

Untersuchung des Elektronentransfers
in p-D₂-Stößen

Der Doppelspaltversuch mit einem diatomaren Molekül

Jasmin Titze

Diplomarbeit

Institut für Kernphysik
Johann Wolfgang Goethe Universität
Frankfurt am Main

Juni 2004

Für Florian, der mich immer
wieder unterstützt und motiviert hat und
gerade in den letzten Wochen sehr viel Geduld mit mir bewies.

Für Jannette

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	7
1.1. Atomare Einheiten	12
2. Physikalischer Hintergrund	13
2.1. Das H₂-Molekül	13
2.1.1. Molekülorbitale und deren Nomenklatur.....	16
2.1.2. Rotation und Vibration	18
2.1.3. Anregung und Dissoziation eines Moleküls.....	19
2.2. Der Elektroneneinfang	22
2.2.1. Der nicht-dissoziative Elektroneneinfang.....	22
2.2.2. Der dissoziative Elektroneneinfang.....	25
2.3. Die Rutherfordstreuung	26
2.3.1. Rutherfordstreuung im Teilchenbild	26
2.3.2. Rutherfordstreuung im Wellenbild	29
2.3.3. Streuung am Zwei-Zentren-Potenzial	29
2.4. Lösungsansatz in der Theorie	35
3. Aufbau	39
3.1. Das Gastarget	41
3.1.1. Jet- und Vakuumsystem	42
3.1.2. Die Gasrückgewinnung.....	44
3.2. Strahlführung und Kollimation	47
3.2.1. Projektilline	48
3.3. Das Spektrometer	52
3.3.1. Bewegung im Elektrische Feld	52
3.3.2. Das XXL-Spektrometer.....	54
3.4. Detektoren	56
3.5. Datenaufnahme	59
4. Datenanalyse	63
4.1 Kalibration	63
4.1.1. Detektororte.....	63
4.1.2. Die Flugzeit des Rückstoßions.....	65
4.2. Bestimmung des elektrischen Feldes	67
4.3. Bestimmung der Impulse	67

4.4. Das Molekülsystem	69
4.4.1. Bestimmung der Molekülachse	69
4.4.2. Kugelkoordinaten.....	71
4.4.2. Darstellung im Molekülsystem	71
5. Ergebnisse und Diskussion	73
5.1. Auflösung	73
5.2. Untergrund	76
5.3. Ergebnisse	80
6. Ausblick und Zusammenfassung	93
7. Literaturverzeichnis	95
8. Danksagung	99

1. Einleitung

Die Aufgabe der Physik ist es, die Naturvorgänge der unbelebten Materie zu erforschen und allgemein gültige Gesetzmäßigkeiten zu finden, die sie beschreiben. Ein solcher Vorgang ist per Definition mit einer Änderung eines ursprünglichen Zustands verbunden. Wenn man diese Änderung untersuchen möchte, besteht häufig das Problem, dass man ihre Ursache nicht direkt erkennen kann: Ein Ball, der gegen eine Wand prallt, ändert seine Bewegungsrichtung. Hier ist klar zu sehen, wodurch dies verursacht wird. Reibt man dagegen die Oberfläche eines Luftballon über kurze Haare, so werden die Haare nach kurzer Zeit scheinbar am Luftballon festkleben. Hier ist die Ursache nicht ersichtlich. Man kann dieses Phänomen nur erklären, wenn man den Begriff der Ladung und des elektrischen Feldes benutzt. Und genau an dieser Stelle beginnt der Physiker, ein Bild bzw. ein Modell zu erschaffen, aus dem er allgemein gültige Gesetzmäßigkeiten ableitet und das dadurch seine Berechtigung erhält, dass die Voraussagen aus diesem Modell mit den experimentellen Ergebnissen übereinstimmen.

Heinrich Hertz hat dies einmal so formuliert: „...Das Verfahren aber, dessen wir uns zur Ableitung des Zukünftigen aus dem Vergangenen und damit zur Erlangung der erstrebten Voraussicht stets bedienen, ist dieses: Wir machen uns innere Scheinbilder oder Symbole der äußeren Gegenstände, und zwar machen wir sie von solcher Art, daß die denotwendigen Folgen der Bilder stets wieder Bilder seien von den naturnotwendigen Folgen der abgebildeten Gegenstände. Damit diese Forderung überhaupt erfüllbar sei, müssen gewisse Übereinstimmungen vorhanden sein zwischen der Natur und unserem Geiste. Die Erfahrung lehrt uns, daß die Forderung erfüllbar ist und daß also solche Übereinstimmungen in der Tat bestehen...“ Weiter heißt es bei ihm: „....Die Bilder, von welchen wir reden, sind unsere Vorstellungen von den Dingen; sie haben mit den Dingen die eine wesentliche Übereinstimmung, welche in der Erfüllung der genannten Forderung liegt, aber es ist für ihren Zweck nicht nötig, daß sie irgend eine weitere Übereinstimmung mit den Dingen haben. In der Tat wissen wir auch nicht und haben auch kein Mittel zu erfahren, ob unsere Vorstellungen von den Dingen mit jenen in irgendetwas anderem übereinstimmen als allein in eben jener einen fundamentalen Beziehung.“ [Her63]

Welche fundamentale Rolle diese Bilder, wie sie Hertz nennt, spielen, zeigt die Tatsache, dass komplette Teilbereiche der Physik wie z. B. die klassische Mechanik und die Elektrodynamik mit recht unterschiedlichen Modellen (Teilchentheorie, Feldtheorie) beschrieben werden, die sich zwar nicht ausschließen bzw. widersprechen dürfen, deren

erklärender Ansatz aber nur eben für diesen Teilbereich zweckmäßig ist. Das Licht ist ein gutes Beispiel dafür, wie für verschiedene Eigenschaften ein und der gleichen Sache sehr unterschiedlich die Modelle verwendet werden: In der geometrischen Optik wird das Licht vereinfacht als Strahl angesehen, womit Abbildungen durch Linsen und optische Geräte gut wiedergegeben werden können. Um jedoch Beugungs- und Interferenzeffekte zu erklären, muss auf das Modell der elektromagnetischen Wellen zurückgegriffen werden. Die Anregung eines Atoms durch Licht ist wiederum nur erklärbar, wenn dem Licht Teilcheneigenschaften zugewiesen werden.

Es erscheint zunächst verwirrend, doch birgt der Modellcharakter einen großen Vorteil in sich. Man neigt bei der Darstellung konkreter Vorgänge dazu, zunächst das einfachste Bild anzunehmen, das die Ergebnisse gut widerspiegelt. Die Entwicklung des Atommodells zeigt dies sehr deutlich. Vom anfänglichen Kugelchenmodell nach Dalton, das lediglich die Massenverhältnisse chemischer Verbindungen erklärt, bis zum heutigen quantenmechanischem Atommodell, in dem der Ort der Elektronen durch eine Wahrscheinlichkeitsdichte angegeben wird, war es ein langer Weg, der viele Modifikationen des Atommodell beinhaltet. Nicht selten werden diese zunächst vereinfachten Bilder bzw. Modelle auch aus anderen Bereichen der Physik entlehnt. Es ist interessant zu sehen, dass man selbst bei quantenmechanischen Vorgängen zur Lösung der Schrödingergleichung Modelle der klassischen Mechanik verwendet und auch verwenden kann. Um beispielsweise die Schwingungsvorgänge eines diatomaren Moleküls zu beschreiben, wählt man als Ansatz für den Hamiltonoperator die Energie des harmonischen Oszillators. Zwar muss natürlich auch dieses Modell für eine gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen modifiziert werden (anharmonischer Oszillator, Morsepotenzial), doch verhilft es zu einem grundlegenden Verständnis.

Das im Folgenden beschriebene Experiment bemüht sich einmal mehr darum, die Gültigkeit eines solchen Modells zu prüfen: Wenn ein schnelles Proton auf ein nahezu ruhendes Wasserstoffatom trifft, führt die Wechselwirkung zwischen den beiden Kernpotenzialen zu einer Ablenkung des Protons aus seiner ursprünglichen Bewegungsrichtung. Wie stark es abgelenkt wird, hängt aufgrund der Coulombabstoßung vom kleinsten Abstand ab, den Ion und Atom während des Stoßes erreichen konnten. Je kleiner der Abstand ist, desto stärker wird das Proton gestreut und desto größer ist der Impulsübertrag, den es transversal zu seiner ursprünglichen Bewegungsrichtung erhält. Man bezeichnet daher diesen Abstand als Stoßparameter; die Streuung eines Ions am

Kernpotenzial eines anderen Atoms bzw. Ions ist im Allgemeinen als Rutherfordstreuung bekannt.

Trifft nun das schnelle Proton auf ein Wasserstoffmolekül, so ist der Stoßparameter nicht mehr eindeutig bestimmt, da das Proton plötzlich zwei Möglichkeiten hat, mit dem Molekül in Wechselwirkung zu treten: Es kann sowohl an dem einen, als auch an dem anderen Kern streuen. Dieser Sachverhalt erinnert sehr stark an ein Doppelspaltexperiment: Wenn beispielsweise ein Elektron an einem Doppelspalt streut, so ist es ebenfalls unbestimmt, an welchem Spalt es dies tut. Aus weiteren Untersuchungen weiß man, dass sich genau aufgrund dieser Unbestimmtheit in der Verteilung der gestreuten Elektronen Interferenzstrukturen zeigen. Im Hinblick auf diese Analogie stellt sich berechtigterweise folgende Frage: Können in der Impulsverteilung des gestreuten Protons ebenfalls Interferenzen beobachtet werden? Oder anders formuliert: Kann die Streuung eines Protons an einem Molekül mit der Streuung an einem klassischen Doppelspalt verglichen werden?

Die Messung eines solchen Vorgangs gestaltet sich schwierig, da man sicherlich nicht ein einzelnes Proton auf ein einzelnes Molekül beschleunigen kann, die Ablenkung misst und den Vorgang wieder mit einem einzelnen Proton wiederholt. Vielmehr wird man einen Protonenstrahl mit einem Gasvolumen aus mehreren Molekülen zum Überlapp bringen. Dabei entsteht nur das Problem, dass nicht jedes Proton an einem Molekül streuen wird. Man benötigt also eine Möglichkeit, die gestreuten von den nicht gestreuten Protonen zu unterscheiden. Aus diesem Grund vermisst man in diesem Experiment einen Prozess, in dem während des Stoßes das Proton ein Elektron aus einem gebundenen Zustand des Moleküls einfängt und dadurch eine Umladung erfährt. Für diesen Elektroneneinfang gilt jedoch bezüglich des Modells genau das Gleiche wie für die reine Streuung am Kernpotenzial.

Die theoretische Beschreibung des Elektroneneinfangprozesses besteht wie bei allen Streuprozessen auch in der Bestimmung des Wirkungsquerschnitts. Tuan et al haben bereits 1960 die Wirkungsquerschnitte für den Elektroneneinfang aus einem H_2 -Molekül in ein Proton berechnet. Ihre Annahme war dabei, die beiden Atome des Moleküls als unabhängig in ihrer Wechselwirkung mit dem einlaufendem Proton zu betrachten. Sie benutzten für die Berechnung die Brinkman-Kramers-Näherung, die besagt, dass als Ursache für den Elektroneneinfang näherungsweise nur die Wechselwirkung des Protons mit dem eingefangenen Elektron angenommen werden kann. Sie konnten zeigen, dass

sich diese Wechselwirkung formal aus zwei Termen zusammensetzt: Der eine Teil steht für die Wechselwirkung für den Fall, dass das Elektron nur dem einen Kern zugeordnet wäre, der andere Teil beschreibt die Wechselwirkung, wenn das Elektron nur zum anderen Kern gehörte. Genau dies entspricht den beiden Möglichkeiten, die das Proton bei der Streuung besitzt. Tuan et al. [Tuan60] fanden zwischen beiden Termen eine Beziehung, die dem Zusammenhang zwischen zwei auslaufenden Wellen in einem Doppelspaltexperiment ähnelt. Diese Arbeit stützt sich im Wesentlichen auf diese Berechnungen sowie auf die Kalkulationen von Deb et al [Deb88], deren grundlegende Aussage es ist, dass die Interferenzstrukturen nur zu beobachten sind, wenn die Achse des Moleküls festgehalten wird.

Man erkennt allein an der Tatsache, dass mögliche Interferenzen bereits vor einigen Jahrzehnten vorausgesagt wurden, sie bisher aber nicht experimentell bestätigt wurden, dass die Untersuchung des Elektroneneinfangprozesses in p-H₂-Stößen bzw. p-D₂-Stößen nicht ganz einfach zu sein scheint. Das neutrale Wasserstoffatom und das entstandene Molekülion eines Prozesses müssen in Koinzidenz nachgewiesen werden. Zudem ist es notwendig, den Impulsübertrag, den das Wasserstoffatom aus der Reaktion erhält, aus der Messung bestimmen zu können, und zwar mit einer hohen Auflösung. Möchte man die Molekülachse in diesem Experiment festhalten, stellt dies an Experiment und Aufbau einen weiteren hohen Anspruch. Die hier beschriebene Messung wurde mit der Rückstoßionenspektroskopie (Coltrims = **COLd Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy**) durchgeführt. Mit ihr ist es möglich, durch eine übliche Flugzeittechnik Projektil und Ion aus einer Reaktion koinzident zu messen. Die Impulse des Ions können in allen drei Raumrichtungen, die Impulsüberträge des Wasserstoffatoms in beiden Raumrichtungen transversal zu seiner ursprünglichen Bewegungsrichtung bestimmt werden. Ein aufwendiges Ausrichten der Molekülachse wird hier umgangen, in dem man den Elektroneneinfangprozess vermisst, der eine Dissoziation des Moleküls zur Folge hat. Durch die Kenntnis aller Impulse der Fragmente kann man im nachhinein auf die Stellung der Molekülachse rückschließen.

In **Kapitel 2** dieser Arbeit wird auf den Aufbau und die Struktur der Wasserstoffmolekülbindung eingegangen, sowie der Mechanismus der Elektroneneinfangreaktion näher erläutert. Zudem wird in Analogie zum Doppelspalt ein einfaches Modell dargestellt, das eine gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen der theoretischen Berechnungen zeigt. **Kapitel 3** beschäftigt sich mit den grundlegenden Eigenschaften der Rückstoßionenspektroskopie und dem Aufbau des Experiments.

Kapitel 4 zeigt die wichtigsten Aspekte der Datenanalyse behandelt. In **Kapitel 5** werden die Ergebnisse dieser Arbeit vorgestellt und diskutiert.

1.1. Atomare Einheiten

In der folgenden Arbeit werden atomare Einheiten (atomic units = a. u.) zur Darstellung der Größen genutzt. Daher soll nun ein kurzer Überblick über die Umrechnungsfaktoren zwischen SI-Einheiten und atomaren Einheiten gegeben werden.

Die atomaren Einheiten sind auf die Dimensionen eines Elektrons im Grundzustand des Wasserstoffatoms normiert. Es gilt daher:

Elementarladung	$e = 1,6022 \times 10^{-19} \text{ C}$	= 1 a. u.
Elektronenmasse	$m_e = 9,1095 \times 10^{-31} \text{ kg}$	= 1 a. u.
Bohrscher Radius	$a_0 = 5,2916 \times 10^{-11} \text{ m}$	= 1 a. u.
Geschwindigkeit des Elektrons	$v_e = 2,1877 \times 10^6 \text{ m/s}$	= 1 a. u.

Für die in der Arbeit verwendeten Naturkonstanten ergeben sich wie folgt [Web97]:

Plancksches Wirkungsquantum	$h = 2\pi$	bzw.	$\hbar = 1$
Ruhemasse des Protons	$m_p = 1836,15 \text{ a.u.}$		

Für die Umrechnungsfaktoren erhält man folgende Werte [schoe02]:

Zeit

$$1 \text{ s} = 4,1341 \times 10^{16} \text{ a. u.}$$

$$1 \text{ a.u.} = 2,4189 \times 10^{-17} \text{ s}$$

Länge

$$1 \text{ m} = 1,8897 \times 10^{10} \text{ a. u.}$$

$$1 \text{ a. u.} = 5,2918 \times 10^{-11} \text{ a. u.}$$

Masse

$$1 \text{ kg} = 1,0978 \times 10^{30} \text{ a. u.}$$

$$1 \text{ a. u.} = 9,1094 \times 10^{-31} \text{ kg}$$

Energie

$$1 \text{ J} = 2,2937 \times 10^{17} \text{ a. u.}$$

$$1 \text{ a. u.} = 4,3598 \times 10^{-18} \text{ J} = 27,211 \text{ eV}$$

2. Physikalischer Hintergrund

2.1. Das H_2 -Molekül

Zur quantenmechanischen Bestimmung von Molekülorbitalen muss die stationäre Schrödinger-Gleichung

$$H\Psi = E\Psi \quad (2.10)$$

gelöst werden. Man erhält die Eigenfunktionen ψ und die zugehörigen Energieeigenwerte E . Dabei ist es nicht ganz einfach, einen geeigneten Ansatz für die Wellenfunktion zu finden, da ein Wasserstoffmolekül bereits ein Drei-Körper-Problem darstellt und damit eine exakte analytische Berechnung nicht möglich ist. Als ersten Vereinfachungsschritt bietet sich eine Separation der Gesamtwellenfunktion in einen elektronischen Teil und einen Teil für die Kerne an. Man bezeichnet diese Vereinfachung als Born-Oppenheimer-Näherung. Sie beruht auf der Tatsache, dass die Elektronen aufgrund ihrer kleinen Masse sehr viel schneller sind als die Kerne und sie sich deshalb auch schnell der Kernbewegung anpassen. Man kann daher den Einfluss der Kernbewegung auf die elektronische Wellenfunktion im Allgemeinen in guter Näherung vernachlässigen und die Schrödinger-Gleichung für die elektronische Wellenfunktion für einen festen Kernabstand lösen. Einen möglichen Ansatz bietet dabei die LCAO-Theorie (Linear Combination of Atomic Orbitals). Hierbei werden, wie der Name schon sagt, die Wellenfunktionen der einzelnen Atomorbitale linear kombiniert. Beim einfachsten Beispiel, dem Wasserstoffmolekül, setzt sich die Wellenfunktion für den Grundzustand wie folgt zusammen:

$$\Psi = c_1 \mathbf{j}_a + c_2 \mathbf{j}_b \quad (2.11)$$

c_1 und c_2 stellen noch unbekannte Koeffizienten dar. Die beiden Kerne sind mit a und b gekennzeichnet. φ_a und φ_b beschreiben somit die Wellenfunktion des Wasserstoffgrundzustandes, die zum Kern a bzw. Kern b gehören. Durch geeignete Symmetrieüberlegungen und Vergleich der Koeffizienten kann man auf den Zusammenhang schließen: $c_1 = c_2$ [Hak98]. Es ergeben sich damit zwei Lösungen für die Wellenfunktion des Grundzustands des Wasserstoffmoleküls:

$$\begin{aligned} \Psi_+ &= c (\mathbf{j}_a + \mathbf{j}_b) \\ \Psi_- &= c (\mathbf{j}_a - \mathbf{j}_b) \end{aligned} \quad (2.12)$$

Wie man aus diesem Ausdruck erkennt, setzt sich die Wellenfunktion des einen Molekülorbitals aus der Summe der Grundzustandswellenfunktion der beiden Atome zusammen, während die Wellenfunktion des zweiten Molekülorbitals durch die Differenzbildung beider gewonnen wird. Im ersten Fall spricht man daher von einem geraden, im zweiten Fall von einem ungeraden Zustand. Die Überlagerung der s-Orbitale führt beim geraden Zustand zu einer Erhöhung der Aufenthaltswahrscheinlichkeit zwischen den Kernen. Auf beide wirkt die Anziehungskraft des Elektrons, wodurch die Bindung verstärkt wird. Man spricht von einem *bindenden* $1s\sigma$ -Zustand. Beim ungeraden Zustand hat die Überlagerung zur Folge, dass die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen im Außenbereich des Moleküls sehr hoch ist, während zwischen den Kernen ein Knoten liegt. Dieses *anti-bindende* Orbital wird mit $1s\sigma^*$ gekennzeichnet.

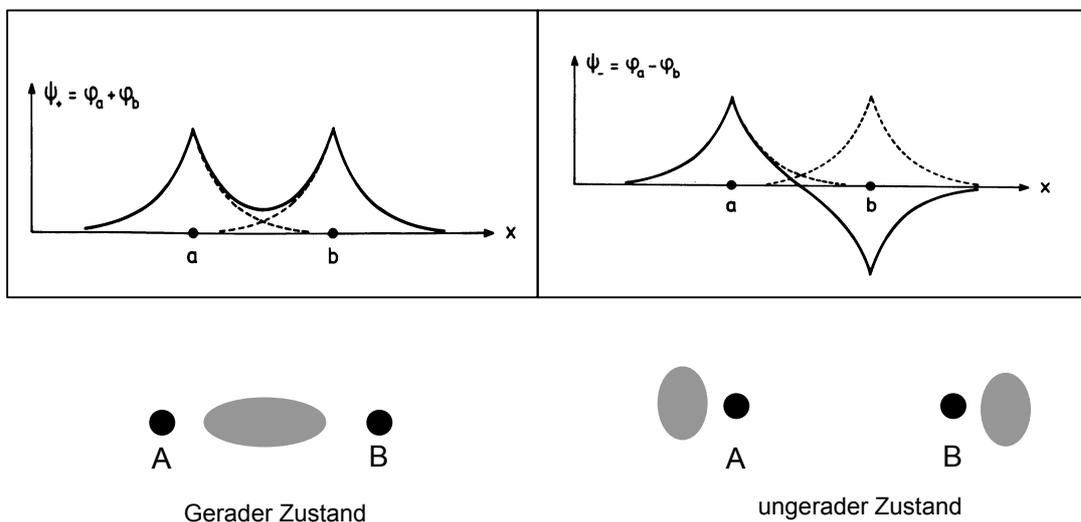


Abbildung 2.1. Schematische Darstellung der Überlagerungen. [Hak98]

Der Hamilton-Operator zur Bestimmung des Grundzustands des Wasserstoffmoleküls in der Born-Oppenheimer-Näherung setzt sich wie folgt zusammen:

$$H = \underbrace{\frac{\hbar^2}{2m_0} \Delta_1 + V(r_{a1})}_{H_1} + \underbrace{\frac{\hbar^2}{2m_0} \Delta_2 + V(r_{b2}) + V(r_{a2}) + V(r_{b1}) + V(r_{12}) + V(R_{ab})}_{H_2} \quad (2.13)$$

Die Kerne sind wieder mit a und b bezeichnet, die Elektronen mit 1 und 2. V ist generell die Coulombwechselwirkung zwischen den jeweiligen Teilchen. $V(r_{a1})$ ist beispielsweise

diejenige zwischen dem Kern a und Elektron 1. $V(r_{12})$ stellt die Wechselwirkung der Elektronen untereinander, $V(R_{ab})$ die Wechselwirkung der Kerne untereinander dar.

Die Schwierigkeit der Lösung besteht darin, dass die Bewegung beider Elektronen in einem nicht sphärisch symmetrischen Potenzial bestimmt und das Pauli-Prinzip berücksichtigt werden muss. Der letztgenannte Punkt besagt, dass beide Elektronen nicht den gleichen Zustand besetzen dürfen. Zudem beinhaltet das Pauli-Prinzip, dass die Wellenfunktion in allen Spin- und Ortskoordinaten der Elektronen antisymmetrisch sein muss, d.h. dass sich bei Umkehr des Vorzeichens der einzelnen Koordinaten auch das Vorzeichen der Wellenfunktionen umkehren muss.

Zwei bewährte Ansätze, um die Schrödinger-Gleichung für den Grundzustand des Wasserstoffmoleküls zu lösen, sind:

1. Die Hund-Mulliken-Bloch-Methode

Sie beruht auf der LCAO-Theorie. Jedes Elektron wird für sich betrachtet. Das bedeutet, dass für jedes Elektron eine Wellenfunktion aufgestellt wird, die sich aus den einzelnen Wellenfunktionen der 1s-Atomorbitale zusammensetzen:

$$\Psi(1) = j_a(1) + j_b(1) \quad (2.14)$$

$$\Psi(2) = j_a(2) + j_b(2)$$

Die Idee besteht nun darin, die Elektronen nacheinander in den Zustand des Moleküls hineinzusetzen. Der Ansatz für die Schrödinger-Gleichung ergibt sich dadurch wie folgt:

$$\Psi = \Psi(1) \Psi(2) = [j_a(1) + j_b(1)] [j_a(2) + j_b(2)], \quad (2.15)$$

Normierungsfaktoren und Spinfunktion wurden zur Vereinfachung nicht berücksichtigt.

2. Die Heitler-London-Methode

Hier geht man von zwei isolierten Atomen aus, die einander angenähert werden. Die Wechselwirkungen, die bei der Annäherung entstehen, werden als Störung aufgefasst. Der Hamilton-Operator ergibt sich vereinfacht zu: $H=H_1+H_2+H_{ST}$. H_1 und H_2 sind dabei die Hamilton-Operatoren der Gleichung, die gelöst werden müsste, wenn die Kerne unendlich weit auseinander lägen und jeder Kern für sich betrachtet würde (Gl. 2.12). Der Ansatz für die Wellenfunktion lautet dementsprechend:

$$\Psi = j_a(1)j_b(2) + j_a(2)j_b(1) \quad (2.16)$$

Auch hier sind Normierungsfaktoren und Spinfunktion nicht dargestellt.

Die Heitler-London-Methode berechnet die Bindungsenergien der Elektronen mit größerer Genauigkeit. Die Hund-Mulliken-Bloch-Methode ist jedoch für Molekülphysiker eher geeignet, da sie den Aufenthaltsort der Elektronen besser wiedergibt.

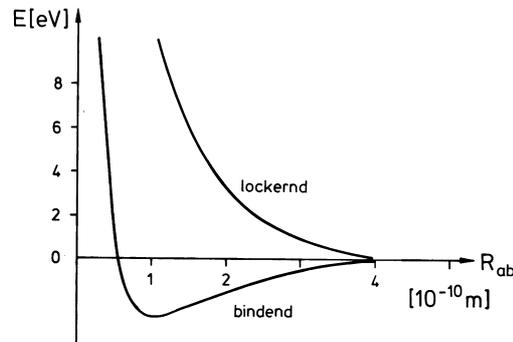


Abbildung 2.2. Energie E des Grundzustandes eines Wasserstoffmoleküls als Funktion des Kernabstand R_{ab} für einen bindenden bzw. nicht bindenden $1s$ -Zustand. Der bindende Zustand liegt energetisch niedriger. Dies kommt dadurch zustande, dass die Elektronen sich zwischen den Kernen aufhalten und die abstoßende Wirkung der beiden Kerne kompensieren. Bei kleinen Kernabständen überwiegt die positive Abstoßungsenergie, für große Abstände geht sie gegen Null. [Hak98]

2.1.1. Molekülorbitale und deren Nomenklatur

In einem diatomaren Molekül wird die Zentralsymmetrie des Coulombpotenzials aufgehoben, da in Richtung der Verbindungsachse beider Kerne zusätzlich ein elektrisches Feld wirkt. Anschaulich bedeutet dies, dass der Drehimpuls um die Molekülachse präzediert. Das führt dazu, dass sein Betrag keine Erhaltungsgröße und damit keine gute Quantenzahl mehr ist. Vielmehr bleibt nur die Projektion des elektronischen Drehimpulses auf die Molekülachse erhalten. Die Werte diese Drehimpulskomponente sind ganzzahlige Vielfache von \hbar . Es gilt:

$$l_z = \lambda \hbar \quad \text{mit } \lambda = l, l-1, \dots, 0, \quad (2.17)$$

wenn die Molekülachse der z -Achse entspricht. Man bezeichnet analog zur Nomenklatur der Atomorbitale s und p die Molekülorbitale mit $\lambda = 0$ als σ -Orbitale; Molekülorbitale, für die $\lambda = 1$ gilt, nennt man π -Orbitale.

Molekulare σ -Orbitale können nicht nur durch Überlagerung von atomaren 1s-Orbitalen entstehen, vielmehr kommt es immer dann zur Bildung von σ -Orbitalen, wenn die Überlagerung beider Atomorbitale zu einer rotationssymmetrischen Elektronenverteilung um die Verbindungslinie der beiden Kerne führt. Beispielsweise können sich auch p-Orbitale zu einem σ -Orbital überlagern.

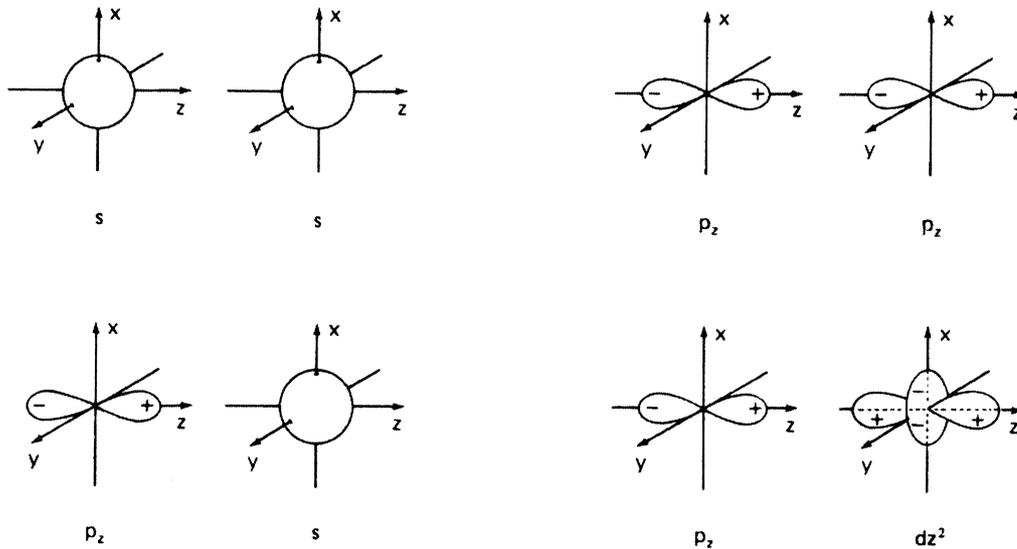


Abbildung 2.3. Schematische Darstellung der Atomorbitale, die zu s-Molekülorbitalen führen. [Wei78]

σ -Orbitale können von je zwei Elektronen mit antiparallelem Spin besetzt werden. Durch die erhöhte Elektronendichte zwischen den Kernen und die damit verbundene Absenkung der Coulombenergie liegt das bindende σ -Orbital energetisch niedriger. Man erhält daher die maximale Bindungsenergie, wenn es vollständig besetzt wird. Hierin liegt der Grund, warum es Wasserstoffmoleküle, aber keine natürlich vorkommenden Heliummoleküle gibt. Mit vier Valenzelektronen wird neben dem bindenden auch das antibindende σ -Orbital vollständig besetzt, was eine kovalente Bindung unmöglich macht.

Die π -Orbitale werden durch Überlagerung von p- und d-Atomorbitalen gebildet, deren Dichteverteilung senkrecht zur Verbindungsachse der beiden Atome gerichtet ist. Sie besitzen eine Knotenebene zwischen den Atomkernen. Die Elektronendichte konzentriert sich auf Bereiche oberhalb und unterhalb dieser Ebene. Daher sind alle π -Orbitale nichtbindend. Bei Atomen mit kleinem Bindungsabstand liegen sie energetisch höher als die σ -Orbitale. Durch die Überlagerungen der Atomorbitale entstehen jeweils zwei

Molekülorbitale, die durch je zwei Elektronen mit antiparallelem Spin besetzt werden können.

Im Allgemeinen findet man in der Bezeichnung der Molekülorbitale ein g für gerade und ein u für ungerade. Man kennzeichnet damit, ob die jeweilige Wellenfunktion symmetrisch oder unsymmetrisch gegenüber einer Spiegelung am Symmetriezentrum ist. Das bedeutet, dass eine Wellenfunktion eines Elektrons als ungerade bezeichnet wird, wenn ein Vorzeichenwechsel seiner Ortskoordinaten auch einen Vorzeichenwechsel der Wellenfunktion zur Folge hat; sie wird gerade genannt, wenn das Vorzeichen der Wellenfunktion erhalten bleibt.

2.1.2. Rotation und Vibration

Ein diatomares Molekül, wie ein H_2 -Molekül bzw. ein D_2 -Molekül, hat die Möglichkeit, um zwei Achsen senkrecht zur Verbindungsachse zu rotieren. Diese Rotationsbewegung sorgt für eine zusätzliche Energie des Moleküls. Für die quantenmechanische Berechnung dieser Energie geht man von dem Modell des starren Rotators aus [Atk01]. Das Molekül dreht sich mit dem Trägheitsmoment

$$I = \mathbf{m}r^2 \quad \text{mit } \mathbf{m} = \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2} \quad (2.18)$$

wobei r der Abstand und \mathbf{m} die reduzierte Masse der beiden Atome ist. Mit Hilfe der kinetischen Energie des starren Rotators

$$E_{kin} = \frac{J^2}{2I} \quad (2.19)$$

lässt sich die Schrödinger-Gleichung lösen. J ist der klassische Drehimpuls der Drehbewegung. Die quantenmechanische Lösung der Rotationsenergie des Moleküls ergibt sich wie folgt:

$$E_{Rot}(J) = \frac{\hbar^2}{2I} J(J+1). \quad (2.20)$$

J ist hier die Rotationsquantenzahl. Wie der Vergleich mit der Gleichung (2.19) zeigt, entspricht er dem quantisierten Drehimpuls der Rotationsbewegung.

Die Schwingung eines diatomaren Moleküls kann vereinfacht mit dem harmonischen Oszillator beschrieben werden. Man stellt die beiden Atome als zwei Massepunkte dar, die, durch eine Feder verbunden, reibungslos um einen mittleren Abstand r_e schwingen. Durch diese Schwingung erhält das Molekül ebenfalls eine zusätzliche Energie. Ihre quantenmechanische Berechnung beruht auf dem Modell des harmonischen Oszillators. Mit Hilfe der Energie des klassischen harmonischen Oszillators

$$E_{ges} = \frac{1}{2} \mathbf{m} v^2 + \frac{1}{2} k x^2, \text{ wobei } k = \mathbf{v}_0^2 \mathbf{m} \quad (2.21)$$

lässt sich diese Energie aus der Schrödinger-Gleichung berechnen:

$$E_{vib}(v) = \hbar \mathbf{v} \left(v + \frac{1}{2} \right), \quad v \in \mathbb{N}. \quad (2.22)$$

Sowohl der harmonische Oszillator als auch der starre Rotator stellen idealisierte Modelle dar. Für eine realistische Beschreibung von Schwingung und Rotation müssen die jeweiligen Modelle modifiziert werden. Bei der Rotation ist zu berücksichtigen, dass sich durch die Schwingung des Moleküls der Abstand der beiden Kerne und damit auch das Trägheitsmoment ständig ändert. Für die Schwingung wiederum darf kein parabelförmiges Potenzial angenommen werden, wie das beim harmonischen Oszillator der Fall ist. Vielmehr muss das Potenzial die Eigenschaft haben, unsymmetrisch bezüglich des Gleichgewichtsabstandes zu sein, da bei kleinen Kernabständen die Abstoßung der beiden Kerne zu einem unendlich hohen Potenzial führt, während es für große Abstände wegen der kleiner werdenden Wechselwirkung von Elektronen und Kernen gegen Null strebt. Ein häufig verwendeter empirischer Ansatz ist hierfür das sogenannte Morse-Potential. Diese Modifikation führt dazu, dass die Abstände der Schwingungsniveaus nicht mehr äquidistant sind, sondern immer kleiner werden.

2.1.3. Anregung und Dissoziation des Moleküls

Aus der Born-Oppenheimer-Näherung folgt, dass die Gesamtenergie des Moleküls sich aus drei Teilen zusammensetzt. Diese Teile entsprechen den Energien aus den jeweiligen Bewegungen. Es gilt:

$$E_{Mol} = E_{el} + E_{vib} + E_{rot} \quad (2.23)$$

Die Größe dieser Energien sind sehr unterschiedlich. Das Verhältnis $E_{el} : E_{vib} : E_{rot}$ ergibt sich etwa zu 10000 : 100 : 10. Tabelle 2.1. zeigt typische Energien für Rotations-, Schwingungsrotations- und Elektronenanregungen eines Moleküls.

	Rotation	Schwingungsrotations - Übergänge	Elektronenanregung
Anregungsenergien	4 μ eV – 40 meV	0,001 eV – 1,5 eV	0,04 eV – 10 eV
Wellenlänge eines Photons mit der entsprechenden Energie	300 mm – 0,03 mm	1 mm – 800 nm	0,03 mm – 100 nm

Tabelle 2.1. [Hak98]

Wie bei einem Atom wird bei Elektronenübergängen in Moleküle je nachdem, ob sie von einem niedrig angeregten in einen hoch angeregten Zustand oder umgekehrt von einem hoch angeregten in einem niedrig angeregten Zustand übergehen, Energie benötigt bzw. abgegeben. Prinzipiell könnte man sich vorstellen, dass diese Übergänge willkürlich zwischen den verschiedenen Zuständen stattfinden. Dies ist aber nicht der Fall. Aufgrund der Born-Oppenheimer-Näherung ist es sehr unwahrscheinlich, dass sich bei einem Elektronenübergang die Lage der Kerne ändert. In Energiediagrammen wie z.B. Abbildung 2.4. wird ein Übergang zwischen den Potenzialkurven verschiedener Elektronenzustände daher immer senkrecht zur Abszisse, d.h. mit gleichem Kernabstand, erfolgen. Man nennt diesen Sachverhalt Franck-Condon-Prinzip, dementsprechend den Übergang Franck-Condon-Übergang.

Wird ein Molekül so stark angeregt, dass seine Gesamtenergie E_{Mol} über der sogenannten Dissoziationsschwelle eines Elektronenzustands liegt, trägt das entsprechende Elektron nicht mehr zur Bindung der beiden Kerne bei, und das Molekül dissoziiert. Als Dissoziationsschwelle bezeichnet man die Energie, bis zu der Schwingungszustände in einem Elektronenzustand möglich sind. Oberhalb dieser Schwelle schließt sich ein kontinuierlicher Energiebereich an.

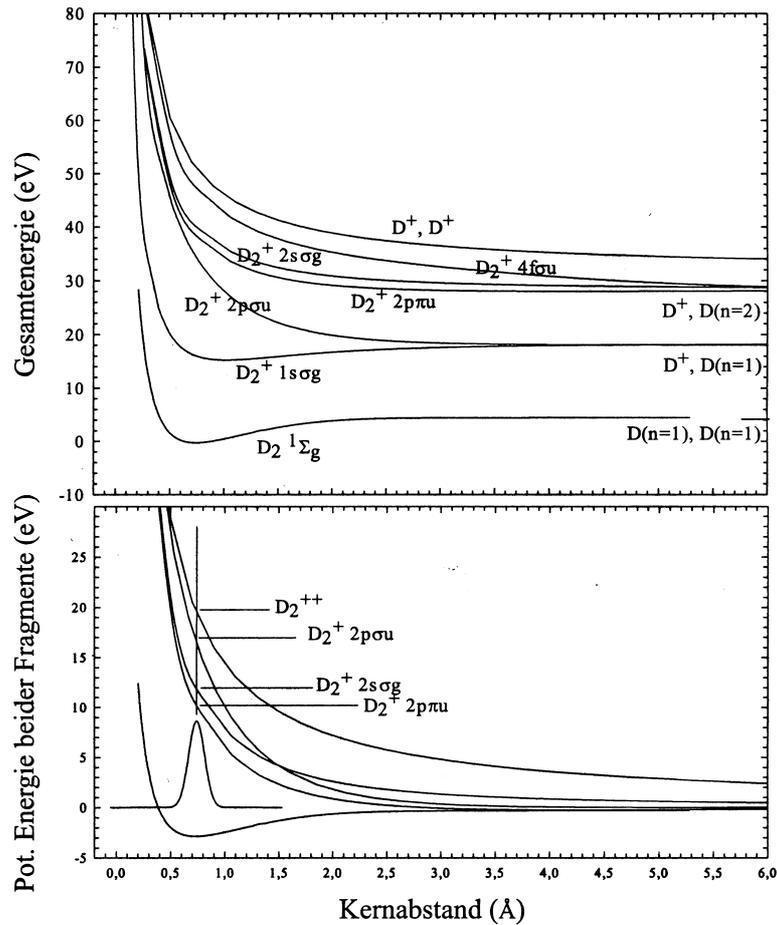


Abbildung 2.4. Energie des D_2 -Moleküls in Abhängigkeit seines Kernabstands für einige ausgewählte Elektronenzustände. In der Darstellung oben zeigen sich die realen Energieverhältnisse. In der Darstellung unten sind die Kurven so verschoben, dass man direkt die Energie der Fragmente nach der Dissoziation ablesen kann. [aus Cza99]

Eine Dissoziation durch reine Anregung von Schwingungs- und Rotationszuständen ist aufgrund der damit verbundenen Änderung des Kernabstands sehr unwahrscheinlich. Ein Molekül kann daher nur durch eine elektronische Anregung dissoziieren. Dies hängt natürlich von der Anregungsenergie ab. Entspricht sie der Energiedifferenz zwischen Anfangszustand und Dissoziationsschwelle des Endzustands, so kommt es zu einer Dissoziation. Wenn sie größer als diese Energiedifferenz ist, wird der überschüssige Energiebetrag für die kinetische Energie E_{kin} der atomaren Fragmente aufgebracht und es gilt für die Anregungsenergie E_{Anregung} :

$$E_{\text{Anregung}} = E_{n,n'} + E_{\text{kin}}, \quad (2.24)$$

wobei $E_{n,n'}$ die Energiedifferenz zwischen Anfangszustand und Dissoziationsschwellen des Endzustands ist. Wichtig ist hierbei, dass die Potenzialkurven hinreichend weit gegeneinander verschoben sind.

2.2. Der Elektroneneinfang

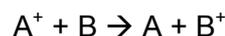
Der Elektroneneinfang aus einem D_2 -Molekül in ein Proton besitzt zwei mögliche Ausgangskanäle:

- 1.) die Molekülbindung bleibt erhalten : $p + D_2 \rightarrow H^0 + D_2^+$
- 2.) das Molekül dissoziiert: $p + D_2 \rightarrow H^0 + D^+ + D^0$

Der Ausgang der Reaktion hängt von der Art des Übergangs ab. Wenn das Molekül ionisiert wird, findet nach dem Franck-Condon-Prinzip ein Übergang senkrecht nach oben in einen Zustand des D_2^+ -Molekülions statt. Das verbleibende Elektron im Molekülion kann nach Abbildung 2.3. daher in den $1s\sigma_g^-$, $2p\sigma_g^-$, $2p\sigma_u^-$ oder $2p\pi_u^-$ -Zustand wechseln. Man erkennt anhand der Potenzialform, dass eigentlich nur der $1s\sigma_g^-$ -Zustand bindend ist. Dies bedeutet, dass bei einem Übergang des Elektrons in diesem Zustand das Molekülion als Ganzes erhalten bleibt - sofern die Gesamtenergie unterhalb seiner Dissoziationsschwelle liegt. Die Dissoziationsenergien der anderen Zustände betragen Null. Wenn das Elektron in einen dieser Zustände wechselt, so dissoziiert es daher sofort.

2.2.1. Der nicht dissoziative Elektroneneinfang

Bei einem Elektroneneinfangprozess von einem Atom in ein Ion der Form



wechselt ein Elektron von einem gebundenen Zustand des Atoms in einen gebundenen Zustand des Ions. Im Allgemeinen kann man nicht davon ausgehen, dass der Übergang von einem Grundzustand in den anderen Grundzustand stattfindet. Vielmehr sind elektronische Anregungen beider Reaktionspartner möglich. Dies muss in der Energiebilanz der Reaktion berücksichtigt werden:

$$E_{A^+}^{kin} + E_B^{kin} + e_{A^+} + e_B = E_A^{kin} + E_{B^+}^{kin} + e_A + e_{B^+}$$

$$E_{A^+}^{kin} + E_B^{kin} + Q = E_A^{kin} + E_{B^+}^{kin} \quad (2.25)$$

Die Differenz zwischen den Bindungsenergien des Elektrons vor und nach der Reaktion $[(\epsilon_{A^+} + \epsilon_B) - (\epsilon_A + \epsilon_{B^+})]$ wird als Q-Wert bezeichnet. Wie man leicht sieht, entspricht er ebenfalls der Differenz zwischen den kinetischen Energien vor und nach der Reaktion.

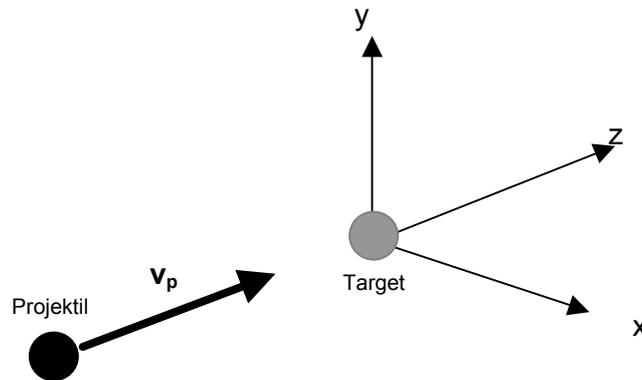


Abbildung 2.5. Schematische Darstellung der Anordnung. Das Projektil wird mit hoher Geschwindigkeit auf das ruhende Target beschleunigt, seine Ausbreitungsrichtung stellt gleichzeitig die Richtung der z-Achse dar. Die Impulsänderung des Projektils ist dem Impuls des Targets gleichzusetzen.

Die für dieses Experiment benutzte Anordnung erlaubt einige Vereinfachungen und Näherungen. Das positiv geladene Ion wird durch ein hohes elektrisches Feld beschleunigt. Seine Beschleunigungsrichtung wird als Richtung der z-Achse gewählt. Die neutralen Atome befinden sich nahezu in Ruhe. Diese Näherung ist gerechtfertigt, da sie mittels eines Überschallgasjets so stark gekühlt werden, dass ihre (thermische) Energie bei einigen meV liegt, während die Bewegungsenergie der Ionen im Bereich von einigen Hundert Kiloelektronenvolt liegt. In der üblichen Nomenklatur für Stoßsysteme wird im folgenden Abschnitt das einlaufende Ion als Projektil und das neutrale Atom bzw. Molekül als Target bezeichnet. Diese Begriffe werden auch nach der Reaktion nach der jeweiligen Umladung der beiden Reaktionspartner beibehalten. Da die kinetische Energie des Systems vor der Reaktion nur durch die Projektilenergie gegeben ist, vereinfacht sich Gleichung (2.25) zu:

$$E_p^{kin,i} + Q = E_p^{kin,f} + E_T^{kin} \quad (2.26)$$

p und T stellen Abkürzungen für Projektil und Target dar. Der Index i (initial) kennzeichnet die kinetische Energie des Projektils vor der Reaktion, der Index f (final) die kinetische

Energie nach der Reaktion. Es lässt sich zeigen [schm00], dass diese Gleichung in folgender Form geschrieben werden kann:

$$p_{z,T} = \frac{\frac{1}{2}m_e v_{pz}^2 - Q}{v_{pz}} - v_{pz} m_e \quad (2.27)$$

$v_{p,z}$ ist die Anfangsgeschwindigkeit des Projektils in z-Richtung, $p_{z,T}$ stellt den Impuls des Targets in z-Richtung dar. Diese Gleichung beinhaltet zwei Näherungen:

- 1.) der Projektilimpuls vor der Reaktion ist so groß, dass seine Impulse transversal zur Beschleunigung vernachlässigt werden können.
- 2.) Die Impulse, die beim Stoß auf das Target übertragen werden, sind klein gegenüber dem Anfangsimpuls des Projektils.

Natürlich lässt sich Gleichung (2.27) vereinfachen, doch eignet sich diese Form nicht so gut zur physikalischen Interpretation des Elektroneneinfangs. Wenn das Elektron aus dem nahezu ruhenden Target in das Projektil eingefangen wird, bewegt es sich plötzlich mit der Geschwindigkeit des Projektils und dadurch mit einer bestimmten kinetischen Energie. Diese Energie kann nur aus der kinetischen Energie des Projektils aufgebracht werden. Gleiches gilt für die Differenz in den Bindungsenergien Q . Allerdings ist es hier auch möglich, dass diese Energie an das Projektil abgegeben wird. Auf jeden Fall führen die Energieänderungen zu Impulsänderungen des Projektils, die wiederum aufgrund der Impulserhaltung eine Impulsänderungen des Targets zur Folge haben. Dies zeigt sich im ersten Term in Gleichung (2.27). Zudem überträgt das Elektron während des Einfangs Impuls auf das Target. Dies entspricht dem zweiten Term ($v_{pz}m_e$) in Gleichung (2.27).

Die Impulsänderung des Targets in z-Richtung und damit auch die Impulsänderung des Projektils hängen nur von der Projektilgeschwindigkeit und Bindungsenergie des Elektrons ab. Der letzte Punkt führt dazu, dass der z-Impuls des Targets diskrete Strukturen aufweist, die einem bestimmten Elektronenübergang zugeordnet werden können.

Da also näherungsweise die Eigenschaften des Targetkerns keine Rolle spielen, kann man erwarten, dass sich der Elektroneneinfang aus einem Molekül bezüglich der z-Achse kaum von einem Elektroneneinfang aus einem Atom unterscheidet – sofern die oben genannten Bedingungen erfüllt sind. Aus der Messung erhält man für das D_2^+ -Molekülion typische Impulse von bis zu 11 a.u. Der Projektilanfangsimpuls liegt dagegen im Bereich von etwa 6363 a.u. Das Größenverhältnis beider Impulse erlaubt also obige Näherungen.

2.3.2. Der dissoziative Elektroneneinfang

Da die Dissoziationsenergien der $2p\sigma_g^-$, $2p\sigma_u^-$ und $2p\pi_u^-$ -Zustände Null betragen, lässt sich die kinetische Energie der Fragmente direkt aus Abbildung 2.4. ablesen. Die Energie, die das Molekül insgesamt aus der Anregung in einen bestimmten Zustand erhält, ermittelt man für einen bestimmten Kernabstand durch einen Franck-Condon-Übergang. Die kinetische Energie beider Fragmente zusammen entspricht dann der Differenz zwischen der Energie aus der Anregung und der Energie für den Fall große Kernabstände. Sie wird häufig auch mit KER (Kinetic Energy Release) bezeichnet. Aus der vorliegenden Messung können daher zwei Maxima in der Energieverteilung der geladenen Deuteriumionen bestimmt werden, bei etwa 6 eV und 9 eV, bzw. für beide Fragmente zusammen bei 12 eV und 20 eV.

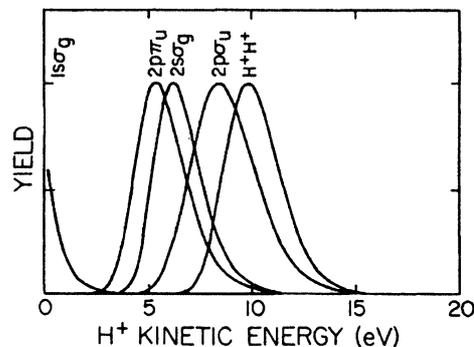


Abbildung 2.6. Darstellung des Zusammenhangs zwischen der kinetischen Energie der Fragmente und den jeweiligen elektronischen Endzuständen eines H_2 -Moleküls. Die jeweiligen Peaks sind für Deuteriumionen aufgrund ihrer Masse um einen Faktor $\sqrt{2}$ schmaler. [aus Web03]

Die zugehörigen Impulse der einzelnen Fragmente liegen in der Größenordnung von etwa 40 - 55 a.u. und sind damit deutlich größer als die vom Projektil übertragenen Impulse. Da die Ionisation und die darauffolgende Abstoßung schnell gegenüber eventuellen Vibrations- und Rotationsänderungen abläuft, kann man in guter Näherung davon ausgehen, dass die Impulsrichtung der Fragmente mit der Richtung der Molekülachse übereinstimmen. Bei einer vollständigen Erfassung der Impulse aller drei Raumrichtungen gibt dies die Möglichkeit, die Stellung der Molekülachse zu bestimmen und in der Datenauswertung im nachhinein festzuhalten.

In Abbildung 2.6. sieht man ebenfalls die kinetische Energie, die die Fragmente aus einer Doppelionisation erhalten. Der Impuls, den die Fragmente durch die Dissoziation nach der Doppelionisation aufnehmen, errechnet sich direkt aus der Coulombabstoßung zu:

$$p = \sqrt{\frac{2 \mathbf{m}_{D,D^+}}{r_{D,D^+}}}, \quad (2.28)$$

wobei μ_{D,D^+} die reduzierte Masse der beiden Fragmente ist.

2.3. Die Rutherfordstreuung

2.3.1. Rutherfordstreuung im Teilchenbild

Unter Rutherfordstreuung versteht man allgemein die elastische Streuung eines geladenen Teilchens am Coulombpotential eines anderen Kerns. Aus der Coulomb-Abstoßung der beiden Kerne ergibt sich eine Ablenkung und damit eine Impulsänderung des Projektils, die vom minimalen Abstand zwischen Target und Projektil während des Stoßes abhängt. Dieser Abstand wird als Stoßparameter b bezeichnet. Je kleiner b ist desto stärker wird das Projektil abgelenkt.

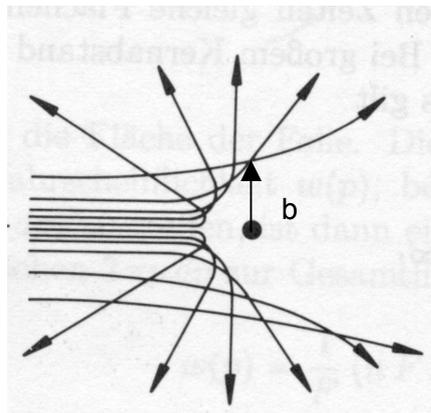


Abbildung 2.7. Projektiltrajektorien für die elastische Streuung am Kernpotential des Targets, für den Fall $Z_p \ll Z_T$. Das Target wurde als ruhend angenommen. Die Trajektorien des Projektils sind aufgrund der Zentralkraft ($1/r^2$) der beiden Kerne hyperbelförmig. [NoI97]

Der Minimalabstand, den Projektil und Target im Zentralstoß erreichen können, wird mit d bezeichnet. Man erhält folgenden Zusammenhang für den Minimalabstand:

$$d = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} e^2 Z_P Z_T \frac{1}{2 m v_{p,i}^2} \quad (2.29)$$

e stellt dabei die Elementarladung dar. Im Gegensatz zum ursprünglichen Rutherfordexperiment, in dem das Target eine sehr viel größere Masse und Ladung hatte als das Projektil, müssen für den allgemeineren Fall die Größen im Schwerpunktsystem beider Stoßpartner bestimmt werden. μ steht daher für die reduzierte Masse. $v_{p,i}$ ist die Relativgeschwindigkeit beider Stoßpartner im Schwerpunktsystem und entspricht im vorliegenden Fall (Target ruht im Laborsystem) der Anfangsgeschwindigkeit des Projektils.

Nach [May94] gilt folgender Zusammenhang zwischen Streuwinkel J , Minimalabstand d und Stoßparameter b für die Rutherford-Streuung zu:

$$b = \frac{d}{2} \cot \frac{J}{2} \quad (2.30)$$

Wegen des statistischen Charakters beschreibt man Streuvorgänge mit Wirkungsquerschnitten: Der *totale Wirkungsquerschnitt* ist bestimmt durch das Verhältnis der Reaktionen je Streuzentrum und Sekunde und der Stromdichte des einlaufenden Projektilstrahls. Der *differenzielle Wirkungsquerschnitt* $d\sigma/d\Omega$ ist definiert als das Verhältnis der in ein Raumwinkelelement $d\Omega$ gestreuten Projektile pro Sekunde und der Stromdichte des Projektilstrahls. Das Raumwinkelelement $d\Omega$ hängt von dem Streuwinkel J und dem Azimuthalwinkel j ab.

Der Zusammenhang zwischen Stoßparameter differenziellem Wirkungsquerschnitt lässt sich aus der Erhaltung Teilchenzahl berechnen [May94]. Es gilt:

$$\left(\frac{dS}{d\Omega} \right) = \frac{b}{\sin J} \left| \frac{db}{dJ} \right| \quad (2.31)$$

Ersetzt man in dieser Gleichung b durch das Ergebnis aus Gleichung (2.30) und benutzt zusätzlich den Zusammenhang $\sin \vartheta = 2 \cos(\vartheta/2) \sin(\vartheta/2)$, so lässt der Wirkungsquerschnitt für die Rutherfordstreuung ableiten:

$$\left(\frac{dS}{d\Omega} \right) = \frac{d^2}{4} \frac{1}{\sin^4 \left(\frac{J}{2} \right)} \quad (2.32)$$

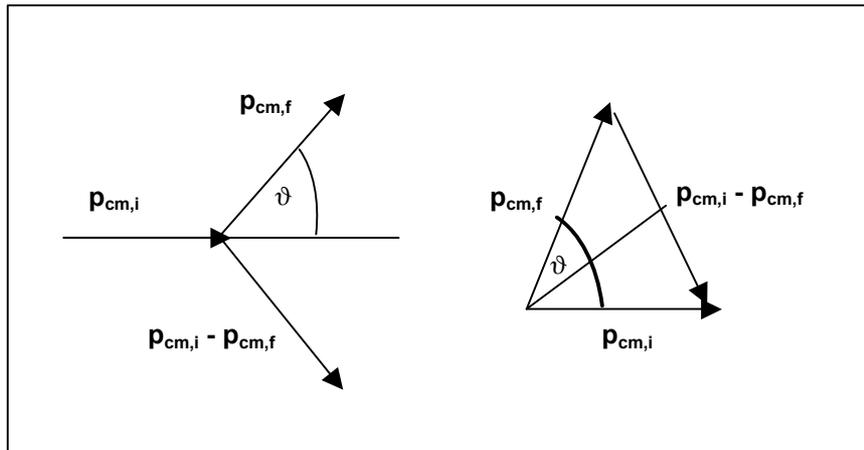


Abbildung 2.8. $\mathbf{p}_{cm,i}$ und $\mathbf{p}_{cm,f}$ sind die Impulsvektoren des Projektils im Schwerpunktsystem. Es wird ein elastischer Stoß betrachtet. Obwohl das Projektil seine Richtung ändert, müssen die Beträge seines Anfangs- und Endimpulses aufgrund der Energie- und Impulserhaltung im Schwerpunktsystem gleich sein.

Aus geometrischen Überlegungen heraus (Abbildung 2.8.) ergibt sich für $\sin(\vartheta/2)$:

$$\sin\left(\frac{\mathbf{J}}{2}\right) = \frac{|\vec{p}_{cm,i} - \vec{p}_{cm,f}|}{2 |p_{cm,i}|}. \quad (2.33)$$

Der Nenner entspricht dabei der Impulsänderung des Projektils im Schwerpunktsystem. Da der Anfangsimpuls des Projektils sowohl im Schwerpunktsystem als auch im Laborsystem sehr groß ist, kann die Impulsänderung in Richtung seines Anfangsimpulses vernachlässigt werden. Bezeichnet man die Richtung des Anfangsimpulses als z-Richtung, und die Richtungen transversal dazu mit x und y, so erhält man aus Gleichung (2.34):

$$\sin\left(\frac{\mathbf{J}}{2}\right) = \frac{|p_{xy}|}{2 |p_{cm,i}|} \quad \text{mit } p_{xy} = \sqrt{p_x^2 + p_y^2}; \quad (2.34)$$

wobei p_{xy} die Impulskomponente in der x-y-Ebene des Projektils nach dem Stoß darstellt. Wenn das Target vor dem Stoß in Ruhe ist, so ist diese Komponente für Labor- und Schwerpunktsystem gleich. Mit $p_{cm,i} = \mathbf{m}v_{p,i}$ gilt daher für den Wirkungsquerschnitt:

$$\left(\frac{d\mathbf{S}}{d\Omega}\right) = \left(\frac{1}{4pe_0} e^2 Z_P Z_T\right)^2 \frac{(2\mathbf{m})^2}{|p_{xy}|^4} \quad (2.35)$$

2.3.2. Rutherfordstreuung im Wellenbild

Aufgrund des Welle-Teilchen-Dualismus kann das Projektil ebenfalls als eine ebene Welle angesehen werden. Nach de Broglie gilt für den Zusammenhang zwischen Impuls Wellenlänge eines Teilchens [Sto98]:

$$\mathbf{l} = \frac{h}{p} \quad (2.36)$$

Im klassischen Sinn spricht man von einer Streuung, wenn die Wellenlänge gegenüber dem Streuzentrum klein ist. In diesem Fall entsteht am Streuzentrum eine Elementarwelle mit der Wellenlänge der einlaufenden Welle. Bei Projektilenergien zwischen 0,1 und 1 MeV liegen zwischen Kernradius (10^{-15}m) und Wellenlänge etwa 1-2 Größenordnungen. Die Streuung des Projektils am Coulombpotenzial des Targets kann daher auch als die Streuung einer ebenen Welle aufgefasst werden. Man kann sich vorstellen, dass auch hier bei der Streuung vom Targetkern eine Kugelwelle ausgeht. Da das Projektil eine ebene Welle darstellt, kann das Streuproblem stationär behandelt werden. Für die Wellengleichungen bedeutet das, dass der zeitabhängige Teil keine Rolle spielt und somit entfällt. Für die Funktion der auslaufenden Kugelwelle erhält man daher:

$$\Psi_{\text{Kugelwelle}} = \frac{A}{r} e^{ikr}, \quad (2.37)$$

wobei k der Wellenzahl, r der Abstand vom Streuzentrum und A eine allgemeine Amplitude ist.

2.3.3. Streuung am Zwei-Zentren-Potenzial

Wenn das Target statt eines Atoms ein diatomares Molekül ist, so kann das Projektil an beiden Kernen streuen. Im Wellenbild bedeutet dies, dass bei der Streuung der einlaufenden Welle an beiden Zentren des Moleküls eine Kugelwelle entsteht. In Analogie zu einem Doppelspaltexperiment ist es prinzipiell möglich, dass diese Kugelwellen sich überlagern und es zu Interferenzen kommt. Wenn das Molekül aus zwei gleichartigen Atomen besteht, liegt die Annahme nahe, dass beide Kugelwellen gleich sind. Man erhält für ihre Überlagerung daher folgenden Zusammenhang:

$$\Psi(r) = A \frac{e^{ikr}}{r} + A \frac{e^{i(kr + \mathbf{f}(r_m, \mathbf{J}))}}{r}, \quad (2.38)$$

wobei ϕ die Phasenverschiebung beider Wellen im Abstand r ist. Sie hängt, wie im Folgenden gezeigt wird, vom Abstand der beiden Zentren r_m und dem Streuwinkel ϑ ab. Für die Messung eventueller Interferenzen wird nur der Realteil der komplexen Funktion wichtig sein:

$$\Psi(r) = A \frac{1}{r} \cos(kr) (1 + \cos \mathbf{f}) \quad (2.39)$$

Nimmt man an, dass das Molekül senkrecht zum Projektilstrahl steht, lässt sich die Phasenverschiebung ϕ analog zum Doppelspalt über den Streuwinkel und den Abstand der beiden Streuzentren, also dem Molekülabstand berechnen:

$$\begin{aligned} \mathbf{J} &\approx \sin(\mathbf{J}) = \frac{d}{r_m} \\ \mathbf{f} &= 2\mathbf{p} \frac{d}{\mathbf{l}} = k \mathbf{j} r_m \end{aligned} \quad (2.40)$$

k ist dabei die Wellenzahl, die definiert ist durch $2\pi/\lambda$. r_m stellt den mittleren Molekülabstand dar, d ist die Phasenverschiebung in einer Längeneinheit. Mit $\sin\varphi = p_x/p_f$ ergibt sich für die Phasenverschiebung:

$$\mathbf{f} = \frac{2\mathbf{p}}{\mathbf{l}} \frac{p_x}{p_f} r_m, \quad (2.41)$$

wobei p_x der Projektilimpuls in x-Richtung und p_f der Impulsbetrag des Projektils nach dem Stoß ist. Wenn man vom Modell einer klassischen Streuung ausgeht, sind die Wellenlängen der einlaufenden ebenen Welle und der auslaufenden Kugelwelle gleich. Im Teilchenbild bedeutet dieser Zusammenhang, dass der Impulsbetrag des Projektils vor und nach dem Stoß gleich bleibt. Dies gilt streng genommen nur im Schwerpunktsystem beider Stoßpartner und auch wirklich nur für die elastische Streuung. Da aber der Anfangsprojektilimpuls in dieser Messung etwa 6363 a.u. und seine Impulsänderung, die etwa dem Impuls des Targets entspricht, maximal 11 a.u. beträgt, können Anfangs- und Endimpuls trotz inelastischer Streuung und Darstellung im Laborsystem in guter Näherung gleichgesetzt werden. Der Zusammenhang

$$\mathbf{f} = \frac{p_i}{p_f} \frac{p_x}{\hbar} r_m = \frac{p_x}{\hbar} r_m \quad (2.42)$$

sollte daher auch in dieser Messung gültig sein.

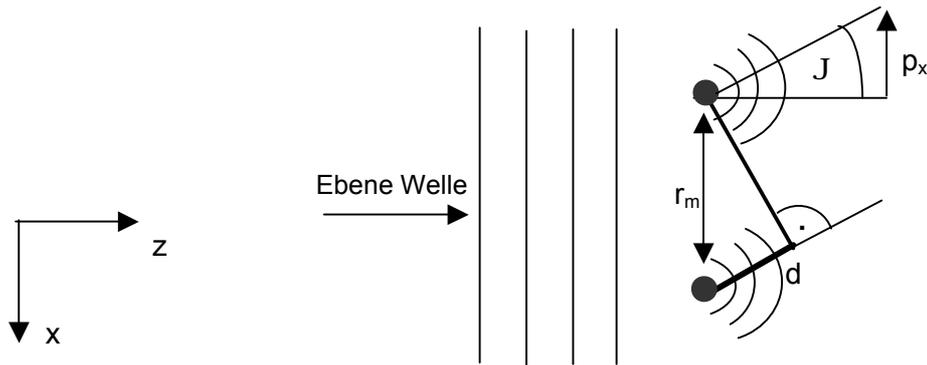


Abbildung 2.9. Die einlaufende ebene Welle wird an den beiden Zentren gestreut. Die beiden auslaufenden Kugelwellen können miteinander interferieren, wenn der Gangunterschied d ein Vielfaches der Wellenlänge ist.

Die Bedingung für die Interferenzminima lautet nach Gleichung (2.42):

$$p_x = \frac{\hbar}{r_m} (2n + 1) p \quad (2.43)$$

Für ein Projektilimpuls von 6363 a.u. erhält man hieraus für das erste Minimum den Impuls 2,25 a.u., bzw. für den Winkel 0,35 mrad.

Wie ändert sich nun der Zusammenhang, wenn die Molekülachse nicht senkrecht zum Projektilstrahl steht, sondern ihm gegenüber verdreht ist? Zum einen wird sich der effektive Molekülabstand ändern, an dem die einlaufende Welle streut, zum anderen wird der zusätzliche Drehwinkel des Moleküls α zu einer weiteren Phasenverschiebung s führen.

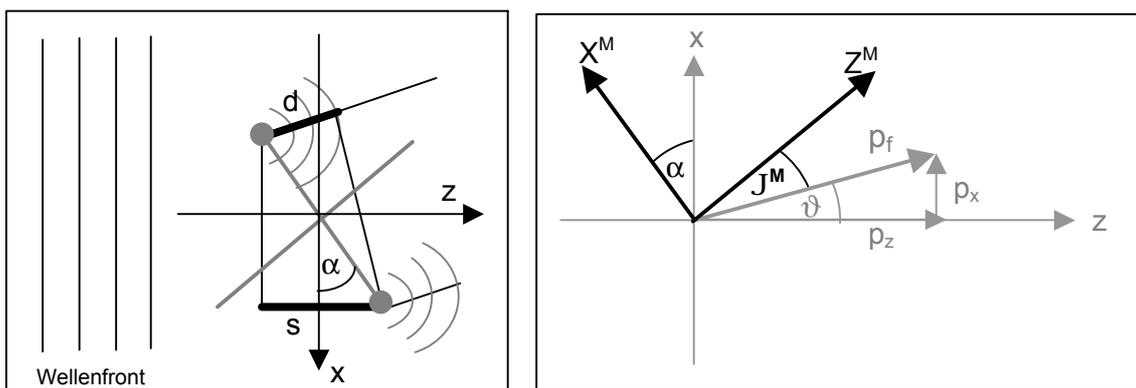


Abbildung 2.10. rechts: Darstellung der Phasenverschiebung durch die Drehung des Moleküls. links: Darstellung der Impulse im Molekül und Laborsystem. J^M steht für den Streuwinkel im Molekülsystem. J stellt den Streuwinkel im Laborsystem dar.

Für die Phasenverschiebung ϕ gilt:

$$\mathbf{f} = k \left(r_M \sin(\mathbf{J}^M) - s \right) = k r_M \left(\sin(\mathbf{J}^M) - \sin \mathbf{a} \right), \quad (2.44)$$

wobei ϑ^M der Streuwinkel im Molekülsystem ist. Da die Streuwinkel immer von der jeweiligen z-Achse zum Impuls gerichtet ist, gilt $\vartheta^M = \alpha + \vartheta$. Aus Gleichung (2.44) folgt daher:

$$\mathbf{f} = k r_M \left(\sin(\mathbf{a} + \mathbf{J}) - \sin \mathbf{a} \right) \quad (2.45)$$

bzw. mit $p_i = h/\lambda$ und Additionstheorem:

$$\mathbf{f} = r_M \frac{p_i}{\hbar} \left(\sin(\mathbf{a}) \cos(\mathbf{J}) + \sin(\mathbf{J}) \cos(\mathbf{a}) - \sin \mathbf{a} \right) \quad (2.46)$$

Für kleine Streuwinkel erhält man für $\cos \vartheta$ etwa den Wert 1. Als Bedingung für die Minima berechnet man analog zu Gleichung (2.43):

$$p_x = \frac{\hbar}{r_m \cos \mathbf{a}} (2n + 1) \mathbf{p} \quad (2.47)$$

Für eine genau senkrechte Stellung der Molekülachse, d.h. $\alpha = 0^\circ$, folgt daraus direkt der Zusammenhang aus Gleichung (2.47), für Winkel, die größer als Null sind, erkennt man anhand des Ausdrucks $(r_m \cos \alpha)$ die Verkleinerung des effektiven Abstand der beiden Streuzentren, der für die einlaufende Welle von Bedeutung ist.

Nimmt man in Gleichung (2.45) an, dass die Beträge des Anfangs- und Endimpulses des Projektils nicht gleich sind, d.h. dass sich auch die Wellenlängen der einlaufenden ebenen Welle und der auslaufenden Kugelwelle unterscheiden, so ergibt sich aus Gleichung (2.47):

$$\mathbf{f} = \frac{r_M}{\hbar} \left(\sin(\mathbf{a}) \left(p_{f,z} - p_i \right) + p_x \cos(\mathbf{a}) \right) \quad (2.48)$$

p_i ist der Betrag des Projektilanfangsimpulses. $p_{f,z}$ bzw. p_{xy} stehen für seine jeweiligen Impulskomponenten nach der Streuung. Die Phasenverschiebung ϕ besteht dann also aus zwei Summanden, wobei der erste Summand die Impulsänderung des Projektils in z-Richtung beinhaltet, während der zweite Summand die Impulsänderung in der x-Richtung berücksichtigt. Je nach Drehung des Moleküls tragen die Impulsänderungen in den verschiedenen Richtungen zur Phasenverschiebung bei.

Die Differenz der Impulse in z-Richtung entspricht in der vorliegenden Messanordnung etwa dem Impuls des Targets. Die Bedingung für ein Minimum ergibt sich so zu:

$$p_x = \frac{\hbar}{r_M \cos(\mathbf{a})} (2n+1) \mathbf{p} + \tan(\mathbf{a}) p_z^T \quad (2.49)$$

Man erwartet in diesem Fall also eine Verschiebung der Minima. Der Targetimpuls in z-Richtung lässt sich für den Elektroneneinfang mit Hilfe von Gleichung (2.27) abschätzen:

$$p_{z,T} = -\frac{Q}{v_{pz}} - \frac{1}{2} v_{pz} m_e$$

Geht man davon aus, dass das eingefangene Elektron vom Grundzustand des Moleküls (Bindungsenergie 4,5 eV) in den Grundzustand des Wasserstoffatoms (Bindungsenergie 13,6 eV), während das zweite Elektron vom Grundzustand des Moleküls (Bindungsenergie ebenfalls 4,5 eV) in einen nicht gebundenen Zustand wechselt, ergibt sich für den Q-Wert etwa 4,6 eV bzw. 0,16 a.u.. Mit einer Projektilgeschwindigkeit von etwa 3,47 a.u. berechnet man daher für den Targetimpuls in z-Richtung $-1,78$ a.u.

Das Interferenzmuster von zwei Kugelwellen zeigt keine Rotationssymmetrie. Steht das Molekül parallel zur x-Achse, sollte man in einem schmalen Bereich um die x-Achse streifenähnliche Interferenzmuster sehen. Die Bestimmung des Rutherfordquerschnitts soll sich daher auch nur auf die x-z- Ebene beziehen. Man erhält daher nach Gleichung (2.39):

$$\left(\frac{d\mathbf{s}}{d\Omega} \right) = \left(\frac{1}{4\mathbf{p}e_0} e^2 Z_P Z_T \right)^2 \frac{(2\mathbf{m})^2}{|p_x^M|^4} \quad (2.50)$$

Aus geometrischen Überlegungen heraus berechnet sich der Zusammenhang zwischen Projektilimpuls in x-Richtung in Molekül- und Laborsystem wie folgt:

$$p_x^M = \frac{p_x}{\cos \mathbf{a}} \quad (2.51)$$

Der Wirkungsquerschnitt ergibt sich daraus wie folgt:

$$\left(\frac{d\mathbf{s}}{d\Omega} \right) = \left(\frac{1}{4\mathbf{p}e_0} e^2 Z_P Z_T \right)^2 \frac{(2\mathbf{m})^2 \cos^4 \mathbf{a}}{|p_x|^4} \quad (2.52)$$

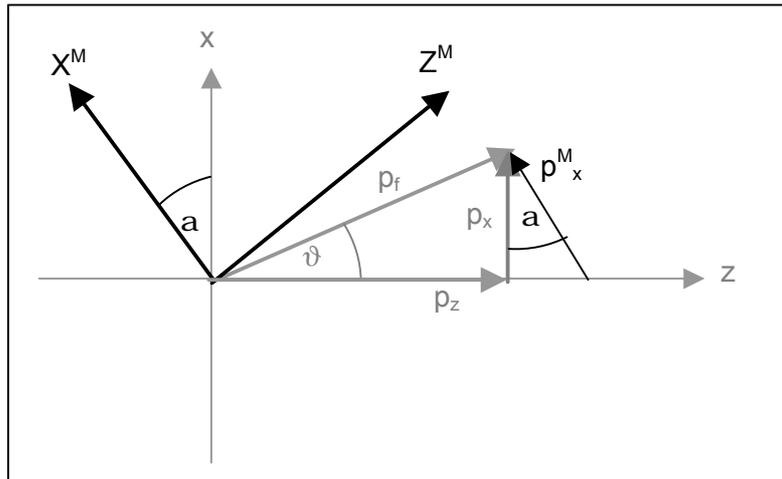


Abbildung 2.11. Darstellung der Impulskomponenten des Projektils in x-Richtung im Laborsystem und im Molekülsystem

Multipliziert man den Wirkungsquerschnitt mit Term $(1+\cos\phi)$ aus Gleichung (2.49)

$$\left(\frac{dS}{d\Omega}\right) = \left(\frac{1}{4pe_0} e^2 Z_P Z_T\right)^2 \frac{(2m)^2 \cos^4 a}{|p_x|^4} \left(1 + \cos\left(\frac{p_x}{\hbar} r\right)\right) \quad (2.53)$$

, so erhält man im Wirkungsquerschnitt Oszillationen.

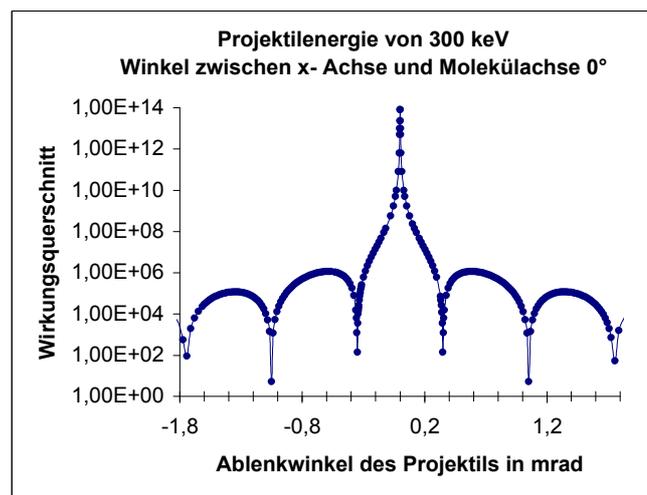


Abbildung 2.12. Darstellung des Rutherford-Wirkungsquerschnitts in Abhängigkeit des Streuwinkels für eine Projektilenergie von 300 keV. Die Molekülachse steht senkrecht zum Strahl. Die Oszillationen sind aus den Bedingungen des Doppelspalts abgeleitet.

2.4. Lösungsansatz in der Theorie

Stellt man den Hamiltonoperator für den Elektroneneinfang von einem Wasserstoffatom in ein Proton auf, so hat man theoretisch die Wechselwirkungen zwischen allen beteiligten Teilchen, d.h. Ion, Atom und Elektron zu berücksichtigen. Die Brinkman-Kramers-Näherung besagt, dass näherungsweise nur die Wechselwirkung des einlaufenden Protons mit dem Elektron zu dem eigentlichen Prozess, nämlich dem Übergang des Elektrons zum 1s-Zustand des Protons, führt, die Kern-Kern-Wechselwirkung dagegen zu vernachlässigen ist. Quantenmechanisch wird diese Wechselwirkung als eine Störung V_S angesehen. Bezeichnet man den Zustand des Systems dieser drei Teilchen vor der Reaktion durch die Wellenfunktion Ψ_i , gegeben durch die Schrödinger-Gleichung $\mathbf{H}_i\Psi_i = E\Psi_i$ und den Zustand nach der Reaktion durch die Wellenfunktion Ψ_f , so berechnet sich der Übergang vom einen Zustand in den anderen durch ein Übergangsmatrixelement, das durch die „störende“ Wechselwirkung definiert ist:

$$\langle \Psi_i | V_S | \Psi_f \rangle \quad (2.54)$$

Bei der Berechnung der Wirkungsquerschnitte für den Einfangprozess in ein Proton aus einem H_2 -Molekül macht man sich diese Näherung ebenfalls zu nutze. Bezeichnet man das eingefangene Elektron mit 1, repräsentiert allein V_{1C} analog zur BK-Näherung beim Atom näherungsweise die störende Wechselwirkung. Das Übergangsmatrixelement für diese Reaktion wird also durch V_{1C} gegeben. Es lässt sich zeigen, dass V_{1C} in zwei Terme getrennt werden kann [Tuan60]:

- 1.) in einem Term, der formal den Einfang eines Elektronen beschreibt, wenn es dem Kern A zugeordnet wäre, im folgenden $I_{BK}(A)$ genannt
- 2.) in einen Term, der formal den Einfang eines Elektronen beschreibt, wenn es dem Kern B zugeordnet wäre, im folgenden gekennzeichnet mit $I_{BK}(B)$

Zwischen diesen beiden Termen gilt der Zusammenhang:

$$I_{BK}(A) = \pm e^{-i\vec{a}\vec{r}} I_{BK}(B) \quad (2.55)$$

Der Vektor \vec{r} zeigt in Richtung der Molekülachse. Sein Betrag entspricht dem Molekülabstand. \vec{a} ist der Differenzvektor der Relativimpulse im Schwerpunktsystem vor und nach dem Prozess in Einheiten von \hbar . $I_{BK}(A)$ bzw. $I_{BK}(B)$ entsprechen ähnlich wie bei der elastische Streuung den beiden möglichen Wechselwirkungen. Der Phasenfaktor zwischen beiden Termen ist ähnlich wie bei der Betrachtung der Interferenzen zweier

Kugelwellen, wenn man davon ausgeht, dass die einlaufende ebene Welle und die auslaufenden Kugelwellen unterschiedliche Wellenlängen haben. Dies wird im folgenden deutlich: Für eine festgehaltene Molekülachse ergibt sich der differenzielle Wirkungsquerschnitt wie folgt [Deb88]:

$$\frac{d\mathcal{S}}{d\Omega_p d\Omega_r} \propto [1 \pm \cos(\vec{\alpha} \cdot \vec{r})] \quad (2.56)$$

Dieser Ausdruck hat eine große Ähnlichkeit mit Gleichung (2.43). Die unterschiedlichen Vorzeichen ergeben sich aus einem Symmetriewechsel durch den Elektronenübergang. Der Zustand des eingefangenen Elektrons ist - vorausgesetzt es wird in den 1s-Zustand des Protons eingefangen – vor und nach der Reaktion von gerader Symmetrie. Das übrigbleibende Elektron im Molekül dagegen hat, wie in Abschnitt 2.3.2. kurz erläutert, die Möglichkeit, in einen geraden bzw. ungeraden Zustand zu wechseln. Wechselt es in einem geraden Zustand, bleibt die Symmetrie erhalten. Dies wird mit einem Pluszeichen angedeutet. Wechselt es dagegen in den ungeraden Zustand, kommt es zu einer Symmetrieänderung. Dies zeigt das Minuszeichen. Man kann sich diesen Vorzeichenwechsel als einen Phasensprung in der auslaufenden Streuwelle vorstellen.

Der Differenzvektor α ergibt sich zu:

$$\vec{\alpha} = \frac{1}{\hbar} \begin{pmatrix} P_{p,xy} \\ \mathbf{m} v_{z,f} \end{pmatrix} - \frac{1}{\hbar} \begin{pmatrix} 0 \\ \mathbf{m} v_0 \end{pmatrix} \quad (2.57)$$

$$\text{mit } \mathbf{m} = \frac{m_p m_T}{m_p + m_T}$$

, wobei v_0 die relative Anfangsgeschwindigkeit ist. Sie entspricht der Anfangsgeschwindigkeit des Projektils. $v_{z,f}$ ist die relative Endgeschwindigkeit zwischen Projektil und Target. Bei einer Stellung der Molekülachse senkrecht zum Projektilstrahl erhält man mit Gleichung (2.58) für das Skalarprodukt ($\vec{\alpha} \cdot \vec{r}$):

$$\vec{\alpha} \cdot \vec{r} = \mathbf{r} \frac{P_{p,xy}}{\hbar} = r_m \frac{P_{p,xy}}{\hbar} \quad (2.58)$$

Dies entspricht dies genau der Beziehung aus Gleichung (2.47). Für den Fall, dass das Molekül parallel zum Strahl steht, d.h. für $\varphi_M = 90^\circ$, ergibt sich aus Gleichung (2.58)

$$\vec{\alpha} \cdot \vec{r} = \mathbf{r} \left(\frac{P_{z,f}^{cm}}{\hbar} - \frac{P_i^p}{\hbar} \right) = r_M \left(\frac{P_{f,z}^{cm}}{\hbar} - \frac{P_i^{cm}}{\hbar} \right) \quad (2.59)$$

Die Differenz entspricht nicht ganz Gleichung (2.48), da es sich hierbei um Impulse im Schwerpunktssystem handelt.

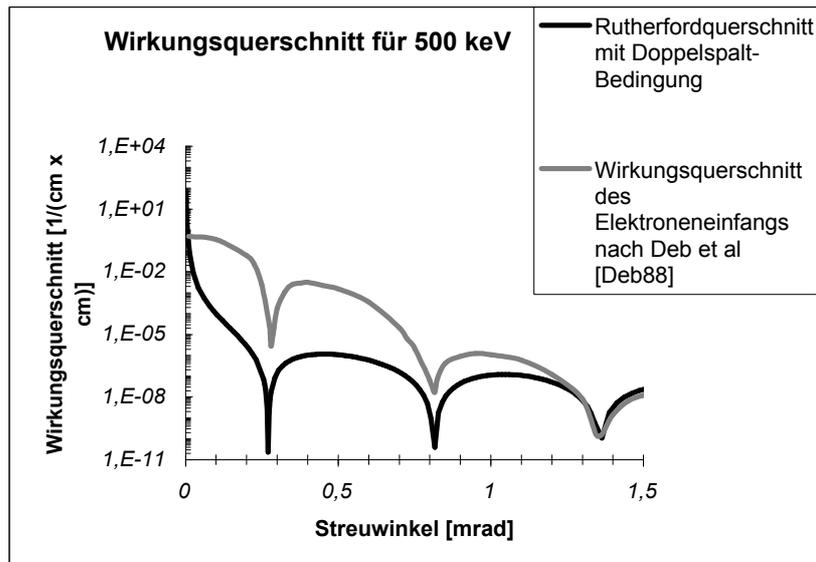


Abbildung 2.13. Darstellung der Wirkungsquerschnitte für den Elektroneneinfang $H^+ + H_2 \rightarrow H^0 + H_2^+$ aus der Theorie und den Rutherfordquerschnitt mit den Bedingungen für den Doppelspalt für den Fall, dass das Molekül senkrecht steht. Bezüglich der Minima weisen beide Wirkungsquerschnitte die gleiche Struktur auf. Der Wirkungsquerschnitt für den Elektroneneinfang zeigt bei kleinem Streuwinkel eine breitere Verteilung, da es durch den Einfang des Elektrons zu einem zusätzlichen Impulsübertrag des Projektils kommt. Für große Streuwinkel und damit sehr nahe Stöße dominiert die Streuung am Kernpotenzial und der Wirkungsquerschnitt für den Elektroneneinfang nähert sich dem Rutherfordquerschnitt an.

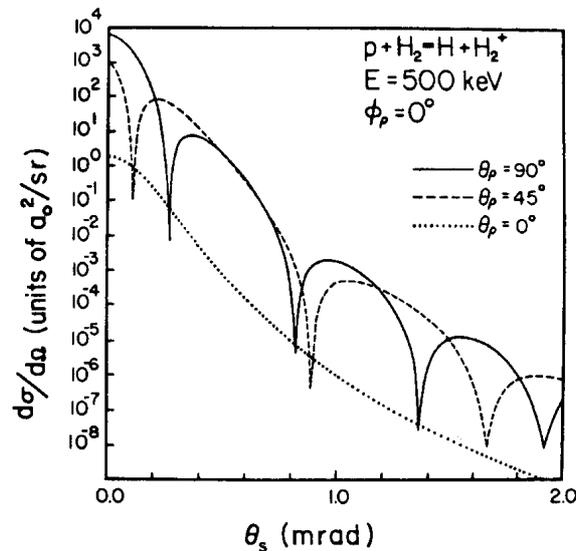
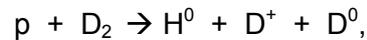


Abbildung 2.14. Darstellung des Wirkungsquerschnitts für den Elektroneneinfang $H^+ + H_2 \rightarrow H^0 + H_2^+$ für eine Projektilenergie von 500 keV und $\alpha = 45^\circ$. Die Minima zeigen wie beim Doppelspalt bereits angedeutet eine Verschiebung auf.

3. Aufbau

Die Vermessung des dissoziativen Elektroneneinfangs



besonders im Hinblick auf eventuelle Interferenzeffekte im Projektilstreuwinkel, stellt an das Experiment hohe Ansprüche. Es ist wichtig, dass neben den Transversalimpulsen des Projektils auch die Impulse des Targets in allen drei Raumrichtungen mit vollem Raumwinkel bestimmt werden, da nur durch sie auf die Stellung der Molekülachse geschlossen werden kann.

Zudem ist eine gute Streuwinkelauflösung unabdingbar. Dies setzt sowohl eine sehr hohe Kollimation des Projektilstrahls als auch eine genaue Kenntnis der Anfangsimpulse des Targets transversal zum Projektilstrahl voraus. Da der dissoziative Elektroneneinfang bei diesen Projektilenergien einen sehr niedrigen Wirkungsquerschnitt hat, sollte der Aufbau, um eine ausreichende Statistik trotz hoher Kollimation zu erreichen, wenigstens die Messung aller Molekülstellungen in der Ebene transversal zum Projektilstrahl ermöglichen. Der hier benutzte Aufbau verwirklicht die genannten Ansprüche. In ihm kommt eine Experimentiertechnik zum tragen, die in unserer Arbeitsgruppe entwickelt und seit über zehn Jahren auch in anderen Gruppen erfolgreich eingesetzt wird. Sie wird mit Coltrims (**C**old **T**arget **R**ecoil **I**on **M**omentum **S**pectroscopy) abgekürzt.

Bei dieser Abbildungstechnik trifft der Projektilstrahl unter einem Winkel von 90° auf ein stark gekühltes Gastarget. Der Bereich, in dem Strahl und Gasjet sich kreuzen, stellt die Reaktionszone dar. Die thermische Energie der Gasatome bzw. -moleküle liegt nach der Kühlung im Bereich von nur einigen meV. Das hat den Vorteil, dass die Anfangsimpulse des Targets gegenüber den Impulsüberträgen aus dem Stoß zu vernachlässigen sind und dass der Jet nur wenig divergiert. Dadurch ist die Reaktionszone gut lokalisierbar.

Wird das Target durch den Stoß mit dem Projektil ionisiert, sorgt ein homogenes elektrisches Feld dafür, dass das Ion, im folgenden wegen der Anordnung Rückstoßion genannt, auf orts- und zeitauflösende Detektoren projiziert wird. Die Richtung des elektrischen Feldes steht dabei senkrecht zu Jet- und Strahlrichtung. Zwischen elektrischem Feld und Detektor befindet sich eine feldfreie Driftstrecke. Die Anordnung aus elektrischem Absaugfeld und Driftstrecke wird im folgenden als Spektrometer bezeichnet.

Durch die Messung des Ortes auf dem Rückstoßionen-Detektor (Recoildetektor) lassen sich die Impulse des jeweiligen Ions in der Ebene transversal zum elektrischen Feld bestimmen, die dritte Impulskomponente in Richtung des Feldes ist durch die Messung der Flugzeit gegeben. Die Impulse werden mit vollen Raumwinkel 4π erfasst, was dazu führt, dass in der Auswertung auch die Molekülachse in allen Raumrichtungen festgehalten werden kann. Das gestreute und umgeladene Projektil trifft ebenfalls auf einen orts- und zeitauflösenden Detektor, wodurch seine Impulse transversal zu seiner Ausbreitungsrichtung vermessen werden.

Um die Impulsauflösung des Projektils für dieses Experiment noch zusätzlich zu verbessern, fokussiert ein elektrostatisches Quadrupoldublett vor der Reaktionszone den Projektilstrahl auf den Detektor.

Das folgende Kapitel wird sich mit der Präparation von Target und Projektil befassen und auf wesentliche Punkte der oben genannten Messtechnik und deren Realisierung eingehen. Bei dem vorliegenden Experiment kam ein Gasrückgewinnungssystem zum Einsatz, dessen Aufbau und Funktion ebenfalls erläutert wird.

Zur Vereinfachung kommender Ausführungen wird folgendes Koordinatensystem definiert: Da elektrisches Feld, Projektilstrahl und Jet senkrecht zueinander stehen, liegt es nahe, ein kartesisches Koordinatensystem zu benutzen. Der Projektilstrahl zeichnet die Richtung der z-Achse, die Jetrichtung die Richtung der y-Achse aus. Die Richtung der x-Achse ist gegeben durch die entgegengesetzte Richtung des elektrischen Feldes, also der Flugzeitrichtung der Rückstoßionen. Die Reaktionszone stellt seinen Ursprung dar.

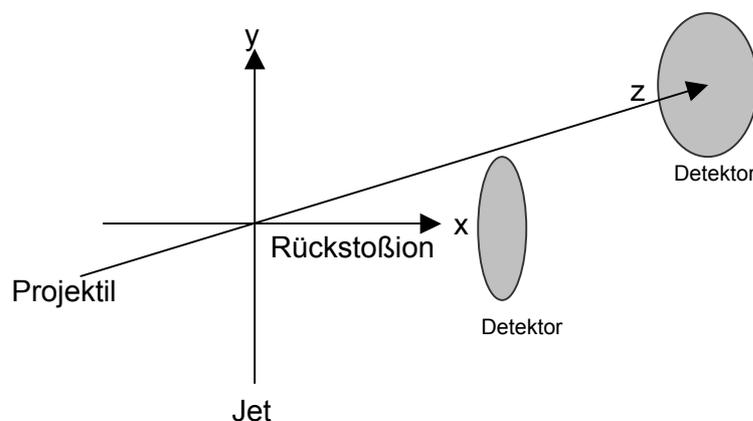


Abbildung 3.1. Koordinatensystem

3.1. Das Gastarget

Das Gas expandiert mit einem bestimmten Vordruck adiabatisch isochor durch eine Düse in eine Expansionskammer. Der Durchmesser der Düse beträgt meistens 10-60 μm . Ist der Vordruck des Gases groß gegenüber dem Druck in der Expansionskammer, kommt es zu einer Überschallexpansion [Mil88, Wut88]. Die thermische Energie der Targetatome bzw. -moleküle wird in eine gerichtete Bewegungsenergie umgewandelt, was mit einer Kühlung des Gases gleichzusetzen ist. Die Geschwindigkeit der Atome bzw. Moleküle berechnet sich mit

$$v_{jet} = \sqrt{\frac{5k T_0}{m_T}}, \quad (3.10)$$

wobei k die Boltzmannkonstante, T_0 die Umgebungstemperatur und m die Masse des Targetatoms bzw. -moleküls ist.

In der Expansionskammer wechselwirken die Atome/Moleküle mit dem Restgas. Es entsteht eine räumlich begrenzte Zone, in der sich die Atome/Moleküle alle in eine Richtung bewegen, ohne miteinander zu stoßen. Diese Zone bezeichnet man als *Zone of Silence*. Um dieses Volumen herum existiert eine Übergangszone aus Schock- und Kompressionswellen. Die Länge der *Zone of Silence* lässt sich über Vordruck p_0 , Druck in der Expansionskammer p_E und Düsendurchmesser d_D bestimmen:

$$l = \frac{2}{3} \sqrt{\frac{p_0}{p_E}} d_D \quad (3.11)$$

Mit steigendem Druck in der Expansionskammer wird die *Zone of Silence* kleiner. Dies ist sehr einleuchtend, da der Druck des Restgases sie zusammendrückt. Für weiterführende Informationen sei auf [Jag94] und [Web97] verwiesen.

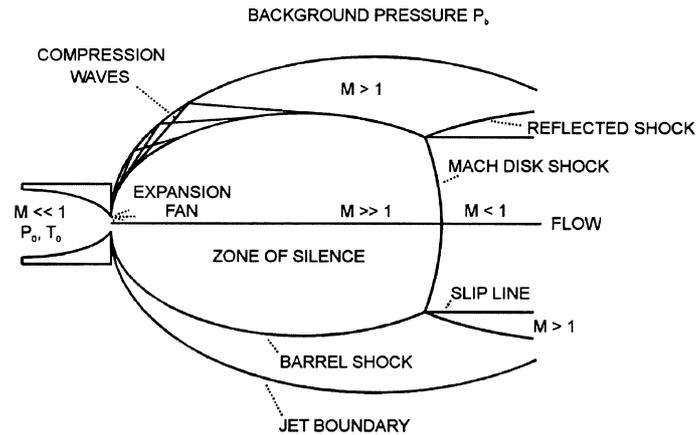


Abbildung 3.2 Schematische Darstellung der Zonen bei der Überschallexpansion eines Gas. Sie entspricht einer \cos^4 -Verteilung. [Mil88]

Taucht man nun eine speziell geformte Blende an der Spitze eines Hohlkegels (Skimmer) in die *Zone of Silence*, so werden durch diese Kollimation nur solche Moleküle ausgewählt, die einen wohl definierten Impuls in Ausbreitungsrichtung und nahezu keinen Impuls transversal dazu haben. Dadurch wird ein gut lokalisierter Gasjet erreicht.

3.1.1. Jet- und Vakuumsystem

In diesem Experiment expandiert D_2 -Gas unter einem Vordruck von 10 bar durch eine Düse mit 15 μm Durchmesser. Das Vakuum beträgt in der Expansionskammer etwa 1×10^{-3} mbar. Ein Skimmer mit einem Durchmesser von 0,3 mm begrenzt den Strahl. Wenn der Gasstrahl direkt nach dem Skimmer mit dem Projektilstrahl gekreuzt wird, spricht man von einem 1-stufigen Jetsystem. In diesem Aufbau strömt das Gas jedoch durch den Skimmer in eine zweite Expansionskammer, in der ein niedrigerer Druck herrscht als in der ersten. Der Strahl weitet sich gemäß seiner Divergenz auf und wird durch eine Rundblende ($d = 0,5$ mm) nochmals kollimiert, bevor er in der Targetkammer mit dem Projektilstrahl gekreuzt wird. Der Vorteil dieses zweistufigen Jetsystems besteht darin, dass durch die weitere Kollimation die Impulse transversal zu ihrer Ausbreitungsrichtung noch schärfer definiert und vor allem der Fluss an warmem Restgas in die Targetkammer fast vollständig vermieden wird.

Nach der Kreuzung mit dem Projektilstrahl gelangt das Gas in den sogenannte *Jetdump*, wo es letztendlich abgepumpt wird. Der *Jetdump* ist mit der Targetkammer durch ein kleines Röhrchen verbunden und wird ebenfalls separat gepumpt (differenzielle Pumpstufe). Dies verhindert ein Rückströmen des Gases.

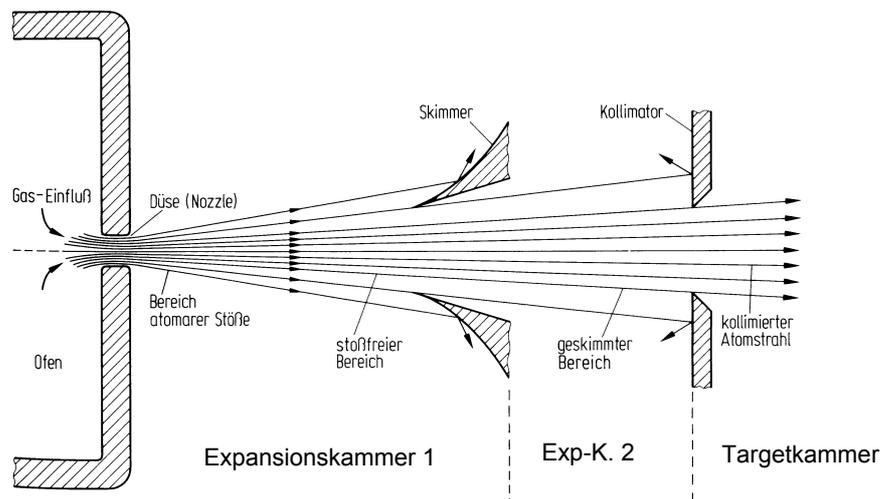


Abbildung 3.3. Funktionsweise des zweistufigen Jetsystems [Ber87]

Alle Kammern werden mit Turbomolekularpumpen evakuiert. *Jetdump* und Targetkammer werden über eine Drehschieberpumpe, erste und zweite Expansionskammer mit einer Vorpumpe mit einer Saugleistung von 220m³/h evakuiert. Tabelle (3.1.) zeigt die einzelnen Vakuumanstiege in den Kammern bei einem D₂-Jet mit 10 bar Vordruck und deren jeweiligen Hochvakuumpumpen:

1. Expansionskammer	1×10^{-3} mbar	Turbomolekularpumpe 500 l/s
2. Expansionskammer	$2,2 \times 10^{-5}$ mbar	Turbomolekularpumpe 220 l/s
Targetkammer	4×10^{-8} mbar	2 Turbomolekularpumpen 220 l/s
Jetdump	3×10^{-7} mbar	Turbomolekularpumpe 360 l/s

Tabelle 3.1.

Mit $T_0 = 300$ K und $m = 7344$ a.u. ergibt sich nach Gleichung (3.10) für die Geschwindigkeit: $v_{\text{jet}} = 1759$ ms = $8,04 \times 10^4$ a.u., und damit für den Impuls $p_{\text{jet}} = 5,91$ a.u. Die Abstände zwischen Düse und Blende bzw. Düse und Targetzone betragen 30 mm bzw. 110 mm. Damit lässt sich eine Aufweitung des Gastrahls in Höhe der Targetzone von 1,39 mm berechnen. Für die Jetdichte ergibt sich ein Wert von $2,8 \times 10^{11}$ Teilchen/cm².

3.1.2. Das Gasrückgewinnungssystem

Um den Verbrauch an teurem Deuterium möglichst gering zu halten, wurde ein Gasrecycling-System gebaut. Eine Turbomolekularpumpen und eine ölfreie Scrollpumpe befördern das anfallende Restgas aus der ersten und zweiten Expansionskammer zu einem zweistufigen Kompressor. Für eine ausreichende Verdichtung muss der Druck an seinem Eingangsventil etwa 1-2 bar betragen. Die erste Stufe komprimiert das Gas auf etwa 20 bar, die zweite auf bis 120 bar. Nach dem Kompressor wird der Druck mit einem Druckminderer auf den gewünschten Vordruck reduziert.

Es ist zu erwarten, dass durch eventuelle Lecks Gas entweicht. Eine 1l-Gasflasche soll daher als eine Art Ausgleichsgefäß dienen. Sie wird in regelmäßigen Abständen (3 Tage) mit mehreren Litern Deuterium gefüllt, um die Gasverluste auszugleichen. Wichtig ist dabei, dass die Messung nicht unterbrochen werden muss, sondern mit neuem Deuterium weiterlaufen kann. Das System ermöglicht, wie man in Abbildung 3.3. erkennt, ein einfaches Umschalten vom Betrieb mit gebrauchtem Deuterium auf den Betrieb mit neuem Deuterium aus der Gasflasche.

Bei Experimenten mit Wasserstoff, oder wie hier mit schwerem Wasserstoff besteht stets die Gefahr einer Knallgasexplosion. Aus diesem Grund muss darauf geachtet werden, dass das anfallende Restgas der anderen Kammerabschnitte (Targetkammer, *Jetdump*) ungehindert ins Freie befördert wird. In diesem Experiment wird der Auspuff der Vorpumpen direkt mit dem Abluftsystem der Experimentierhalle verbunden. Auch das Ausgleichsgefäß ist wegen eventueller Sauerstoff-Wasserstoff-Gemische außerhalb der Experimentierhalle montiert.

Auf der Niederruckseite entsprechen Leitungen und Ventile des Gasrückgewinnungssystems dem KF-Standard, auf der Hochdruckseite dagegen werden 6mm-Kupferrohre mit entsprechenden Verbindungen und Ventilen (*gyrolock*, *swagelock*) eingesetzt, die Drücken bis zu 90 bar standhalten. Alle Leitungen können durch eine zusätzliche ölgedichtete Vorpumpe evakuiert werden.

Der Einsatz ölgedichteter Pumpen, aber auch des ölgedichteten Kompressors machten eine Reinigung des Gases unabdingbar. Hinzu kommt noch, dass gerade die Kupferrohre aufgrund ihres geringen Durchmessers schlecht zu pumpen sind und dadurch Schmutz

auf ihrer Oberfläche und besonders Wasserdampf das Gas verunreinigen. Eine Zeolithfalle und die Kühlung des Gases durch flüssigen Stickstoff wirken dem entgegen:

- Die Zeolithfalle besteht aus porösen Aluminiumoxidsilikaten mit Alkalimetallen. Die Hydroniumionen im Wasser (Wasserdampf) z. B. werden in der Zeolithfalle durch die Ionen der Alkalimetalle, die sich in den Hohlräumen (Poren) nahezu frei bewegen können, ausgetauscht. Das Wasser kann dadurch gebunden werden. Mit anderen Kationen ist dies ebenfalls möglich. Man spricht daher auch von einem Ionenaustauscher [Du88].
- Die Kühlung des Gases sorgt dafür, dass Gase, deren Gefrierpunkt über 78 K liegt, vor allem aber auch Wasserdampf und Kohlenwasserstoffverbindungen ausfrieren. Wasserstoff hat einen Siedepunkt von etwa 20 K und kann auch bei diesen Temperaturen ungehindert durch die gekühlten Kupferrohre strömen.

Insgesamt konnte die Messung mit nur 60 l Deuterium durchgeführt werden, was gegenüber dem Verbrauch von etwa 1500 l eine erhebliche Verminderung war.

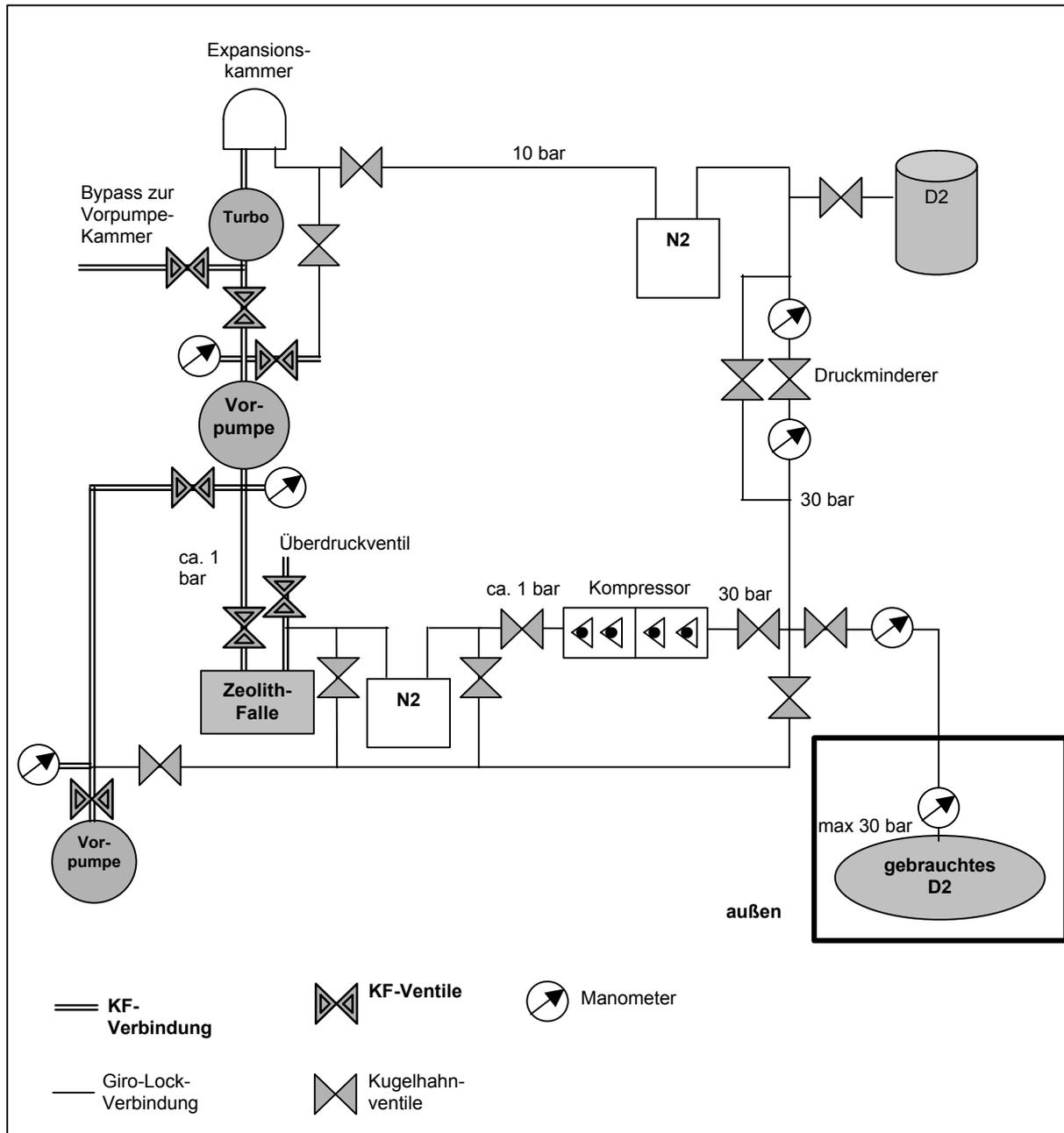


Abbildung 3.4.. Schematische Abbildung des Gasrückgewinnungssystems.

3.2. Strahlführung und Kollimation

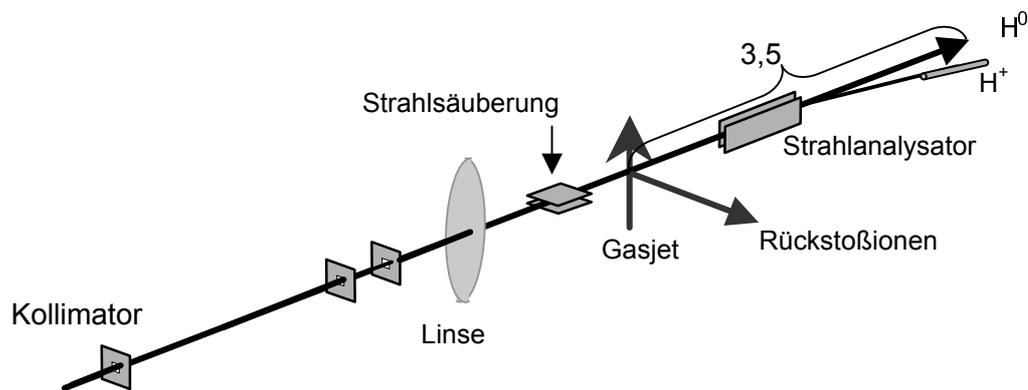


Abbildung 3.5. Darstellung der Strahlführung. Der Projektilstrahl wird durch die ersten beiden Kollimatoren begrenzt. Zur Verbesserung der Auflösung fokussiert die Linse den Strahl auf den Detektor und bildet damit die Öffnung des ersten Kollimators ab. Der dritte Kollimator dient zur Abschirmung von gestreuten Projektilen.

Das Experiment wurde am Kanal 7 des 2,5 MV-van-de-Graaf-Beschleunigers des Instituts für Kernphysik in Frankfurt am Main durchgeführt. Eine Hochfrequenz-Ionenquelle erzeugt die benötigten Ionen. Sie wird auf ein positives Potenzial gesetzt, wodurch die Ionen nach der Extraktion aus der Quelle beschleunigt werden. Im Allgemeinen sind Beschleunigungsspannungen zwischen 150 kV und 2,5 MV möglich. Nach der Beschleunigung lenkt ein Analysiermagnet die Projektile entsprechend ihrem Masse-Ladungsverhältnis in den gewünschten Kanal. Direkt hinter dem Magneten befindet sich im Strahlrohr der erste Kollimator, 30 cm weiter ein einfahrbarer Quarz. In einem Abstand von etwa 3 m folgt darauf der zweite Kollimator, und wieder 50 cm weiter der dritte. Zwischen dem zweiten und dritten Kollimator ist eine *Farraday-Tasse* montiert. Sie und der Quarz nach dem ersten Kollimator ermöglichen eine Strommessung und erleichtern dadurch die Strahljustierung.

Nach der Kollimation wird der Strahl von einer Quadrupollinse fokussiert. Auf ihre Funktionsweise soll im nächsten Abschnitt eingegangen werden. Ihr schließt sich ein elektrostatisches Deflektorpaar an, dessen Aufgabe es ist, den Projektilstrahl nach oben abzulenken. Auf diese Weise werden die bereits im Strahlrohr umgeladenen neutralen Projektile von den Protonen getrennt (Strahlsäuberung). Nach der Reaktionszone sorgt ein weiteres Deflektorpaar für eine horizontale Ablenkung, wodurch die neutralen

Wasserstoffatome vornehmlich aus der Reaktion vom Primärstrahl separiert werden. Die neutralen Wasserstoffatome treffen auf den Detektor, der Primärstrahl wird in ein langes Röhrrchen, den sogenannte *Beamdump*, gelenkt und dort vernichtet.

3.2.1. Die Projektillinse

Ein elektrostatisches Quadrupolsingulett besteht aus vier zylindrisch geformten Elektroden, die in einem Winkel von 90° zueinander angeordnet sind. An die jeweils gegenüberliegenden Elektroden wird die gleiche positive bzw. negative Spannung angelegt, wodurch ein elektrisches Feld entsteht, dessen Feldlinien stark gekrümmt von den positiven Elektroden zu den um 90° versetzten negativen Elektroden verlaufen (siehe Abbildung 3.6.). Wenn positiv geladene Ionen senkrecht durch dieses Feld hindurchfliegen, erfahren sie durch die positiven Elektroden von beiden Seiten eine Abstoßung und werden auf eine Bahn genau in der Mitte zwischen beiden Elektroden gezwungen. In der senkrechten Richtung dagegen lenkt die negative Spannung an den anderen beiden Elektroden die positiven Ionen aus der Mitte heraus. Der Strahl wird dadurch in der einen Richtung fokussiert, in der Richtung senkrecht dazu defokussiert.

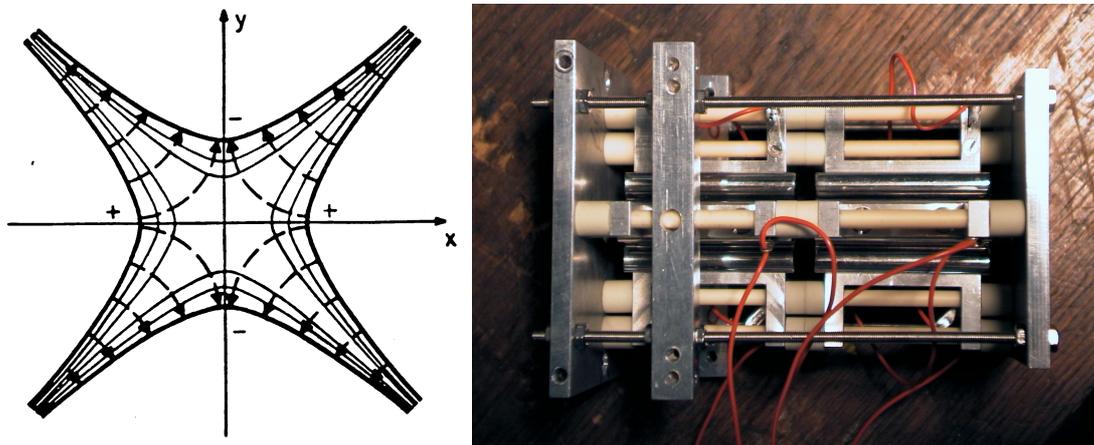


Abbildung 3.6.: (links): Schematische Darstellung des Feldes in einem elektrostatischen Quadrupolsingulett. [Wol87] (rechts): Fotografie des benutzten Quadrupoldubletts

Die Bewegung der Ionen im Quadrupolsingulett lässt sich mit Hilfe von Matrizen beschreiben. Aufgrund der fokussierenden bzw. defokussierenden Eigenschaften erhält man für die beiden Transversalrichtungen unterschiedliche Matrizen. Ist x die Richtung, in

der die Quadrupollinse fokussiert und y , die Richtung, in der die Linse defokussiert, so ergibt sich [Schm95]:

$$\begin{pmatrix} x \\ \mathbf{a} \end{pmatrix} = A \begin{pmatrix} x_0 \\ \mathbf{a}_0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos(kz) & \frac{\sin(kz)}{k} \\ -k \sin(kz) & \cos(kz) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_0 \\ \mathbf{a}_0 \end{pmatrix}$$

$$\begin{pmatrix} y \\ \beta \end{pmatrix} = B \begin{pmatrix} y_0 \\ \beta_0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cosh(kz) & \frac{\sinh(kz)}{k} \\ k \sinh(kz) & \cosh(kz) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} y_0 \\ \beta_0 \end{pmatrix} \quad (3.20)$$

mit $k = \sqrt{\frac{U_0}{U_B}} \frac{1}{d}$,

wobei U_B die Beschleunigungsspannung des einlaufenden Ionenstrahls, U_0 die angelegte Spannung an den Elektroden und d der Minimalabstand zwischen der Mittelachse des Singulett und der Elektrode ist. Die z -Richtung entspricht der Achse des Singulett. \mathbf{a} und β stellen die Ablenkungswinkel in der jeweiligen Richtung dar. x_0 , y_0 , \mathbf{a}_0 , β_0 stehen für die Anfangszustände.

Besitzt das Singulett die Länge l , kann die Variable z durch l ersetzt werden. In diesem Fall beschreibt die Matrix die Ablenkung der Ionen, die sie durch die Linse erfahren haben. Wie in der Optik erfüllt sie dann die Aufgabe einer Abbildungsmatrix.

Um nun einen Punkt (hier die Öffnung des ersten Kollimators) wieder in einem Punkt abzubilden, ist ein Hintereinanderschalten von zwei Singulett zu einem Quadrupoldublett notwendig. In beiden Ebenen wird fokussiert und defokussiert, allerdings in unterschiedlicher Reihenfolge. Die Abbildung in der jeweiligen Richtung kann man durch das Matrizenprodukt AB bzw. BA darstellen. Aufgrund der Vorzeichen ist dieses Produkt nicht kommutativ. Das bedeutet, dass die Abbildungseigenschaften in beiden Richtungen unterschiedlich sind. Der Grund hierfür liegt in der Beschleunigung, die die Ionen durch das elektrische Feld transversal zu ihrer Ausbreitungsrichtung erfahren. Sie führt zu einem nicht-linearen Zusammenhang zwischen Ablenkung und Länge der Linse (\propto Zeit der Ablenkung). Daraus folgt auch, dass durch eine Änderung ihrer Reihenfolge unterschiedliche Ablenkungen der Ionen erzielt werden und die Punktabbildung in den

jeweiligen Richtungen transversal zur Achse des Dubletts unterschiedliche Abstände zur z-Achse hat.

Wenn der Punkt in einer großen Entfernung abgebildet wird und die Linsenlänge klein gegenüber dieser Entfernung ist, fällt diese Nicht-Linearität jedoch nicht mehr so stark ins Gewicht. Die Bewegung der Ionen transversal zur Linsenachse setzt sich dann zusammen aus der beschleunigten Bewegung in das elektrische Feld der Linse und einer linearen Driftbewegung. Der Abstand des abgebildeten Punktes von der Strahlachse besteht damit auch aus einem Teil, verursacht durch die nichtlineare Ablenkung, und einem linearen Anteil aus der Driftbewegung. Je größer daher die Strecke ist, in der sich die Ionen geradlinig fortbewegen, desto größer wird der lineare Anteil in der Auslenkung sein. Wenn also $l \ll s$ gegeben ist, wobei l die Länge der Linse und s die Entfernung des abgebildeten Punktes ist, kann man die Abbildungen durch das Quadrupoldublett als nahezu linear ansehen.

Die Elektroden der hier benutzten Linse haben eine Länge von 5 cm. Es zeigt sich [Wol87], dass es ein optimales Verhältnis zwischen dem Minimalabstand a und dem Durchmesser d der Elektroden gibt: $a = 0,87 d$. Aus diesem Grund beträgt der Elektrodendurchmesser der hier benutzten Linse 1 cm und der Abstand zwischen ihnen 0,87 cm.

Wie bereits beschrieben, ist eine gute Auflösung des Projektilstreuwinkels, d. h. eine gute Auflösung in der Ebene transversal zur Strahlachse unbedingt erforderlich. Normalerweise erreicht man diese durch eine starke Kollimation des Strahls.

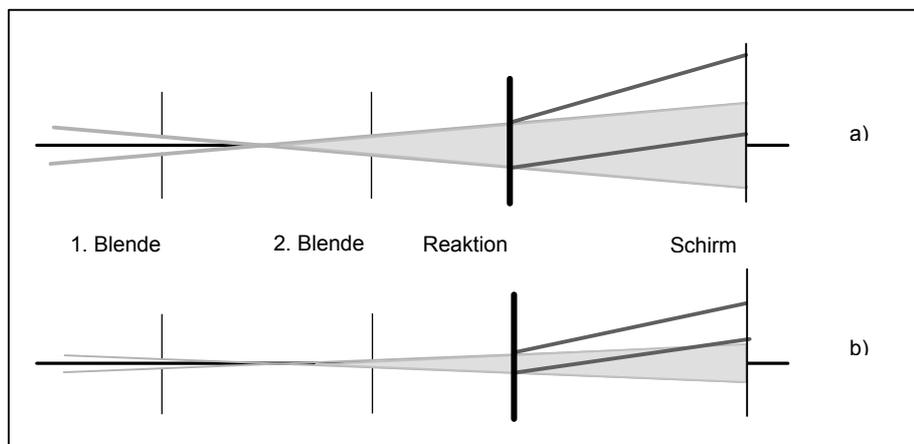


Abbildung 3.7. Darstellung des Auflösungsvermögens: Durch seine Divergenz weitet sich der Projektilstrahl auf. Wird er abgelenkt, so hängt es vom Verhältnis der Aufweitung zum Ablenkwinkel

ab, ob der abgelenkte Strahl vom Primärstrahl unterschieden werden kann. Je kleiner die Aufweitung ist, desto kleinere Winkel können aufgelöst werden.

Für eine Auflösung von 0,2 mrad, wie sie für dieses Experiment benötigt wird, müssen die Öffnungen des ersten und zweiten Kollimators auf $0,3 \times 0,3 \text{ mm}^2$ begrenzt werden. Ohne Linse weitet sich der Strahl aufgrund seiner Divergenz bei dieser Anordnung (Abstand zwischen Kollimatoren = Abstand zwischen 2. Kollimator und Detektor) etwa auf die dreifache Breite aus. Durch eine Punkt-zu-Punkt-Abbildung der Linse auf den Detektor lässt sich also ein Faktor drei in der Auflösung gewinnen. Das bedeutet aber auch, dass die zweite Kollimatoröffnung ebenfalls um einen Faktor drei vergrößert werden kann, um die gleiche Aufweitung des Strahls wie vorher zu erhalten. Aus diesem Grund konnte die Öffnung des zweiten Kollimators auf $0,9 \times 0,9 \text{ mm}^2$ vergrößert werden, wodurch die Ereignisrate erheblich verbessert und die Messzeit verkürzt werden konnte.

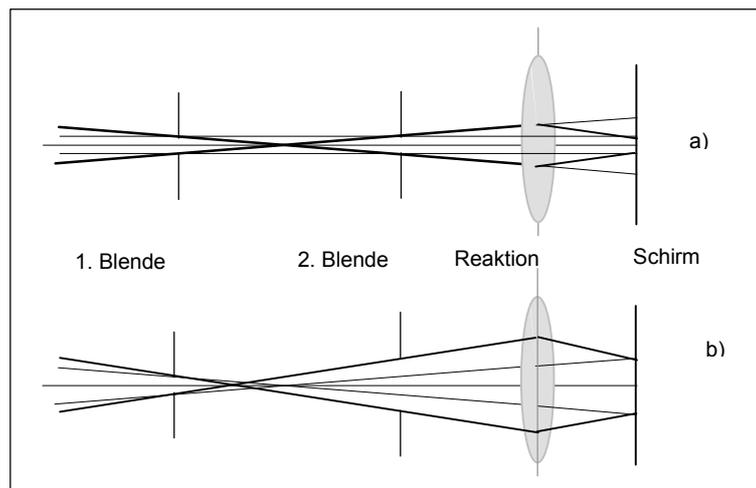


Abbildung 3.8. Funktionsweise des Quadrupoldubletts für dieses Experiment: a) die Linse fokussiert den Strahl auf den Schirm. Die Aufweitung des Strahls wird auf $1/3$ reduziert. b) Der 2. Kollimator kann etwa um einen Faktor 3 vergrößert werden. Die Öffnung des 1. Kollimators wird abgebildet.

3.3. Das Spektrometer

3.3.1. Bewegung im elektrischen Feld

Die Rückstöße werden im homogenen elektrischen Feld des Spektrometers beschleunigt. Ihre Flugzeit ergibt sich aus der Gleichung der gleichmäßig beschleunigten Bewegung [Ger97]:

$$t_{ges} = \frac{-v_0 + \sqrt{v_0^2 + 2 x_B a}}{a} \quad (3.30)$$

v_0 ist die Anfangsgeschwindigkeit des Rückstoßions und a die Beschleunigung. Die Beschleunigung berechnet sich aus der Kraft F , die auf das Ion im elektrischen Feld mit der Stärke $|\vec{E}|$ wirkt:

$$F = ma = q |\vec{E}| \quad \Rightarrow \quad a = \frac{q |\vec{E}|}{m}, \quad (3.31)$$

wobei m und q Masse und Ladung des Ions sind. Mit Gleichung (3.30) erhält man hieraus für die Berechnung der Flugzeit folgende Gleichung:

$$t_{ges} = \frac{-p_0 + \sqrt{p_0^2 + 2 x_B q m |\vec{E}|}}{q |\vec{E}|}, \quad (3.32)$$

p_0 stellt den Anfangsimpuls und x_B die Beschleunigungsstrecke dar. In einer Messung sind die Parameter wie Masse bzw. Ladung des Rückstoßions und Feldstärke bekannt bzw. festgelegt. Die Beschleunigungsstrecke dagegen kann variieren, je nachdem wie stark die Reaktionszone ausgedehnt ist. Zwei Rückstöße, die zwar zur gleichen Zeit, aber an unterschiedlichen Orten entstanden sind, besitzen nicht die gleiche Flugzeit. Das führt zu einem großen Fehler bei der Bestimmung des Anfangsimpulses.

Aus diesem Grund wird im Allgemeinen eine Zeitfokussierung genutzt, die dafür sorgt, dass gleichzeitig gestartete Ionen auch gleichzeitig auf dem Detektor auftreffen. Die Idee der Fokussierung stammt aus dem Bereich der Massenspektroskopie [Wil55]: An das elektrische Feld wird eine feldfreie Driftstrecke angeschlossen. Da die im Spektrometer weiter links entstandenen Ionen mehr Energie im Feld aufnehmen, sind sie in der Driftstrecke schneller als die weiter rechts gestarteten Ionen. Die Fokusebene wird durch den Zeitpunkt definiert, in dem alle gleichzeitig gestarteten Ionen auf gleicher Höhe sind. Der Detektor wird hier platziert.

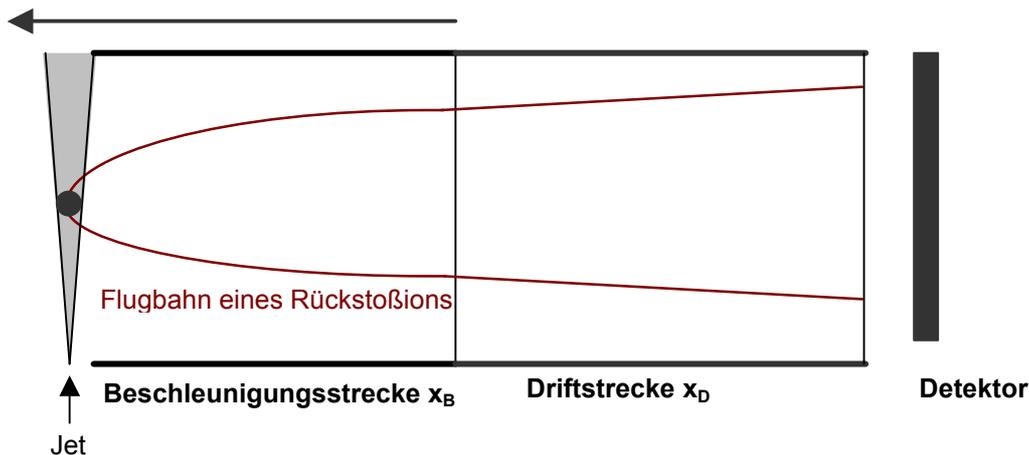


Abbildung 3.9. Schematische Darstellung des Spektrometers. Der Projekttilstrahl verläuft senkrecht in die Zeichenebene hinein. Er ist angedeutet durch den dunklen Punkt.

Die Flugzeit des Rückstoßions entspricht der Summe aus der Zeit t_B , in der es durch das elektrische Feld beschleunigt wird und der Zeit t_D , in der es durch die Driftstrecke fliegt:

$$t_{ges} = t_B + t_D = \frac{-p_0 + \sqrt{p_0^2 + 2 x_B q m |\vec{E}|}}{q |\vec{E}|} + \frac{x_D}{v_B} \quad (3.33)$$

Die kinetische Energie des Ions nach der Beschleunigung besteht aus der Summe seiner Anfangsenergie und der im Feld aufgenommenen Energie:

$$E_{kin} = E_0 + E_{Feld} = \frac{p_0^2}{2m} + q |\vec{E}| x_B = \frac{1}{2} m v_B^2, \quad (3.34)$$

v_B stellt die Geschwindigkeit des Rückstoßions nach der Beschleunigung dar. Für sie folgt daraus:

$$v_B = \sqrt{\frac{p_0^2}{m^2} + 2 \frac{q}{m} |\vec{E}| x_B} \quad (3.35)$$

Mit Gleichung (3.33) erhält man hieraus für die Flugzeit folgende Gleichung:

$$t_{ges} = \frac{-p_0 + \sqrt{p_0^2 + 2 x_B q m |\vec{E}|}}{q |\vec{E}|} + \frac{m x_D}{\sqrt{p_0^2 + 2 q m |\vec{E}| x_B}} \quad (3.36)$$

Die Lösung der Gleichung der Gesamtflugzeit ist möglich, gestaltet sich jedoch schwierig, da es sich um eine kubische Gleichung handelt [siehe z.B. Fou03]. Für Anfangsenergien, die sehr viel kleiner ist, als die im Feld aufgenommene Energie der Rückstoßionen, lässt

sich diese Ebene der Zeitfokussierung berechnen. Man erhält die Bedingung, dass die Driftstrecke doppelt so groß wie die Beschleunigungsstrecke sein muss, also $x_D = 2 x_B$.

Aufgrund der Ausdehnung der Reaktionszone kommt es auch in den Richtungen transversal zur Flugzeitrichtung, also im Ort des Rückstoßions zu großen Fehlern. Es wird daher häufig auch eine Fokussierung in Ortsrichtung eingesetzt. Ähnlich einer optischen Linse fokussiert eine elektrostatische Linse die Ionen auf den Detektor. Man erreicht dies durch einen Feldsprung im homogenen elektrischen Feld des Spektrometers [Mer96, Ach99].

3.3.2. Das XXL-Spektrometer

Für ein homogenes elektrisches Feld wurden Kupferplatten (160 x 160 mm) isoliert auf Keramikstäbe gefädelt. Zwischen den Platten befinden sich keramische Abstandsringe, die zur Vermeidung von Aufladungen mit Germanium bedampft sind. Die Platten sind über einen Widerstand von 100 k Ω miteinander verbunden. Die Anordnung ist für den allgemeinen Fall entwickelt worden, d. h. für die Vermessung von Reaktionen, in denen Elektronen und Rückstoßionen entstehen. Dabei werden die Rückstoßionen in die eine, die Elektronen in die andere Richtung beschleunigt. Es gibt deshalb auf der einen Seite eine elektrostatische Linse zur Ortsfokussierung der Ionen. Die Lochdurchmesser der Kupferplatten variieren hier stark, zwischen 28 mm und 130 mm, um bei eingeschalteter Linse außerhalb des Linsenbereichs weiterhin ein homogenes Feld zu ermöglichen [Schoe02]. Auf der anderen Seite haben die Löcher der Platten einen einheitlichen Durchmesser von 130 mm. Die Länge der Beschleunigungsstrecke beträgt auf der rechten Seite 20 cm, auf der linken Seite 26,5 cm. Die ursprünglichen Driftröhren haben für eine Zeitfokussierung die doppelte Länge der jeweiligen Beschleunigungsstrecke im elektrischen Feld.

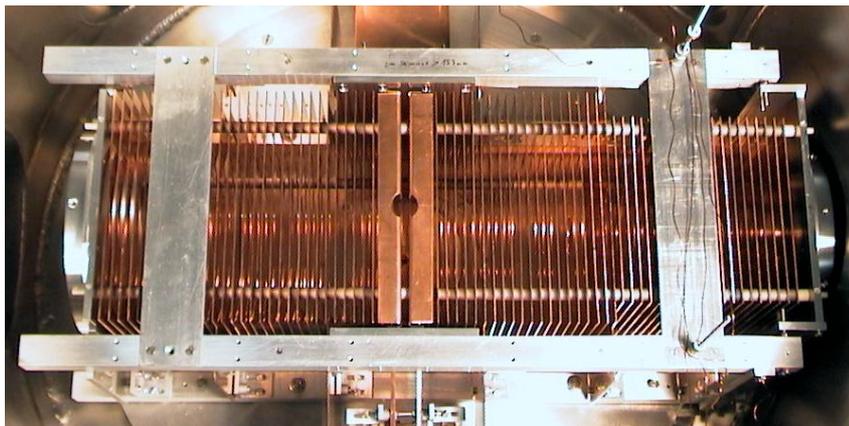


Abbildung 3.10. Fotografie des genutzten Spektrometers.

Möchte man nur die Rückstoßionen vermessen, reicht ein Teil der Anordnung aus. Da die Impulse der entstandenen D^+ -Ionen sehr groß sind, kann und wurde in diesem Experiment auf Orts- und Zeitfokussierung verzichtet. Durch das Verkürzen der Driftröhre auf 20 cm, kann das elektrische Feld, das angelegt werden muss, damit alle Ionen auf den Detektor ($r = 60$ cm) treffen, reduziert werden und zwar auf etwa 75 V/cm. Eine kürzere Driftröhre war wegen des gegebenen Aufbaus nicht möglich.

Der Verzicht auf Orts- und Zeitfokussierung hängt mit der Ausdehnung der Reaktionszone und der Größenordnung der gemessenen Rückstoßionenimpulse in diesem Experiment zusammen. Die Reaktionszone wird in der x-y-Ebene durch die Aufweitung des Projektilstrahls und in der z-Richtung durch die Breite des Gasstrahls begrenzt. Aufgrund geometrischer Überlegungen ergibt sich für die Aufweitung des Projektilstrahls etwa 1 mm, für die Breite des Jets erhält man nach Abschnitt 3.1.1. 1,83 mm. Berechnet man für eine grobe Abschätzung den Fehler in der Flugzeit aus Gleichung (3.36), der durch die Ausdehnung des Targets verursacht wird, erhält man ca. 5 ns. Dies entspricht einem Fehler im Impuls von ca. 3 a.u. Für die beiden Ortsrichtungen lassen sich die Fehler der Impulse über die Gleichung für eine gleichförmige Bewegung abschätzen:

$$p_r = p_o + m \frac{\Delta x_B}{t_{ges}} \quad (3.37)$$

Die Flugzeit der D^+ -Ionen beträgt etwa 1,5 μ s. Daraus ergibt sich ein Fehler in Jetrichtung (y-Richtung) von etwa 1 a. u. und in Strahlrichtung von ca. 2 a. u. Die Impulse, die die Fragmente aus der Dissoziation erhalten, liegen im Bereich zwischen 40 a. u. und 55 a. u. Im schlechtesten Fall ist also ein Fehler von bis zu 7 % zu erwarten.

Da das Hauptinteresse eventuellen Strukturen im Projektilimpuls in der Ebene transversal zu seiner Ausbreitungsrichtung gilt, ist dieser Fehler im Impuls des Rückstoßions für diese Messung als unkritisch anzusehen. Die Abschätzung der Fehler ist natürlich sehr grob. Eine ausführlichere Diskussion der Impulsauflösung von Projektil und Rückstoßion folgt in Abschnitt 5.1.

Die Energie, die die Rückstoßionen im elektrischen Feld aufnehmen, beträgt 1500 eV, die Anfangsenergie nach der Dissoziation liegt bei maximal 13 eV. Die Anfangsenergie des Ions ist also auch hier klein gegenüber der im Feld aufgenommenen Energie. Dadurch können die quadratischen Terme in Gleichung (3.36) vernachlässigt werden. Man erhält einen nahezu linearen Zusammenhang zwischen Flugzeit und Anfangsimpuls:

$$t_{ges} \approx -\frac{p_0}{q |\vec{E}|} + \left(\frac{\sqrt{2 x_B q m |\vec{E}|}}{q |\vec{E}|} + \frac{m x_D}{\sqrt{2 q m |\vec{E}| x_B}} \right) \quad (3.38)$$

Die letzten beiden Summanden lassen sich bei gegebener Anordnung zu einer Konstante zusammenfassen. Mit $x_B = x_D$ gilt dann:

$$t_{ges} \approx -\frac{p_0}{q |\vec{E}|} + C \quad (3.39)$$

mit
$$C = t_{ges}(p_0 = 0) = 3 \sqrt{\frac{m}{q} \frac{x_B}{2 |\vec{E}|}}$$

Die Flugzeit für den Anfangsimpuls Null ist vom Masse-Ladungs-Verhältnis des Rückstoßions abhängig. Dies hat den Vorteil, dass die verschiedenen Ionen, die in der Reaktionszone entstanden sind, in der Flugzeit separiert werden können. Dadurch ist es in diesem Experiment überhaupt erst möglich, den nicht-dissoziativen Elektroneneinfang ($m_R = m_{D^{2+}} = 4$ a. u.) vom dissoziativen Elektroneneinfang ($m_R = m_{D^+} = 2$ a. u.) zu trennen.

3.4. Detektoren

Die verwendeten Detektoren bestehen aus zwei aufeinandermontierten *Micro Channel Plates* (MCP) und einer 2dim-ortsauflösenden Anode. Die MCPs haben dabei die Funktion eines Elektronenvervielfachers. Ihre Dicke liegt etwa zwischen 0,5 mm und 1,5 mm, ihr Durchmesser zwischen 40 mm und 120 mm. In die Platten sind winzige Kanäle

eingearbeitet, deren Durchmesser je nach Typ in der Größe von 5-50 μm variiert. Die Oberfläche dieser Kanäle ist so präpariert, dass die Auslösearbeit für die Elektronen besonders niedrig ist. Zudem verlaufen sie nicht senkrecht durch das Material, sondern unter einem Neigungswinkel von bis zu 15° . Dies verhindert ein Rückdriften der Ionen (Ionenrückkopplung)

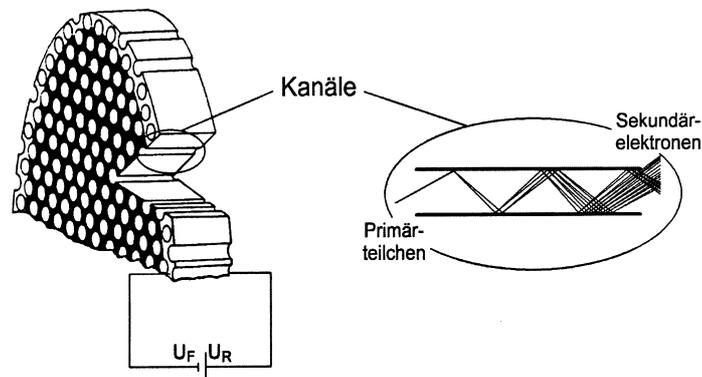


Abbildung 3.11. Vereinfachte Darstellung eines MCPs und seiner Funktion. Es besteht aus vielen kleinen Kanälen, in denen die Elektronen vervielfacht werden. [Ach99]

Für den Betrieb wird über das MCP je nach Größe, eine Spannung zwischen 800 V und 1200 V angelegt. Wenn nun ein Ion auf die Innenseite eines Kanals trifft, so wird ein Elektron ausgelöst. Dieses wird durch das elektrische Feld beschleunigt und stößt relativ schnell mit der Kanalwand zusammen, wodurch ein weiteres Elektron frei wird. Diese Elektronen erfahren wiederum eine Beschleunigung und lösen weitere Elektronen aus. Der Vorgang setzt sich fort, bis die Elektronen das Ende des Kanals erreicht haben und eine Ladungslawine entstanden ist. Im Allgemeinen folgt jetzt ein zweites MCP, an dem ebenfalls eine Spannung anliegt. Die Elektronenwolke verteilt sich auf mehrere Kanäle und wird abermals verstärkt.

Bei der Verstärkung mehrerer MCPs ist es wichtig, dass die Kanäle im ZickZack verlaufen. Man spricht bei zwei MCPs daher von einer *Chevron*-Anordnung, bei drei MCPs von einem *z-Stack*. Jedes MCP bringt eine Verstärkung von etwa 10^3 bis 10^4 . Die maximale Verstärkung wird von Raumladungseffekten in einer Lawine begrenzt, durch die neu entstandene Elektronen abgebremst werden und dadurch ein Auslösen eines weiteren Elektrons verhindert wird. Aber auch die maximale Geschwindigkeit, mit der die Elektronen aus den unteren Atomlagen zur Oberfläche gelangen, beschränkt die Verstärkung. Das MCP geht in Sättigung, wenn diese Effekte dominieren. In diesem Fall

ist die Ladungsmenge bzw. die Pulshöhe unabhängig von der kinetischen Energie des auftreffenden Teilchens. Um einheitliche Impulshöhen zu erhalten, arbeitet man im Allgemeinen in diesem Bereich.

Die Spannungen über die MCPs werden über hohe Widerstände angelegt. Verlässt eine Elektronenwolke das MCP, so wird ihm für kurze Zeit Ladung entzogen, was zu einer kurzen Überhöhung der Spannung führt. Dieser positive Spannungspuls wird kapazitiv ausgekoppelt und dient als Zeitsignal.

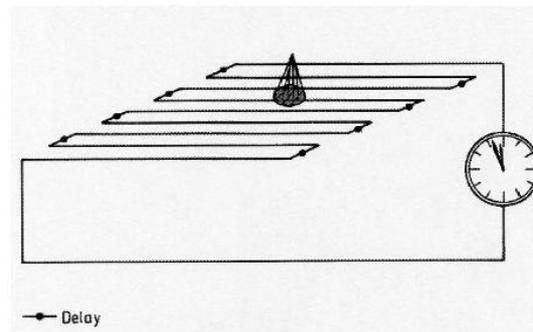


Abbildung 3.12. schematische Darstellung der Laufzeitmessung auf einem Draht der Anode.)
[Roe04]

Nach der Verstärkung durch die MCPs trifft die Elektronenwolke auf eine Delay-Line-Anode. Sie besteht aus langen Drahtpaaren, die isoliert um den quadratischen Anodenkörper gewickelt sind. Zwischen den MCPs und der Anode liegt eine Spannung an, wodurch die auf den Draht treffende Ladungswolke einen Spannungspuls verursacht, der sich in beide Richtungen ausbreitet. Misst man die Laufzeit des Pulses, so lässt sich aus der Differenz der beiden Signale der Auftreffort in einer Richtung bestimmen. Für die volle Ortsinformation, d.h. für zwei Raumrichtungen, überlagert man dieser Ebene noch eine weitere Drahtebene, die 90° dazu gedreht und von ihr isoliert ist.

Um die Dispersion des Signals zu minimieren, ist parallel zu dem Draht in einer Ebene noch ein zweiter gewickelt. Einer der beiden Drähte wird auf ein höheres Potenzial (ca. 50 V mehr) gelegt. Man bezeichnet ihn als Signaldraht, der andere hingegen wird Referenzdraht genannt. Die beiden parallelen Drähte stellen dann eine Lecherleitung dar, die über bessere Hochfrequenzeigenschaften verfügt [SPI01].

Die Detektoren können sowohl neutrale Atome, als auch Ionen und Elektronen nachweisen. Wichtig ist hierbei, dass sie eine hohe Geschwindigkeit besitzen, um aus der Oberfläche der MCPs Elektronen auszulösen. Elektronen benötigen hierzu etwa 200 eV. Für Ionen sollte die Energie größer als 1 keV sein.

Der Vollständigkeit wegen sei darauf hingewiesen, dass es neben der *Delay-Line-Anode* noch weitere Anoden gibt, die eingesetzt werden können: die *Wedge & Strip Anode* und die *Resistive Anode*. Bei der *Wedge-&Strip-Anode* wird die Ladungsverteilung durch eine bestimmte geometrische Struktur ermittelt [Unv92], bei der *Resistive Anode* wird über eine Widerstandsmessung eine ortsbezogene Ladungswägung vorgenommen.

3.5. Die Datenaufnahme

Von jedem Detektor gehen fünf Signale - vier Anodensignale und ein MCP-Zeitsignal - aus, die zunächst mittels RC-Gliedern kapazitiv ausgekoppelt werden. Jedes Anodensignal wird sowohl über einen Signal- als auch einen Referenzdraht geführt. Aus diesem Grund werden sie nach dem Auskoppeln mittels eines Differenzverstärkers verstärkt. Man erhält vier Zeitsignale, die anschließend mit einem *Constant Fraction Discriminator* (CFD) in Standard-Nim-Signale umgewandelt werden. Das MCP-Zeitsignal wird mit einem schnellen Verstärker und ebenfalls einem *Constant Fraction Discriminator* zu einem Nim-Signal geformt. RC-Glied, schneller Vorverstärker, Differenzverstärker und Constant Fraction Discriminator lassen sich in einem Gerät vereinen, der DLATR-Box. Die Signale des Rückstoßionendetektors werden mit einer derartigen Box verarbeitet.

Im Allgemeinen treffen auf den Projektildetektor alle neutralen Wasserstoffatome auf, die in der Targetkammer eine Umladung erfahren haben. Auf dem Recoildetektor werden ebenfalls viele Ionen nachgewiesen, die nicht durch einen Elektroneneinfang entstanden sind. Die detektieren Teilchen pro Sekunde liegen auf dem Projektildetektor im Bereich von 900 Hz, auf dem Recoildetektor bei etwa 15 kHz. Um aus dieser Vielzahl die Teilchen herauszufiltern, die an einer Einfangreaktion beteiligt waren, muss eine Bedingung gesetzt werden. Dies geschieht über die Flugzeitdifferenz zwischen beiden, wobei die zwischen Projektil und D^+ -Ion ca. $1,1 \mu s$ beträgt und die Flugzeitdifferenz zwischen D_2^+ -Ionen etwa einen Wert von $1,8 \mu s$ hat. Diese Bedingung wird mit einer logischen Schaltung aus UND- bzw. ODER-Gliedern realisiert: Das MCP-Signal des

Projektildetektors wird zunächst zeitlich verschoben (delay) und danach verbreitert (gate), so dass das MCP-Signal des Recoildetektors zeitlich innerhalb dieses Fensters liegt. Anschließend werden beide Signale mit einer UND-Schaltung verknüpft. Die Verknüpfung nennt man Koinzidenz.

Um die Impulsauflösung bestimmen zu können, ist es ebenfalls wichtig, den nicht-dissoziativen Elektroneneinfang zu vermessen. Es ergibt sich dabei nur das Problem, dass der nicht-dissoziativen Elektroneneinfang der wesentlich dominanter Prozess beider Einfangreaktionen ist. Man muss deshalb darauf achten, dass er wegen der begrenzten Aufnahmezeit des Computers (1 kHz) die Aufnahme dissoziativer Ereignisse nicht zu stark beeinträchtigt. Es werden daher zwei Koinzidenzen verschaltet, eine für den dissoziativen Reaktionskanal und eine für beide Reaktionskanäle, die anschließend 1:256 untersetzt wird. Beide werden in einer ODER-Schaltung zusammengeführt. Ihr Ausgangssignal repräsentiert die Bedingung für die gewünschten Ereignisse und stellt damit das Triggersignal dar.

Der TDC (Time-to-Digital-Converter) wird im Common-Stop-Modus betrieben. Das bedeutet, dass er so lange Daten aufnimmt, bis er ein Stoppsignal erhält. Dieses Signal wird eigentlich durch das oben genannte Triggersignal gegeben. Da die Daten jedoch über einen Computer aufgenommen werden, gelangt das Triggersignal zunächst in die MPDAS-Box, also in ein Triggermodul, das mit dem Computer verbunden ist. Im Prinzip wird an dieser Stelle überprüft, ob der Computer aufnahmebereit ist: Nur wenn er gerade Daten aufnehmen kann, wird der TDC gestoppt. Mittels des Camac-Computer-Interface werden die Daten auf die Festplatte des PCs übertragen.

Der TDC liest alle fünf Signale beider Detektoren aus. Da der TDC eine Zeitauflösung von 0,5 ns/Kanal, würde dies die erreichbare Ortsauflösung des Projektils unnötig begrenzen. Daher werden die vier Anodensignale des Projektildetektors noch zusätzlich mit zwei TACs und einem ADC verarbeitet und aufgenommen. Das Signal zum Auslesen des ADCs, der *Strobe*, wird ebenfalls durch das *Trigger*-Signal gegeben. Die übertragenen Daten werden Ereignis für Ereignis, im *Listmode*-Verfahren, auf der Festplatte gespeichert. Das Programm CoboldPC [UII02] übernahm die Steuerung des Interface und die Datenanalyse.

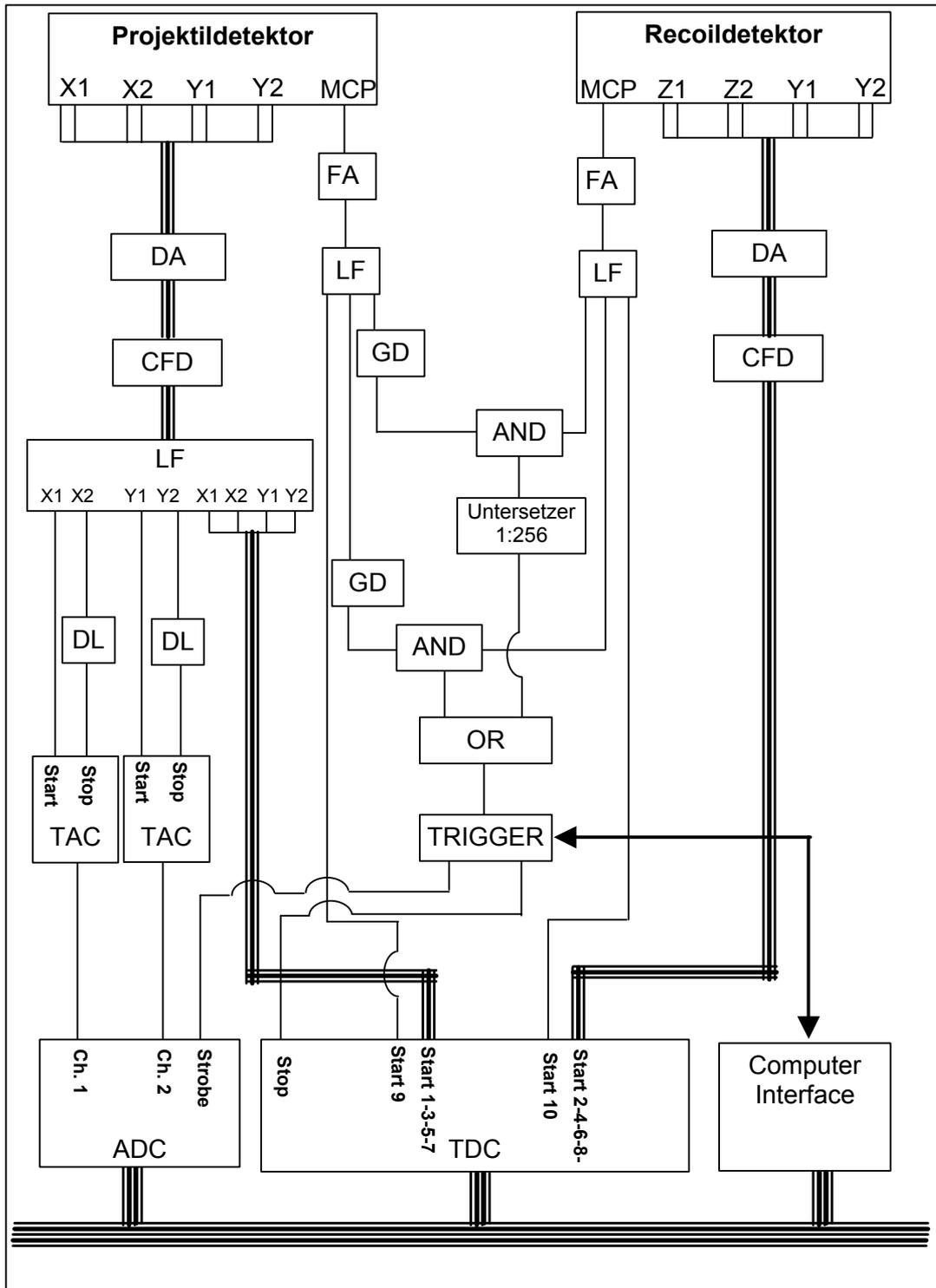


Abbildung 3.13. Schematische Darstellung

DA: Differential Amplifier

CFD: Constant Fraction Amplifier

GD: Gate- and Delaygenerator

TAC: Time-to-Amplitude Converter

FA: Fast Amplifier

LF: Linear Fan

DL: Delay

TDC: Time-to-Digital-Converter

4. Datenanalyse

Im folgenden soll kurz erläutert werden, wie man aus den Signalen, die man aus der Datenaufnahmen gewinnt, Orte und Impulse berechnet und die Stellung der Molekülachse rekonstruiert.

Es ist hierbei sinnvoll, die Stellung der Molekülachse im Raum mit Kugelkoordinaten darzustellen. Um die Achse des Moleküls in der Ebene transversal zur Strahlrichtung festzuhalten, ist eine Transformation notwendig. Die Projektilimpulse müssen hierbei stets um den Winkel der Molekülachse in dieser Transversalebene gedreht werden. Dieses Koordinatensystem wird als Molekülsystem bezeichnet.

4.1. Kalibrierung

4.1.1. Detektororte

Der TDC misst die Signallaufzeiten auf der Anode für beide Richtungen. Aus der Differenz der Laufzeiten an beiden Drahtenden kann der Auftreffort des Teilchens ermittelt werden. Es gilt:

$$x = x_1 - x_2 \quad \text{und} \quad y = y_1 - y_2 \quad (4.10)$$

wobei x_1 , x_2 bzw. y_1 , y_2 die Laufzeiten an den jeweiligen Drahtenden darstellen. Die Zeiten aus dem TDC werden in Kanälen angegeben, wobei jeder Kanal 0,5 ns entspricht. Für die Ortsbestimmung werden diese Kanäle in ein geeignetes Längenmaß umgerechnet. Dies lässt sich im allgemeinen damit erreichen, dass man den Detektor komplett ausleuchtet und einfach aus seinem Durchmesser in Kanälen und seiner bekannten (aktiven) Abmessung [in mm] einen Umrechnungsfaktor bestimmt.

Gerade bei Elektroneneinfangreaktionen in Ion-Atom-Stößen kann man diesen Schritt auf dem Rückstoßionendetektor häufig übergehen: Die diskreten Strukturen (Capture-Linien) im z-Impuls des Rückstoßions ermöglichen eine direkte Impuls-Kanäle-Eichung. In dieser Messung wurde ein sehr hohes elektrisches Absaugfeld angelegt, um alle geladenen Fragmente, die durch die Dissoziation entstanden sind, auf den Detektor zu projizieren. Das führte zu einer schlechten Auflösung, wodurch die einzelnen Capture-Linien nicht

mehr getrennt voneinander werden konnten. Aus diesem Grund mussten auch hier zunächst die Orte und daraus dann die Impulse berechnet werden.

Der Nullpunkt der Ortsverteilungen auf beiden Detektoren ist einfach zu bestimmen: Auf dem Projektildetektor ergibt er sich aus dem Mittelpunkt der Verteilung der gestreuten Projektilen. Auf dem Recoildetektor wird er durch den Mittelpunkt der D_2^+ -Ionen-Verteilung gegeben.

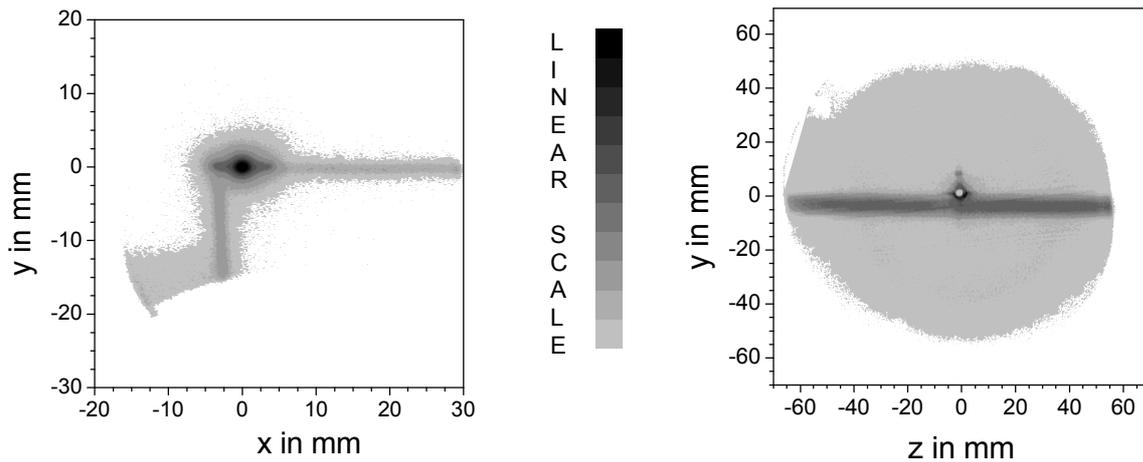


Abbildung 4.1. links: Ortsbild des Projektils . rechts: Ortsbild des Rückstoßions

Das Ortsbild des Projektildetektors zeigt eine vertikale und eine horizontale Linie, die letztendlich die Strahlführung wiedergeben. Die vertikale Linie entsteht durch Projektilen, die während der Ablenkung vor der Reaktionszone (Strahlsäuberung) umladen. Die horizontale Linie entspricht den Projektilen, die während der Ablenkung nach der Reaktionszone (Analysator) eine Umladung erfahren. Bei genauerer Betrachtung erkennt man noch eine zusätzliche schmalere Ausschmierung um den Mittelpunkt der Verteilung in horizontaler Richtung. Sie bildet die Bewegung der umgeladenen Projektilen im Absaugfeld des Spektrometers ab.

Die Ortsverteilung des Rückstoßions ist kontinuierlich. Sie wird jedoch überlagert von einem breiten horizontalem Streifen und der länglichen vertikalen Verteilung der D_2^+ -Ionen oberhalb dieses Streifens. Die kontinuierliche Verteilung entsteht durch die Dissoziation des Molekülions. Der breite Streifen stellt die Projektion der Ionen dar, die sich durch Ionisation des Restgases entlang der Strahlachse gebildet haben. Da die Moleküle aus dem Jet einen Impuls in y-Richtung - hier in vertikaler Richtung - haben, ist die D_2^+ -Ionen-Verteilung oberhalb dieses Restgasuntergrundes zu sehen. Ihre längliche Struktur ergibt sich daraus, dass beim Elektroneneinfang die Bewegung in z-Richtung nur durch

bestimmte diskrete Impulsüberträge gegeben, in y-Richtung aber jeder Impulsübertrag möglich ist.

4.1.2. Die Flugzeit des Rückstoßions

Die Flugzeiten der Rückstoßionen werden relativ zum MCP-Signal des Projektils gemessen. Die Impulse der Rückstoßionen in Flugzeitrichtung werden über die Differenzen von Flugzeiten und dem Betrag des elektrischen Feldes ermittelt. Für die Berechnung der Flugzeitdifferenz wäre daher eine Bestimmung der absoluten Flugzeit unnötig, für die Eichung des elektrischen Feldes ist sie dagegen unabdingbar.

Die Flugzeitverteilung weist drei Peaks auf. Die Mitte oder besser der Schwerpunkt der jeweiligen Verteilung ist gegeben durch die Flugzeit der Rückstoßionen, die keinen Anfangsimpuls besitzen:

$$t_{ges}(p_0=0) = 3 \sqrt{\frac{m}{q} \frac{x_B}{2|\vec{E}|}} \quad (4.11)$$

Da die D⁺-Ionen (m=2, q=1) die kürzeste Flugzeit besitzen, entspricht der zeitlich erste Peak (in Abbildung 4.2. links) ihrer Flugzeitverteilung. Seine Breite wird durch die durch die Impulse bestimmt, die die Fragmente aus der Dissoziation erhalten, seine Struktur wird durch die verschiedenen möglichen elektronischen Anregungen des Moleküls gegeben. Aufgrund der Berechnung der Flugzeitenunterschiede muss der zeitlich letzte Peak der Flugzeitverteilung der Molekülionen (m=4, q=1) entsprechen. Der Flugzeitverteilung (m=3, q=1) zwischen diesen Verteilungen lässt HD⁺-Ionen vermuten.

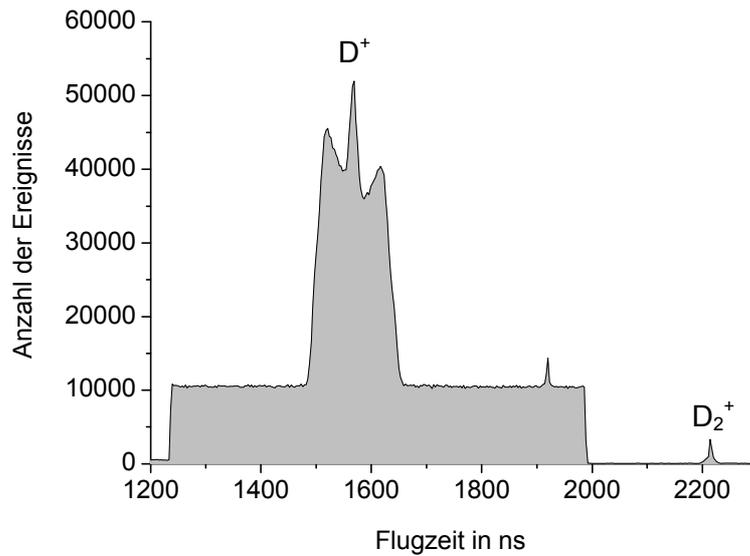


Abbildung 4.2. Flugzeitverteilung

Laut Gleichung (4.10) erhält man einen linearen Zusammenhang zwischen den Mittelpunkten der jeweiligen Flugzeitverteilungen und der Wurzel aus dem Masse-Ladungs-Verhältnis. Wenn man diese Größe gegen die gemessene Flugzeit aufträgt, entsteht eine Gerade, deren y-Achsenabschnitt den eigentlichen Nullpunkt der Flugzeit darstellt. Der absolute Nullpunkt ergibt sich damit zu -488 ns

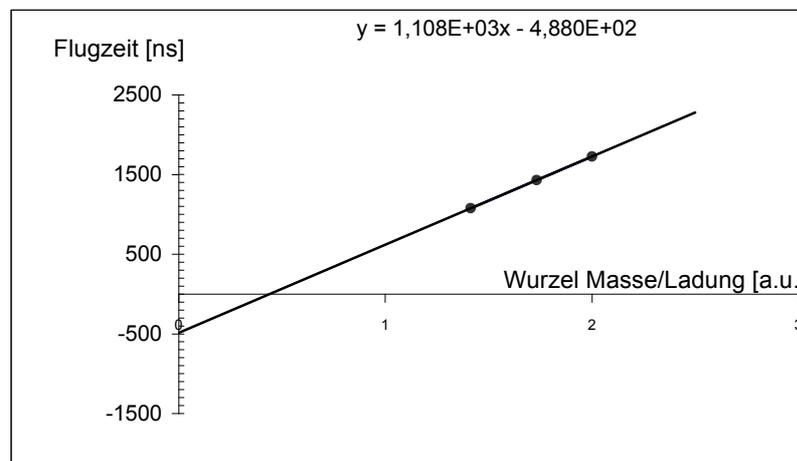


Abbildung 4.3. Nullpunktbestimmung der Flugzeitverteilung .

4.2. Bestimmung des elektrischen Feldes

Das elektrische Feld lässt sich aus den Schwerpunkten der Flugzeitverteilungen berechnen. Nach Gleichung (4.11) gilt für die Differenz zweier Nullpunkte der Verteilung:

$$t_1 - t_2 = 3 \sqrt{\frac{x_B}{2|\vec{E}|}} \left(\sqrt{\frac{m_1}{q_1}} - \sqrt{\frac{m_2}{q_2}} \right) \quad (4.12)$$

Daraus folgt für den Betrag des Elektrischen Feldes:

$$|\vec{E}| = \frac{3 x_B}{2(t_1 - t_2)^2} \left(\sqrt{\frac{m_1}{q_1}} - \sqrt{\frac{m_2}{q_2}} \right)^2 \quad (4.13)$$

Setzt man die Masse-zu-Ladungs-Verhältnisse mit den jeweiligen Flugzeitmittelpunkten der drei Ionen ein, so erhält man für den Betrag des elektrischen Feldes folgenden Mittelwert:

$$|\vec{E}| = 76,51 \frac{V}{cm} \quad (4.14)$$

4.3. Bestimmung der Impulse

Die Impulse des Projektils ergeben sich mit Hilfe eines Umrechnungsfaktors aus den Orten. Dieser Faktor wird in einfacher Weise aus der Gleichung für eine gleichförmige Bewegung gewonnen:

$$t = \frac{z}{v_z} = \frac{x}{v_x} \Rightarrow x = z \frac{p_x}{p_z} \quad (4.15)$$

Der Projektilimpuls in z-Richtung beträgt bei 300 keV Energie 6363 a.u., der Abstand zwischen Reaktionszone und Detektor liegt bei 3,5 m. Ein Impuls von 1 a.u. in x-Richtung entspricht einer Auslenkung des Projektils zu $x = 0,55$ mm und einem Umrechnungsfaktor von $c = 1,81$ a.u./mm.

Aufgrund der Rotationssymmetrie können die Impulse der einzelnen Rückstoßionen durch die Differenz zwischen ihrer Flugzeit und der Flugzeit mit dem Anfangsimpuls Null

berechnet werden. In den beiden Ortsrichtungen lassen sich die Impulse leichter bestimmen, weil in diesen Richtungen keine Kräfte wirken:

$$p_y = \frac{my}{t_{ges}} \qquad p_z = \frac{mz}{t_{ges}} \qquad (4.16)$$

Für den Impuls des Rückstoßions gilt also insgesamt:

$$\vec{p}_R = \begin{pmatrix} (t_{ges} - t(0)) |\vec{E}| q \\ my/t_{ges} \\ mz/t_{ges} \end{pmatrix}. \qquad (4.17)$$

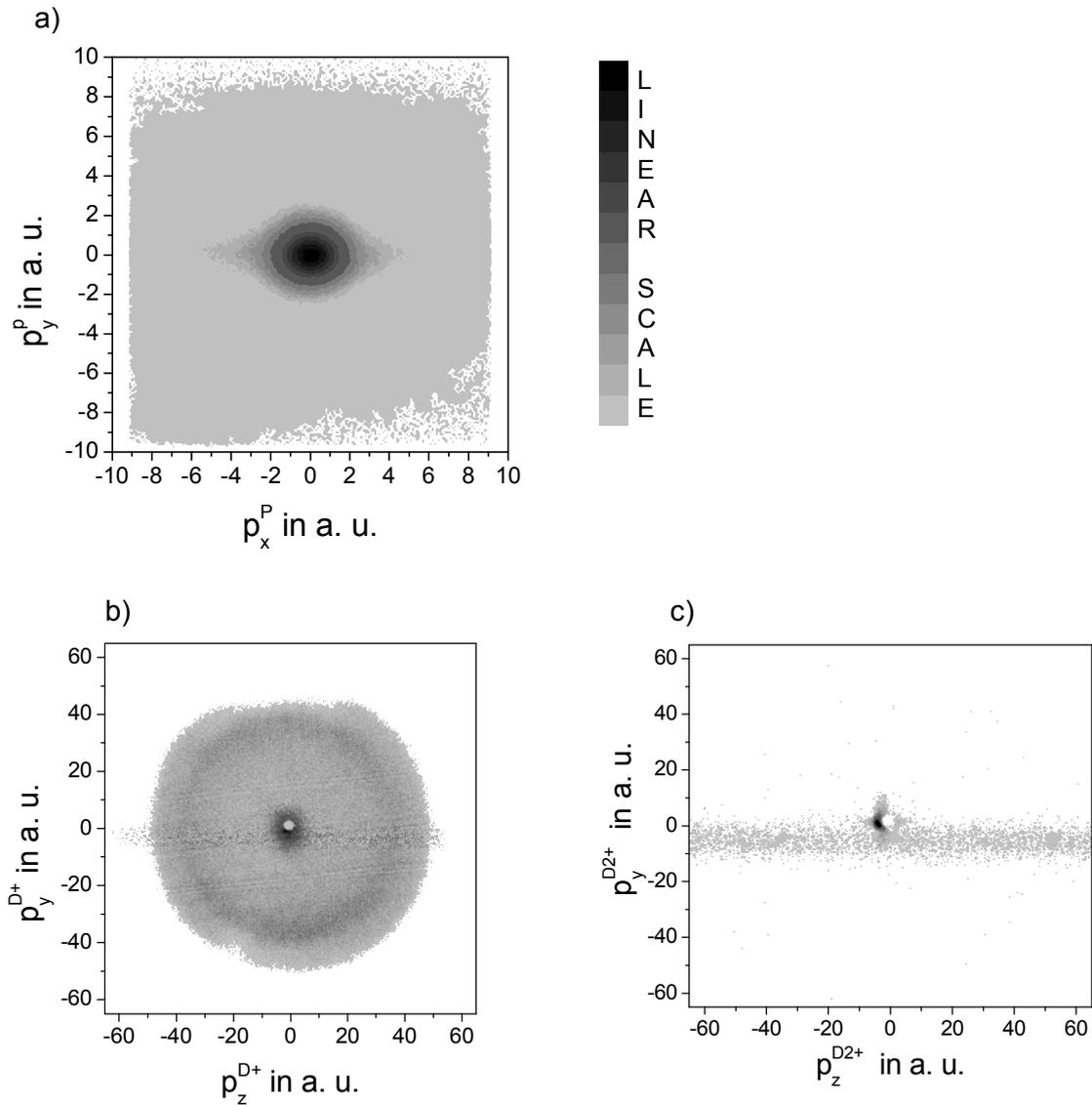


Abbildung 4.4. a) Impulse des Projektils: Durch die lineare Umrechnung ergeben sich die gleichen Strukturen, wie auf dem Ortsbild. b) Impulse des D^+ -Ions. Wie man sieht, liegen alle Impulse auf einer Kugel um die Reaktionszone. c) Impulse des D_2^+ -Ions

4.4. Das Molekülsystem

4.4.1. Bestimmung der Molekülachse

Man kann sich vorstellen, dass der Stoß mit einem Molekül wegen der weiteren Freiheitsgrade sehr viel komplizierter ist als bei einem Atom. Neben einer Änderung der

Translationsbewegung und des elektronischen Zustands kann das Molekül zusätzlich rotieren, bzw. die Atome des Moleküls gegeneinander schwingen. Wenn man aus den Impulsen des D^+ -Ions auf die Stellung Molekülachse schließen will, so erscheint es durchaus möglich, dass durch die Rotation des Moleküls die Fragmente noch einen zusätzlichen Impuls erhalten, der das Ergebnis verfälschen kann. Dabei ist es sicherlich von Bedeutung, wie sich das Größenverhältnis der Impulse aus Rotation bzw. Dissoziation gestaltet.

Der Anfangsimpuls des D^+ -Ions setzt sich wie folgt zusammen:

- *Impulse aus der Präparation*

Sie sollten in Strahlrichtung und Flugzeitrichtung nahezu Null betragen. In Jetrichtung besitzen die Moleküle einen definierten Impuls von 6 a.u., der sich aber durch die geeignete Wahl des Nullpunkts in dieser Richtung gänzlich vernachlässigen lässt.

- *Impulsübertrag aus dem Stoß*

Er besitzt einen maximalen Wert von etwa 11 a.u.

- *Impuls aus der Dissoziation*

Aus der Dissoziation eines Wasserstoffmoleküls erhalten die Fragmente Energien von 4-10 eV pro Fragment, aus der Coulombexplosion bei etwa 9-12 eV je nach Endzustand des Moleküls. Dies entspricht Impulsen von 30-45 a.u. bzw. 45-55 a.u.

Typische Rotationsenergien liegen nach Tabelle 2.1. haben eine Größenordnung von max. 40 meV. Betrachtet man das Problem in einer Ebene, so lässt sich der Fehler in der Bestimmung der Molekülachse mit einem Winkel beschreiben:

$$\tan \mathbf{a} = \frac{p_{rot}}{p_{diss}} = \sqrt{\frac{E_{rot}}{E_{diss}}} \quad (4.18)$$

Da die durch die Rotation übertragenen Impulse sehr viel kleiner sind, ist folgende Näherung gerechtfertigt:

$$\mathbf{a} \approx \tan \mathbf{a} = \sqrt{\frac{E_{rot}}{E_{diss}}} = 0,03^\circ \quad (4.19)$$

In einer Ebene kann die aus den Impulsen gewonnene Stellung der Molekülachse um diesen Winkel verdreht sein. In drei Dimensionen kommt für die Molekülachse noch ein weiterer Rotationsfreiheitsgrad hinzu, der zu einem zusätzlichen Fehler führt. Dennoch sind beide Winkel so klein, dass sie vernachlässigt werden können.

4.4.2. Kugelkoordinaten

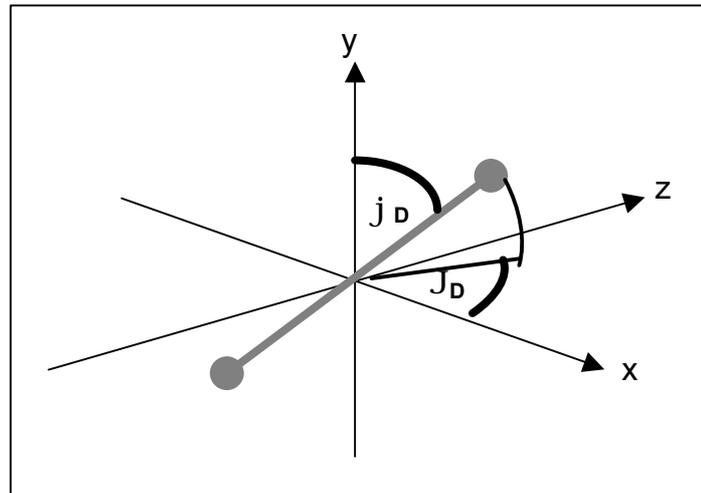


Abbildung 4.5. Darstellung der Stellung des Moleküls in Abhängigkeit der Winkel j und J .

Der Winkel φ stellt dabei den Polarwinkel in der x-y-Ebene dar. ϑ ist der Azimutalwinkel und wird definiert als der Winkel zwischen der x-Achse und der Projektion des Gesamtimpulses in die x-z-Ebene. Aus den bereits berechneten Impulsen des Rückstoßions lassen sich die Winkel wie folgt ermitteln:

$$\tan \mathbf{j}_D = \frac{p_{Dx}}{p_{Dy}} \quad (4.20)$$

$$\tan \mathbf{J}_D = \frac{p_{Dz}}{p_{Dxy}} \quad \text{mit} \quad p_{Rxy} = \sqrt{p_{Rx}^2 + p_{Ry}^2} \quad (4.21)$$

Mit einer geeigneten Bedingung auf den Winkel φ kann die Molekülachse relativ zur Strahlachse festgehalten werden.

4.4.3. Darstellung im Molekülsystem

Das Molekülsystem zeichnet sich dadurch aus, dass die Impulse des Projektils relativ zur Stellung der Molekülachse bestimmt werden. Zu diesem Zweck definiert man für die Projektilimpulse analog zum Rückstoßion einen Polarwinkel in der x-y-Ebene:

$$\tan \mathbf{j}_p = \frac{p_{px}}{p_{py}} \quad (4.22)$$

Der Differenzwinkel zwischen den beiden Polarwinkeln von Projektil und D^+ -Ion ergibt sich zu:

$$\Delta \mathbf{j} = \mathbf{j}_p - \mathbf{j}_D$$

Um die Projektilimpulse im Molekülsystem darzustellen, berechnet man den Betrag des Projektilimpulses p_{pxy} in der x-y-Ebene. Die Projektilimpulse im Molekülsystem berechnen sich dann wie folgt:

$$p_{px}^M = p_{pxy} \cos(\Delta \mathbf{j}) \quad (4.23)$$

$$p_{py}^M = p_{pxy} \sin(\Delta \mathbf{j}), \quad (4.24)$$

wobei p_{px}^M bzw. p_{py}^M die Projektilimpulse im Schwerpunktsystem darstellen.

5. Ergebnisse und Diskussion

5.1. Auflösung

Die Beobachtung von Interferenzstrukturen hängt entscheidend von der Impulsauflösung des Projektils ab. In diesem Experiment gibt es nur die Möglichkeit, die Gesamtauflösung, d.h. die Auflösung, die sich aus den Einzelaufösungen von Projektil und Rückstoßion zusammensetzt, experimentell zu bestimmen: Wenn man von dem kleinen Teil des Impulses absieht, der zu einer inneren Anregung von Projektil oder Target führt, ist der Stoß zwischen einem D_2^+ -Ion und dem Projektil nahezu elastisch. Stellt man deshalb die Impulse der Projektile in Abhängigkeit der Impulse der D_2^+ -Ionen für eine Richtung dar, so muss man gemäß der Impulserhaltung im Idealfall eine Gerade erhalten. In der Realität besitzt diese Gerade eine endliche Breite, die die Impulsauflösung in dieser Richtung wiedergibt. Sie entspricht jedoch der Summe der Einzelaufösungen beider Stoßpartner. Es stellt sich daher das Problem, dass sich aus den experimentellen Daten nur eine obere Grenze für die Gesamtauflösung festsetzen lässt, aus der man die Einzelaufösungen, insbesondere die des Projektils, abschätzen muss. Im Folgenden wird kurz auf die verschiedenen Faktoren eingegangen, die die Impulsauflösung für Projektil und Target in den verschiedenen Raumrichtungen beeinflussen, und eine Abschätzung der Einzelaufösungen dargestellt.

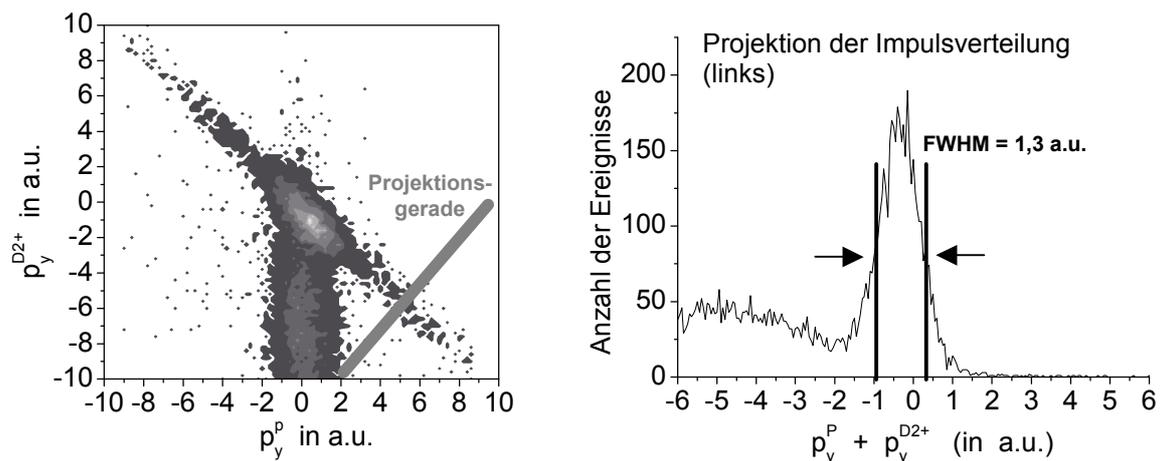


Abbildung 5.1. rechts: Darstellung des Projektilimpulses in y -Richtung gegen den D_2^+ -Ionen-Impuls in y -Richtung. Die Struktur unterhalb der Schrägen ergibt sich durch die Restgasionisation und ist für die Bestimmung der Auflösung nicht von Bedeutung. Links: Projektion der Verteilung. Ihre Breite gibt die Impulsauflösung in dieser Richtung wieder.

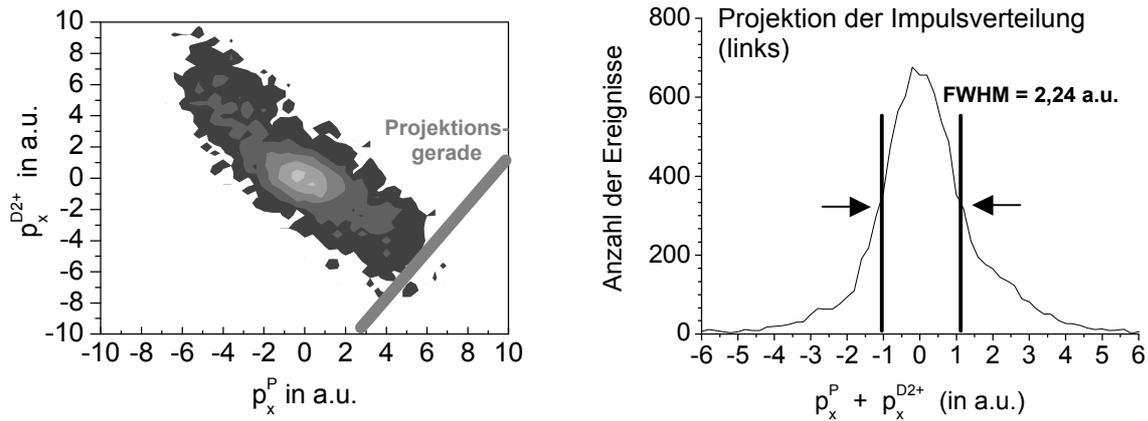


Abbildung 5.2. rechts: Darstellung des Projektilimpulses in x -Richtung gegen den D_2^+ -Ionen-Impuls in x -Richtung. Die Verteilung ist deutlich breiter als die Verteilung in y -Richtung. Links: Projektion der Verteilung.

Die Impulsberechnung des Projektils erfolgt, wie in Abschnitt 4.2. gezeigt, mit einfachen Umrechnungsfaktoren aus dem jeweiligen Ort auf dem Detektor. Die Impulsauflösung wird sich daher direkt aus der Ortsauflösung ergeben. Diese ist wiederum bestimmt durch die Anodenauflösung und die Auflösung, die durch die Aufweitung des Projektilstrahls definiert wird. Da durch die Anode selbst Orte mit einer sehr hohen Genauigkeit gemessen werden können, ist davon auszugehen, dass TDC bzw. ADC durch ihre Kanalbreite die Anodenauflösung beschränken. Mit dem vom Hersteller gegebenen Umrechnungsfaktor [Roe03] von 1,42 ns/mm lassen sich aus der Breite der jeweiligen Kanäle die Ortsauflösungen berechnen. Für den ADC (Kanalbreite: 50 ps) erhält man einen Wert von 0,035 mm, für den TDC (Kanalbreite: 500 ps) von 0,35 mm. Die Projektillinse fokussiert den Strahl auf den Detektor. Idealerweise sollte die Größe der Abbildung der ersten Kollimatoröffnung gleichen. Nimmt man für die Öffnung einen Wert von 0,3 mm an, so ergibt sich für die Ortsauflösung des Projektils:

$$\text{mit TDC: } \Delta x_{\text{ges}}^P = \sqrt{\Delta x_{\text{Anode}}^2 + \Delta x_{\text{Strahl}}^2} = 0,46 \text{ mm} \quad (5.10)$$

$$\text{mit ADC: } \Delta x_{\text{ges}}^P = \sqrt{\Delta x_{\text{Anode}}^2 + \Delta x_{\text{Strahl}}^2} = 0,30 \text{ mm}$$

Das Ergebnis für die Impulsaufösungen lautet damit:

$$\text{mit TDC: } \Delta p_x^P = 1,81 \text{ a.u./mm} \quad \Delta x_{\text{ges}}^P = 0,83 \text{ a.u.} \quad (5.11)$$

$$\text{mit ADC: } \Delta p_x^P = 1,81 \text{ a.u./mm} \quad \Delta x_{\text{ges}}^P = 0,54 \text{ a.u.}$$

Bei gleicher Kollimatoröffnung erhält man aufgrund der Rotationssymmetrie für die Impulsauflösung in y-Richtung den gleichen Wert.

Für das D_2^+ -Ion werden die Impulse in x- und y-Richtung auf verschiedene Weise aus der Auflösung in Flugzeitrichtung und der Ortsauflösung bestimmt. Die Ortsauflösung des Rückstoßions berechnet sich aus der Anodenauflösung, aus der Auflösung, die durch das Gitter vor dem Detektor beschränkt wird, und der Auflösung, die durch die Ausdehnung der Reaktionszone gegeben ist. Die Anodenauflösung ergibt sich aus der Kanalbreite des TDCs und dem Umrechnungsfaktor von 2,41 ns/mm, wodurch man einen Wert von 0,2 mm erhält. Die durch das Gitter beschränkte Auflösung entspricht etwa seiner Maschenweite, d.h. 0,25 mm. Wie in Abschnitt 3.1.1. erläutert wird die Ausdehnung der Reaktionszone in x- und y-Richtung nur durch die Aufweitung des Projektilstrahls begrenzt und beträgt daher 1 mm. Mit diesen Werten lässt sich die Ortsauflösung des D_2^+ -Ions bestimmen:

$$\Delta y_{ges}^R = \sqrt{\Delta y_{Anode}^2 + \Delta y_{Gitter}^2 + \Delta y_{Target}^2} = 1,04 \text{ mm} \quad (5.12)$$

und damit auch der Impuls:

$$\Delta p_y^R = 1,51 \text{ a.u./mm} \quad \Delta y_{ges}^R = 1,57 \text{ a.u.} \quad (5.13)$$

Die Impulsauflösung in x-Richtung wird aus der Auflösung der Flugzeit, d.h. der Kanalbreite des TDCs, und der Zeitdifferenz zwischen zwei D_2^+ -Ionen, die am Anfang bzw. Ende der Reaktionszone zur gleichen Zeit und mit gleichem Impuls starten (Ausdehnung der Reaktionszone), bestimmt. Für letztere beträgt der Wert etwa 5 ns. Man muss bedenken, dass die Kanalbreite des TDC mehrmals in der gesamte Auflösung berücksichtigt werden muss, da erstens die Flugzeiten relativ zum Projektil gemessen werden und zweitens der Impuls durch die Differenz zwischen dem Schwerpunkt der Flugzeitverteilung und der jeweiligen Flugzeit berechnet wird. Man erhält daher eine Rückstoßionen-Impulsauflösung in x-Richtung von:

$$\Delta p_x^R = |\vec{E}| q \sqrt{4 \Delta t_{TDC}^2 + \Delta t_{Target}^2} = 2,55 \text{ a.u.} \quad (5.14)$$

Für die Gesamtimpulsaufösungen von Ion und Projektil gilt dann:

$$\begin{aligned} \Delta p_x &= 2,62 \text{ a.u.} \\ \Delta p_y &= 1,67 \text{ a.u.} \end{aligned} \quad (5.15)$$

, wobei hier die Impulsauflösung des Projektils angenommen wurde, die sich durch die Nutzung des ADCs ergibt. Man erkennt hier klar, dass die Gesamtimpulsauflösung von Projektil und Rückstoßion in x-Richtung schlechter ist als in y-Richtung. Die Ursache hierfür liegt im hohen elektrischen Feld des Spektrometers, das die Auflösung des Rückstoßions verschlechtert. Die berechnete Projektilimpulsauflösung entspricht einer Streuwinkelauflösung von etwa 0,1 mrad. Dennoch sei nochmals darauf hingewiesen, dass es sich hierbei nur um eine Abschätzung handelt. Beispielsweise ist es möglich, dass die Kollimatoröffnung etwas größer ist als angenommen, wodurch die Impulsauflösung des Projektils auf jeden Fall verschlechtert würde. Allerdings sollte sie insgesamt definitiv nicht schlechter als 0,2 mrad sein.

5.2. Untergrund

Wenn ein Protonenstrahl mit einem Wasserstoffmolekül-Gasstrahl gekreuzt wird, sind im Allgemeinen verschiedene Reaktionen möglich:

- | | | |
|----|--|---|
| a) | Einfachionisation des Moleküls | $p + H_2 \rightarrow p + H_2^+ + e^-$ |
| | Doppelionisation des Moleküls | $p + H_2 \rightarrow p + H^+ + H^+ + 2e^-$ |
| b) | Elektroneneinfang | $p + H_2 \rightarrow H^0 + H_2^+$ |
| | Transferionisation | $p + H_2 \rightarrow H^0 + H^+ + H^+ + e^-$ |
| c) | Reaktionen mit anderen Gasen, besonders der Elektroneneinfang aus Wasser | |

Die Reaktionen haben je nach Energie des Projektils verschieden große Wirkungsquerschnitte, dennoch besteht immer die Möglichkeit, dass alle Reaktionen ablaufen. Daher muss zur Vermessung eines bestimmten Prozesses durch Aufbau und Verschaltung der Datenaufnahme bereits vorab eine Sortierung gewährleistet werden, um die gewünschten Ereignisse herauszufiltern. In dieser Messung erreichte man dies durch zwei Dinge: Zum einen wurden die geladenen Projektile nach der Reaktion von den neutralen getrennt. Zum anderen diente die Koinzidenzschtaltung zwischen Projektil- und Rückstoßionenflugzeit dazu, die gewünschten Ereignisse auszuwählen. Für die Einfach- und Doppelionisation ist es bereits etwas schwieriger, eine geeignete Bedingung zu finden, da das Projektil keine Umladung erfährt und zudem noch Elektronen während der Reaktion entstehen. Hier würde eine Koinzidenz zwischen Elektron-, Projektil- und Rückstoßionenflugzeit eine Auswahl der Ereignisse ermöglichen. Der Elektroneneinfang

aus Wasser im Restgas lässt sich vollständig unterdrücken, indem statt eines H_2 -Jets ein D_2 -Jet verwendet wird.

Durch das Setzen einer geeigneten Bedingung lassen sich im Allgemeinen nicht nur echte Ereignisse herausfiltern. Vielmehr sind auch statistische Koinzidenzen möglich, in denen einem Projektil ein Rückstoßion zugeordnet wird, das überall in der Kammer entstanden sein kann und nur zufällig im richtigen Zeitintervall nach dem Auftreffen des Projektils detektiert wird. Dabei kann es sich um Ionen sowohl aus Elektroneneinfangprozessen als auch aus Einfach- bzw. Doppelionisationen handeln. Im Gegensatz zu echten Ereignissen, in denen es eine relativ konstante Flugzeitdifferenz zwischen Projektil und Rückstoßion existiert, sind jedoch die Flugzeitdifferenzen aus zufälligen Koinzidenzen über das ganze Flugzeitfenster statistisch verteilt. Man spricht daher auch vom statistischen Untergrund.

Wie man in Abbildung 5.3. erkennen kann, ist dieser Untergrund in der vorgenommenen Messung sehr hoch. Er entspricht etwa 30 % der gesamten D^+ -Flugzeitverteilung.

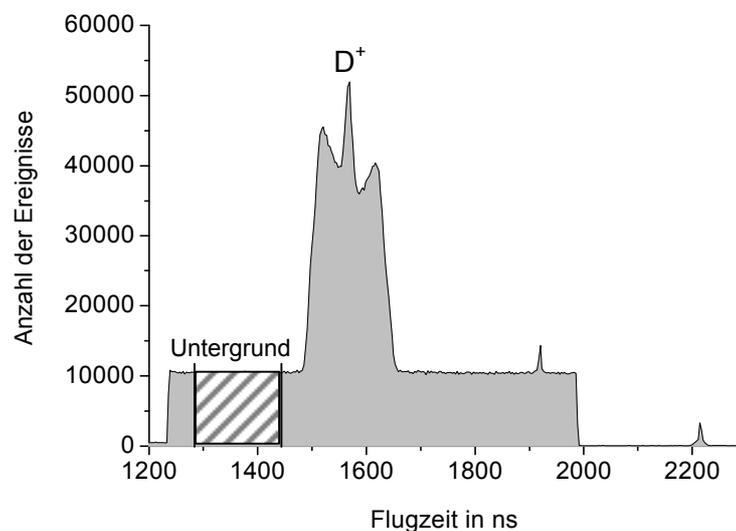


Abbildung 5.3. Flugzeitverteilung der Rückstoßionen. Man erkennt den kontinuierlichen statistischen Untergrund. Der schraffierte Bereich zeigt eine Flugzeitbedingung auf den statistischen Untergrund

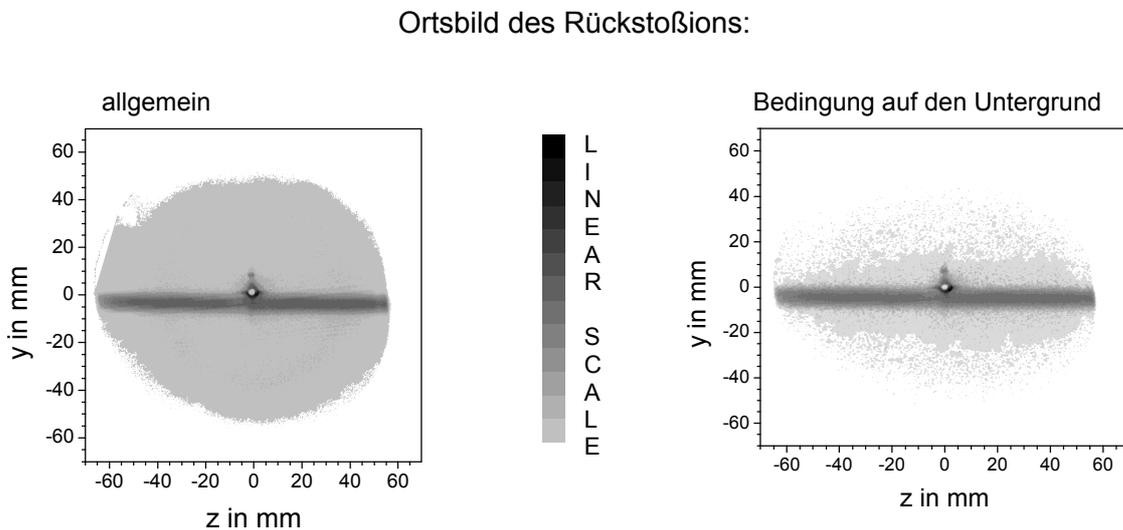
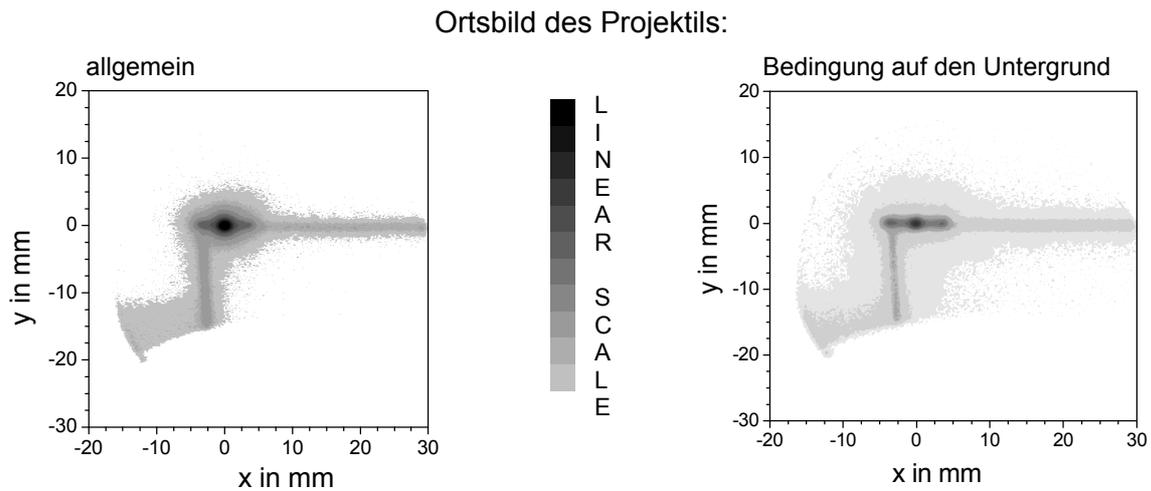


Abbildung 5.4. Ortsverteilung von Projektil und Rückstoßion

Im Ortsbild der D^+ -Ionen macht sich dieser statistische Untergrund besonders durch einen breiten Streifen bemerkbar. Die Moleküle aus dem warmen Restgas können durch Stöße mit Projektilen leicht ionisiert werden. Aus diesem Grund kommt es in der Targetkammer zu einer erhöhten Ionisation der Moleküle entlang des Projektilstrahls. Der Streifen stellt daher eine Abbildung des Projektilstrahls dar. Seine Breite wird dabei durch die Temperatur des Restgases bestimmt.

Durch die Stöße mit den Molekülen aus dem Restgas erhöht sich auch die Wahrscheinlichkeit, dass die Projektile eine Umladung erfahren. Das wird im Projektilort durch eine verstärkte horizontale Ausschmierung um den Nullpunkt deutlich.

In der Datenauswertung lassen sich alle Spektren mit einer Bedingung auf den Untergrund (im Flugzeitspektrum) darstellen. Indem man die Differenz zwischen dem jeweiligen Spektrum mit Flugzeitbedingung auf die D^+ -Ionen und dem Spektrum mit Flugzeitbedingung auf den Untergrund bildet, lässt sich der Untergrund fast vollständig subtrahieren.

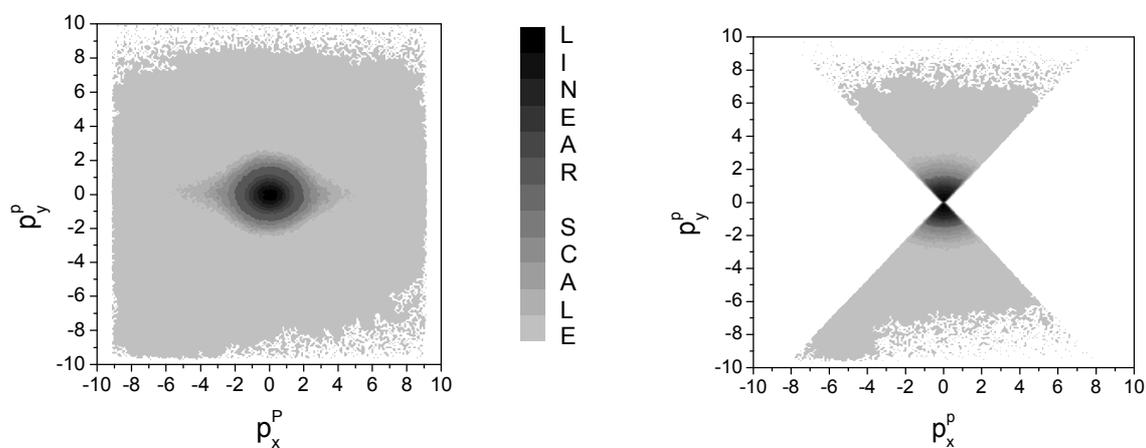


Abbildung 5.5. links: Impulsverteilung des Projektils in atomaren Einheiten ohne Untergrund. Man erkennt deutlich nach wie vor eine längliche Verteilung in horizontaler Richtung. Bei einer Darstellung der Impulse ins Molekülsystem werden die Impulse um verschiedenen Winkel gedreht: Die Ausschmierung würde daher zu einer Verschlechterung der Auflösung im Molekülsystem führen. Rechts: Zusätzliche Bedingung in der Impulsverteilung des Projektils.

In der Orts- bzw. Impulsverteilung des Projektils kann durch den Untergrundabzug die Ausschmierung stark reduziert, aber nicht ganz unterdrückt werden. Dies lässt vermuten, dass es sich hierbei um Projektile aus echten Ereignissen handelt, die vom starken elektrischen Feld des Spektrometers im geladenen Zustand so stark abgelenkt werden, dass die Verteilung sich in dieser Richtung verbreitert. Da jedoch zur Darstellung im Molekülsystem die Impulse gedreht werden müssen, würde diese Verbreiterung zu einer verschlechterten Streuwinkelauflösung in demselben führen. Aus diesem Grund wird für eine Darstellung im Molekülsystem noch eine zusätzliche Bedingung auf bestimmte Winkel in der Impulsverteilung des Projektils gesetzt.

5.3. Ergebnisse

Die Abbildungen 5.6. und 5.7. zeigen die Projekttilimpulse im Molekülsystem, für die Fälle dass die Molekülachse senkrecht ($0^\circ < \vartheta < 10^\circ$) bzw. parallel ($80^\circ < \vartheta < 90^\circ$) zur Projekttilstrahlrichtung steht. Zudem wurde eine zusätzliche Bedingung auf die kinetische Energie der Fragmente gesetzt. Links sind die Spektren dargestellt, in denen die Fragmente eine kinetische Energie zwischen 4 -7 eV besitzen, bei den Spektren rechts liegt die Energie der Fragmente zwischen 7 eV und 10 eV. Die Winkelbezeichnung bezieht sich auf Abbildung 4.5. ϑ stellt den Drehwinkel des Moleküls relativ zur x-Avjs dar.

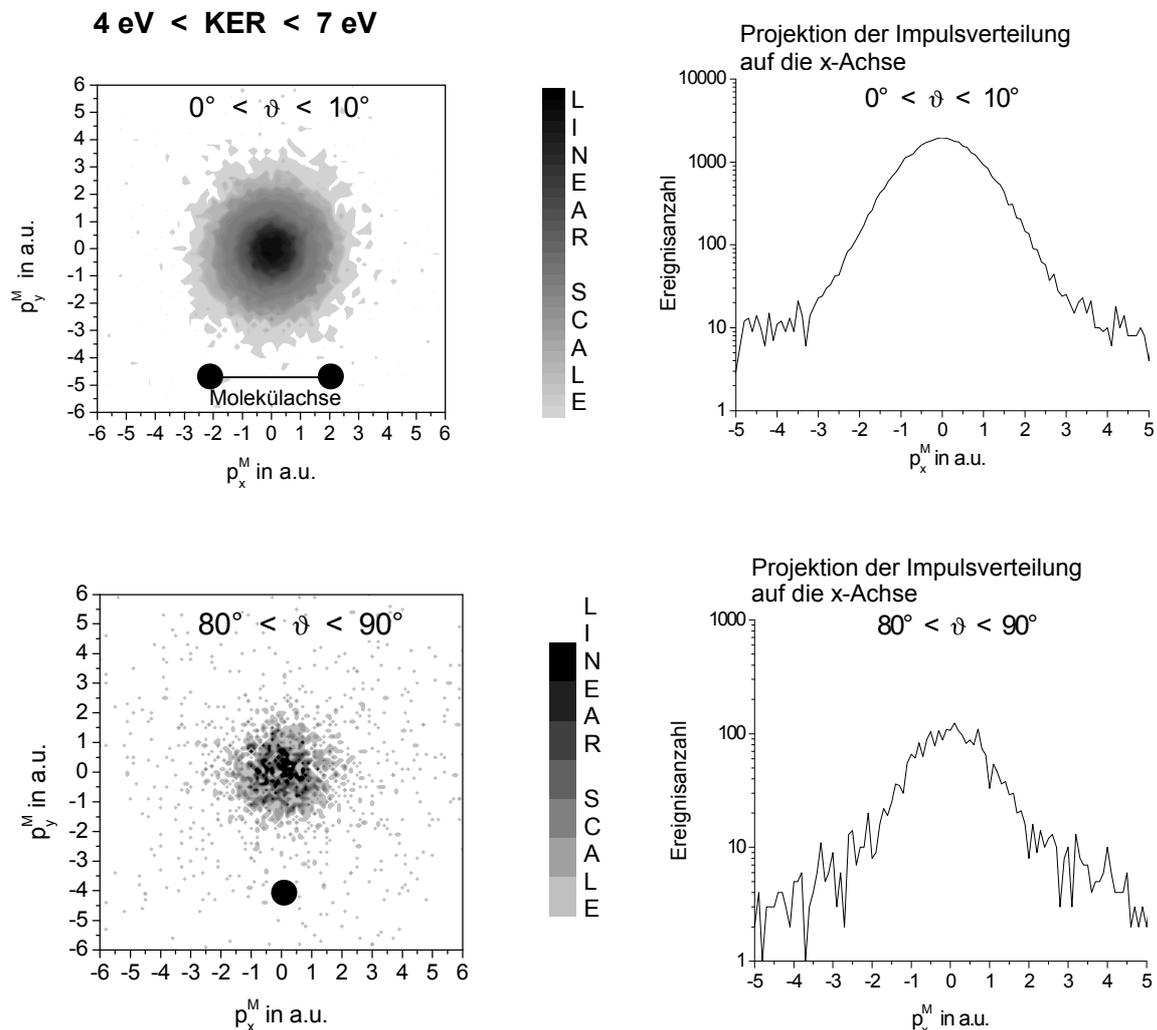


Abbildung 5.6. rechts: Darstellung der Impulse im Molekülsystem für die Bedingung für die Bedingungen, dass die Molekülachse senkrecht zum Strahl steht (oben) und dass sie parallel zum Strahl steht (unten) Die kinetische Energie des gemessenen Fragments (KER) liegt in beiden Fällen zwischen 4 eV und 7 eV. Die Darstellung ist linear. links: Projektionen der jeweiligen Verteilung auf die x-Achse. Die Darstellung ist logarithmisch.

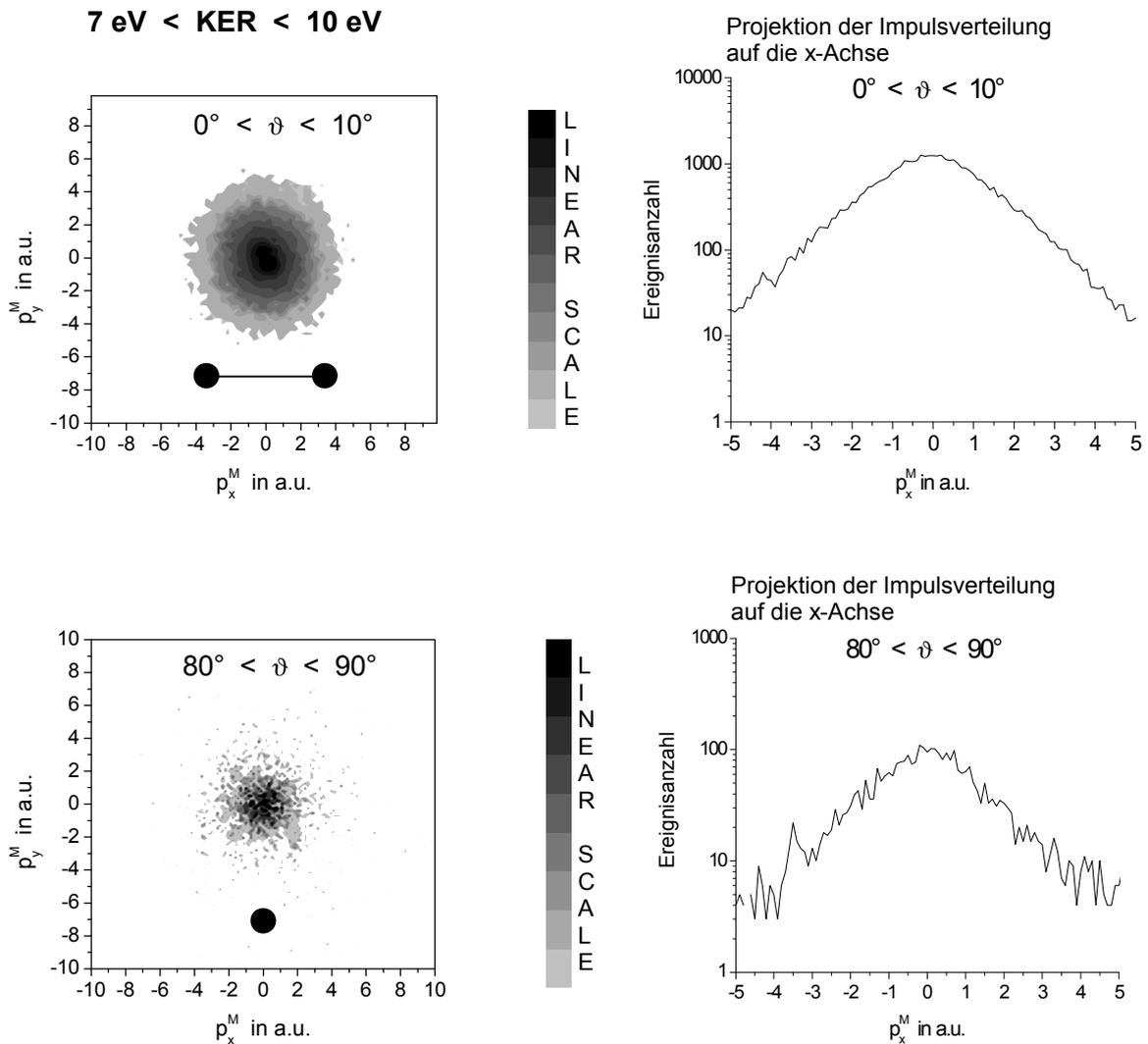


Abbildung 5.7. rechts: Darstellung der Impulse im Molekülsystem für die Bedingungen, dass die Molekülachse senkrecht zum Strahl steht (oben) und dass sie parallel zum Strahl steht (unten). Die kinetische Energie des gemessenen Fragments (KER) liegt hier in beiden Fällen zwischen 7 eV und 10 eV. Die Darstellung ist auch hier linear. links: Projektionen der jeweiligen Verteilung auf die x-Achse. Die Darstellung ist logarithmisch.

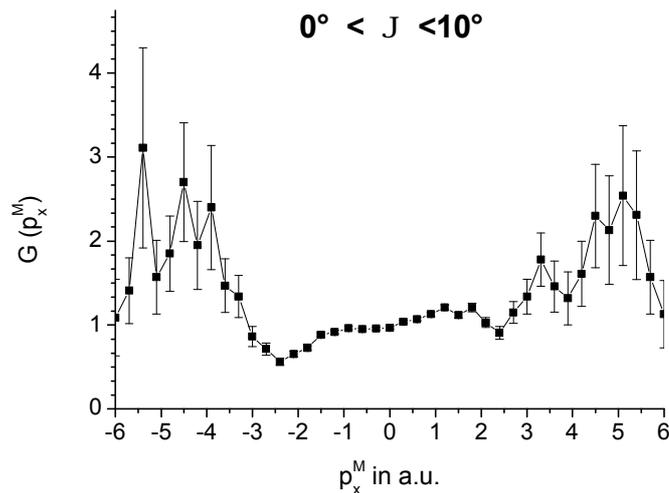
Nach Aussage der Theorie sollten eventuelle Interferenzen in der jeweiligen Projektion auf die x-Achse zu sehen sein. Man beobachtet jedoch zwischen allen vier Spektren keinen nennenswerten Unterschied. Anzeichen von Maxima oder Minima sind auch in logarithmischer Darstellung (Projektionen auf die x-Achse) nicht erkennbar. Dennoch lassen sich Interferenzstrukturen nicht ausschließen. In der theoretischen Berechnung der Wirkungsquerschnitte nach Deb et al. zeigt sich, dass die Minima eine Breite kleiner als

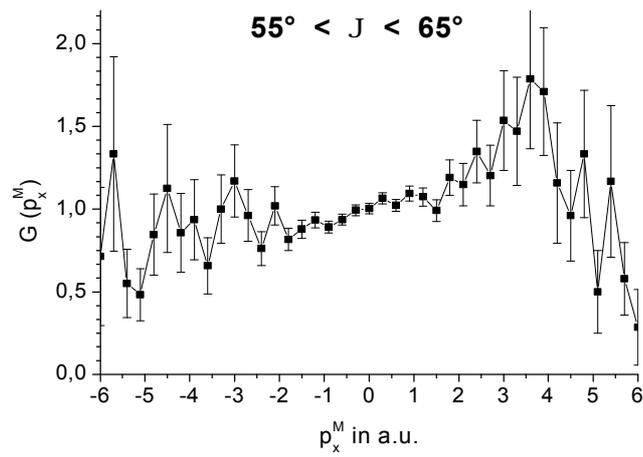
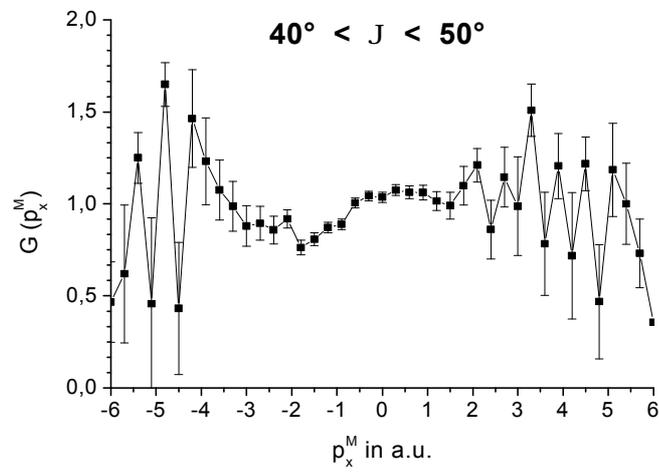
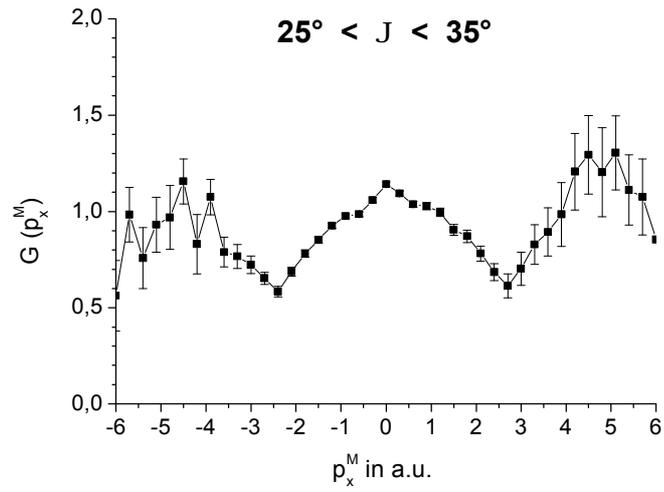
0,2 mrad haben können. Zwar wurde in dieser Messung eine Auflösung kleiner als 0,2 mrad erreicht, doch kann man ihren Wert nicht genau angeben. Da also die Breite eventueller Minima und die Auflösung etwa den gleichen Wert besitzen sollten, können keine klaren Aussagen über Existenz bzw. Nicht-Existenz von Interferenzen getroffen werden.

Es gibt allerdings noch eine weitere Methode, mögliche Interferenzen sichtbar zu machen: Projiziert man die Projektilimpulsverteilung im Molekülsystem auf die x-Achse, so sollte die Projektion einem Produkt aus einer kontinuierlichen Verteilung, die sich aus dem Elektroneneinfangprozess ergibt, und einem Term $(1+\cos\vartheta)$, der zu den Oszillationen führt, entsprechen. Da die Ablenkung des Projektils durch den Elektroneneinfangprozess rotationssymmetrisch ist, die Struktur der Interferenzen es aber nicht sein sollte, ergibt die Projektion der Impulsverteilung auf die y-Achse nur eine kontinuierliche Verteilung durch die Ablenkung des Elektroneneinfangs. Dividiert man daher die jeweiligen Projektionen durcheinander, so sollte man eine cos-Verteilung erhalten. Es gilt:

$$G(p_x^M) = \frac{g(p_x^M)}{g(p_y^M)} \approx 1 + \cos\left(\frac{p_x^M}{\hbar} \cos J r_m\right), \quad (5.16)$$

wobei p_x^M , p_y^M die Projektilimpulse im Molekülsystem sind und $g(p_x^M)$ bzw. $g(p_y^M)$ die Projektionen der Projektilimpulse auf die x- bzw. y-Achse darstellen. ϑ ist der Zwischenwinkel zwischen Molekülachse und x-Achse, also der Drehwinkel des Moleküls.





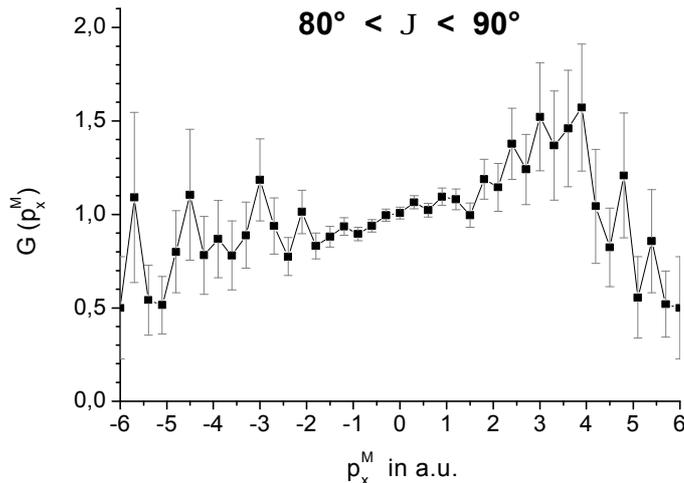


Abbildung 5.8. Darstellung der Funktion $G(p_x^M)$ in Abhängigkeit des Projektilimpulses für verschiedene Winkel zwischen Molekül- und Strahlachse und unter der Bedingung, dass die kinetische Energie der Fragmente zwischen 4 eV und 7 eV liegt.

Abbildung 5.8. zeigt die Funktion $G(p_x^M)$ für verschiedene Stellungen der Molekülachse und der Bedingung, dass die kinetische Energie der Fragmente zwischen 4 eV und 7 eV liegt. Die Fehler wurden mit Gaußscher Fehlerfortpflanzung berechnet, wobei für die einzelnen Impulse die Wurzel aus der Ereignisanzahl als Fehler angenommen wurde. Zwischen den Spektren sind unterschiedliche Strukturen zu erkennen. Besonders deutlich werden diese Unterschiede, wenn man die Spektren miteinander vergleicht, in denen die Molekülachse senkrecht bzw. parallel zur Strahlrichtung steht.

Es ist möglich, dass es sich hierbei um Interferenzen handelt. Berechnet man mit Gleichung (2.47) die Minima, so ergibt sich für die Stellung der Molekülachse senkrecht zur Strahlachse bei einem Molekülabstand von $0,74 \times 10^{-10}$ m der Impuls $-2,25$ a. u. bzw. $2,25$ a. u., mit einem Zwischenwinkel von 30° ergeben sich für die Abstände der Minima 5 a.u. Beide Ergebnisse stimmen mit den experimentellen Daten überein. Es fällt jedoch auf, dass sich das Maximum bei einem Zwischenwinkel von 30° nahezu in der Mitte befindet. Es scheint nicht, wie in theoretischen Berechnungen vorausgesagt, zu einer Verschiebung der Maxima bzw. Minima zu kommen.

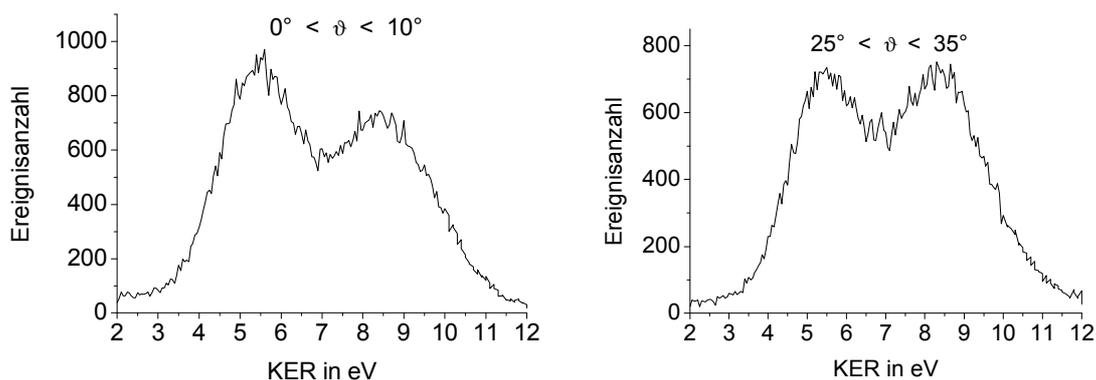
Bei einem Winkel zwischen Molekül- und Strahlachse von 45° erkennt man bereits gegenüber den vorigen Spektren eine veränderte Struktur. Man liest aus dem Spektrum für die Minima die Werte $-1,8$ a. u. und $1,6$ a. u. ab. Dies widerspricht dem theoretischen

Ansatz, in dem analog zum Doppelspalt der Abstand der Minima bzw. Maxima gemäß der Gleichung

$$\Delta j_{\min} = \frac{l}{2 r_m \cos J} \quad (5.17)$$

mit wachsendem Zwischenwinkel ebenfalls größer werden sollte. Zudem muss man bedenken, dass eine Bedingung auf eine kinetische Energie der Fragmente von 4 eV bis 7 eV zwei Übergänge mit einschließt, nämlich sowohl den Übergang in den $2p\sigma^g$ - als auch in den $2p\pi^u$ -Zustand. Schenkt man den theoretischen Berechnungen [Deb88] glauben, so sollten die Interferenzstrukturen des geraden bzw. des ungeraden Zustandes sich so addieren, dass man eine kontinuierliche Verteilung erhält, vorausgesetzt natürlich dass beide Übergänge gleich wahrscheinlich sind. Die Energiedifferenz zwischen den Potenzialkurven beider Zustände ist gering, d. h. dass hieraus nicht abzuleiten ist, dass ein bestimmter Übergang bevorzugt wird. Die Anzahl der Elektronen, mit denen ein π -Orbital besetzt werden kann, liegt bei vier, für ein σ -Orbital bei zwei. Dies würde darauf hindeuten, dass ein Übergang in den $2p\pi^u$ bevorzugt stattfindet. Wenn es sich also um Interferenz-Strukturen handelt, warum sieht man nur Strukturen, die einem geraden Zustand entsprechen, und warum ändert sich der Abstand der Minima gegenläufig?

Es lässt sich aus der Verteilung der kinetischen Energie der Fragmente erkennen, dass mit wachsendem Zwischenwinkel das Maximum bei etwa 5,5 eV relativ zum anderen Maximum bei 9 eV schrumpft.



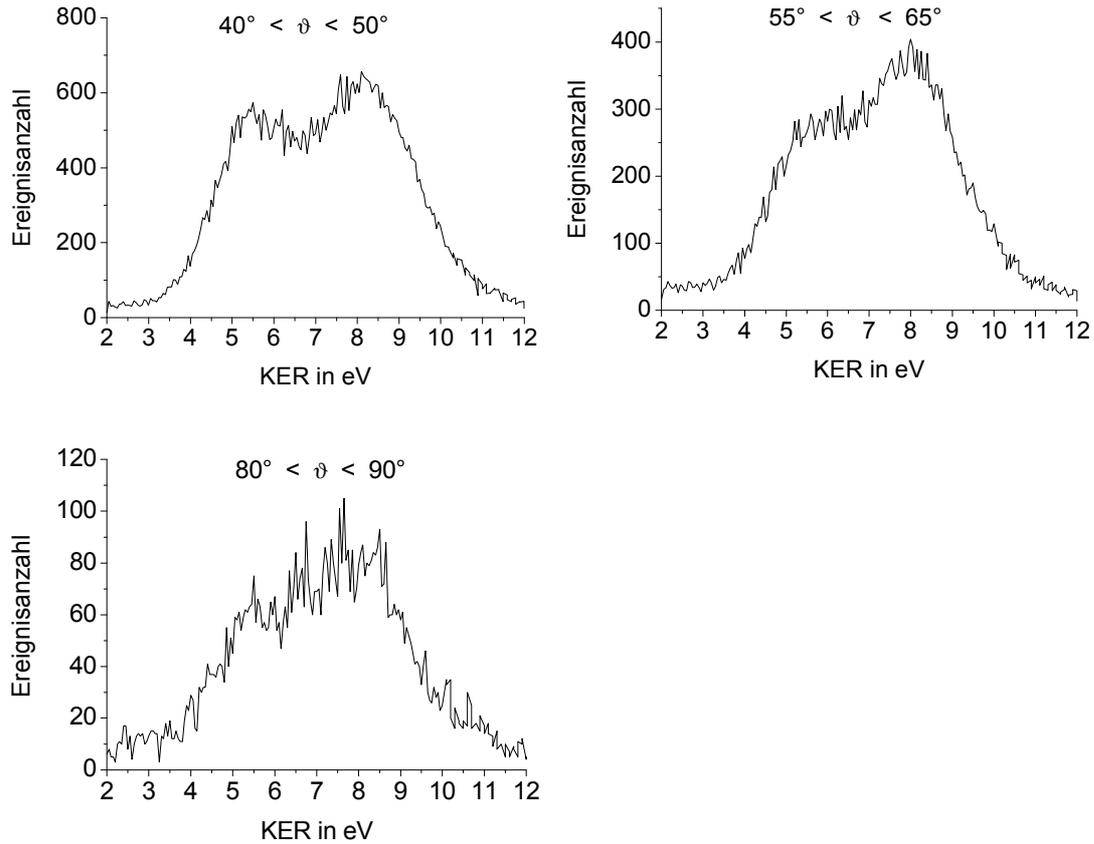
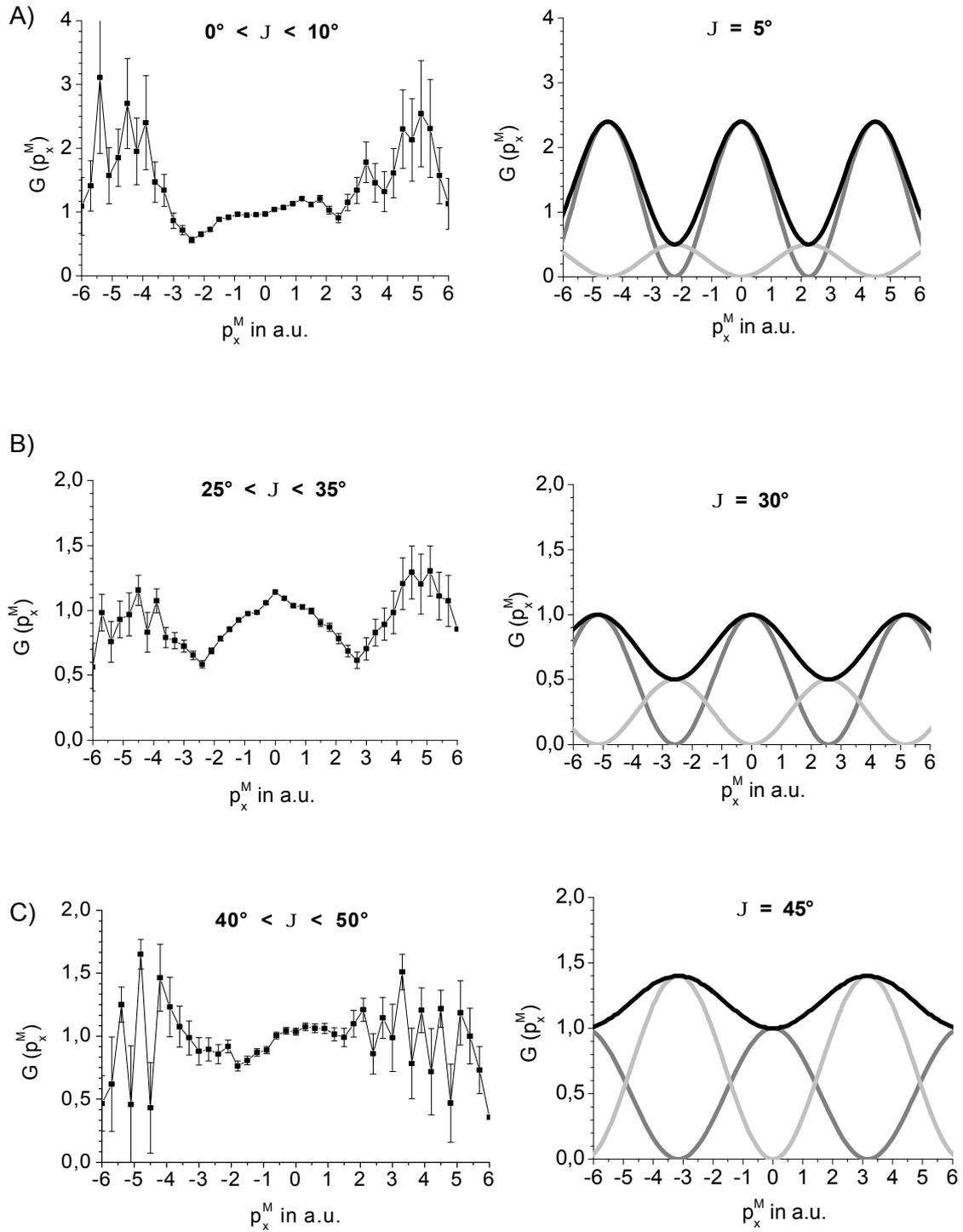


Abbildung 5.9. Kinetische Energie der Fragmente (KER) für verschiedene Molekülstellungen relativ zur Strahlachse

Der Übergang des Elektrons zeigt somit eine Abhängigkeit von der Stellung der Molekülachse. Vielleicht ist der Abfall des ersten Maximums mit größer werdendem Winkel damit zu erklären, dass der Übergang in den $2p\sigma^g$ -Zustand bei einer Stellung der Molekülachse senkrecht zur Strahlrichtung dominanter als der Übergang in den ungeraden Zustand ist und er mit anwachsendem Winkel abnimmt. In diesem Fall lassen sich die Strukturen in der Impulsverteilung des Projektils (im Molekülsystem) wie folgt interpretieren:



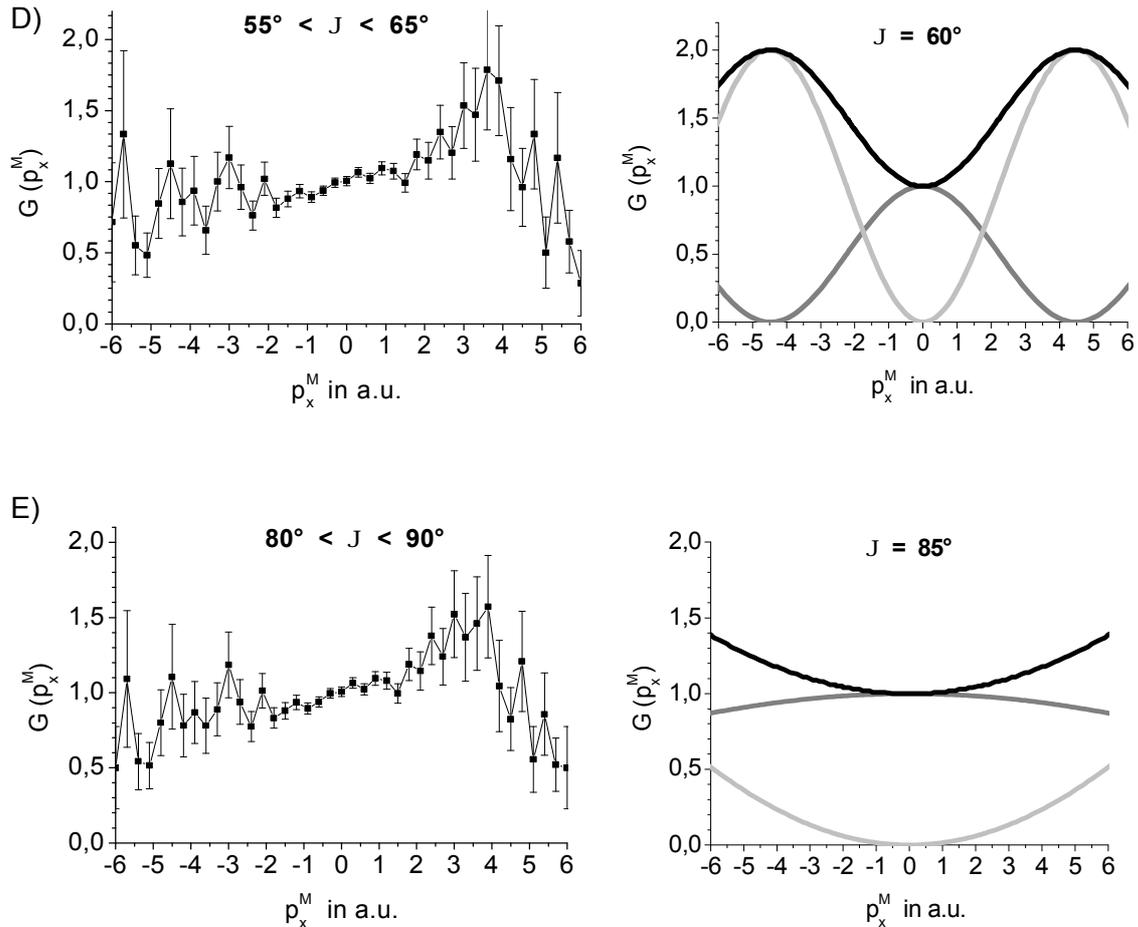


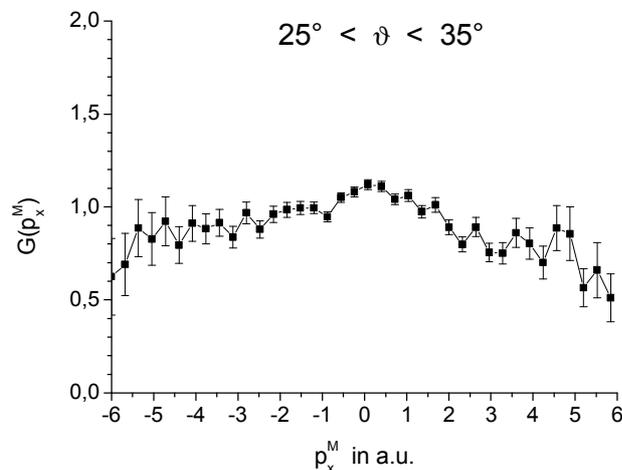
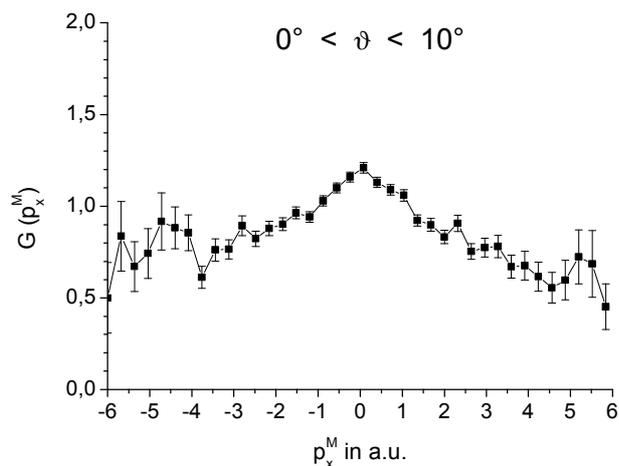
Abbildung 5.10. links: Darstellung der Funktion $G(p_x^M)$ für verschiedene Stellungen der Molekülachse relativ zum Strahl. rechts: Darstellung der cos-Verteilungen für verschiedene Stellungen des Moleküls. Die hellgraue Kurve zeigt die Verteilung für einen Übergang in den ungeraden Zustand, die dunkelgraue Kurve für einen Übergang in den geraden Zustand. Es wird ein Molekülabstand von $0,742 \times 10^{-10}$ angenommen. Die jeweiligen cos-Terme werden mit verschiedenen Faktoren multipliziert, um die Verschiebung des Verhältnisses der jeweiligen Übergänge deutlich zu machen.

Die Graphen rechts in Abbildung 5.10. zeigen die cos- Verteilungen für einen Übergang in einen geraden Zustand (dunkelgrau) und einen ungeraden Zustand (hellgrau), wie sie sich aus dem der Überlagerung zweier Kugelwellen ergeben, ohne eine Verschiebung zu berücksichtigen. Hierbei wurde als Abstand der beiden Moleküle $0,742 \times 10^{-10}$ m angenommen.

Die Spektren A) – B) können auf diese Weise erklärt werden, die Struktur des letzten jedoch nicht. Zudem weisen A) und B), bzw. C), D) und E) eine sehr ähnliche Struktur auf,

so dass die Ähnlichkeit mit den \cos -Termen eher nur zufällig sein kann. Ferner stellt sich nach wie vor die Frage, warum die Wahrscheinlichkeit für den Übergang in den $2p\sigma^g$ -Zustand mit zunehmendem Drehwinkel des Moleküls kleiner werden soll. Vielleicht kommt es durch das einlaufende Projektil zu einer kurzfristigen Störung der Symmetrie: Wenn das Molekül senkrecht zum Strahl steht, stimmen Strahlachse und Spiegelungsachse des Moleküls überein. Mit größer werdenden Zwischenwinkel zwischen Molekül- und Strahlachse ist dies zunehmend nicht mehr der Fall, was eventuell Übergänge in ungerade Zustände wahrscheinlicher macht.

Die obigen Spektren lassen sich ebenfalls für die Bedingung darstellen, dass die kinetische Energie der Fragmente im Bereich zwischen 7 eV und 10 eV liegt. Bei diesen Spektren ergibt sich nur ein Problem: In diesem Energiebereich liegen auch Ereignisse aus der Doppelionisation. Da das doppelionisierte Molekül per Definition kein Elektron mehr besitzt, lässt sich auch keine Aussage über die Symmetrie der Wellenfunktion treffen. Es ist daher nicht klar, ob überhaupt Interferenzstrukturen zu erwarten sind.



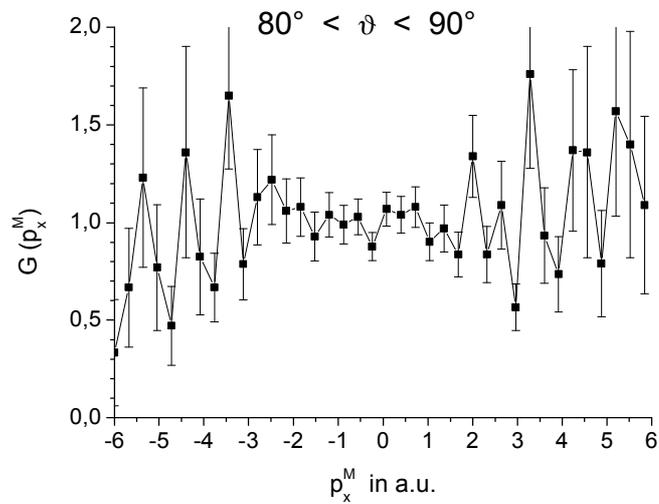
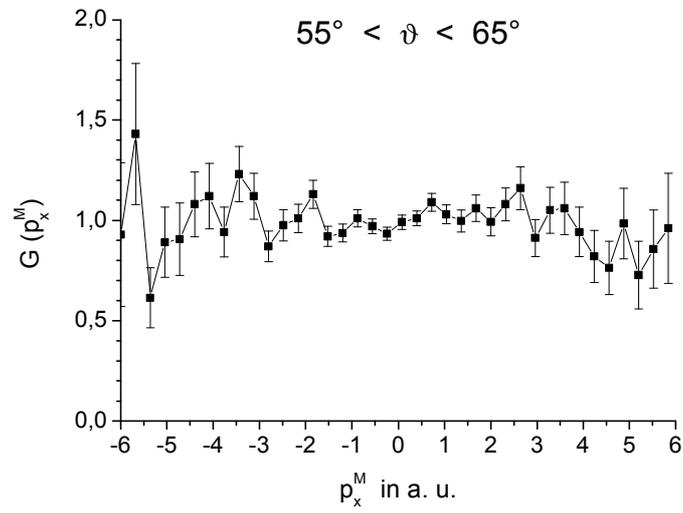
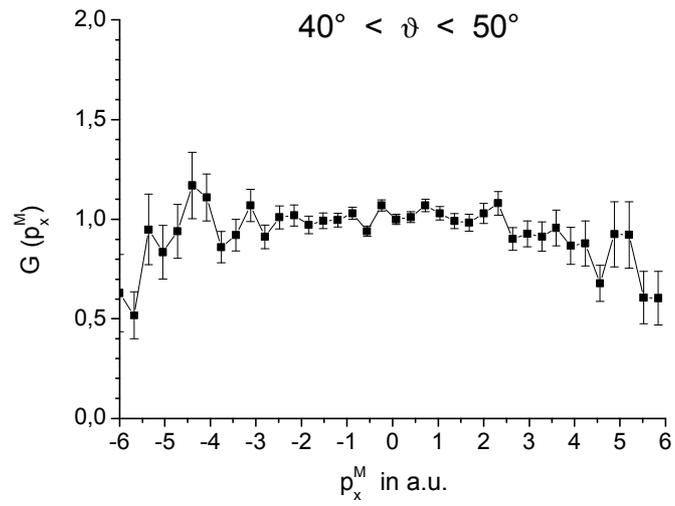


Abbildung 5.11. Darstellung der Funktion $G(p_x^M)$ in Abhängigkeit des Projektilimpulses für verschiedene Winkel zwischen Molekül- und Strahlachse und für die Bedingung, dass die kinetische Energie der Fragmente zwischen 7 eV und 10 eV liegt.

Die Spektren unterscheiden sich nicht wesentlich. Man kann eine ähnliche Änderung der Struktur wie in den Spektren mit der Bedingung auf 4 bis 7 eV erkennen: Das Maximum ist bei einer senkrechten Stellung des Moleküls stärker gewölbt und wird mit anwachsendem Winkel immer flacher. Es sind jedoch keine Maxima bzw. Minima zu beobachten. Dadurch kann man wenigstens ausgeschlossen werden, dass durch die Division der beiden Impulsverteilungen ein systematischer Fehler auftritt und dadurch Maxima bzw. Minima entstehen.

6. Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Protonen an im Raum ausgerichteten D_2 -Molekülen gestreut. Ziel war es nach möglichen Interferenzstrukturen in der Streuwinkelverteilung der Projektile zu suchen. Solche Interferenzstrukturen sind durch die Theorie vorhergesagt. Sie sind in Analogie zur Beugung am Doppelspalt ein Ergebnis der kohärenten Streuung des Projektils an den beiden Kernen des D_2 -Moleküls. Für den Reaktionskanal des Elektroneneinfangs mit gleichzeitiger Dissoziation des Moleküls mit einer Energie zwischen 4 und 7eV zeigen die experimentellen Daten tatsächlich ein Minimum an etwa der vorhergesagten Stelle. Dieses Minimum variiert mit der Orientierung der Molekülachse allerdings nicht ganz, wie aufgrund der Analogie zum Doppelspalt zu erwarten ist. Für den gleichzeitig im Experiment beobachteten Kanal der Transferionisation, der zu einer Fragmentenergie von etwa 9eV führt, wurden im Experiment keine Modulation der Streuverteilung beobachtet.

Der beobachtete Reaktionskanal der Dissoziation wirft weitere Fragen auf, die über das einfache Doppelspalt-Bild hinausgehen. So kann das dissoziierende D_2 -Ion sowohl in einem geraden als auch in einem ungeraden Zustand seiner elektronischen Wellenfunktion zurückbleiben. Diese Symmetrie der elektronischen Wellenfunktion beeinflusst ebenfalls die Phase der gestreuten Welle. Eine zuverlässige Vorhersage des zu erwartenden Kontrastes des Interferenzmusters hängt von der relativen Stärke der Anregung in den geraden und ungeraden Zustand ab. Dieser Effekt ist bisher nicht in den theoretischen Modellen berücksichtigt.

Diese Frage kann aber auch durch weitere Experimente geklärt werden. Im Rahmen einer anderen Diplomarbeit [Wim04] wurde ein sehr ähnliches Experiment vermessen: Ein einfach geladenes Wasserstoffmolekülion wird beschleunigt, stößt mit einem nahezu ruhenden Atom und fängt dabei ein Elektron ein. Durch den Elektroneneinfang geht das Molekül u. a. in einen $1s\sigma^u$ -Zustand über, der zur Dissoziation führt. Genau wie in diesem Experiment auch, kann dadurch die Molekülachse festgehalten werden. Betrachtet man in der Auswertung die Bewegung beider Teilchen in inverser Kinematik, d.h. lässt man das neutrale Atom auf das Molekül zufliegen, so zeigen sich in der Impulsverteilung des Rückstoßions (Atomions) Minima und Maxima, deren Position sich mit der Drehung des Moleküls ändert. Dies bestätigt eigentlich die Existenz von Interferenzen. Nur wird hier, wie bereits gesagt, die inverse Kinematik betrachtet, zudem vermisst man eigentlich den umgekehrten Übergang vom $1s\sigma^g$ -Zustand des Molekülions in den $1s\sigma^u$ -Zustand des

Moleküls. Um theoretische Berechnungen jedoch direkt zu bestätigen, ist es durchaus erstrebenswert, die Kinematik wie hier in dem hier vorgestellten Experiment zu vermessen. Aus diesem Grund werden in nächster Zeit noch weitere Messungen vorgenommen, in denen mit gleichem Aufbau, jedoch mit einer niedrigeren Projektilenergie (10 keV - 25 keV), die gleiche Reaktion untersucht wird. Mit der niedrigeren Energie des Projektils soll eine sehr viel bessere Streuwinkelauflösung erreicht werden, so dass sie die Beobachtung möglicher Interferenzen definitiv nicht mehr begrenzt. Dadurch können zum einen die Ergebnisse dieser Arbeit auf ihre Richtigkeit überprüft werden. Wenn tatsächlich Interferenzstrukturen zu beobachten sind, zeigen zum anderen eventuelle Veränderungen, ob eine Analogie zum Doppelspalt gerechtfertigt ist.

7. Literaturliste

- [Ach99] M. Achler, Doktorarbeit „Untersuchung von Symmetrieeffekten in der Photodoppelionisation von Helium mit zirkular polarisiertem Licht“, Johann Wolfgang Goethe Universität (1999)
- [Atk01] P.W. Atkins, „Physikalische Chemie“, Wiley –VCH Verlag GmbH, (2001)
- [Ber87] L. Bergmann , C. Schaefer, „ Lehrbuch der Experimentalphysik, Band 4 – Atomphysik, De Gruyter, Berlin, New York, (1987)
- [Cza99] A. Czasch, Diplomarbeit „Fragmentierung diatomare Moleküle durch langsame Stöße“, Johann Wolfgang Goethe Universität (1999)
- [Deb88] N.C. Deb, A. Jain, J. H. McGuire “Electron Capture from a hydrogen molecule at affixed orientation of the molecule axis”, Phys. Rev. A, 38, (1988), 3770
- [Du88] „Schülerduden Die Chemie“, Bibliographisches Institut & F.A. Brockhaus AG, Mannheim, (1988)
- [Fou03] L. Foucar, Diplomarbeit „Ionisation und Anregung von Wasserstoff- und Deuteriummolekülen mit Synchrotronstrahlung“, Johann Wolfgang Goethe Universität (2003)
- [Ger97] H. Vogel, „Gerthsen Physik“, Springer Verlag, Berlin-Heidelberg (1997)
- [Hak98] H. Haken, H. Ch. Wolf, “Molekülphysik und Quantenchemie“, Springer Verlag, Berlin 1998
- [Her63] Hertz, H.: Die Prinzipien der Mechanik in neuem Zusammenhange dargestellt. Unveränderter fotomechanischer Nachdruck der Ausgabe Leipzig 1894 Wissenschaftliche Buchgesellschaft, Darmstadt, (1963)

- [Jag94] O. Jagutzki, Doktorarbeit „Entwicklung eines Rückstoßionenimpulsspektrometers zur Untersuchung der Dynamik im Heliumatom“, Johann Wolfgang Goethe Universität (1994)
- [Mil88] D.R. Miller, „*Free Jet Sources*“ in *Atomic and Molecular Beam Methods*, Editor: G. Scoles, Oxford University Press, Oxford/ New-York, (1988)
- [May94] Th. Mayer-Kuckuck, „Kernphysik – Eine Einführung“, B. G. Teubner, Stuttgart (1994)
- [Mer96] V. Mergel, Doktorarbeit „Dynamische Elektronenkorrelation in Helium“, Johann Wolfgang Goethe Universität (1996)
- [Nol97] W. Nolting, „Grundkurs Theoretische Physik 5, Quantenmechanik Teil 2“, Friedr. Vieweg & Sohn Verlagsgesellschaft mbH, Braunschweig Wiesbaden (1997)
- [Roe04] Internetseite der Roentdek Handels GmbH, www.roentdek.de
- [Schoe02] M. Schoeffler, Diplomarbeit Entwicklung und Aufbau eines Abbildungssystems zur Messung von Elektronen jenseits niedriger Energie“, Johann Wolfgang Goethe Universität (2002)
- [Schm95] L. Schmidt, Diplomarbeit „Extraktion und Strahlführung an der Frankfurter EZR-Ionenquelle“, Johann Wolfgang Goethe Universität (1995)
- [schm00] L. Schmidt, Doktorarbeit „Effekte molekularer Symmetrien in der Elektronenemission bei langsamen He²⁺-He-Stößen: Eine kinematisch vollständige Untersuchung“, Johann Wolfgang Goethe Universität (2000)
- [SPI01] U. Spillmann, Diplomarbeit „Entwicklung einer 2-dimensional ortsauflösenden Delayline Anode nach der Bildladungsabnahme zum Teilchennachweis in offenen MCP-basierenden und gekapselten Detektorsystemen“, Johann Wolfgang Goethe Universität (2001)

-
- [Sto98] H. Stöcker, „Taschenbuch der Physik“, Verlag Harri Deutsch, Thun und Frankfurt am Main (1998)
- [Tuan60] T.F. Tuan, E. Gerjuoy, „Charge Transfer in Molecular Hydrogen“, Phys. Rev. 117, 756 (1960)
- [ULL02] K. Ullmann-Pfleger, Roentdek-GmbH, www.roentdek.com
- [Unv92] M. Unverzagt, Diplomarbeit „Entwicklung eines Strahlprofilmonitors für den ESR“, Johann Wolfgang Goethe Universität (1992)
- [Web97] Th. Weber, Diplomarbeit „Impulstransfer in Proton-Heliumstößen untersucht mit hochauflösender Rückstoßionenimpulsspektroskopie“, Johann Wolfgang Goethe Universität (1997)
- [Web03] Th. Weber, Dissertation „Untersuchung der verschränkten Bewegung freier Elektronenpaare emittiert aus Ein- und Zweizentren-Potenzialen in Photoabsorptionsprozessen“, Johann Wolfgang Goethe Universität (2003)
- [Wei78] M. Weissbluth, „Atoms and Molecules“, Academic Press, New York/ San Francisco/ London (1978)
- [Wil55] W. C. Wiley, I. H. McLaren, “Time-of-Flight mass Spectrometer with improved Resolution”, Rev. Sci. Instr., 26(12), 1150, (1955)
- [WIM04] Ch. Wimmer, Diplomarbeit „Ein Molekülion-Atom-Stoß als Doppelspaltexperiment“, Auf dem Wege der Veröffentlichung
- [Wut88] M. Wutz, H. Adam, W. Walcher, „Theorie und Praxis der Vakuumtechnik“, Friedrich Vieweg & Sohn, Braunschweig (1988)
- [Wol87] H. Wollnik, Optics of Charged Particles, Academic Press London, (1987)

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich bei denen bedanken, die auf sehr unterschiedliche Weise zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Da wären zunächst erstmal die Menschen rund um die Physik.

Mein besonderer Dank gilt hier Horst Schmidt-Böcking und Reinhard Dörner für die Aufnahme in die Arbeitsgruppe und für die Möglichkeit und auch Geduld, mich langsam mit dem alltäglichen Leben eines Physikers vertraut zu machen.

Des weiteren möchte ich mich bei Markus Schöffler bedanken. Seine offene Art und manchmal erschreckend gute Laune hat mir den Einstieg in die Arbeitsgruppe und insbesondere in die Physik sehr erleichtert. Er hat viel Arbeit und Mühe investiert, mir das Arbeiten mit COLTRIMS und dem kleinen Beschleuniger näher zu bringen, und mir bei der Durchführung dieses Experiment sehr geholfen. Ein weiterer Dank geht an Lothar Schmidt für viele gute Ratschläge und Antworten auf viele Fragen. Auch wenn sie ab und an etwas ausführlicher ausfielen als gedacht, waren sie äußerst hilfreich.

Ein herzlicher Dank geht an die Mitglieder der Arbeitsgruppe, die sich diverse Tag- und Nachtschichten im Institut um die Ohren geschlagen haben, um darauf aufzupassen, dass das Experiment weiterläuft: Mirko, Achim, Till und Sven.

Nicht zu vergessen: Christine Wimmer. Als Weggefährtin und Leidensgenossin in der Diplomzeit möchte ich ihr für die vielen kleinen Schwätzchen und Späßchen danken, die alles doch sehr viel angenehmer machten.

Allen anderen Gruppenmitgliedern ebenfalls ein großes Dankeschön für die insgesamt wirklich nette Atmosphäre.

Gerade beim Experimentieren an Beschleunigern ist man auf die Hilfe derjenigen angewiesen, die sich damit wirklich auskennen. Mein Dank gilt daher Herrn Schneider und dem Beschleuniger-Team für zahlreiche Hilfestellungen. Vielen Dank auch an Herrn Eschenbrenner stellvertretend für die Verwaltung des IKF besonders für die Bereitstellung eines Gästezimmers samt Bett während der Messzeit. Das machte die Nachtschichten

doch sehr viel erträglicher. Im Bereich der Werkstätten gebührt mein Dank stellvertretend Herrn Düring.

Kommen wir nun zu den Menschen außerhalb der Physik: Ich möchte meinen Freunden danken, dass sie mich während dieser Zeit unterstützt haben. Hier sind besonders Sebastian, Steffi und natürlich Andrea zu erwähnen, die meine Hochs und Tiefs in den letzten zwei bis drei Jahren ausgehalten haben. Weiterhin gilt mein besonderer Dank meiner großen, großen Familie: meiner Mutter, die mir das alles ermöglicht hat, Wolfgang und meinen beiden Schwestern Katharina und Franziska, meiner Oma, meinen beiden Paten Horst und Jutta und meinem Opa. Zuletzt möchte ich mich bei meinem Freund Florian bedanken, der in den letzten Jahren stets für mich da war und mir immer und immer wieder den Rücken gestärkt hat.