-Messmethode [Dör00, Ull03] war es möglich, die Impulse von Projektil und den Fragmenten des Dimers konzident zu messen. Insbesondere durch die Impulsbestimmung der Heliumionen aus dem Zerfall des Dimers konnte die Stellung der Dimerachse und die Energie im Schwerpunktsystem (KER) gewonnen werden. Durch die Impulsbestimmung war es ebenfalls möglich, die kinetische Energie der Elektronen zu berechnen.

Durch diese Informationen konnten drei unterschiedliche Zerfallskanäle nachgewiesen und eindeutig identifiziert werden. In einem dieser Kanäle kommt es zu einem so genannten Interatomic Coulombic Decay [Ced97]. Bei diesem Prozess kann von einem atomaren Zentrum über mehrere Angström Energie an ein Nachbaratom abgegeben werden, wodurch dort ein niederenergetisches Elektron emittiert wird. Hier konnte das erste Mal gezeigt werden, dass er auch nach einem Ionenstoß eine wichtige Rolle spielt: Wenn das Projektil an einem atomaren Zentrum des Heliumdimers ein Elektron einfängt und das zweite Elektron anregt, kann nach einer gewissen Zeit diese Anregungsenergie auf das zweite atomare Zentrum übertragen werden, wodurch dort ein Elektron frei wird. In der Folge zerfällt das Dimerion in zwei einfach geladene Ionen. Die fixe Anregungsenergie wird auf Elektron und Ionen aufgeteilt. Dadurch ist die Summe aus Elektronenenergie und Schwerpunktsenergie (KER) konstant

[Jah04, Hav10c]. Dieser kinematische Fingerabdruck konnte in dieser Arbeit eindeutig nachgewiesen werden, sowohl für eine Anregung in den Zustand $n=2$, als auch in höher angeregte Zustände ($n=3,4,5$).

Der zweite Zerfallskanal, der hier erstmalig nachgewiesen werden konnte, ist ein Zwei-Zentren-Prozess, in dem das Projektil unabhängig mit beiden Zentren stößt. Das Projektil kann jedoch nur innerhalb eines Bereichs, der durch den Stoßparameter gegeben ist, mit den Zentren des Dimers wechselwirken. Da dieser Bereich sehr viel kleiner als der Abstand der beiden Zentren ist, kann der Zwei-Zentren-Prozess nur stattfinden, wenn die Dimerachse in einem kleinen Winkel zur Ausbreitungsrichtung des Projektils steht. Der Prozessablauf bringt dementsprechend eine sehr anisotrope Winkelverteilung der Dimerachse mit sich, die in dieser Arbeit tatsächlich gemessen werden konnte. In einer detaillierteren Analyse war es sogar möglich, mittels einer gegebenen stoßparameterabhängigen Ionisations- und Einfangwahrscheinlichkeit die Winkelverteilung in einem einfachen Modell in sehr guter Übereinstimmung zu rekonstruieren. Die Technik erlaubt einen sensitiven Test theoretisch berechneter Ionisationswahrscheinlichkeiten. Da die Coulombexplosion in diesem Zerfallsprozess zur gleichen Zeit wie die Wechselwirkung mit dem Projektil stattfindet, muss die Energieverteilung im Schwerpunktsystem dieses Prozesses zudem auch Informationen über den Anfangszustand des Dimers enthalten. Aufgrund des großen Abstands der beiden Zentren sollten hier insbesondere kleine Aufbruchenergien zu beobachten sein. Es konnten tatsächlich Energien bis 0.5 eV gemessen werden. Allerdings zeigte sich aufgrund der speziellen Kinematik des Zwei-Zentren-Prozesses auch eine starke Winkelabhängigkeit dieser Energie. Dadurch und aufgrund messtechnischer Probleme konnten nur Energien bis 2.7 eV mit ausreichender Effizienz vermessen werden. Diese zeigen mit bisherigen Ergebnissen aus einem Photoionisationsexperiment [Hav10b] gute Übereinstimmung.

Im dritten Zerfallskanal, der hier in einem Heliumdimer zum ersten Mal beobachtet wurde, verliert das Dimer an einem Zentrum zwei Elektronen, und es kommt erst nach einer gewissen Zeit unter Aussendung eines Photons zu einem Ladungstransfer zwischen den Zentren. Mit Hilfe der klassischen Näherung konnte aus der Aufbruchenergie des Dimerions die Abstandsverteilung des Zwischenzustands bestimmt werden. Es zeigen sich in dieser Verteilung Strukturen, die auf verschiedene Anregungszustände schließen lassen. Zudem zeigt der Abfall der Verteilung eine sehr gute Übereinstimmung mit berechneten Übergangswahrscheinlichkeiten [Coh78].

Aufgrund der koinzidenten Impulsmessung war es in dieser Arbeit möglich, auch die Winkelverteilung der Dimerachse zur Emissionsrichtung von Projektil und Elektron zu untersuchen. Hierbei konnte für die Zerfallskanäle, in denen es zum Interatomic Coulombic Decay oder Ladungstransfer kommt, ein Rückstoß-Effekt gezeigt werden. Zudem unterscheidet sich die Elektronenwinkelverteilung des Interatomic Coulombic Decay dieser Messung von denen des Photoionisationsexperiments. Ein Grund hierfür könnte das Verhältnis der unterschiedlichen

Anregungszustände in der Photoionisation bzw. im Ionenstoß sein.

6.2. Ausblick

Leider war in dem hier beschriebenen Experiment die Nachweiseffizienz der Elektronen stark vermindert. In einem zukünftigen Experiment könnte man Spektrometer und Felder so wählen, dass alle Elektronen, auch die durch den Zerfall höher angeregter Zustände in einem Interatomic Coulombic Decay entstehen, im vollen Raumwinkel nachgewiesen werden können. Dies würde eine eindeutige Bestimmung der Wirkungsquerschnitte und einen Vergleich der Zerfallskanäle untereinander ermöglichen, was einen noch tieferen Einblick in Zerfalldynamik bringen würde. Bei einem solchen Experiment wäre es ebenfalls sinnvoll, die Summenimpulse der ionischen Fragmente des Dimers mit besserer Ausflösung zu messen, um insbesondere mit dem Summenimpuls in longitudinal zur Ionenstrahlachse die verschiedenen Zerfallskanäle trennen zu können.

Weitere Messungen, die ebenfalls von Interesse sind, sind Ionenstoßexperiment mit anderen Dimeren. Mittlerweile hat sich bei einem Ionenstoßexperiment mit Neondimeren gezeigt, dass hier ebenfalls der Interatomic Coulombic Decay sehr dominant ist [Kim11]. Besonders interessant wäre es jedoch, Wasserdimere in Stößen mit Alphateilchen zu untersuchen. In einem Photoionisationsexperiment konnte dieser Zerfall bereits beobachtet werden [Jah10]. Mit dem eben erwähnten Experiment ließe sich die Zerfallswahrscheinlichkeit des Interatomic Coulombic Decay in einem Ionenstoß und damit seine Relevanz innerhalb der in der Natur vorkommenden Zerfallsprozesse erforschen. Eine derartige Messung ist jedoch sehr schwierig, da ein Überschallgasstrahl mit Wasser nur mit dem jeweiligen Dampfdruck betrieben werden kann, wodurch die Dichte des Gasstrahls generell sehr niedrig ist.

Bezogen auf den Zwei-Zentren-Prozess ist es notwendig in zukünftigen Experimenten darauf zu achten, den Totzeitbereich des Ionendetektors zu minimieren. Dies kann zum einen durch den Einsatz einer hexagonalen Anode erreicht werden, eine relative Drehung von Ionenstrahl und Detektorfläche würde dies noch zusätzlich unterstützen. Dies erhöht die Chance, die Energieverteilung im Schwerpunktsystem, die sich aus der Grundzustandsverteilung des Dimers ergibt, vollständig zu messen und damit die berechnete Abstandsverteilung zu bestätigen bzw. zu widerlegen. Allerdings muss man hier erwähnen, dass es aufgrund der Statistik vermutlich sinnvoller ist, diese Energieverteilung mit der hier vorgestellten Coltrismessmethode in einem Laserexperiment zu bestimmen. Dieser Zugang erlaubt zum einen eine tatsächlich zeitgleiche Ionisation beider Zentren zudem ist die Ionisationswahrscheinlichkeit generell höher. Der hier vorgestellte Zwei-Zentren-Prozess bietet jedoch hinsichtlich der Stoßparameterbestimmung großes Potenzial: So kann beispielsweise im Bereich sehr hoher Energie- bzw. hoher Kernladungen der Ionisationsprozess durch die Absorption mehrerer (virtueller) Photonen

veranschaulicht werden. Aufgrund der kurzen Wechselwirkungszeit wird dabei kaum Impuls durch das Projektil übertragen. Elektron und Ion erhalten durch die Wechselwirkung wie bei einer Photoionisation den entgegengesetzten aber betragsmäßig gleichen Impuls [Mos97]. Auch hier gab es bisher keine Möglichkeit, Informationen über den Stoßparameter zu gewinnen. Durch die in dieser Arbeit dargestellte Methode wäre dies erstmals möglich.

A. Atomare Einheiten

Grundlegende Konstanten in atomaren Einheiten:

Bohrscher Radius	a_0	$= 0,529 \cdot 10^{-10} \text{ m}$	$= 1$
Elementarladung	q_e	$= 1.6022 \cdot 10^{-19} \text{ As}$	$= 1$
Masse des Elektrons	m_e	$= 9,109 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$	$= 1$
Plancksches Wirkungsquantum	$\hbar = \frac{h}{2\pi}$	$= 1,055 \cdot 10^{-34} \text{ Js}$	$= 1$
Lichtgeschwindigkeit	c	$= 2,998 \cdot 10^8 \text{ m/s}$	$\approx 137,036 = \alpha^{-1}$
Masse des Protons	m_p	$= 1,6726 \cdot 10^{-27} \text{ kg}$	≈ 1836

Häufig benötigte Umrechnungsfaktoren zwischen SI- und atomaren Einheiten sind in der nachfolgenden Tabelle aufgeführt.

Ladung :	1 C	$= 6,2414 \cdot 10^{18} \text{ a.u.}$
Masse :	1 kg	$= 1,0978 \cdot 10^{30} \text{ a.u.}$
Länge :	1 m	$= 1,8904 \cdot 10^{10} \text{ a.u.}$
Drehimpuls :	1 kg m/s ²	$= 9,4767 \cdot 10^{33} \text{ a.u.}$
Geschwindigkeit :	1 m/s	$= 4,5086 \cdot 10^{-7} \text{ a.u.}$
	1 a.u.	$= 2,218 \text{ mm/ns}$
Zeit :	1 a.u.	$= 24,2 \cdot 10^{-18} \text{ s}$
	1 s	$= 4,1322 \cdot 10^{16} \text{ a.u.}$
Impuls :	1 a.u.	$= 1,9928 \cdot 10^{-24} \text{ kg m/s}$
	1 kg m/s	$= 5,0181 \cdot 10^{23} \text{ a.u.}$
Energie :	1 a.u.	$= 4,3599 \cdot 10^{-18} \text{ J}$
	1 J	$= 2,2936 \cdot 10^{17} \text{ a.u.}$
	1 a.u.	$= 27,212 \text{ eV}$
	1 eV	$= 3,6748 \cdot 10^{-2} \text{ a.u.}$

B. Experimentelle Parameter

Experimentelle Parameter

Jetsystem

gemessene Düsentemperatur:	25-30 K
Gasvordruck He ₂ :	8 bar
Düsendurchmesser:	5 μm
1. Skimmerdurchmesser:	0,3 mm
2. Skimmerdurchmesser:	0,5 mm
Abstand: Düse - 1.Skimmer:	5 mm
Abstand: 1.Skimmer - Reaktionszone:	118 mm
Abstand: 2.Skimmer - Reaktionszone:	33 mm

Spektrometer

Beschleunigungsstrecke:	2.6 cm
Driftstrecke:	5.2 cm
Elektrisches Feld:	13.0 V/cm
Magnetisches Feld:	9.6 Gauss

Tab. B.1.: Eckdaten des Jetsystems und des Spektrometers

Vakuumsystem

Pumpleistung

Jetdump :	210 l/s Pfeiffer TMU 261
Reaktionskammer :	210 l/s Pfeiffer TMU 261 UP
	210 l/s Pfeiffer TMU 261 UP
	230 l/s Pfeiffer TMU 260
	520 l/s Pfeiffer TMU 520
2. Jetstufe :	230 l/s Pfeiffer TMU 260
1. Jetstufe :	920 l/s Pfeiffer TMU 1001

Grundvakuum

1. Jetstufe :	$3,0 \cdot 10^{-8}$ mbar
2. Jetstufe :	$6,0 \cdot 10^{-8}$ mbar
Reaktionskammer :	$1,1 \cdot 10^{-7}$ mbar
Jetdump :	$2,6 \cdot 10^{-8}$ mbar

Druckanstieg (gemessen mit Heliumgas bei 20 bar Vordruck (unkorrigiert))

1. Jetstufe :	$3,5 \cdot 10^{-5}$ mbar
2. Jetstufe :	$1,4 \cdot 10^{-6}$ mbar
Reaktionskammer :	$1,1 \cdot 10^{-7}$ mbar
Jetdump :	$3,9 \cdot 10^{-8}$ mbar

Tab. B.2.: Charakteristika des verwendeten Vakuumsystems

Detektoren

Projektildetektor 40er HEX-Anode

MCP Vorderseite: - 150 V
Signaldraht: + 1900 V
Rate: 5 kHz

Rückstoßionendetektor 120er QUAD-Anode

MCP Vorderseite: - 2000 V
MCP Rückseite: + 600 V
Rate: 15 kHz

Elektronendetektor 120er HEX-Anode

MCP Vorderseite: - 300 V
Signaldraht: + 2400 V
Rate: 20 kHz

Tab. B.3.: Spannungen der Detektoren

C. Herleitung der Rückstoßionenimpulse in z-Richtung

Die Impulskomponente des Rückstoßions in z-Richtung ist ein Maß für die Inelastizität des betrachteten Stoßes. Im Folgenden soll hergeleitet werden, wie sie sich aus Energie- und Impulserhaltung ergibt.

Energieerhaltung

Die Energieerhaltung ergibt sich zu:

$$E_{kin}^{p,i} + \sum^m E_{bind}^i = E_{kin}^{p,f} + \sum^{m-n} E_{bind}^f + E_{kin}^{R,CM} + \sum^n E_{kin}^e + E^{\gamma,KER}$$

$E_{kin}^{p,i}$ und $E_{kin}^{p,f}$ ist die kinetische Energie des Projektils vor und nach dem Stoß, $E_{kin}^{R,CM}$ ist die kinetische Energie des Schwerpunktes des Dimers. E_{bind}^i und E_{bind}^f stellen die Bindungsenergien im Anfangs- und Endzustand dar, während mit E_{kin}^e die kinetische Energie der freigesetzten Elektronen gemeint ist. $E^{\gamma,KER}$ sind Energie, die durch ein Photon oder KER frei wird. n stellt die Anzahl der durch den Stoß frei gesetzten Elektronen dar, während m die Anzahl aller gebundenen Elektronen sind.

Die kinetische Energie, die der Schwerpunkt nach dem Stoß besitzt, ist durch die Masse vernachlässigbar klein. Für Elektronen, die vor und nach dem Stoß im gleichen energetischen Zustand sind, ergibt die Differenz der Bindungsenergien Null. Lediglich die Elektronen, die vom Projektil eingefangen werden oder ins Kontinuum gelangen, können in einen anderen energetischen Zustand wechseln und können daher eine Differenz in den Bindungsenergien haben, die von Null verschieden sind. Sie entsprechen dem so genannten Q-Wert einer Reaktion. Es gilt also:

$$E_{kin}^{p,i} + \sum^{n_c, n_P, n_T} (E_{bind}^i - E_{bind}^f) = E_{kin}^{p,f} + \sum^{n_T, n_P} E_{kin}^e + E^{\gamma,KER}$$

$$E_{kin}^{p,i} + Q = E_{kin}^{p,f} + \sum^{n_T, n_P} E_{kin}^e + E^{\gamma,KER}$$

n_C entspricht der Anzahl der eingefangenen Elektronen, mit n_T bzw. n_P ist die Anzahl der frei gewordenen Elektronen aus Targetatom- oder molekül bzw. Projektil gemeint. Durch die Projektilionisation bzw. einen Einfang ändert sich die Masse des Projektils, zudem ändert sich seine Geschwindigkeit im Wesentlichen in z-Richtung. Für die kinetische Energie des Projektils vor und nach dem Stoß lässt sich Folgendes schreiben:

$$\frac{1}{2}m_P v_p^2 + Q = \frac{1}{2}(m_P + n_C m_e - n_P m_e)(v_p - \Delta v_{zp})^2 + \sum^{n_T, n_P} E_{kin}^e + E^{\gamma, KER}$$

Wenn der Teil auf der rechten Seite ausmultipliziert wird, lässt sich die Projektilenergie $\frac{1}{2}m_P v_p^2$ auf beiden Seiten subtrahieren und man erhält:

$$Q = \frac{1}{2}(n_C - n_P)m_e v_p^2 + \frac{1}{2}(m_P + (n_C - n_P)m_e)(-2v_p \Delta v_{zp} + \Delta v_{zp}^2) + \sum^{n_T, n_P} E_{kin}^e + E^{\gamma, KER}$$

Das Teilen durch v_p ergibt dann:

$$\frac{Q}{v_p} = \frac{(n_C - n_P)m_e v_p}{2} + \frac{1}{2}(m_P + (n_C - n_P)m_e)(-2\Delta v_{zp} + \frac{\Delta v_{zp}^2}{v_p}) + \frac{\sum^{n_T, n_P} E_{kin}^e + E^{\gamma, KER}}{v_p}$$

Der Term $\frac{\Delta v_{zp}^2}{v_p}$ ist näherungsweise Null. Dementsprechend berechnet sich letztendlich aus der Energieerhaltung:

$$\frac{Q}{v_p} = \frac{(n_C - n_P)m_e v_p}{2} - (m_P + (n_C - n_P)m_e)\Delta v_{zp} + \frac{\sum^{n_T, n_P} E_{kin}^e + E^{\gamma, KER}}{v_p}$$

Impulserhaltung in z-Richtung

Der Impuls in z-Richtung vor dem Stoß entspricht dem Projektilimpuls. Nach dem Stoß setzt sich der Gesamtimpuls in z-Richtung aus den Impulsen der Fragmente zusammen. Aus der Impulserhaltung folgt also:

$$m_P v_p = p_z^{R, CM} + (m_P + (n_C - n_P)m_e)(v_p - \Delta v_{zp}) + \sum^{n_P + n_T} p_z^e$$

Wenn man den Teil auf der rechten Seite ausmultipliziert, lässt sich der Projektilimpuls $m_P v_p$

auf beiden Seiten subtrahieren. Ein Umstellen der Gleichung ergibt dann direkt:

$$(m_p + (n_C - n_P)m_e)\Delta v_{zp} = p_z^{R,CM} + (n_C - n_P)m_e v_p + \sum^{n_P+n_T} p_z^e$$

Einsetzen der Ergebnisse der Impulserhaltung in die Energieerhaltung

Setzt man die Impulserhaltung in die Energieerhaltung ein, ergibt sich folgende Gleichung:

$$\frac{Q}{v_p} = \frac{(n_C - n_P)m_e v_p}{2} - (\mathbf{p}_z^{R,CM} + (n_C - n_P)m_e \mathbf{v}_p + \sum^{n_P+n_T} \mathbf{p}_z^e) + \frac{\sum^{n_T, n_P} E_{kin}^e + E^{\gamma, KER}}{v_p}$$

Durch Umstellen ergibt sich letztlich:

$$p_z^{R,CM} = -\frac{Q}{v_p} + \frac{(n_C - n_P)m_e v_p}{2} - (n_C - n_P)m_e v_p - \sum^{n_P+n_T} p_z^e + \frac{\sum^{n_T, n_P} E_{kin}^e + E^{\gamma, KER}}{v_p}$$

$$p_z^{R,CM} = -\frac{Q}{v_p} - \frac{(n_C - n_P)m_e v_p}{2} - \sum^{n_P+n_T} p_z^e + \frac{\sum^{n_T, n_P} E_{kin}^e + E^{\gamma, KER}}{v_p}$$

Aufspaltung der Q-Werte

Spaltet man nun den Q-Wert wieder nach seinen Anteilen, Einfang, Projektil- und Targetionisation auf, ergibt sich:

$$p_z^{R,CM} = \frac{Q_{cap}}{v_p} - \frac{n_c m_e v_p}{2} \quad (\text{Einfang})$$

$$\frac{Q_T}{v_p} + \frac{\sum^{n_T} E_{kin}^e}{v_p} - \sum^{n_T} p_z^e \quad (\text{Targetionisation})$$

$$\frac{Q_P}{v_p} + \frac{n_P m_e v_p}{2} + \frac{\sum^{n_P} E_{kin}^e}{v_p} - \sum^{n_P} p_z^e \quad (\text{Projektilionisation})$$

$$+ \frac{E^{\gamma, KER}}{v_p} \quad (\text{Photon, KER})$$

Da die Bindungsenergie nach dem Stoß bei der Ionisation null ergibt, erhält man:

$$\begin{aligned}
 p_z^{R,CM} = & \frac{Q_{cap}}{v_p} - \frac{n_c m_e v_p}{2} && \text{(Einfang)} \\
 & + \frac{\sum^{n_T} (E_{kin}^e - E_{bind}^i)}{v_p} - \sum^{n_T} p_z^e && \text{(Targetionisation)} \\
 & + \frac{n_P m_e v_p}{2} + \frac{\sum^{n_P} (E_{kin}^e - E_{bind}^i)}{v_p} - \sum^{n_P} p_z^e && \text{(Projektilionisation)} \\
 & + \frac{E^{\gamma,KER}}{v_p} && \text{(Photon, KER)}
 \end{aligned}$$

Umrechnung ins Projektilsystem

Sowohl in dem Term, der die Projektilionisation beschreibt, als auch in dem Term, der die Targetionisation darstellt, ist der Impuls der frei gewordenen Elektronen $\sum^n p_z^e$ und dem Teil $E_{kin}^e v_p$ enthalten. Im Folgenden wird gezeigt, wie dieser Teil so umgeformt werden kann, dass er die kinetische Energie der Elektronen im Projektilsystem ϵ_{kin} enthält. Das Projektilsystem ist das Koordinatensystem, das sich mit Projektilgeschwindigkeit mitbewegt. Es gilt allgemein:

$$\begin{aligned}
 -\sum^n p_z^e + \frac{\sum^n (E_{kin})}{v_p} &= \sum^n \frac{v_{x,e}^2 + v_{y,e}^2 + v_{z,e}^2}{2v_p} - \sum^n m_e v_z^e \\
 &= \sum^n m_e \frac{v_{x,e}^2 + v_{y,e}^2 + v_{z,e}^2 - 2v_z^e v_p + v_p^2 - v_p^2}{2v_p} \\
 &= \sum^n m_e \frac{v_{x,e}^2 + v_{y,e}^2 + (v_{z,e} - v_p)^2 - v_p^2}{2v_p} \\
 &= \sum^n m_e \frac{v_{x,e}^2 + v_{y,e}^2 + (v_{z,e} - v_p)^2 - v_p^2}{2v_p} - \sum^n \frac{m_e v_p}{2} \\
 &= \sum^n \frac{\epsilon_{kin}}{v_p} - \frac{n m_e v_p}{2}
 \end{aligned}$$

Damit ergibt sich alternativ für den z-Impuls des Rückstoßions:

$$\begin{aligned}
 p_z^{R,CM} = & \frac{Q}{v_p} - \frac{n_c m_e v_p}{2} && \text{(Einfang)} \\
 & \frac{n_T m_e v_p}{2} + \frac{\sum^{n_T} (\epsilon_{kin}^e - E_{bind}^i)}{v_p} && \text{(Targetionisation)} \\
 & + \frac{\sum^{n_P} (\epsilon_{kin}^e - E_{bind}^i)}{v_p} && \text{(Projektilionsation)} \\
 & + \frac{E^{\gamma, KER}}{v_p} && \text{(Photon, KER)}
 \end{aligned}$$

D. Hitsuche für den (He^+ , He^+)- Zerfall

Im folgenden Abschnitt ist der Quellcode für Hitsuche eines passenden Ionenpaares für den Zerfall des Dimers dargestellt. Hierbei wurde die Impulserhaltung, die in allen drei Raumrichtungen zwischen den beiden Ionen gilt, ausgenutzt.

```
\tiny// Hitsuche

bool SC = false;
bool DC = false;
bool monomere = false;

if (r_pplus < 12.){SC = true;} // Bedingung auf Heplus-Projektil
if (r_p0 < 12.){DC = true;} // Bedingung auf He0-Projektil

if ((SC || DC) ) { // richtige Projektil

double anzahlKombi1 = 0.;

for(int i=0;i<(r_hits-1);i++) {

for(int j=i+1;j<r_hits;j++) {

if (rmethode [i] < 16. && rmethode [j] < 16.) { // richtige Rekonstruktionsmethode

bool he2 = false;
```

```

double tof_sum = tof_rec [i] + tof_rec [j];
double tof_diff = tof_rec [i] - tof_rec [j];
if ((fabs(tof_sum - 5183.) < 100.) && tof_diff < -20. && tof_diff > -1200.) {he2=true;}
// Bedingung auf Pipico-Linie

if(he2) { // wenn richtige Rückstoßionen

double prel_x= (prx [i] - prx [j])/2.; // Relativimpulse
double prely_ = (pry_ [i] - pry_ [j])/2.;
double prel_z_ = (prz_ [i] - prz_ [j])/2.;

double prel_ = sqrt(prel_x*prel_x+ prely_*prely+prel_z_*prel_z);

// korrigierte Impulse, um 'enger' schneiden zu können
double pry_i = pry_[i] + 2.5*fabs(prely_)/prel_*fabs(prely_)/prel_;
double pry_j = pry_[j] + 2.5*fabs(prely_)/prel_*fabs(prely_)/prel_;

double prz_i = prz_[i] + (-0.8)*fabs(prel_z_)/prel_*fabs(prel_z_)/prel_;
double prz_j = prz_[j] + (-0.8)*fabs(prel_z_)/prel_*fabs(prel_z_)/prel_;

// korrigierte Relativimpulse
double prely = (pry_i - pry_j)/2.;
double prel_z = (prz_i - prz_j)/2.;
double prel = sqrt(prel_x*prel_x+ prely*prely+prel_z*prel_z);

// Summenimpulse
double sump_x = prx [i] + prx [j];
double sump_y = pry_i + pry_j;
double sump_z = prz_i + prz_j;
double sump = sqrt(sump_x*sump_x + sump_y*sump_y+sump_z*sump_z);

double KER = (prel*prel)/(4.*1836.)*27.2;

if (sqrt((KER-12.0)*(KER-12.0) + (sump/1.6)*(sump/1.6)) < 11.9)
// schneidet einen Teil der Monimere und Detektormist raus
{
if (fabs (sump_x) < 6. && fabs (sump_y) < 6. && fabs (sump_z) < 8.0)

```

```
// zusätzliche Bedingung auf die Summenimpulse
{

tof_r1 = tof_rec[i] ;
tof_r2 = tof_rec[j] ;

r_x1 = rx[i];
r_x2 = rx[j];
r_y1 = ry[i];
r_y2 = ry[j];

WriteNTuple = true;
++anzahlKombi1;
goto impulsberechnung;
        }
    }
}
}
}

impulsberechnung;;
```


E. Simulation der Stoßparameterverteilung des Zwei-Zentren-Prozesses

Das folgende Kapitel enthält den Quellcode (c++) für die Simulation der Winkelverteilung des Zwei-Zentren-Prozesses. Das durch die Simulation entworfene Spektrum konnte in root geöffnet und bearbeitet werden.

Quellcode des Hauptprogramm 'main.cpp':

```
#include "simulation_jasmin.cpp"

#include "TApplication.h"
#include "TFile.h"

void main() {
printf("Hallo!\n");
TApplication app("app",0,0);
TFile* outfile = new TFile("simulation_jasmin.root", "RECREATE");
simulation_jasmin();
outfile->Write();
app.Run();
}
```

Quellcode der eigentlichen simulation

```
#include <math.h>
#include <time.h>
#include <TH1.h>
#include <TH2.h>
#include <TStyle.h>
#include <TROOT.h>
```

```
#include <TMath.h>
#include <TF1.h>
#include <TCanvas.h>
#include <TPad.h>

//Definition Funktion Abstandsverteilung
double abstand (Double_t *x, Double_t *t)
{
Double_t k = t[0] + t[1]*exp(-exp(-(x[0]-t[2])/t[3])-(x[0]-t[2])/t[3] + 1.0);
return k;
}

double P(double x) // zu plottende Funktion

{
double g = 0.;
double theta= 4.;

// Funktionsaufruf Abstandsverteilung (Parameterübergabe)
TF1 *f_r = new TF1("f_r",abstand,5.,20.,4);
f_r->SetParameters(-6.76946,249.30525,8.05534,3.73182);

for (Int_t i = 0; i < 100000; i++)
{

// 'Würfeln' der Projektilkoordinaten aus einer Gleichverteilung
double px = - 10. + (double) rand()/32767.*20.;
double py = (double) rand()/32767.*10.;

// Recoil-Orte

// 'Würfeln' des Abstands aus oben gegebener Verteilung
double R= f_r->GetRandom(5.5,7.8);
```

```
// Richtige Range für den Winkel
if (x <= 1.) {theta= acos(x);}
if (x > 1.) {theta= acos((-1.*(x-2.)));}

double r1x = R/2.*sin(theta); /*3.1415926536/180. // x-Position des 1. Dimeratoms
double r1y = 0.; // y-Position des 1. Dimeratoms
double r2x = - r1x; // x-Position des 2. Dimeratoms
double r2y = - r1y; // y-Position des 2. Dimeratoms

double costheta = cos(theta) ;

// Stoßparameter

double b1 = sqrt((px - r1x)*(px - r1x) + (py-r1y)*(py-r1y)); // Abstand Proj. - 1.Atom
double b2 = sqrt((px - r2x)*(px - r2x) + (py-r2y)*(py-r2y)); // Abstand Proj. - 2.Atom

// P(b)s aus Theorie (Fitfunktionen erstellt in Origin)

double pbsc2=(0.202)/(1.+exp((b1-1.27)/0.4)); // (He2+ He)- SC
double pbsc1=(0.3427+0.0034)/(1.+exp((b2+0.4)/0.6)); // (He+ He)- SC
double pbion1=0.0007+(0.434)/(1.+exp((b2-0.88)/0.65)); //(He+ He)- SI
double pbion2 =
0.87/(sqrt(2.*3.141592)*0.75*b2)*exp(-(log(b2/1.58))*(log(b2/1.58)))/(2.*0.75*0.75);
//(He2+ He)- SI

g = g + pbsc2*pbion1;
//Funktionswert, der für verschiedenen (x = cos(theta))zurückgegeben wird.
}
return g;
}

// Generation und Aufrufen eines Spektrums in root

void simulation_jasmin()
{
```

```
gROOT->Reset();

gStyle->SetStatColor(0);
gStyle->SetTitleFillColor(0);
gStyle->SetCanvasColor(0);
gStyle->SetPadColor(0);
gStyle->SetPadBorderMode(0);
gStyle->SetCanvasBorderMode(0);
gStyle->SetFrameBorderMode(0);

const int nBinsX = 200; // Binsize
TH1D* h = new TH1D("h","Histo", nBinsX,-1.,1.); // Definition Histogramm
TAxis* ax = h->GetXaxis();
double sum = 0.;
double integral= 0.;

for (int binx=1; binx<=nBinsX; binx++)
{
double xval = ax->GetBinCenter(binx); // x-Werte

double yval = P(xval)*3.475;
// oben berechnete Funktion P mit einem Faktor multipliziert

h->SetBinContent(binx,yval); // Einlesen der Werte
sum = yval* 0.01; // Einzelsumme=Range/Binsize * Y-Wert,

if ( xval > 0.97 || xval < (-0.97)) {sum=0.;}
// nicht gemessener Totzeitbereich

integral = integral + sum;
// Integral = Summe über alle Einzelsummen

}

// Ausgabe
printf("\n");
printf("%f", integral);
printf("\n");
```

```
printf("\n");
```

```
h->Draw();
```

```
return;
```

```
}
```


Abbildungsverzeichnis

2.1. Ein-und Zwei-Zentren-Prozess	5
2.2. Streuprozess	8
2.3. Veranschaulichung der Störungsrechnung	14
2.4. Die Ionisation in der Bornschen Näherung	16
2.5. Emissionsspektren des Elektrons bei der Einfachionisation	19
2.6. Elektroneneinfang in der Bornschen Näherung	21
2.7. Wirkungsquerschnitte für Transferionisation und doppelten Elektroneneinfang	23
2.8. Impulsverteilung der Elektronen bei der Transferionisation	25
2.9. Bornsche Naeherung Ionisation	26
2.10. Stoßparameterverteilung	32
2.11. Koordinatensystem des Ion-Molekül-Stoßes	33
2.12. Entstehung von Molekülorbitalen	37
2.13. Potenzialkurve des Heliumdimers	43
2.14. Abstandsverteilung des Heliumdimers	44
2.15. Franck-Condon-Prinzip und Reflexionsnäherung	46
2.16. Zerfallsmechanismen des ICDs	50
2.17. Strukturen im KER beim ICD	51
2.18. Zerfallsraten des ICDs	52
2.19. Schematische Darstellung der Mechanismen des Ladungstransfers	54
2.20. Übergangswahrscheinlichkeiten beim Ladungstransfer	56
3.1. schematischer Aufbau des Experiments	60
3.2. Schematische Darstellung des Jetsystems	64
3.3. Darstellung des Überschallgasstrahls	66
3.4. Kühlung der Düse	68
3.5. Druckanstieg in den Pumpstufen	69
3.6. Dimerausbeute	70
3.7. Pipico-Spektrum für verschiedene Vordrücke	72
3.8. Verwendetes Spektrometer	73
3.9. Helmholtzspulen	75
3.10. Schematische Darstellung des Funktionsprinzips der Vielkanalplatte	77
3.11. Nachweiseffizienz einer Hexanode	78

3.12. Datenaufnahme	80
3.13. Trajektorien der Rückstoßionen	83
3.14. Elektronentrajektorien	85
4.1. Koordinatensystem	87
4.2. Flugzeit des ersten Ions	88
4.3. Flugzeitnullpunkt	89
4.4. Pipico-Spektrum	91
4.5. Eichung mit Stickstoff	93
4.6. Ergebnis der Eichung	94
4.7. Ortsbild des Rückstoßionendetektors für einen einfachen Elektroneneinfang aus einem Heliumatom	95
4.8. Qualität der Signale des Rückstoßionendetektors	96
4.9. Pipico-Spektrum ohne Rekonstruktion	97
4.10. Rekonstruktionmethoden	98
4.11. Flugzeit- und Ortsnullpunkt der Elektronen	100
4.12. Kallibration der Elektronenimpulse	101
4.13. Kallibration der Elektronenimpulse mit Eichmessung	102
5.1. Auflösung KER	105
5.2. Auflösung Projektil	105
5.3. Auflösung Projektil	107
5.4. Auflösung Elektron	108
5.5. Relativimpulse	109
5.6. KER des Dimeraufbruchs	110
5.7. Relativimpulse für TI und DC	111
5.8. Ablauf des IC-Zerfalls	113
5.9. Winkelverteilungen beim IC-Zerfall	115
5.10. Ablauf des Ein- und Zweistufenprozesses	116
5.11. Schwierigkeiten beim Elektronennachweis	118
5.12. Elektronenimpulse der einzelnen Prozesse	119
5.13. Summenimpulse longitudinal zur Ionenstrahlachse	121
5.14. Winkelverteilung des Impulsübertrags im molekülfesten System	123
5.15. Vibrationsstruktur in der KER-Verteilung beim ICD	124
5.16. KER-Verteilung für verschiedene Winkel zwischen Dimerachse und Ionenstrahlachse	126
5.17. Emissionswinkel des Elektrons	127
5.18. Emissionswinkel des Elektrons im molekülfesten System	128

5.19. Zusammenhang der Winkel im molekülfesten System und der Winkel im Laborsystem	129
5.20. IC-Zerfall aus höher angeregten Zuständen	132
5.21. Winkelverteilung der Dimerachse	134
5.22. Zusammenhang zwischen Stoßparameter und Winkel der Dimerachse zum Ionenstrahl	135
5.23. Kosinus des Zwischenwinkels von Dimerachse und Ionenstrahl	136
5.24. Uneindeutigkeit des Stossparameters	137
5.25. Vergleich der Simulation und Experiment für den zweifachen Elektroneneinfang	138
5.26. Vergleich der Simulation und Experiment für die Transferionisation	139
5.27. Abstandsverteilung des Zwei-Zentren-Prozesses	140
5.28. Winkelabhängigkeit der Abstandsverteilung	141
5.29. Abstandsverteilung für einen kleinen Winkel um die Ionenstrahlachse	142
5.30. Vergleich der KER-Verteilung des Zwei-Zentren-Prozesses mit Daten aus einem Photoionisationsexperiment	144
5.31. Totzeitproblem	145
5.32. Winkelverteilung der Dimerachse beim Ladungstransfer	148
5.33. Emissionsrichtung des Elektrons im molekülfesten System	149
5.34. KER- und Abstandsverteilung beim Ladungstransfer	150
5.35. Elektronenimpulse der Ein- und Zwei-Zentren-Transferionisation	152
5.36. Elektronenwinkelverteilungen der Transferionisation	153
5.37. Schematische Darstellung des Wirkungsquerschnitts im Fall des Ein- und Zwei-Zentren-Prozesses	156
5.38. Abschätzung der Dimerrate	158

Tabellenverzeichnis

2.1. Molekulare Zustände	50
3.1. Vakua in der Experimentierkammer	62
3.2. Verlustleistung	69
3.3. Felder	76
5.1. Longitudinalsummenimpulse	120
5.2. Wirkungsquerschnitte	155
B.1. Eckdaten des Jetsystems und des Spektrometers	167
B.2. Charakteristika des verwendeten Vakuumsystems	168
B.3. Spannungen der Detektoren	169

Literatur

- [Abr66] Abrines R and Percival IC. Classical theory of charge transfer and ionization of hydrogen atoms by protons,. *Proc. Phys. Soc.*, 88:861, 1966.
- [All65] Allison DCS and Dalgarno A. Radiative charge transfer from he atoms to he²⁺ ions. *Proc. Phys. Soc.*, 85:845, 1965.
- [And93] Anderson JB, Traynor CA, and Boghosian BM. An exact quantum monte carlo calculation of the helium-helium intermolecular potential. *J. Chem. Phys.* 99, 99:345, 1993.
- [Ave04] Averbukh V, Müller IB, and Cederbaum LS. Mechanism of interatomic coulombic decay in clusters. *Phys. Rev. Lett.*, 93:263002, 2004.
- [Bat58] Bates DR and McCarroll R. Electron capture in slow collisions. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 245:175, 1958.
- [Bel97] Belkic D, Mancev I, and Mergel V. Four-body model for transfer ionization in fast ion-atom collisions. *Phys. Rev. A* 55, 55:378, 1997.
- [Bel10] Belkic D. Review of theories on double electron capture in fast ion-atom collisions. *Journal of Mathematical Chemistry*, 47:1420, 2010.
- [Ber68] Berkner KH, Pyle RV, Stearns JW, and Warren JC. Single- and double-electron capture by 7.2 to 181 keV 3He⁺⁺ ions in He. *Phys. Rev.*, 166:44, 1968.
- [Bet30] Bethe H. Zur theorie des durchgangs schneller korpuskularstrahlen durch materie. *Annalen der Physik*, 397:325, 1930.
- [Bou00] Boudaiffa B, Cloutier P, Hunting D, Huels MA, and Sanche L. Resonant formation of dna strand breaks by low-energy (3 to 20 eV) electrons. *Science*, 287:1658, 2000.
- [Brä05] Bräuning H, Trassl R, A T, Diehl A, Salzborn E, Keim M, Lüdde AAHJ, and Kirchner T. Charge transfer in Li²⁺ + He²⁺ and Li²⁺ + Li³⁺ collisions. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 38, 38:2311, 2005.
- [Bra03a] Bransden B and Joachain C. *Physics of atoms and molecules*. Benjamin Cummings, 2003.

- [Bra03b] Bransden B and McDowell M. *Charge Transfer and the theory of ion atom collisions*. Oxford: Clarendon Press, 2003.
- [Bra03c] Bransden BH and Joachain C. *Physics of atoms and Molecules*. Benjamin Cummings, 2003.
- [Bri33] Brinkman H and Kramers H. Zur theorie der einfangung von elektronen durch α -teilchen. *Proceedings Academy of Science Amsterdam*, 33:973, 1933.
- [Bru02] Bruch LW, Schöllkopf W, and Toennies JP. The formation of dimers and trimers in free jet 4he cryogenic expansions. *J. Chem. Phys.*, 117:1545, 2002.
- [BS10] Bernhard-Ströl C, Hachenberger C, Trugenberger-Schnabel A, and Peter DJ. Umweltradioaktivität und strahlenbelastung jahresbericht 2009. Technical report, Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU), 2010.
- [Ced97] Cederbaum LS, Zobeley J, and Tarantelli F. Giant intermolecular decay and fragmentation of clusters. *Phys. Rev. Lett.*, 79:4778, 1997.
- [Che64] Cheshire I. Continuum distorted wave approximation; resonant charge transfer by fast protons in atomic hydrogen. *Proc. Phys. Soc.*, 84:89, 1964.
- [Coh78] Cohen JS and Bardsley JN. Calculation of radiative single-charge-transfer cross sections for collisions of he^{2+} with he at low energy. *Phys. Rev. A*, 18:1004, 1978.
- [Cra06] Cramer T. *Ladungstransfer in DNA: Ein atomistisches Modell*. Ph.D. thesis, Albert-Ludwigs-Universität Freiburg im Breisgau, 2006.
- [Cro87] Crothers DSF and McCarroll R. Correlated continuum distorted-wave resonant double electron capture in he^{2+} -he collisions. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 20:2835, 1987.
- [Cro09] Crothers DSF. An introduction to continuum distorted wave theory. *Journal of Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 2010:Article ID 604572, 2009.
- [dCF88] de Castro Faria NV, Freire FL, and de Pinho AG. Electron loss and capture by fast helium ions in noble gases. *Phys. Rev. A*, 37:280, 1988.
- [Dem05] Demtröder W. *Experimentalphysik, Bd. 3. Atome, Moleküle und Festkörper*. Springer, Berlin, 2005.
- [Dem10] Demtröder W. *Experimentalphysik, Bd. 3. Atome, Moleküle und Festkörper*. Springer, Berlin, 2010.
- [Dod66] Dodd LR and Greider KR. Rigorous solution of three-body scattering processes in the distorted-wave formalism. *Phys. Rev.* 146, 146:675, 1966.

- [Dör89] Dörner R, Ullrich J, Olson R, and Schmidt-Böcking H. Three-body interactions in proton-helium angular scattering. *Phys. Rev. Lett.*, 63:147, 1989.
- [Dör93] Dörner R, Ullrich J, Olson R, Jagutzki O, and Schmidt-Böcking H. Azimuthal angular dependence of recoil-ion and electron emission in 0.5 meV p on He collisions. *Phys. Rev. A*, 47:3845, 1993.
- [Dör00] Dörner R, Mergel V, Jagutzki O, Spielberger L, Ullrich J, Moshhammer R, and Schmidt-Böcking H. Cold target recoil ion momentum spectroscopy: a 'momentum microscope' to view atomic collision dynamics. *Physics Reports*, 330:95–192, 2000.
- [Dra92] Drake GWF, Kwela J, and van Wijngaarden A. He⁺ 2p state lifetime by a quenching-asymmetry measurement. *Phys. Rev. A*, 46:113, 1992.
- [DuB87] DuBois RD. Ionization and charge transfer in He²⁺ rare-gas collisions. ii. *Phys. Rev. A*, 36:2585, 1987.
- [Dun91] Dunseath KM and Crothers DSF. Transfer and ionization processes during the collision of fast H⁺, He²⁺ nuclei with helium. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 24:5003, 1991.
- [Fad61] Faddeev L. Scattering theory for a three-particle system. *Soviet Physics JETP*, 12:1014, 1961.
- [Fis03] Fischer D. *Mehr-Teilchen-Dynamik in der Einfach- und Doppelionisation von Helium durch geladene Projektile*. Ph.D. thesis, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2003.
- [Fis04] Fischer D, Schulz M, Moshhammer R, and Ullrich J. Comparative study of single and double ionization of helium by ion impact. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 37:1103, 2004.
- [Fou03] Foucar L. *Ionisation und Anregung von Wasserstoff- und Deuteriummolekülen mit Synchrotronstrahlung*. Master's thesis, Goethe-Universität Frankfurt am Main, 2003.
- [Fri93] Fritsch W. *Progress in atomic collisions theory: The semiclassical closecoupling model and the physics it describes.*, volume Review of Fundamental Processes and Applications of Atoms and Ions. World Scientific, 1993.
- [Fu01] Fu J, Fitzpatrick MJ, Reading JF, and Gayet R. Finite Hilbert basis set calculations of the ejected electron energy spectrum for an ion-atom collision illustrated for proton-hydrogen scattering at 48 and 114 keV. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 34:15, 2001.

- [Gay81] Gayet R, Rivarola RD, and Salin A. Double electron capture by fast nuclei. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 14:2421-2421, 1981.
- [GB89] G Brusdeylins JT and Vollmer R. *XII. Symposium on Molecular Beams, Book of Abstracts*, 1989.
- [Gen10] Genereux JC and Barton JK. Mechanisms for dna charge transport. *Chem. Rev.*, 110:1642, 2010.
- [God05] Godunov AL, Whelan CT, Walters HRJ, Schipakov VS, Schöffler M, Mergel V, Dörner R, Jagutzki O, Schmidt LPH, Titze J, Weigold E, and Schmidt-Böcking H. Transfer ionization process $p+he > h^0 + he^{2+} + e$ with the ejected electron detected in the plane perpendicular to the incident beam direction. *Phys. Rev. A*, 71:052712, 2005.
- [God06] Godunov AL, McGuire JH, Schipakov VS, Walters HRJ, and Whelan CT. Total cross sections for transfer ionization in fast ion-helium collisions. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 39:987, 2006.
- [Gri00] Grisenti RE, Schöllkopf W, Toennies JP, Hegerfeldt GC, Köhler T, and Stoll M. Determination of the bond length and binding energy of the helium dimer by diffraction from a transmission grating. *Phys. Rev. Lett.*, 85:2284, 2000.
- [Gry65a] Gryzinski M. Classical theory of atomic collisions. i. theory of inelastic collisions. *Phys. Rev.*, 138:A336, 1965.
- [Gry65b] Gryzinski M. Two-particle collisions. ii. coulomb collisions in the laboratory system of coordinates. *Phys. Rev.*, 138:A322, 1965.
- [Hak03] Haken H and Wolf HC. *Molekülphysik und Quantenchemie*. Springer-Verlag GmbH, 2003.
- [Ham] <http://sales.hamamatsu.com/>.
- [Hat04] Hattass M, Jalowy T, Czasch A, Weber T, Jahnke T, Schössler S, Schmidt LP, Jagutzki O, Dörner R, and Schmidt-Böcking H. A 2pi spectrometer for electron-electron coincidence studies on surfaces. *Rev. Sci. Inst.*, 75:2373, 2004.
- [Hav10a] Havermeier T. *Photoionisation von Heliumdimeren*. Ph.D. thesis, Goethe-Universität Frankfurt, 2010.
- [Hav10b] Havermeier T, Jahnke T, Kreidi K, Wallauer R, Voss S, Schöffler M, Schössler S, Foucar L, Neumann N, Titze J, Sann H, Kühnel M, Voigtsberger J, Malakzadeh A, Sisourat N, Schöllkopf W, Schmidt-Böcking H, Grisenti RE, and Dörner R. Single photon double ionization of the helium dimer. *Phys. Rev. Lett.*, 104:153401, 2010.

- [Hav10c] Havermeier T, Jahnke T, Kreidi K, Wallauer R, Voss S, Schöffler M, Schössler S, Foucar L, Neumann N, Titze J, Sann H, Kühnel M, Voigtsberger J, Morilla JH, Schöllkopf W, Schmidt-Böcking H, Grisenti RE, and Dörner R. Interatomic coulombic decay following photoionization of the helium dimer: Observation of vibrational structure. *Phys. Rev. Lett.*, 104:133401, 2010.
- [Hav10d] Havermeier T, Kreidi K, Wallauer R, Voss S, Schöffler M, Schössler S, Foucar L, Neumann N, Titze J, Sann H, Kühnel M, Voigtsberger J, Malakzadeh A, Sisourat N, Schöllkopf W, Schmidt-Böcking H, Grisenti RE, Dörner R, and Jahnke T. Angular distributions of photoelectrons and interatomic-coulombic-decay electrons from helium dimers: Strong dependence on the internuclear distance. *Phys. Rev. A*, 82:063405, 2010.
- [Iga00] Igarashi A, Nakazaki S, and Ohsaki A. Ionization of atomic hydrogen by antiproton impact. *Phys. Rev. A*, 61:062712, 2000.
- [Irb89] Irby VD. Saddle-point scaling method for ionizing collisions. *Phys. Rev. A*, 39:54, 1989.
- [Jac53] Jackson JD and Schiff H. Electron capture by protons passing through hydrogen. *Phys. Rev.*, 89:359, 1953.
- [Jah04] Jahnke T, Czasch A, Schöffler MS, Schössler S, Knapp A, Käszi M, Titze J, Wimmer C, Kreidi K, Grisenti RE, Staudte A, Jagutzki O, Hergenhan U, Schmidt-Böcking H, and Dörner R. Experimental observation of interatomic coulombic decay in neon dimers. *Phys. Rev. Lett.*, 93:163401, 2004.
- [Jah05] Jahnke T. *Interatomic Coulombic Decay Experimentelle Untersuchung eines neuartigen, interatomaren Abregungsmechanismus*. Ph.D. thesis, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt, 2005.
- [Jah07] Jahnke T, Czasch A, Schöffler MS, Schössler S, Käszi M, Titze J, Kreidi K, Grisenti RE, Staudte A, Jagutzki O, Schmid LPH, Semenov SK, Cherepkov NA, Schmidt-Böcking H, and Dörner R. Photoelectron and icd electron angular distributions from fixed-in-space neon dimers. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 40:2597–2606, 2007.
- [Jah10] Jahnke T, Sann H, Havermeier T, Kreidi K, Stuck C, Meckel M, Schöffler M, Neumann N, Wallauer R, Voss S, Czasch A, Jagutzki O, Malakzadeh A, Afaneh F, Weber T, Schmidt-Böcking H, and Dörner R. Ultrafast energy transfer between water molecules. *Nature Physics*, 6:139, 2010.

- [Jel88] Jelitto RJ. *Theoretische Physik 5: Quantenmechanik 2*. Aula-Verlag Wiesbaden, 1988.
- [Jel93] Jelitto RJ. *Theoretische Physik 4: Quantenmechanik 1*. 17. Aula-Verlag Wiesbaden, 1993.
- [Joh78] Johnsen R and Biondi MA. Measurements of radiative charge-transfer reactions of doubly and singly charged rare-gas ions with rare-gas atoms at thermal energies. *Phys. Rev. A*, 18:996, 1978.
- [Kal04] Kalinin A, Kornilov O, Rusin L, Toennies JP, and Vladimirov G. eclipseeffect in the scattering of weakly bound helium clusters. *Phys. Rev. Lett.*, 93:163402, 2004.
- [Kar04] Kariotis R, Bruch LW, and Kornilov O. Kinetic temperature effects on he dimers in jets. *J. Chem. Phys.*, 121:3044, 2004.
- [Kim11] Kim HK, Titze J, Schöffler M, Trinter F, Waitz M, Voigtsberger J, Sann H, Meckel M, Stuck C, Lenz U, Odenweller M, Neumann N, Schössler S, Ullmann-Pfleger K, Ulrich B, Fraga RC, Petridis N, Metz D, Jung A, Czasch RGA, Jagutzki O, Schmidt L, Jahnke T, Schmidt-Böcking H, and Dörner R. Enhanced production of low energy electrons by alpha particle impact. *PNAS*, 108:11821–11824, 2011.
- [Kir98] Kirchner T, Gulyás L, Lüdde HJ, Engel E, and Dreizler RM. Influence of electronic exchange on single and multiple processes in collisions between bare ions and noble-gas atoms. *Phys. Rev. A*, 58:2063, 1998.
- [Kir02] Kirchner T. Manipulating ion-atom collisions with coherent electromagnetic radiation. *Phys. Rev. Lett.* 89, 89:093203, 2002.
- [Kir04] Kirchner T, Lüdde H, and Horbatsch M. A time-dependent quantal approach to electronic transitions in atomic collisions. *Recent Res. Devel. Physics*, 5:433, 2004.
- [Kno05] Knoop S, Keim M, Lüdde HJ, Kirchner T, Morgenstern R, and Hoekstra R. State selective single-electron capture in $\text{o}^{6+} + \text{na}$ collisions. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 38:3163, 2005.
- [Koi09] Koike T and Silverstone HJ. Rereading langer’s influential 1937 jwkb paper: the unnecessary langer transformation; the two h’s. *J. Phys. A: Math. Theor.*, 42:495206, 2009.
- [Kol10] Kolorenc P, Kryzhevoi NV, Sisourat N, and Cederbaum LS. Interatomic coulombic decay in a he dimer: Ab initio potential-energy curves and decay widths. *Phys. Rev. A*, 82:013422, 2010.

- [Kre05] Kreidi K. *Photodoppelionisation von H₂ - eine Analogie zum Doppelspalt*. Master's thesis, Goethe-Universität Frankfurt am Main, 2005.
- [Kre08] Kreidi K, Jahnke T, Weber T, Havermeier T, Liu X, Morisita Y, Schössler S, Schmidt LPH, Schöffler M, Odenweller M, Neumann N, Foucar L, Titze J, Ulrich B, Sturm F, Stuck C, Wallauer R, Voss S, Lauter I, Kim HK, Rudloff M, Fukuzawa H, Prümper G, Saito N, Ueda K, Jagutzki ACO, Schmidt-Böcking H, Stoychev S, Demekhin PV, and Dörner R. Relaxation processes following 1s photoionization and auger decay in ne₂. *Phys. Rev. A*, 78:043422, 2008.
- [Kre09] Kreidi K. *Untersuchung der Zerfallsmechanismen und der Lokalisierung von Vakanz in Ne₂*. Ph.D. thesis, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt, 2009.
- [Kro99] Kroneisen OJ, Lüdde HJ, Kirchner T, and Dreizler RM. The basis generator method: optimized dynamical representation of the solution of time-dependent quantum problems. *J. Phys. A: Math. Gen.*, 32:2141, 1999.
- [Kry] Kryzhevoi N. Mündliche mitteilung.
- [Lab07] Lablanquie P, Aoto T, Hikosaka Y, Morioka Y, Penent F, and Ito K. Appearance of interatomic coulombic decay in ar, kr, and xe homonuclear dimers. *J. of Chem. Phys.*, 127:154323, 2007.
- [Lak] *DT-670 Silicon Diodes*.
- [Lüd96] Lüdde HJ, Henne A, Kirchner T, and Dreizler RM. Optimized dynamical representation of the solution of time-dependent quantum problems. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 29:4423, 1996.
- [Lüd03] Lüdde H. *Springer Series on Atomic, Optical, and Plasma Physics, 35*, chapter 1 Time-Dependent Density Functional Theory in Atomic Collisions. Springer Verlag, 2003.
- [Lov64] Lovelace C. Practical theory of three-particle states. i. nonrelativistic. *Phys. Rev.*, 135:B1225, 1964.
- [Lud93] Ludde HJ, Henne A, Salin A, Toepfer A, and Dreizler RM. Time-dependent optical potentials: non-markovian and doorway approaches. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 26:2667, 1993.
- [Lun96] Lundqvist M, Edvardsson D, Baltzer P, and Wannberg B. Doppler-free kinetic energy release spectrum of n₂²⁺. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 29:1489, 1996.

- [Luo93] Luo F, Kim G, McBane GC, Giese CF, and Gentry WR. Influence of retardation on the vibrational wave function and binding energy of the helium dimer. *J. Chem. Phys.* 98, 98:9687, 1993.
- [Mar03] Marburger S, Kugeler O, and Hergenbahn U. Experimental evidence for interatomic coulombic decay in ne clusters. *Phys. Rev. Lett.*, 90:203401, 2003.
- [Mat10] Matsumoto J, Leredde A, Flechard X, Hayakawa K, Shiromaru H, Rangama J, Zhou CL, Guillous S, Hennecart D, Muranaka T, Mery A, Gervais B, and Cassimi A. Asymmetry in multiple-electron capture revealed by radiative charge transfer in ar dimers. *Phys. Rev. Lett.*, 105:263202, 2010.
- [McD70] McDowell M and Coleman J. *Introduction to the theory of ion-atom collision*. North-Holland; New York: American Elsevier, 1970.
- [McG82] McGuire JH. Double ionization of helium by protons and electrons at high velocities. *Phys. Rev. Lett.*, 49:1153, 1982.
- [McG88] McGuire JH, Deb NC, and Aktas Y. Shakeover probability for electron capture. *Phys. Rev. A*, 38:3333, 1988.
- [Mer94] Mergel V. *Dynamik von Elektronentransferreaktionen am Stoßsystem $p + He \rightarrow H^0 + He^+$ untersucht mit hochauflösender Rückstoßionenimpulsspektroskopie*. Master's thesis, Universität Frankfurt, 1994.
- [Mer01] Mergel V, Dörner R, Khayyat K, Achler M, Weber T, Schmidt-Böcking H, and Lüdde H. Strong correlations in the he ground state momentum wave function - observed in the fully differential momentum distributions for the four particle p+he transfer ionization process. *Phys. Rev. Lett.* 86, 86:2257, 2001.
- [Mey00] *Meyer-Kuckuck*. Einführung in die Atomphysik, 2000.
- [Mil88] Miller DR. *'Free Jet Sources' in Atomic and Molecular Beam Methods*. Oxford University Press, 1988.
- [Mor06] Morishita Y, Liu XJ, Saito N, Lischke T, Kato M, Prümper G, Oura M, Yamaoka H, Tamenori Y, Suzuki IH, and Ueda K. Experimental evidence of interatomic coulombic decay from the auger final states in argon dimers. *Phys. Rev. Lett.*, 96:243402, 2006.
- [Mos96] Moshhammer R, Unverzagt M, Schmitt W, Ullrich J, and Schmidt-Böcking H. A 4π recoil-ion electron momentum analyzer: a high-resolution "microscope" for the investigation of the dynamics of atomic, molecular and nuclear reactions. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, 108:425, 1996.

- [Mos97] Moshhammer R, Schmitt W, Ullrich J, Kollmus H, Cassimi A, Dörner R, Jagutzki O, Mann R, Olson RE, Prinz HT, Schmidt-Böcking H, and Spielberger L. Ionization of helium in the attosecond equivalent light pulse of 1 gev/nucleon u^{92+} projectiles. *Phys. Rev. Lett.*, 79:3621, 1997.
- [Mou90] Moumenit A, Dulieu O, and Sech CL. Correlated wavefunctions for two-electron systems using new screened hydrogen-like orbitals. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 23:L739, 1990.
- [Muc10] Mucke M, Barth MBS, Förstel M, Lischke T, Ulrich V, Arion T, Becker U, Bradshaw A, and Hergenhahn U. A hitherto unrecognized source of low-energy electrons in water. *Nature Physics* 6, 6:143, 2010.
- [Muk73] Mukherjee SC, Roy K, and Si NC. Electron capture and excitation in he^{2+} -he collisions. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 6:467, 1973.
- [Mur93] Murphy CJ, Arkin M, Ghatlia YJND, Bossmann SH, Turro NJ, and Barton JK. Long-range photoinduced electron transfer through a dna helix. *Science*, 12:1025, 1993.
- [Nol04] Nolting W. *Grundkurs Theoretische Physik 5/2*. Springer Berlin, 2004.
- [Opp28] Oppenheimer JR. On the quantum theory of the capture of electrons. *Phys. Rev.*, 31:349, 1928.
- [Pie91] Pieksma M and Ovchinnikov SY. The contribution of the saddle point mechanism to the total ionization cross section in slow atomic collisions. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 24:2699, 1991.
- [Piv62] Pivovarov L, Novikov M, and Tubaev V. *J. Exp. Theor. Phys.*, 15:1035, 1962.
- [Pon00] Pons B. Ability of monocentric close-coupling expansions to describe ionization in atomic collisions. *Phys. Rev. A*, 63:012704, 2000.
- [Pri72] Prior MH. Lifetime of the 2s state of he^+ . *Phys. Rev. Lett.*, 29:611, 1972.
- [Roe] *HexAnodeSoftware (2.0.1.3)*.
- [Roe06] Roentdek Handels GmbH. *Cobold PC user manual*, May 2006.
- [Rut11] Rutherford E. The scattering of α and β particles by matter and the structure of the atom. *Philosophical Magazine*, 21:669–688, 1911.
- [Sai07] Saito N, Morishita Y, Suzuki I, Stoychev S, Kuleff A, Cederbaum L, Liu XJ, Fukuzawa H, Prümper G, and Ueda K. Evidence of radiative charge transfer in argon dimers. *Chem. Phys. Lett.*, 441:16, 2007.

- [San02] Santra R, , and Cederbaum LS. Non-hermitian electronic theory and applications to clusters. *Physics Reports*, 368:1, 2002.
- [Sch] Schmidt LP. Iteratives verfahren zur impulsbestimmung in flugzeitrichtung.
- [Sch91] Schuch R, Justiniano E, Vogt H, Deco G, and Gruen N. Double electron capture of he^{2+} from he at high velocity. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 24:L133, 1991.
- [Sch94] Schöllkopf W and Toennies JP. Nondestructive mass selection of small von der waals clusters. *Science*, 266:1345, 1994.
- [Sch99] Schultz DR, Strayer MR, and Wells JC. Lattice, time-dependent schrödinger equation solution for ion-atom collisions. *Phys. Rev. Lett.*, 82:3976, 1999.
- [Sch00] Schmidt L. *Effekte molekularer Symmetrien in der Elektronenemission bei langsamen He^{2+} -He - Stößen: Eine kinematisch vollständige experimentelle Untersuchung*. Ph.D. thesis, Goethe-Universität Frankfurt a. M., 2000.
- [Sch02] Schöffler M. *Entwicklung und Aufbau eines Abbildungssystems zur Messung von Elektronen jenseits niedriger Energien*. Master's thesis, Goethe-Universität Frankfurt, 2002.
- [Sch05] Schöffler M, Godunov AL, Whelan CT, Walters HRJ, Schipakov VS, Mergel V, Dörner R, Jagutzki O, Schmidt LPH, Titze J, Weigold E, and Schmidt-Böcking H. Revealing the effect of angular correlation in the ground-state he wavefunction: a coincidence study of the transfer ionization process. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 38:L123, 2005.
- [Sch06] Schöffler M. *Grundzustandskorrelationen und dynamische Prozesse untersucht in Ion-Helium-Stößen*. Ph.D. thesis, Goethe-Universität Frankfurt a.M., 2006.
- [Sch08] Schmidt LPH, Schössler S, Afaneh F, Schöffler M, Stiebing KE, Schmidt-Böcking H, and Dörner R. Young-type interference in collisions between hydrogen molecular ions and helium. *Phys. Rev. Lett.*, 101:173202, 2008.
- [Sha79] Shakeshaft R and Spruch L. Mechanisms for charge transfer (or for the capture of any light particle) at asymptotically high impact velocities. *Rev. Mod. Phys.*, 51:369, 1979.
- [Sha85] Shah MB and Gilbody HB. Single and double ionisation of helium by h^+ , he^{2+} and li^{3+} ions. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 18:899, 1985.
- [Sid81] Sidorovich VA. Independent electron approximation in collisions of nuclei with atoms. *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 12:4805, 1981.

- [Sis10a] Sisourat N, Kryzhevoi NV, Kolorenc P, Scheit S, and Cederbaum LS. Impact of nuclear dynamics on interatomic coulombic decay in a he dimer. *Phys. Rev. A*, 82:053401, 2010.
- [Sis10b] Sisourat N, Kryzhevoi NV, Kolorenc P, Scheit S, Jahnke T, and Cederbaum LS. Ultralong-range energy transfer by interatomic coulombic decay in an extreme quantum system. *Nature Physics*, 6:508, 2010.
- [Sla28] Slater J. The normal state of helium. *Physical Review*, 32:349, 1928.
- [Sol05] Solov'ev EA. The advanced adiabatic approach and inelastic transitions via hidden crossings. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 38:R153, 2005.
- [Sta07] Staudte A, Pavii D, Chelkowski S, Zeidler D, Meckel M, Niikura H, Schöffler M, Schössler S, Ulrich B, Rajeev PP, Weber T, Jahnke T, Villeneuve DM, Bandrauk AD, Cocke CL, Corkum PB, , and Dörner R. Attosecond strobing of two-surface population dynamics in dissociating h2+. *Phys. Rev. Lett.* 98, 98:073003, 2007.
- [Ste09] Stephan P, Schaber K, Stephan K, and Mayinger F. *Thermodynamik - Grundlagen und technische Anwendungen, Band 1: Einstoffsysteme*. Springer Berlin Heidelberg, 2009.
- [Tan95] Tang KT, Toennies JP, and Yiu CL. Accurate analytical he-he van der waals potential based on perturbation theory. *Phys. Rev. Lett.* 74, 74:1546, 1995.
- [The79] Theisen TC and McGuire JH. Single and double electron capture in the independent-electron approximation at high velocities. *Phys. Rev. A*, 20:1406, 1979.
- [Tho27] Thomas LH. On the capture of electrons by swiftly moving electrified particles. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 114:561, 1927.
- [Tit05] Titze J. *Untersuchung des Elektronentransfers in p-D2-Stößen - Der Doppelspaltversuch mit einem diatomaren Molekül*. Master's thesis, Goethe-Universität Frankfurt am Main, 2005.
- [Tit11] Titze J, Schöffler MS, Kim HK, Trinter F, Waitz M, Voigtsberger J, Neumann N, Ulrich B, Kreidi K, Wallauer R, Odenweller M, Havermeier T, Schössler S, Meckel M, Foucar L, Jahnke T, Czasch A, Schmidt LPH, Jagutzki O, Grisenti RE, Schmidt-Böcking H, Lüdde HJ, and Dörner R. Ionization dynamics of helium dimers in fast collisions with he²⁺. *Phys. Rev. Lett.* 106, 106:033201, 2011.
- [Tos99] Toshima N. Convergence and completeness of the pseudostate expansion for proton-hydrogen collisions in two-center close-coupling calculations. *Phys. Rev. A* 59, 59:1981, 1999.

- [Ull89] Ullrich J, Olson R, Dörner R, Dangendorf V, Kelbch S, Berg H, and Schmidt-Böcking H. Influence of ionized electrons on heavy nuclei angular differential scattering cross section. *J. Phys. B*, 22:627, 1989.
- [Ull95] Ullrich J, Moshhammer R, Unverzagt M, Schmidt W, Jardin P, Olson R, Dörner R, Mergel V, and Schmidt-Böcking H. Ionization collision dynamics in 3.6 mev/u ni²⁴⁺ on he encounters. *Nucl. Instr. Meth. B*, 98:375–379, 1995.
- [Ull03] Ullrich J, Moshhammer R, Dorn A, Dörner R, Schmidt LPH, and Schmidt-Böcking H. Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: reaction-microscopes. *Institute of Physics Publishing: Report on Progress in Physics*, 66:1463, 2003.
- [vW34] v Weizsäcker CF. Ausstrahlung bei stößen sehr schneller elektronen. *Zeitschrift für Physik*, 88:612, 1934.
- [Wan96] Wang YD, Rodríguez VD, Lin CD, Cocke CL, Kravis S, Abdallah M, and Dörner R. Analysis of final-state momentum distributions of ionization products in ion-atom collisions. *Phys. Rev. A*, 53:3278, 1996.
- [Web99] Weber T. *Impulstransfer in Proton-Heliumstößen untersucht mit hochauflösender Rückstoßionenimpulsspektroskopi*. Master's thesis, Goethe-Universität Frankfurt a.M., 1999.
- [Web00] Weber T, Khayyat K, Dörner R, Mergel V, Jagutzki O, Schmidt L, Afaneh F, Gonzalez A, Cocke CL, Landers AL, and Schmidt-Böcking H. Kinematically complete investigation of momentum transfer for single ionization in fast proton helium collisions. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 33:3331, 2000.
- [Web01] Weber T, Jagutzki O, Hattass M, Staudte A, Nauert A, Schmidt L, Prior MH, Landers AL, Bräuning-Demian A, Bräuning H, Cocke CL, Osipov T, Ali I, Muno RD, de Abajo DRFJG, Fadley CS, VanHove MA, Cassimi A, Schmidt-Böcking H, and Dörner R. K-shell photoionization of co and n₂: Is there a link between the photoelectron angular distribution and the molecular decay dynamics? *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 34:3669 – 3678, 2001.
- [Web03] Weber T. *Untersuchung der verschränkten Bewegung freier Elektronenpaare emittiert aus Ein- und Zweizentren Coulomb-Potentialen in Photoabsorptionsprozessen*. Ph.D. thesis, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt, 2003.
- [Web04] Weber T, Czasch AO, Jagutzki O, Müller AK, Mergel V, Kheifets A, Rotenberg E, Meigs G, Prior MH, Daveau S, Landers A, Cocke CL, Osipov T, Muino RD, Schmidt-Böcking H, and Dörner R. Complete photo-fragmentation of the deuterium molecule. *Nature*, 431:437, 2004.

-
- [Wel96] Wells JC, Schultz DR, Gavras P, and Pindzola MS. Numerical solution of the time-dependent schrödinger equation for intermediate-energy collisions of antiprotons with hydrogen. *Phys. Rev. A*, 54:593, 1996.
- [Wet86] Wetmore AE and Olson RE. Ionization of h and he+ by electrons and positrons colliding at near-threshold energies. *Phys. Rev. A*, 34:2822, 1986.
- [wik] Wikipedia - die freie enyklopädie.
- [Wil55] Wiley WC and McLaren IH. Time-of-flight mass spectrometer with improved resolution. *Rev. Sci. Instrum.*, 26:1150, 1955.
- [Wiz79] Wiza JL. Microchannel plate detectors. *Nucl. Instr. and Meth.*, 162:587, 1979.

Lebenslauf

Jasmin Titze

Geboren am 01. Februar 1978 in Frankfurt

Eltern Jannette Meyer geb. Titze

Schwestern Katharina Meyer
Franziska Meyer

Schulbildung

1984–1989 Grundschule, Theobald-Ziegler-Schule, Frankfurt (Hessen)

1989–1997 Gymnasium, Musterschule, Frankfurt (Hessen)
Abitur, Gesamtnote: 2,4

Hochschulausbildung

10/1997–02/2005 Studium, Physik

10/2000 Vordiplom in Physik, Note: 1,0

02/2005 Diplom in Physik, Note: 1,0 (mit Auszeichnung)

03/2005 Beginn der Promotion

04/2006– 03/2007 Stipendium der Universität Frankfurt im Rahmen des HWP-Programms für Doktorandinnen der Naturwissenschaften

Forschungsaufenthalte

01/2003 HASYLAB, DESY, Hamburg

03/2003 LBNL, ALS, Berkeley, USA

11/2003 Bessy II, Berlin

08/2004 LBNL, ALS, Berkeley, USA

11/2005 FEL, DESY, Hamburg

06/2006	HASYLAB, DESY, Hamburg
08/2006	LBNL, ALS, Berkeley, USA
03/2007	LBNL, ALS, Berkeley, USA
04/2007	Bessy II, Berlin
11/2007	Bessy II, Berlin
12/2008	Bessy II, Berlin
03/2009	LBNL, ALS, Berkeley, USA
03/2011	LBNL, ALS, Berkeley, USA
07/2011	Ganil, Caen, Frankreich

Konferenzteilnahmen

01/2004	EAS Tagung, Riezlern, Österreich
03/2003	68. Jahrestagung der DPG, München (Poster)
03/2005	69. Jahrestagung der DPG, Berlin (Poster)
03/2006	70. Jahrestagung der DPG, Frankfurt (Poster)
09/2006	Sommerschule, Wittenberg (Poster)
08/2007	ICPEAC-Sattelite Conference, Königstein am Taunus
03/2008	72. Jahrestagung der DPG, Darmstadt (Vortrag)
02/2009	EAS Tagung, Riezlern, Österreich (Vortrag)
07/2009	ISIAC, ICPEAC-Sattelite Conference, Norfolk, USA (Vortrag)
07/2009	ICPEAC, Kalamazoo, USA (Poster)
11/2009	13. Deutsche Physikerinentagung, Frankfurt a. Main (Vortrag)
03/2010	74. Jahrestagung der DPG, Hannover (Vortrag)

Frankfurt am Main, September 2011