# Dissoziativer Zweifachelektroneneinfang in Ar<sup>8+</sup> und H<sub>2</sub> Stoßprozessen

Dorota Hant

Diplomarbeit

Institut für Kernphysik Johann Wolfgang Goethe Universität Frankfurt am Main

August 2008

Für Daniel und Liz

Mojej rodzinie ...

# Inhaltsverzeichnis

	Einleitung	7
2.	Physikalischer Hintergrund	11
2.1	Das Wasserstoffmolekül	11
2.	1.1 Molekülorbitale und deren Nomenklatur	14
2.	1.2 Rotation und Schwingung	16
2.2	Elektroneneinfang	18
2.	2.1 Zweifachelektroneneinfang	18
2.	2.2 Doppelionisation	19
2.	2.3 Autoionisation	19
2.3	Das "over-barrier-Modell"	20
3.	Das Experiment	23
3.1	Elektron-Zyklotron-Resonanz-Ionenquelle	23
3.2	Die Oelfeinen Methoele	
	Die Coltrims-wethode	25
3.3	Die Coltrims-Methode Das Gastarget	25 26
3.3 3.4	Die Coltrims-Methode Das Gastarget Jet und Vakuumsystem	25 26 27
3.3 3.4 3.5	Die Coltrims-Methode Das Gastarget Jet und Vakuumsystem Strahlführung und Kollimation	25 26 27 29
3.3 3.4 3.5 3.6	Die Coltrims-Methode Das Gastarget Jet und Vakuumsystem Strahlführung und Kollimation Das Spektrometer	25 26 27 29 31
<ul> <li>3.3</li> <li>3.4</li> <li>3.5</li> <li>3.6</li> <li>3.</li> </ul>	Die Coltrims-Methode Das Gastarget Jet und Vakuumsystem Strahlführung und Kollimation Das Spektrometer 6.1 Bewegung im elektrischen Feld	25 26 27 29 31 32
<ul> <li>3.3</li> <li>3.4</li> <li>3.5</li> <li>3.6</li> <li>3.</li> <li>3.</li> </ul>	Die Coltrims-Methode         Das Gastarget         Jet und Vakuumsystem         Strahlführung und Kollimation         Das Spektrometer         6.1         Bewegung im elektrischen Feld         6.2         Aufbau des Spektrometers	25 26 27 29 31 32 34
<ul> <li>3.3</li> <li>3.4</li> <li>3.5</li> <li>3.6</li> <li>3.</li> <li>3.</li> <li>3.7</li> </ul>	Die Coltrims-Methode         Das Gastarget         Jet und Vakuumsystem         Strahlführung und Kollimation         Das Spektrometer         6.1 Bewegung im elektrischen Feld         6.2 Aufbau des Spektrometers         Detektoren	25 26 27 29 31 32 34 34
<ul> <li>3.3</li> <li>3.4</li> <li>3.5</li> <li>3.6</li> <li>3.</li> <li>3.7</li> <li>3.8</li> </ul>	Die Coltrims-Methode Das Gastarget Jet und Vakuumsystem Strahlführung und Kollimation Das Spektrometer 6.1 Bewegung im elektrischen Feld 6.2 Aufbau des Spektrometers. Detektoren Datenaufnahme	25 26 27 29 31 32 34 34 34 36

4.1	Kalibrierung	39
4.1.	1 Ortsverteilungen	39
4.1.	2 Flugzeitbestimmung der Rückstoßions	41
4.2	Bestimmung des elektrischen Feldes	43
4.3	Bestimmung der Impulse	43
4.3.	1 Berechnung der Relativimpulse	46
4.4	Das Molekülsystem	47
5. E	rgebnisse	49
5.1	Impulsverteilungen	50
5.2	Energiespektren	54
5.3	Potenzialkurven	62
Zusam	nmenfassung	65
Literat	tur	67
Danksagung		72

# 1. Einleitung

Alle Materie des Universums ist zusammengesetzt aus fundamentalen Bausteinen, den Molekülen und Atomen. Jeder Wassertropfen besteht aus einer unvorstellbaren Zahl von Wassermolekülen, die wiederum aus Wasserstoff- und Sauerstoffatomen gebildet werden. Unsere gesamte Welt besteht aus nicht mehr als 92 Atomsorten, die als "Elemente" im Periodensystem eingeordnet sind.

Schon 500 Jahre vor Christus beschäftigte sich Demokrit mit der Frage nach der Teilbarkeit der Materie, und führte den Begriff "atomon" ein, als das "Unteilbare". Sein Postulat, dass die gesamte Natur sich aus den "Atomen" und dem "Leeren" zusammensetzt geriet erst in Vergessenheit. Erst gegen Ende des 18. Jahrhunderts begann die Forschung in dieser Richtung. Dalton entdeckte das Gesetz der "konstanten Proportionen", was auch zu der Einführung der Begriffe "Atome" und "Moleküle" führte. Im ersten Jahrzehnt des 20. Jahrhunderts konnte man experimentell und theoretisch die Existenz der Atome direkt nachzuweisen und ihre Struktur und Größe bestimmen. Durch die Streuexperimente von Rutherford konnte das Atom in einen positiven "Atomkern" und einer davon weit entfernten negativen Ladung unterteilt werden. Später wurde diese negative Ladung als die durch Thomson entdeckten Elektronen identifiziert.

Auch der Atomkern, der anfangs als nicht unterteilbar erschien, wurde bald als eine Gestalt aus "Nukleonen", also positiv geladenen Protonen und ungeladenen Neutronen klassifiziert. Selbst die Nukleonen stehen immer noch nicht am Ende dieser Kette sondern bestehen aus kleineren Bausteinen, den "Quarks". Obwohl das "Atom" nicht im seinen ursprünglichen Sinne als unteilbar verstanden werden kann, spielt er in praktisch allen Naturgeschehen auf der Erde immer noch die Rolle des kleinsten fundamentalsten Bausteines.

1912 entwickelte Niels Bohr ein revolutionäres Modell über die möglichen Energiezustände der Elektronen im Atom, das "Bohrsche Atommodell", was 10 Jahren nach der Entdeckung zu einer grundlegenden Theorie der modernen Physik, der "Quantenmechanik", führte. Zu den wichtigsten Erfindungen in diesem Bereich gehört das Konzept von Materiewellen beschrieben von Heisenberg, de Broglie, Born und Schrödinger. Aus Schrödingers Wellengleichung für das Elektron im Wasserstoff ergaben sich die "gequantelten" Bohrschen Energien, als exakte Lösung einer mathematischen Differentialgleichung. Die Energiezustände in Atomen mit mehreren Elektronen aber nur näherungsweise bestimmt werden. Die können Übereinstimmung der quantenmechanischen Theorie mit den experimentellen Beobachtungen ergibt sich nur unter Berücksichtigung des "Pauliprinzips", welches besagt, dass in jeder der möglichen diskreten Energieschalen der Elektronen sich nur eine ganz bestimmte Zahl von Elektronen befinden darf, welche sich in ihren Quantenzahlen unterscheiden müssen. Ohne Existenz dieses Prinzips könnte es in keinem Fall zur Bildung von Molekülen und damit zur Vielfalt und Komplexität der Wirklichkeit kommen. Es gäbe weder Wasser und auch die einfachste Form von Leben wäre nicht möglich.

Trotz so vielen Entwicklungen ist die Atom- und Molekülphysik alles andere als eine abgeschlossene Wissenschaft. Gerade in den letzten Jahrzehnten ergaben sich immer neue spektakuläre Entdeckungen, was durch die Vielzahl von Nobelpreisen in dieser Zeit bestätigt wird. Die Entwicklung des Lasers, der stimulierten, gleichgerichteten Emission von Licht und viele andere, finden wichtigen Anwendungen in unzähligen Gebieten wie Technik, Entfernungsbestimmung, Datenspeicherung oder Medizin.

Am Anfang aller neuen Entdeckungen stehen in der Physik einfache Modelle, die als Grundstein für neue Experimente dienen. Aus diesen resultieren Ergebnisse, aus welchen man versucht Schlussfolgerungen für immer komplexere Systeme zu ziehen. Das in dieser Arbeit vorgestellte Experiment beschäftigt sich mit einer einfachen, molekularen Struktur, dem Wasserstoffmolekül. Das Einfache bezieht sich hier aber auf den Aufbau dieses Moleküls, was aus nur zwei Protonen und zwei Elektronen besteht. Schon aber bei dem Versuch dieses System quantenmechanisch zu beschreiben stellt sich heraus, dass es nicht exakt, sondern nur näherungsweise lösbar ist.

Die theoretische Grundlage beruht bei diesem Experiment auf dem "overbarrier-Modell", mit welchem Elektroneneinfangsprozesse "einfach" beschrieben werden können. Die ersten theoretischen Formulierungen dieser Theorie wurden durch Bohr und Lindhardt schon in den fünfziger Jahren vorgeschlagen [4]. Seit 1980 wurde dieses erfolgreich für einen Einfachelektroneneinfang (Single-Capture) experimentell durch H. Ryufuku et al. Nachgewiesen [20]. Die Voraussetzung für die Anwendung dieses Modells sind die langsamen Stöße von hochgeladenen lonen mit neutralen Atomen, bzw. Molekülen. Bei einem kritischen Abstand, der nach dieser Theorie geschwindigkeitsunabhängig ist und mit einer einfachen Formel berechnet werden kann, sinkt die Potenzialschwelle zwischen dem Projektil und Target so weit, dass sich die Elektronen mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit sowohl bei dem Ion, als auch bei dem Atom aufhalten können und somit der Elektronenübergang stattfinden kann. Nach dem Erfolg für den Einfachelektroneneinfang wurde diese Theorie auf einen Mehrelektronenprozess erweitert. 1985 hat sich theoretisch und experimentell A. Bárány damit beschäftigt und in den Reaktionen zwischen hochgeladenen Ar-Ionen Ne-, Ar-Kr-Atomen die und und totalen Wirkungsquerschnitte berechnet [2]. 1986 wurde der Mehrfachelektronenprozess durch A. Niehaus vervollständigt und mit der Messungen der Wirkungsquerschnitte experimentell bestätigt [17]. Die Erweiterung des Modells besagt, dass die Elektronen nicht nur bei Annäherung des Projektils an das Target, sondern viel mehr auch bei dem Auseinanderlaufen den beiden Reaktionsteilnehmern eingefangen werden können.

Bei der Vorbereitung dieses Experiments wurde darauf geachtet, dass die Anforderungen für den Einsatz des "over-barrier-Modells" erhalten bleiben. Die Projektilgeschwindigkeit wurde unterhalb von 1 a.u. gewählt. Konkret betrug sie in den zwei durchgeführten Messungen genau 0,2 und 0,36 a.u. Als Projektil wurden die Ar<sup>8+</sup>-Ionen ausgewählt, da diese mit einem sehr hohen Strahlstrom aus der Quelle geliefert werden können.

Um den Zweifachelektroneneinfang nachweisen zu können, müssen die zweifach umgeladenen Projektilionen und die beiden Protonen aus dem Wasserstoffmolekül in einer Koinzidenz nachgewiesen werden. Um Aussagen über den Verlauf der Reaktion machen zu können, ist es notwendig, den Impulsübertrag, welchen die Argonionen aus der Reaktion erhalten, aus der Messung zu bestimmen. Alle diesen Kriterien erfüllt die Rückstoßionenspektroskopie, welche für diese Messung angewandt wurde. Mit dieser Technik, die auch COLTRIMS-Technik (**Cold T**arget **R**ecoil Ion **M**omentum **S**pectroscopy) genannt wird, lassen sich die Flugzeiten des Projektils und der Ionen aus der Reaktion messen. Anhand der Flugzeiten können die Impulse in allen drei Raumrichtungen bestimmt werden. Durch die Kenntnis der Impulse der Fragmente kann man auf die Stellung der Molekülachse zurückschließen und eine Aussage über die Dynamik des Moleküls während der Reaktion treffen.

Im Gegensatz zu den oben erwähnten Arbeiten, in denen das "over-barrier-Modell" durch die Messungen der Wirkungsquerschnitte nachgewiesen worden ist, werden in diesem Experiment die Ergebnisse anhand der Verteilung der kinetischen Energie der Ionen (KER) diskutiert. Das Ziel dieser Arbeit ist die Unterscheidung des Verlaufs des Zweifachelektroneneinfangs. Die erste Möglichkeit ist ein schneller, simultaner Prozess, bei welchem die beiden Elektronen beinah gleichzeitig durch das Projektil eingefangen werden. Der zweite Fall wäre ein langsamer, sequentieller Elektroneneinfang, der in zwei Stufen beobachtet werden kann.

Es werden zwei Messungen durchgeführt, um den Verlauf der Reaktion in Abhängigkeit von der Projektilgeschwindigkeit zu vergleichen. Bei einer Erhöhung der Geschwindigkeit erwartet man eine Verschiebung der KER-Verteilung zu größeren Werten, da das Projektil zum Passieren des Targets weniger Zeit und somit das Molekül eine kürzere Zeit für die Schwingung zur Verfügung hat. Auch bei einer Messung mit fester Geschwindigkeit können verschiedene Fälle, wenn man den Stoßparameter variiert, betrachtet werden. Bei größeren Stoßparametern müsste die KER-Verteilung immer kleinere Werte einnehmen.

Bei der Auswertung des Experiments wird die Annahme getroffen, dass der Einfangprozess in zwei Stufen verläuft. Zusätzlich zu der Energieanalyse wird die Zeitspanne zwischen den beiden Elektroneneinfängen mit Hilfe des "over-barrier-Modells" bestimmt. Der Vergleich dieser Werte mit den Vibrationszuständen des Wasserstoffmoleküls soll die getroffene Annahme bestätigen oder aber widerlegen.

# 2. Physikalischer Hintergrund

Das H<sub>2</sub> Molekül stellt ein Vierkörperproblem dar bestehend aus zwei Atomkernen und zwei Elektronen. In dieser Arbeit sollte das System mittels des Zweifachelektroneneinfangs untersucht werden. Des Weiteren werden in diesem Kapitel die wichtigsten Informationen bezüglich des Aufbaus und der Eigenschaften des H<sub>2</sub> Moleküls zusammengefasst.

Außerdem wird auch die Theorie des "over-barrier-Modells" vorgestellt, die für die Interpretation der experimentellen Ergebnisse eingesetzt wird.

### 2.1 Das Wasserstoffmolekül

Das Wasserstoffmolekül H<sub>2</sub> ist das einfachste Molekül mit mehreren Elektronen. Es wird daher sehr oft bei Experimenten und in theoretischen Berechnungen eingesetzt um molekulare Abläufe zu untersuchen. Anhand dieser Ergebnisse versucht man Modelle zu entwickeln, die auf andere Molekülarten angewendet werden können.

Die Bindung im H<sub>2</sub> Molekül ist eine homöopolare (homöopolar = gleich geladen) Bindung. Die Atome werden durch die kovalente Bindung zusammengehalten. Diese besteht aus einem Paar von Elektronen, welches zwei Atomen gemeinsam angehört. Jedes Wasserstoffatom besitzt ein einzelnes Elektron, das symmetrisch um den Atomkern auf einem 1s-Orbital verteilt ist.

Die Wellenfunktionen  $\psi$ , welche als Lösungen der Schrödinger-Gleichung (2.1) gewonnen werden, beschreiben die Zustände und die zeitlichen Vorgänge im H<sub>2</sub> Molekül.

$$H\psi = E\psi \tag{2.1}$$

Obwohl das H<sub>2</sub> Molekül das einfachste Vierkörperproblem darstellt, ist die Vorgehensweise um diese Gleichung zu lösen nicht trivial. Im Allgemeinen separiert man im Rahmen der Born-Oppernheimer-Näherung zunächst die Kern- und

Elektronenwellenfunktion. Im Weiteren wird die Lösung für die elektronische Wellenfunktion betrachtet. Die Lösungsmethoden stützen sich entweder auf eine Strörungstheorie mit Entartung, die von den Ergebnissen für das einfachste Molekül-Modell  $H_2^+$  ausgeht, oder auf ein Variationsprinzip. Beiden Methoden liefern die genäherte Wellenfunktion  $\psi$ .

Die Schrödinger-Gleichung (2.1) nimmt für den Fall von H<sub>2</sub><sup>+</sup> folgende Gestalt an:

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_0}\Delta - \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0 r_a} - \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0 r_b}\right)\psi = E\psi$$
(2.2)

wobei r<sub>a</sub> und r<sub>b</sub> der Radius zwischen dem Kern a bzw. b und dem Elektron ist.

Um die Wellenfunktion zu bestimmen geht man davon aus, dass sich das Elektron entweder in der Nähe des Kerns a oder des Kerns b befindet, wobei die Energie jeweils die Gleiche wäre. Ein einfacher Ansatz für die Wellenfunktion ist:

$$\psi = c_1 \varphi_a + c_2 \varphi_b \tag{2.3}$$

Die Koeffizienten  $c_1$  und  $c_2$  sind noch zu bestimmen.  $\varphi_a$  und  $\varphi_b$  beschreiben die Wellenfunktion des Zustands, der entsprechend dem Kern a oder b gehört. Die Zustände  $\varphi_a$  und  $\varphi_b$  sind miteinander entartet. Der jeweils andere Kern, an dem sich das Elektron gerade nicht befindet wirkt mit einer Störung auf das Elektron ein. Dadurch wird die Entartung aufgehoben.

Die Anwendung des Lösungsverfahrens der Störungstheorie in Verbindung geeigneter Symmetrieüberlegungen führt zu Ergebnissen für die Koeffizienten:  $c_1 = c_2 = c$ . Für die Gesamtwellenfunktion bekommt man somit entweder einen bindenden oder einen lockeren "antibindenden" Zustand:

$$\psi_{+} = c(\varphi_a + \varphi_b) \tag{2.4}$$

$$\psi_{-} = c(\varphi_a - \varphi_b) \tag{2.5}$$

Zwischen den Wellenfunktionen, die den Aufenthalt der Elektronen beschreiben, kommt es zu einer Interferenz, wodurch die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen zwischen den beiden Protonen erhöht oder erniedrigt wird, was entweder zu einem bindenden oder antibindenden Zustand führt.

Das Wasserstoffmolekül ist ein Zwei-Elektronen Problem, was bedeutet, dass das Pauli-Prinzip berücksichtigt werden muss. Um die Existenz des Spins mit einzubeziehen, wird die Lösung mit der Spinfunktion multipliziert. Dabei muss beachtet werden, dass beide Elektronen nicht den gleichen Zustand besetzen dürfen und die Wellenfunktion in allen Spin- und Ortskoordinaten der Elektronen antisymmetrisch sein muss, d.h. dass die Wellenfunktion ihre Vorzeichen umkehrt, wenn alle Indizes vertauscht werden.

Das Zweielektronen-System H<sub>2</sub> bietet bei festgehaltenen Kernen das einfachste Beispiel für die Anwendung der Einteilchen-Näherung, was als "Molekülorbital Näherung" bezeichnet wird. Historisch wurde allerdings zuerst eine andere Näherung, die "Valenzbindungs-Methode" von Heitler-London am H<sub>2</sub> Molekül versucht. Hierbei wird von den getrennten Atomen ausgegangen und die Bindung im H<sub>2</sub> im Rahmen einer Störungsrechnung behandelt. Die beiden Verfahren gehen von den zwei getrennten H-Atomen aus und werden jetzt im kurzen dargestellt und miteinander verglichen [7].

1. Die Hund-Mullikan-Bloch-Methode

Bei dem Hund-Mullikan-Bloch-Verfahren geht man zuerst von der Bewegung zweier einzelner Elektronen im Feld der Atomkerne aus. Dieses Verfahren stellt die Wellenfunktion eines einzelnen Elektrons im Molekül dar und wird daher auch als Molekülorbital (MO) bezeichnet.

Die Lösung des Problems kommt von dem Modell für das Wasserstoffion [10]:

$$\psi_g(\vec{r}) = N[\varphi_a(\vec{r}) + \varphi_b(\vec{r})]$$
(2.6)

wobei N der Normierungsfaktor ist.

Nun setzt man nacheinander die beiden Elektronen des Wasserstoffmoleküls in diesen Zustand (2.7) und beschreibt die Molekülwellenfunktion näherungsweise durch eine Linearkombination der entsprechenden Atom-Orbitale, wodurch diese Methode auch die Bezeichnung "Linear Combination of Atomic Orbitals" LCAO erhielt. Die Atom-Orbitale werden durch die atomaren Wellenfunktionen  $\psi_a$  bzw.  $\psi_b$  beschrieben.

$$\psi = \psi(r_1)\psi(r_2) \tag{2.7}$$

Die Spinfunktion und Normierungsfaktoren sind bei dieser Methode nicht berücksichtigt worden.

#### 2. Heitler-London-Methode

Die Heitler-London-Näherung für das H<sub>2</sub>-Molekül geht von dem Grenzfall zweier unendlich weit voneinander entfernter H-Atome, die einander angenähert werden aus. Dabei setzt sich der Hamilton Operator aus den Hamilton-Operatoren für die einzelnen Atome und einem Term, der als Störung bezeichnet wird und die Wechselwirkung zwischen den beiden Atomen bei der Annäherung beschreibt, zusammen:

$$H = H_1 + H_2 + H_{st}$$
(2.8)

Als Ansatz für die Wellenfunktion nimmt man die Linearkombination:

$$\psi = \varphi_a(1)\varphi_b(2) + \varphi_a(2)\varphi_b(1)$$
(2.9)

Auch hier werden die Normierungsfaktoren und Spinfunktion nicht berücksichtigt.

Die Heitler-London-Methode liefert im Allgemeinen die besseren Resultate für die Gesamtbindungsenergie, während das Hund-Mullikan-Bloch-Verfahren dagegen den Aufenthalt der einzelnen Elektronen besser beschreibt.

### 2.1.1 Molekülorbitale und deren Nomenklatur

Zustände von Molekülen werden durch ihre Wellenfunktion  $\psi_{n,l,\lambda}(r)$ , die auch als Molekülorbital bezeichnet wird, und deren Symmetrieeigenschaften charakterisiert. r steht dabei als Abkürzung für alle Elektronen- und Kernkoordinaten. Die Molekülorbitale werden nach steigender Energie angeordnet und dann unter Beachtung des Pauli Prinzips mit Elektronen besetzt. Die Anordnung erfolgt mit Hilfe der Quantenzahlen n, l,  $\lambda$  und des Elektronenspins. Die energetische Reihenfolge der Orbitale  $\psi_{n,l,\lambda}$  ist: 1s $\sigma$ , 2s $\sigma$ , 2p $\sigma$ , 2p $\pi$ , 3s $\sigma$ , 3p $\sigma$ , 3p $\pi$ , 3d $\sigma$ , 3d $\pi$  usw. Für homonukleare Moleküle (also auch für H<sub>2</sub>) kommt jedes Orbital zusätzlich als gerader oder ungerader Zustand vor. σ-Orbitale bilden sich dann aus, wenn sich aus einer Kombination Atomorbitalen von zwei eine rotationssymmetrische Elektronenverteilung um die internukleare Verbindungslinie ergibt (das gleiche gilt für eine Kombination von zwei atomaren p-Orbitalen).  $\pi$ -Orbitale sind dagegen nicht rotationssymmetrisch um die Verbindungslinie zwischen den Atomkernen, sondern besitzen eine Knotenebene, die durch die Atomkerne verläuft.



**Abbildung 2.1** Schematische Darstellung einiger Molekülorbitale: a) vom  $\sigma$ -Typus und b) vom  $\pi$ -Typus, wobei die z-Achse die Molekülachse ist [28].

Die  $\sigma_g$ -Orbitale bilden die bindenden Molekülzustände, besitzen eine geringere Energie als die  $\sigma_u$ -Orbitale und werden deswegen im Grundzustand zuerst aufgefüllt.  $\sigma_u$ -Orbitale führen zu abstoßenden Potenzialkurven, also antibindenden Orbitalen und bleiben im Grundzustand unbesetzt. Die  $\pi$ -Molekülorbitale sind nicht bindend, weil sie wenig Elektronendichte zwischen den Atomkernen konzentrieren. Die Ladungsdichte des Orbitals konzentriert sich in zwei Bereichen ober- und unterhalb der Knotenebene. Bei Doppelbindungen treten  $\pi$ -Bindungen zusätzlich zu den  $\sigma$ -Orbitalen auf. Sie entstehen bei der Verschmelzung von p-Orbitalen benachbarter Atome, die je ein Elektron in die Bindung einbringen.

Beim H<sub>2</sub>-Molekül befinden sich beide Elektronen im bindenden  $1s\sigma_{a}$ -Orbital. Wenn eines der Elektronen in ein energetisch höheres Orbital angeregt wird, entstehen elektronisch angeregte Molekülzustände, deren Energie genau wie beim Grundzustand von dem Kernabstand abhängt. Da beim H<sub>2</sub>-Molekül zwei Elektronen vorhanden sind, gibt Singulettund Triplett-Zustände mit den es

Gesamtspinquantenzahlen S=0 bzw. S=1. Für die Hauptquantenzahlen  $n \rightarrow \infty$  konvergieren die Potenzialkurven des Wasserstoffmoleküls gegen die des  $H_2^+$ -Molekülions, die für  $R \rightarrow \infty$  in H(1s) +H<sup>+</sup> dissoziiert [6].

### 2.1.2 Rotation und Schwingung

Das Wasserstoffmolekül hat die Möglichkeit um zwei Achsen senkrecht zur Verbindungsachse zu rotieren, was für eine zusätzliche Energie des Moleküls sorgt. Mit dem Modell eines starren Rotators lässt sich diese Energie quantenmechanisch berechnen. Das Molekül dreht sich mit dem Trägheitsmoment [1]:

$$I = \mu r^{2} \quad mit \quad \mu = \frac{m_{1} \cdot m_{2}}{m_{1} + m_{2}}$$
(2.10)

wobei r der Abstand und  $\mu$  die reduzierte Masse der beiden Atome ist. Mit Hilfe der kinetischen Energie des starren Rotators:

$$E_{kin} = \frac{J^2}{2I} \tag{2.11}$$

lässt sich die Schrödinger-Gleichung lösen. J ist der klassische Drehimpuls der Drehbewegung. Die quantenmechanische Lösung für die Energie ergibt sich somit zu:

$$E_{rot}(J) = \frac{\hbar^2}{2I} J(J+1)$$
 (2.12)

wo J für die Rotationsquantenzahl steht, die dem quantisierten Drehimpuls der Rotationsbewegung entspricht.

Für die Schwingung eines diatomaren Moleküls kann man zur Vereinfachung der Berechnungen das Modell des harmonischen Oszillators einsetzen. Die beiden Atome werden dabei als zwei Massenpunkte dargestellt, die durch eine Feder verbunden sind und reibungslos um einen mittleren Abstand r schwingen. Auch diese Schwingung sorgt für eine zusätzliche Energie. Mit Hilfe der Energie des klassischen harmonischen Oszillators

$$E_{ges} = \frac{1}{2}\mu v^{2} + \frac{1}{2}kx^{2} \quad mit \quad k = \omega_{0}^{2}\mu$$
(2.13)

bekommt man aus der Schrödinger-Gleichung für die Energie:

$$E_{vib}(v) = \hbar \omega (v + \frac{1}{2}), \quad v \in N$$
(2.14)

Bindungsenergie des Wasserstoffmoleküls	-4,7 eV
Differenz zwischen zwei benachbarten Rotationsniveaus mit	7,6 meV
dem Drehimpuls J	
Differenz zwischen dem Grundzustand v=0 und dem ersten	0,516 eV
angeregten Schwingungszustand mit v=1	

Tabelle 2.1 Ausgewählte Energiewerte für das Wasserstoffmolekül [28].

Sowohl der starre Rotator als auch der harmonische Oszillator sind idealisierte Modelle, mit deren Hilfe die Energie berechnet werden kann. Für eine realistische Beschreibung der Rotation und Schwingung müssen diese Modelle modifiziert werden. Bei der Rotation muss berücksichtigt werden, dass sich der Abstand der Kerne und auch das Trägheitsmoment durch die Schwingung ständig ändern. Auch für die Schwingung darf kein parabelformiges Potenzial angenommen werden, da dieses unsymmetrisch bezüglich des Gleichgewichtsabstandes sein muss. Bei kleinen Kernabständen führt die Abstoßung der Kerne zu einem unendlich hohen große Abstände wegen Potenzial. während für der kleiner werdenden Wechselwirkung der Elektronen und Kernen das Potenzial gegen Null strebt. Ein häufig verwendeter empirischer Ansatz dafür ist das so genannte Morse-Potenzial [26].



**Abbildung 2.2** Vergleich zwischen dem Potenzialverlauf des harmonischen Oszillators und des Morse-Modells.

## 2.2 Elektroneneinfang

Beim Elektroneneinfang (englisch: electron-capture) gehen ein oder mehrere Elektronen ( $n_e$ ) von einem gebundenen Zustand im Targetatom oder Molekül (B) mit der Ladung  $q^+$  in einen gebundenen Zustand des Projektils (A) über:

$$A^{q_{+}} + B \to A^{(q-n_{e})^{+}} + B^{n_{e}^{+}}$$
(2.15)

Dieser Prozess ist sehr stark von der Projektilgeschwindigkeit abhängig und wird für schnelle Stöße zunehmend unwahrscheinlicher. Man kann auch zwischen einem symmetrischen und einem asymmetrischen Stoßsystem unterscheiden. Von einem symmetrischen Stoßsystem ist die Rede, wenn es sich um gleiche Stoßpartner handelt (z.B. He<sup>+</sup> und He). Falls die besetzten Energieniveaus von Projektil und Target gleich sind spricht man von einem resonanten Elektronentransfer. Bei einem Prozess mit verschiedenen Stoßpartnern liegt ein asymmetrisches Stoßsystem vor. Die Differenz der Bindungsenergien muss dann vom Projektil aufgebracht bzw. aufgenommen werden, abhängig von den besetzten Energieniveaus in Projektil und Target. Wenn sich einer der beteiligten Stoßpartner nach der Reaktion in einem angeregten Zustand befindet, spricht man von einer Transferanregung.

Bei dem Elektronentransfer bei niedrigen Geschwindigkeiten müssen die Energieniveaus der beteiligten Stoßpartner zueinander passen, wobei bei schnellen Stößen es wichtig ist, dass die Geschwindigkeit von Elektron und Projektil zueinander passt. Der Elektroneneinfang dominiert, im Vergleich zu der Ionisation, bei großen Streuwinkeln. Für einen Elektroneneinfang in höhere Bindungszustände des Projektils sind entsprechend der weiter außen liegenden Schalen, die mit 1/n<sup>2</sup> skalieren, weniger enge Stoßparameter erforderlich. Unter der Annahme eines ruhenden Elektrons ist der maximal mögliche transversale Impulsübertrag durch die Massenverhältnisse der Stoßpartner festgelegt.

### 2.2.1 Zweifachelektroneneinfang

Ein Spezialfall des Elektroneneinfangs ist der Doppelelektroneneinfang (im Englischen als Double-Capture – DC bezeichnet). Im Weiteren wird in dieser Arbeit die Reaktion des Doppelelektroneneinfangs vom Wasserstoffmolekül durch hochgeladene Ar<sup>8+</sup>-Ionen genauer untersucht:

$$Ar^{8+} + H_2 \to A^{6+} + 2H^+$$
 (2.16)

Dieser Prozess kann auf zwei unterschiedliche Weisen ablaufen. Der erste Fall ist ein langsamer Verlauf, der auch als Zwei-Stufenprozess bezeichnet wird. Die zweite Variante ist ein schneller Prozess, der in einem Schritt abläuft. Dabei werden die beiden Elektronen gleichzeitig eingefangen. Beide Prozesse können durch das "overbarrier-Modell" erklärt und voneinander unterschieden werden.

#### 2.2.2 Doppelionisation

Bei Ion-Atom-Stößen spielen neben dem oben beschriebenen Elektroneneinfang auch Anregung bzw. Ionisation des Targets eine Rolle.

Die Reaktionsgleichung für diese Prozesse ist gegeben durch:

$$A^{q_{+}} + B \to A^{q_{+}} + B^{n_{e^{+}}} + n_{e^{-}}$$
(2.17)

wobei q der Ladungszustand des geladenen Projektils A und ne die Anzahl der aus dem Target B emittierten Elektronen sind. Ionisation im Stoß mit einem geladenen Projektil wird (fast ausschließlich) durch die Coulombwechselwirkung zwischen dem Projektil und dem Targetsystem verursacht. Deswegen hängen die beobachtbaren Größen (wie z.B. die Impulsverteilung der Targetfragmente oder der Energie- und der Impulsübertrag des Projektils auf das Target), vor allem von der Ladung und der Geschwindigkeit des Projektils ab. Ebenso sind die spezifischen Targeteigenschaften, wie das Ionisationspotenzial oder die elektronische Struktur des Targets, von großer Bedeutung. Vor allem bei geringen Stoßgeschwindigkeiten spielt auch die Projektilmasse eine wichtige Rolle. Der Ionisationsquerschnitt hat ein Maximum wenn das Projektil etwa die Geschwindigkeit des Targetelektrons auf einem Bohrschen Orbital hat.

#### 2.2.3 Autoionisation

Mit Autoionisation bezeichnet man einen Prozess, in dem ein gebundener Zustand eines neutralen Moleküls oder Atoms, der energetisch oberhalb von Zuständen des molekularen Ions liegt, durch Kopplung mit dem Letzteren von selbst in den Ionenzustand übergehen kann.

Bei atomaren Zuständen kommt es nur dann zu einer Autoionisation, wenn sich wenigstens zwei Elektronen in einem angeregten Zustand befinden und deren Gesamtenergie dann oberhalb der Ionisationsenergie liegt. Bei Molekülen kann bereits bei der Anregung nur eines Elektrons die Summe aus elektronischer Energie und kinetischer Energie der Schwingung oder Rotation die Ionisierungsenergie

überschreiten. Dies ist zum Beispiel der Fall, wenn ein Elektron in einen Rydbergzustand des neutralen Moleküls angeregt wird. Das Rydberg-Elektron hat seine größte Aufenthaltswahrscheinlichkeit weit weg vom Rumpf der restlichen Elektronen, trägt also praktisch nicht mehr zur Molekülbindung bei. Die Potenzialkurven verlaufen deswegen parallel, verschoben nur um die Differenz der Anregungsenergie des Elektrons in den verschiedenen Rydberg-Zuständen mit der Hauptquantenzahl n. Wenn bei der Autoionisation ein Teil der Schwingungsenergie des Rydbergs-Zustandes auf das Elektron übertragen werden soll, muss die Schwingungsenergie im Ion kleiner sein als im neutralen Molekül. Bei sehr hohen Hauptquantenzahlen n kann dieser Prozess auch allein durch Übertragung von Rotationsenergie erfolgen, für den Fall, wenn die Rotationsquantenzahl im Ion kleiner ist als im neutralen Molekül. Da der Gesamtdrehimpuls erhalten bleibt, muss das Rydberg-Elektron bei seiner Ionisation Drehimpuls aufnehmen [7].

### 2.3 Das "over-barrier-Modell"

Wie Abschnitt 2.2.1 schon im angesprochen, der kann Zweifachelektroneneinfang mit dem "over-barrier-Modell" erklärt und experimentell untersucht werden. Um dieses Modell anwenden zu können muss die Projektilgeschwindigkeit unter 1 a.u. liegen. In diesem Bereich ist der Prozess geschwindigkeitsunabhängig. Das "over-barrier-Modell" wurde anfangs nur für den Single-Capture (Einfachelektroneneinfang) formuliert und seit 1980 erfolgreich durch H.Ryufuku et al. [20] experimentell nachgewiesen. Diese erste Formulierung besagt, dass ein Elektron von einem neutralen Targetatom durch ein hochgeladenes Ion in einem kritischen Abstand R<sub>krit</sub> eingefangen werden kann, wenn die Schwelle des Coulombpotenzials zwischen dem Target- und Projektilion zu dem Energiewert abgesunken ist, der gleich der Bindungsenergie des Elektrons an das Targetatom ist. 1985 wurde dieses Modell durch A. Bárány [2] auf den Mehrfachelektroneneinfang erweitert. Diese Formulierung beinhaltete aber nicht die Möglichkeit, eine Voraussauge über den Endzustand indem sich das Elektron nach dem Stoß befindet zu treffen. Das Modell wurde aber 1986 um diesen Aspekt durch A. Niehaus weiter vervollständigt. Im Gegensatz zu der ersten Formulierung, bei welcher der Elektroneneinfang nur dann stattfindet, wenn sich das Projektil und das Target auf einander bewegen, wird jetzt zwischen zwei Trajektorien unterschieden: der Annäherung des Projektils in die Reaktionszone ("way in") und der Distanzierung des Projektils von der Reaktionszone ("way out"). Diese Annahme ist sinnvoll, da festgestellt wurde, dass die Wahrscheinlichkeit für den Elektroneneinfang im zweiten Fall, beim Auseinanderfliegen des Projektils von dem Target, größer ist [17, 18]. Die Abbildung 2.3 zeigt den schematischen Ablauf dieses Prozesses.



Abbildung 2.3 Schematische Darstellung des "over-barrier" Prozesses [3].

Der erste Schritt (M<sub>1</sub>) bezieht sich auf die Annäherung des Projektils an das Target. Die Schwelle des Coulombpotenzials zwischen dem Projektil und dem Target senkt sich ab, so dass sich das äußerste Elektron für kleine Abstände R (wobei R für den Abstand zwischen den beiden Reaktionsteilnehmern steht) sowohl beim Projektil als auch beim Target aufhalten kann. Man spricht davon, dass das Elektron dann "molekular" ist. Damit es zu einem Zweifachelektroneneinfang kommen kann muss sich die Energieschwelle des Coulombpotenzials noch weiter absenken (M<sub>2</sub>), so dass sich beide Elektronen molekular sowohl beim Target als auch beim Projektil aufhalten können. C<sub>2</sub> stellt dann das Auseinanderlaufen des Projektils vom Target dar. Die Potenzialschwelle steigt wieder an und die Elektronen können in den Schritten  $R_1$  und  $R_2$  von dem Projektilion eingefangen werden.

Der oben beschriebene Zweifachelektroneneinfang kann entweder simultan, als einstufiger Prozess oder sequentiell, als zweistufiger Prozess ablaufen. Die Gültigkeit dieses Modells wurde auch experimentell in den Reaktionen zwischen hochgeladenen C-, N-, Ar- und Xe-Ionen auf He-Atome [2, 3, 18] gezeigt. Dabei wurden die differenziellen Wirkungsquerschnitte der Reaktionen berechnet.

In dieser Arbeit sollte der Zweifachelektroneneinfang mit dem Schwerpunkt auf die Unterscheidung zwischen dem langsamen und schnellen Verlauf zwischen Wasserstoffmolekül und hochgeladenen Ar<sup>8+</sup>-Ionen untersucht werden. Dazu wurden zwei Messungen mit unterschiedlichen Projektilgeschwindigkeiten durchgeführt. Mit folgender Formel können nach dem "over-barrier-Modell" die Abstände berechnet werden, bei denen der Elektroneneinfang stattfinden kann:

$$R = R_i = \left[ 2(q - i + 1)^{\frac{1}{2}} i^{\frac{1}{2}} + i \right] / I_i \quad i = 1, 2, ..., N$$
(2.18)

wobei i die Anzahl der eingefangen Elektronen, q die Ladung des Projektils und l<sub>i</sub> das i-te Ionisationspotenzial des Targets ist.

Der Verlauf der Reaktion soll anhand der Verteilungen der kinetischen Energie der Ionen untersucht werden. Dafür werden aus den mit Formel (2.18) berechneten Abständen, die Stoßparameter berechnet und die Ergebnisse in folgende Fälle unterteilt:

1. Feste Stoßparameter bei unterschiedlichen Projektilgeschwindigkeiten;

2. Unterschiedliche Stoßparameter bei festen Geschwindigkeiten.

Für den ersten Fall (Änderung der Geschwindigkeit) ist eine Vergrößerung der kinetischen Energie bei steigender Projektilgeschwindigkeit zu erwarten, während für den zweiten Fall – bei Vergrößerung des Stoßparameters eine Verkleinerung der KER-Verteilung zu erwarten wäre (siehe Kapitel 4.3.1 und 5).

Zusätzlich ist es möglich, aus der Formel (2.18) und den gemessenen Werten auf die Zeit zwischen dem ersten und dem zweiten Elektroneneinfang zurück zu schließen. Daraus lässt sich die Änderung des intermolekularen Abstandes und auch die bei der Coulombexplosion freigesetzte kinetische Energie bestimmen. Der Vergleich mit dem Vibrationszustand des Wasserstoffmoleküls kann eine Antwort auf die Dynamik des Moleküls und damit auch auf den Verlauf der Reaktion liefern.

# 3. Das Experiment

Die in Hinsicht auf den Doppelelektroneneinfang zu untersuchende Reaktion

$$Ar^{8+} + H_2 \rightarrow Ar^{6+} + H^+ + H^-$$

wurde mit der COLTRIMS-Technik (COLd-Target-Recoil-Ion-Momentum-Spectroscopy) gemessen. Diese Technik wurde vor über zehn Jahren in Frankfurter Atomphysikgruppe entwickelt und wird heute mit Erfolg auf der ganzen Welt für Experimente eingesetzt. Die Rückstoßionenimpulsspektroskopie zeichnet sich durch eine hohe Flexibilität und eine große Raumwinkelakzeptanz bis zu  $4\pi$  aus.

In diesem Kapitel wird der experimentelle Aufbau mit allen relevanten Bestandteilen vorgestellt.

### 3.1 Elektron-Zyklotron-Resonanz-Ionenquelle

Die Elektron-Zyklotron-Resonanz (EZR)-Ionenquelle gehört zur Gruppe der Heißplasmaionenquellen und ist speziell konzipiert für die Erzeugung von mehrfach hochgeladenen Ionen. Die Ionisation der Atome oder Moleküle erfolgt durch Elektronenstoßionisation. Der prinzipielle Aufbau einer EZR-Ionenquelle ist in Abbildung 3.1 dargestellt.



Abbildung 3.1 Schematischer Aufbau einer EZR-Ionenquelle.

In eine Vakuumkammer wird Mikrowellenstrahlung mit einer festen Frequenz eingestrahlt und somit das Plasma erzeugt. Gasförmige Atome und Moleküle werden der Quelle über ein Gaseinlaßsystem zugeführt. Der Plasmaeinschluß erfolgt in axialer Richtung durch ein "magnetisches Spiegelfeld", das durch ein Solenoidspulenpaar erzeugt wird [11]. Die eingeschlossenen freien Elektronen des Plasmas absorbieren resonant elektromagnetische Wellen und nehmen somit kinetische Energie auf. Das Plasma wird mit 14,5 GHz Mikrowellenstrahlung "geheizt", wodurch die schnellen Elektronen im Plasma stoßen und hochgeladene Ionen erzeugen. Die erzeugten Ionen werden durch sukzessive Einfach- und Mehrfachionisation weiter zu höheren Ladungszuständen ionisiert. Mit Hilfe einer Ziehelektrode werden die hochgeladenen Ionen aus der Plasmakammer abgesaugt. Die EZR-Ionenquelle liefert ein breites Spektrum an Ladungszuständen. Da sie mit geringen Gasmengen arbeitet ist sie besonders geeignet für die Erzeugung von Ionen radioaktiver, seltener und teurer Elemente.

Die Ar<sup>8+</sup> Ionen werden im Experiment mit einer Absaugspannung von 5 kV und 16 kV extrahiert, was nach Gleichung:

$$v[a.u.] = \sqrt{\frac{E_{kin}/m}{25keV/u}}$$
(3.1)

einer lonengeschwindigkeit von 0,2 a.u. und 0,36 a.u. entspricht.

Die Analyse des abgesaugten Ionenstrahls erfolgt mit Hilfe eines Analysiermagneten, der den Strahl nach dem Masse-Ladungs-Verhältnis (m/q) trennt. Zur optimalen

Diagnose und zur relativen Lagebestimmung des Strahls im Strahlrohr werden Faraday-Tassen und Blenden verwendet. Als weiteres wird der extrahierte Ionenstrahl auskollimiert und in die Reaktionskammer geleitet. Die Reaktion wird dann mit der oben erwähnten COLTRIMS-Technik durchgeführt.

### **3.2 Die Coltrims-Methode**

Bei diesem Aufbau wird der in der EZR erzeugter Projektilstrahl mit einem gekühlten Gastarget unter einem Winkel von 90° im Spektrometer gekreuzt. Dieser Bereich stellt die Reaktionszone dar. Die dabei entstehenden Ionen, die so genannten Rückstoßionen, werden durch ein homogenes, elektrisches Feld auf einen orts- und zeitauflösenden Detektor projiziert. Das gestreute und umgeladene Projektil trifft ebenfalls auf einen orts- und zeitauflösenden Detektor. Aus diesen Informationen können die einzelnen Impulse jedes Reaktionsteilnehmers bestimmt werden.

Bei der Detektion der Fragmente werden ihre Flugzeiten und Auftrefforte gemessen. Nach der Rekonstruktion der Teilchentrajektorien kann man auf die Anfangsimpulse der Teilchen schließen. Aus diesen können dann weitere Größen, wie z.B. die Energie oder Winkelverteilungen berechnet werden, durch welche man auf die Stellung und die Bewegung des Moleküls während der Reaktion zurück schließen kann. Ein weiterer Vorteil der COLTRIMS Methode liegt darin, dass die Daten "rückgängig" bearbeiten werden können. Während der Durchführung des Experiments werden die Rohdaten als so genannte Listmode-Daten aufgenommen, aus denen mit Hilfe eines Computerprogramms die Spektren angefertigt werden können. Dafür werden die Daten geeicht und nur diese ausgewählt, die Antworten auf die für das Experiment relevante Fragen liefern.

Für das in dieser Arbeit beschriebene Experiment wurde folgendes Koordinatensystem ausgewählt: der Projektilstrahl zeichnet die z-Achse, die so genannte Strahlachse, aus, die y-Achse ist durch die Jetrichtung und die x-Achse ist durch die Flugzeitrichtung der Rückstoßionen gegeben. Die Reaktionszone stellt den Ursprung des Koordinatensystems dar. Es ist ein rechtshändiges Koordinatensystem, in welchem alle drei Vektoren orthogonal zueinander stehen.



Abbildung 3.2 Das Koordinatensystem.

### 3.3 Das Gastarget

Um die thermische Bewegung und dadurch auch die thermische Impulsverteilung im Gastarget zu reduzieren wird dieses mit Hilfe des Prinzips des "Überschallgasjets" gekühlt.

Das Gas expandiert adiabatisch isochor mit einem bestimmten Vordruck durch eine 30 µm Düse in die Expansionskammer. Bei einem Vordruck des Gases, der im Vergleich zu dem Umgebungsdruck in der Expansionskammer viel größer ist, kommt es zu einer Überschallexpansion. Die nahezu gesamte thermische Energie wird in eine gerichtete Bewegungsenergie umgewandelt, was zu einer starken Kühlung des Targets führt. Die Geschwindigkeit der Gasatome kann mit folgender Formel berechnet werden [17, 30]:

$$v_{jet} = \sqrt{\frac{5kT_0}{m_T}}$$
(3.2)

wobei k die Boltzmannkonstante,  $T_0$  die Umgebungstemperatur und m die Masse des Targetmoleküls sind.

In der Expansionskammer wechselwirkt das ausströmende Gas mit dem Restgas. Der Gasstrahl bekommt die Form einer cos<sup>4</sup>-Verteilung. Es bilden sich verschiedenen Zonen mit unterschiedlichen Eigenschaften, wie z.B. eine Übergangszone bestehend aus Schock- und Kompressionswellen und die so genannte "zone of silence" aus, die auf folgendem Bild dargestellt sind:



**Abbildung 3.3** Schematische Darstellung der Überschallexpansion in Form einer cos<sup>4</sup>-Verteilung [14].

In der "zone of silence" bewegen sich die Gasatome in die Expansionsrichtung ohne miteinander zu stoßen. Die Länge dieser Zone, lässt sich aus dem Vordruck  $p_0$ , dem Druck in der Expansionskammer  $p_E$  und dem Düsendurchmesser  $d_D$  berechnen [24]:

$$l = \frac{2}{3} \sqrt{\frac{p_0}{p_E} d_D}$$
(3.3)

Mit steigendem Restgasdruck  $p_E$  wird die "zone of silence" immer kleiner, was durch Abnahme der internen Bewegungsenergie der Targetatome aufgrund der häufigeren Stöße mit dem Restgas verursacht wird [13, 17, 29].

Wird in die "zone of silence" ein Skimmer - eine speziell angefertigte Blende an der Spitze eines Hohlkegels - eingetaucht, so schneidet man einen Gasstrahl heraus, der einen wohl definierten Impuls in Ausbreitungsrichtung hat und somit ein sehr gut lokalisierbares Gasjet liefert.

### 3.4 Jet und Vakuumsystem

Das oben beschriebene System, mit nur einer Expansionskammer und einem Skimmer zur Definition des Gasstrahls, ist ein einstufiges Jetsystem. Um die Kollimation und die innere Bewegung des Taregetgases zu verbessern und dadurch eine noch schärfere Definition der Impulse zu erreichen wird ein 2-stufiges Jetsystem verwendet. Bei diesem Aufbau strömt das Gas durch den Skimmer in die zweite Expansionskammer, in der ein besseres Vakuum als in der ersten Stufe herrscht. Der Gasstrahl weitet sich aufgrund seiner Divergenz auf und wird dann durch eine weitere Blende (0,4 mm) beschnitten.

Nach der Reaktion strömt das Gas durch eine kleine Öffnung in den so genannten Jetdump, wo es separat abgepumpt und das Rückströmen in die Targetkammer vermieden wird.



Abbildung 3.4 Zweistufiges Jetsystem [23].

Alle Vakuumkammern werden mit Turbomolekularpumpen evakuiert. Der Jetdump und die Targetkammer werden mit einer Leybold Turbovac 361 und eine Pfeiffer TMU 261 Pumpe, die erste Expansionskammer mit einem Rootspumpensystem mit 2000 I Saugleistung und die zweite Expansionskammer mit einer Pfeiffer TMU 260 Pumpe abgepumpt.

Bei einer Raumtemperatur von 300K und der Masse des Targets bekommt man aus der Gleichung (3.2) die Jetgeschwindigkeit  $v_{jet} = 2490 \cdot 10^{-6}$  mm/ns =  $11,4 \cdot 10^{-4}$  a.u. und somit einen Impuls der Gasatome von  $p_{jet} = 4,2$  a.u. Der Abstand zwischen der Düse und Blende beträgt 30 mm. Damit lässt sich eine Ausweitung des Gasstrahls in

Höhe der Targetzone von 1,27 mm berechnen. Für die Jetdichte im Reaktionsort ergibt sich daraus ein Wert von ca.  $2 \cdot 10^{11}$  Teilchen/cm<sup>2</sup>.

# 3.5 Strahlführung und Kollimation

Das Experiment wurde am EZR-Ionenbeschleuniger des Instituts für Kernphysik in Frankfurt am Main durchgeführt. Der Ionenstrahl, der jeweils mit 5 und 16 kV Energie aus der Quelle beschleunigt wird, wird vor der Reaktionszone kollimiert und gereinigt. Die wesentlichen Bestandteile des Experimentsaufbaus sind auf dem folgenden Bild zu sehen:



Abbildung 3.5 Der experimentelle Aufbau.

Direkt hinter dem Analysiermagneten, der den Ionenstrahl aus der EZR nach dem Masse-Ladungsverhältnis in das gewünschte Strahlrohr lenkt, befindet sich der erste Kollimator. Im weiteren Verlauf des Strahlrohrs wurde ein magnetischer Steerer eingesetzt. Er besteht aus zwei mit einem Weicheisenkern verbundenen Spulen. Die beiden Spulen werden in Reihe geschaltet. Durch den Stromfluss lässt sich im Inneren des Strahlrohrs ein annähernd homogenes Magnetfeld erzeugen, so dass eine fehlerhafte vertikale Strahllage, die durch das lange Strahlrohr und den daraus resultierenden großen Abstand zwischen dem Ablenkmagneten und der nächsten möglichen Ablenkeinheiten entsteht durch Ablenkung des Strahls nach oben bzw. unten ausgeglichen werden kann.



Abbildung 3.6 Schematische Darstellung der Strahlführung und Kollimation.

Hinter dem ersten Kollimator befindet sich ein Zweiter, der zur Reduzierung der Schlitz-Streuung eingesetzt werden kann. Direkt dahinter ist eine Faraday-Tasse eingebaut mit welcher der Strahlstrom kontrolliert werden kann und sich die Strahllage sowie die Strahlintensität im Strahlrohr optimieren lassen. Kurz vor der Kammer sind zwei weitere Kollimatoren eingebaut, von denen der Erste zur Definition der Strahlachse eingesetzt wird und in Verbindung mit dem ersten Kollimator im Strahlrohr zur Definition der Strahlachse dient, während der Zweite wieder als Anti-Schlitz-Streuung verwendet wird. Vor dem Eingang zur Targetkammer befindet sich nochmals eine Faraday-Tasse, die eine letzte Kontrolle des Strahlstroms und der Strahlage vor der Reaktionszone ermöglicht.

Nach der Kollimation wird der Strahl am Eingang der Targetkammer kurz vor dem Spektrometer mit einem Kondensatorplattenpaar in horizontaler Richtung abgelenkt, um Verunreinigungen, wie unterschiedliche Ladungszustände, die durch Umladungen im Strahlrohr entstehen zu separieren. Dadurch wird der gewünschte Ladungszustand des Projektils ausgewählt.

Hinter der Reaktion werden die Projektile durch ein weiteres, vertikales Kondensatorplattenpaar abgelenkt. Direkt danach befindet sich die letzte elektrostatische Ablenkeinheit in der Targetkammer, mit der der Strahl in vertikaler Richtung nachjustiert werden kann. Mit diesen beiden letzten Ablenkeinheiten werden die während der Reaktion umgeladenen Projektile voneinander getrennt und nur diese auf dem Detektor projiziert, welche für den ausgewählten Reaktionskanal

relevant sind. Nach dem Austritt aus der Reaktionskammer befindet sich der Projektilstrahl in einem Strahlrohr, der die Targetkammer mit der Projektilkammer verbindet. Nach einer Strecke von ca. 2 m treffen die Projektile auf den Detektor.

Durch die eben beschriebenen Ablenkeinheiten ergibt sich für jeden Ladungszustand vor und nach der Reaktionszone ein Nachweisbereich auf dem Projektildetektor. Mit der Variation der angelegten Spannungen an den Kondensatorplatten kann man die Anzahl und die Auflösung der abgebildeten Ladungszustände je nach Ziel des Experiments bestimmen. So können bei koinzidenter Messung aller Teilchen ein oder mehrere Reaktionskanäle ausgewählt werden. Zusätzlich kann man bestimmte Bereiche auf dem Projektildetektor mittels einer Blende ausblenden und dadurch den für das Experiment relevanten Kanal hervorheben. Der in der EZR erzeugte Ar<sup>8+</sup> lonenstrahl hat eine enorme Intensität, sodass der relevante Reaktionskanal für den Doppelelektroneneinfang im Verhältnis zum Primärstrahl eine geringe Intensität aufweist und auf dem Detektor nicht sichtbar wäre. Der Primärstrahl wird dennoch als Hilfe für die Bestimmung der Lage der ausgewählten Reaktionsbereiche benutzt und dann in ein langes Röhrchen, das sich unter dem Detektor befindet, der so genannte Beamdump, abgelenkt und dort vernichtet.

## 3.6 Das Spektrometer

Das Funktionsprinzip eines Spektrometers besteht darin, das ionisierte Target und je nach Reaktion und Experimentanforderungen auch die Elektronen mit einem elektrischen oder einer Kombination aus einem elektrischen und einem magnetischen Feld aus der Targetzone auf einen entsprechenden Detektor abzusaugen. Aus den Flugzeiten und den Nachweisorten der Teilchen sollten dann die in der Reaktion übertragenen Impulse berechnet werden können.

Wichtig bei dem Entwurf eines Spektrometers ist seine Anpassung an das Experiment, also an die zu messenden Teilchen. Die passenden Größen für das elektrische Feld und die Länge der Beschleunigungs- und der Driftstrecke liefern Berechnungen, die mit dem Simulationsprogramm Simion durchgeführt werden können.



Abbildung 3.7 Schematischer Aufbau des Spektrometers.

#### 3.6.1 Bewegung im elektrischen Feld

Die Rückstoßionen werden durch das Anlegen einer Spannung am Spektrometer in Richtung des Detektors beschleunigt. Die Beschleunigung berechnet sich aus der Kraft, die auf das Ion im elektrischen Feld der Stärke  $\left|\vec{E}\right|$  wirkt:

$$F = ma = q \left| \vec{E} \right| \Longrightarrow a = \frac{q \left| \vec{E} \right|}{m}$$
(3.4)

wobei m die Masse und q die Ladung des Ions sind. Die Flugzeit der Ionen berechnet sich aus der Gleichung einer gleichmäßig beschleunigten Bewegung zu [15]:

$$t_{ges} = \frac{-v_0 + \sqrt{v_0^2 + 2ax_B}}{a}$$
(3.5)

wo  $v_0$  die Anfangsgeschwindigkeit des Rückstoßions, a die Beschleunigung und  $x_B$  die Länge der Beschleunigungsstrecke ist. Nach Einsetzen von (3.4) in die Gleichung (3.5) bekommt man für die Gesamtflugzeit:

$$t_{ges} = \frac{-p_0 + \sqrt{p_0^2 + 2qm \left| \vec{E} \right| x_B}}{q \left| \vec{E} \right|}$$
(3.6)

mit p<sub>0</sub> für den Anfangsimpuls. Die Ladung und die Masse des Ions sowie die Feldstärke sind feste Größen, die Beschleunigungsstrecke dagegen ist aus der Simulation zu bestimmen. Da zwei Rückstoßionen, die zu gleicher Zeit an verschiedenen Orten ionisiert werden, unterschiedliche Flugzeiten besitzen, wird im Allgemeinen eine Zeitfokussierung genutzt, die für das gleichzeitige Auftreffen der Ionen auf dem Detektor und damit für die Vermeidung der Ungenauigkeit in der Messung der Teilchenimpulse sorgt. Hierfür wird an das elektrische Feld eine feldfreie Driftstrecke angeschlossen. Sie wird durch einen elektrischen Kurzschluss der einzelnen Kupferplatten in diesem Bereich des Spektrometers realisiert. Ionen, die wegen ihres Entstehungsortes eine längere Strecke durchqueren, und auch mehr Energie im Feld aufnehmen, werden mit einer höheren Geschwindigkeit schneller in die Driftstrecke eintreten, als die Ionen, die weniger Energie aufnehmen. Die Länge der Driftstrecke wird so angepasst, dass alle gestarteten Ionen auch zur selben Zeit auf dem Detektor auftreffen.

Nach dieser Modifikation muss auch die Formel für die Flugzeit der Rückstoßionen um den Anteil für die Driftstrecke x<sub>D</sub> erweitert werden:

$$t_{ges} = t_B + t_D = \frac{-p_0 + \sqrt{p_0^2 + 2qm |\vec{E}| x_B}}{q |\vec{E}|} + \frac{x_D}{v_B}$$
(3.7)

Die kinetische Energie des Ions nach der Beschleunigung ergibt sich aus der Summe seiner Anfangsenergie und der im Feld aufgenommen Energie:

$$E_{kin} = E_0 + E_{Feld} = \frac{p_0^2}{2m} + q \left| \vec{E} \right| x_B = \frac{1}{2} m v_B^2$$
(3.8)

wobei  $v_B$  für die Geschwindigkeit des Rückstoßions nach der Beschleunigung steht und sich wie folgt berechnen lässt:

$$v_{B} = \sqrt{\frac{p_{0}^{2}}{m^{2}} + 2\frac{q}{m} \left| \vec{E} \right| x_{B}}$$
(3.9)

Nach dem Einsetzen der Geschwindigkeit v<sub>B</sub> in die Gleichung (3.7) bekommt man:

$$t_{ges} = \frac{-p_0 + \sqrt{p_0^2 + 2qm |\vec{E}| x_B}}{q |\vec{E}|} + \frac{m x_D}{\sqrt{p_0^2 + 2qm |\vec{E}| x_B}}$$
(3.10)

Für den Fall, dass die Anfangsenergie sehr viel kleiner ist, als die im Feld aufgenommene Energie der Rückstoßionen, lässt sich aus dieser Gleichung auf die Bedingung schließen, dass die Driftstrecke doppelt so groß wie die Beschleunigungstrecke sein muss, also  $x_D = 2x_B$  gilt.

### 3.6.2 Aufbau des Spektrometers

Das für diese Diplomarbeit angefertigte Spektrometer ist nur für den Nachweis der Rückstoßionen konzipiert worden, damit entfällt der Teil für die Elektronen. Es besteht aus aneinander gereihten Kupferplatten, mit einem jeweiligen Abstand von 5 mm. Um ein homogenes elektrisches Feld zwischen den Platten zu erzeugen, werden diese mit identischen Widerständen verbunden. Damit wird über das ganze Spektrometer ein Widerstand von 1100 k $\Omega$  erreicht und an den Enden des Spektrometers kann die benötigte Spannung von ca. ± 300V angelegt werden, sodass sich ein elektrisches Feld von 79,5 V/cm ergibt.



Abbildung 3.8 Darstellung des für dieses Experiment konzipierten Spektrometers.

# 3.7 Detektoren

Die Detektoren dienen zur elektronischen Registrierung der in der Reaktion entstandenen, geladenen Teilchen. Dabei werden die Flugzeit der Teilchen nach der lonisation und ihre Auftrefforte auf dem Detektor festgehalten. Die Anforderungen an die Detektoren beinhalten eine Zeitauflösung, die unter 1 ns liegt und die Verarbeitung der Raten von besser als 10 kHz.

Die verwendeten Detektoren bestehen aus zwei Micro-Channel-Plates (MCP's) und einer zweidimensionalen Delayline-Anode. Ein Micro-Channel-Plate ist eine 0,5 bis 1 mm dicke Scheibe, in der sich Kanäle von typischerweise 0,025 mm Durchmesser befinden. Der Durchmesser der MCP's lag in diesem Experiment bei 80 mm. Die MCP's haben die Funktion eines Elektronenvervielfachers. Die Oberfläche der Kanäle ist so präpariert, dass die Auslösearbeit für die Elektronen besonders niedrig ist. Sie sind nicht senkrecht, sondern unter einem Neigungswinkel, der bis zu 15° beträgt angeordnet um das Rückdriften der Elektronen zu verhindern. Wenn ein Ion auf die Innenseite eines Kanals trifft, wird ein Elektron ausgelöst. Dieses erfährt, aufgrund der zwischen Vorder- und Rückseite einer Platte angelegten Spannung von ca. 1 kV, eine Beschleunigung und stößt wieder mit der Kanalwand. Dieser Prozess wiederholt sich und es werden immer mehr Elektronen freigesetzt. Am Ende des Kanals entsteht dadurch eine Ladungslawine. Jedes MCP liefert eine Verstärkung von ca. 10<sup>3</sup> bis 10<sup>4</sup>. Durch Hintereinanderschalten mehreren MCP's kann man dieses Resultat vervielfachen. Bei einer Anordnung von zwei MCP's spricht man von einer Chevron-Anordnung. Dabei ist es wichtig, dass die Kanäle im Zickzack verlaufen, um erneut ein Rückdriften der Ionen zu vermeiden.



**Abbildung 3.9** Schematische Darstellung eines Micro Channel Plate (links) [23]; Delay-Line-Detektor mit 45 mm aktiver Fläche (DLD40).

Die Elektronenwolke, die auf der Rückseite der MCPs entsteht wird mit einem elektrischen Feld auf die Anode, die zur Ortsbestimmung verwendet wird, transportiert. Die Spannungen über den MCP's werden über hohe Widerstände angelegt, so dass beim Austritt der Elektronenlawine ein kurzer positiver Spannungspuls zustande kommt. Dieser wird kapazitiv ausgekoppelt und als Zeitsignal für die Flugzeitmessung definiert.

Die Delayline-Anode besteht aus einer quadratischen oder einer sechseckigen Trägerplatte, um welche zwei lange Drähte (in jeder Richtung einer) gewickelt sind. Die auf diese Anode auftreffende Ladungswolke, erzeugt einen Spannungspuls, der sich zunächst in beide Richtungen auf dem Draht ausbreitet. Aus den Zeiten, zu welchen die Signale an den Drahtenden ankommen, kann eine Zeitdifferenz und daraus der genaue Auftreffort bestimmt werden.

Damit die Dispersion des Signals minimiert wird, werden anstelle von einem Draht je zwei parallele Drähte in einer Ebene gewickelt. Einer davon liegt auf einem leicht höheren Potenzial und wird als Signaldraht bezeichnet. Der Andere wird als Referenzdraht benannt. Die Elektronen treffen nur auf den Signaldraht. Es bildet sich lokal die Spannungsdifferenz zwischen den beiden, und der Puls breitet sich wie auf einer Lecherleitung aus.

Eine Drahtebene liefert die Ortsinformation in einer Dimension, d.h. es sind mindestens zwei Drahtebenen notwendig, die um 90° zueinander gedreht und voneinander isoliert sind, um eine volle Rauminformation zu bekommen.

Im in dieser Diplomarbeit beschriebenen Experiment wurde ein 80er Projektildetektor mit einer zweidimensionalen Delayline-Anode und ein 80er Rückstoßionendetektor mit einer HEX-Anode eingesetzt. Eine HEX-Anode besteht aus drei unter 60° zueinander eingeordneten Drähten, die auf einer sechseckigen Trägerplatte umwickelt sind. Diese zusätzliche dritte Drahtebene dient zur Reduktion der Totzeit des Detektors und ermöglicht eine Rekonstruktion von Daten, falls nicht an allen Drahtenden Signale ankommen. Der Gebrauch einer HEX-Anode ist vor allem für Multi-Hit-Experimente sehr vorteilhaft.

### 3.8 Datenaufnahme

Aufgrund sehr hoher Ereignisraten auf den einzelnen Detektoren (ca. 11 kHz auf dem Projektil- und 4 kHz auf dem Recoildetektor) ist es unmöglich alle Daten aufzunehmen. Deswegen werden die für das Experiment relevanten Ereignisse schon vor der Aufnahme durch eine geeignete Koinzidenzverschaltung von dem Rest aussortiert. Daten werden mittels eines "time to digital converters" (TDC) in einem Computer gespeichert.

Von dem Projektildetektor gehen fünf (vier Anodensignale und ein MCP-Zeitsignal), von dem Recoildetektor sieben (sechs Anodensignale und ein MCP-Zeitsignal) Signale aus. Die Anodensignale, die aus Signal- und Referenzdraht gebildet werden, werden zuerst kapazitiv vom Gleichspannungspotenzial entkoppelt und die Pulse mittels eines Pulstransformators differenziert. Die differenzierten Signale werden mit einem Fast Amplifier (FA) verstärkt und anschließend mit einem "constant fraction discriminator" (CFD) in NIM-Singale ("Nuclear Instrument Modul" – logische Signale)
umgewandelt und mit einem "Time to Digital Converter" TDC von einem Computer aufgenommen. Das hier eingesetzte TDC besitzt eine Zeitauflösung von 500 ps und kann bis zu 16 Signale gleichzeitig speichern.

Das MCP-Zeitsignal wird ebenfalls mit einem schnellen Vorverstärker "fast amplifier" (FA) verstärkt und ebenfalls mit dem CFD zu einem NIM-Signal umgewandelt.

Über die Flugzeitdifferenz zwischen den Projektil- und dem Recoilsignal werden diejenigen Ereignisse rausgefiltert, die für den Elektroneneinfang relevant sind. Diese Bedingung wird mit einer logischen Schaltung realisiert, die im Nachfolgenden genauer erklärt wird. Das MCP-Signal des Projektildetektors wird mit einem Gate und Delay verbreitert und definiert somit das 10 µs breite Fenster, innerhalb dessen zwei MCP-Signale des Recoildetektors liegen sollen. Das MCP-Signal des ersten Recoilions ist das erste registrierte Signal. Dieses wird um 2 µs zeitlich verschoben und liegt somit in dem definierten Zeitfenster des Projektildetektors. Durch eine logische UND-Verschaltung werden diese Signale zu einer Koinzidenz verknüpft.

Da als Ergebnis der Zweifachelektroneneinfang beobachtet werden soll, werden nur solche Ereignisse aufgenommen, bei denen mindestens zwei Ionen auf dem Recoildetektor in dem nach der Simulation zu erwartenden Zeitfenster registriert worden sind.

Das Ausgangssignal aus der Koinzidenzverschaltung stellt das Triggersignal dar, welches die Aufnahme des TDCs startet. Das TDC wird im Common-Start-Modus betrieben. Dies bedeutet, dass er von dem Startsignal an, also dem eben definierten Trigger, alle Daten aufnimmt, die innerhalb des über die Koinzidenz festgelegten Zeitfensters (10 µs) liegen. Die Online-Analyse der Daten wurde mit dem Programm CoboldPc durchgeführt. Die weitere Bearbeitung der Daten fand mit dem Programm ROOT [9] statt.



- FA Fast Amplifier
- CFD Constant Fraction Discriminator
- GD Gate and Delay
- TDC Time to Digital Converter

Abbildung 3.10 Schematische Darstellung der Verschaltung für die Datenaufnahme.

# 4. Analyse der Rohdaten

Dieses Kapitel befasst sich mit der Analyse und der Kalibrierung der aufgenommenen Listmode-Daten. Mit "listmode" werden hier diejenigen Rohdaten bezeichnet, welche aus den für eine physikalische Reaktion ausgewählten Kanälen auf der Festplatte eines Computers gespeichert werden. Kalibrierung und entsprechende Umrechnungen der aufgenommenen Daten ermöglicht deren sinnvolle Verarbeitung und führt zur Erzeugung von Spektren in einer einfachen Geometrie und Koordinatensystem.

Die folgenden Abschnitte stellen dar, wie aus den gemessenen Zeitdifferenzen auf den Anodendrähten die Auftrefforte, Flugzeiten und daraus auch die Teilchenimpulse berechnet werden.

## 4.1 Kalibrierung

#### 4.1.1 Ortsverteilungen

Die mit dem TDC aufgenommen Daten, stellen noch keine Größe dar, aus welcher die Impulse direkt berechnet werden könnten. Die Informationen, die jedoch durch die aufgenommenen Daten bereits zur Verfügung stehen sind die Signallaufzeiten auf den einzelnen Anodendrähten. Aus den Differenzen der Laufzeiten kann der genaue Auftreffort eines Teilchens ermittelt werden. Dieser ergibt sich aus der Differenz der Zeitsignale  $t_{x1}$ ,  $t_{x2}$  und  $t_{y1}$ ,  $t_{y2}$  an den Drahtenden und einem Umrechnungsfaktor  $d_{x,y}$  zwischen der Laufzeit der Signale in ns und dem Ort in mm. Aufgrund der Geometrie des Detektors sind die einzelnen Drahtlagen unterschiedlich lang, wodurch sich die Umrechnungsfaktoren voneinander unterscheiden:

$$X = (t_{x1} - t_{x2}) * d_x \quad und \quad Y = (t_{y1} - t_{y2}) * d_y$$
(4.1)

Der Recoildetektor, eine so genannte HEX-Anode, besteht aus drei zueinander verdrehten Drahtebenen. Zur Berechnung des Auftreffortes beziehungsweise zum

Erstellen eines zweidimensionalen Detektor-Ortsbildes genügen die Informationen von zwei Drahtebenen. Die Signale der dritten Drahtebene dienen als redundante Informationsquelle im Falle, dass eines oder mehrere von den anderen Signalen zur Berechnung nicht eingesetzt werden können. Für die Berechnung der Auftrefforten bei einer HEX-Anode gilt:

$$u = (t_{x1} - t_{x2}) * d_1 \quad v = (t_{v1} - t_{v2}) * d_2 \quad und \quad w = (t_{z1} - t_{z2}) * d_3 + o$$
(4.2)

wobei auch hier d<sub>1,2,3</sub> die Skalenfaktoren sind, die von der Signalausbreitungszeit auf dem jeweiligen Draht abhängen und für das Erzielen eines kohärenten Bildes auf dem Detektor wichtig sind. o steht für ein anodenspezifisches Offset, welches die geometrische Mitte aller drei Drähten bestimmt.

Der Übergang in die kartesischen Koordinaten erfolgt mit den Gleichungen [31]:

$$Xuv = u + O_x$$

$$Yuv = \frac{1}{\sqrt{3}}(u - 2v) + O_y$$

$$Xuw = Xuv$$

$$Yuw = \frac{1}{\sqrt{3}}(w - u) + O_y$$

$$Xvw = (v + w) + O_x$$

$$Yvw = \frac{1}{\sqrt{3}}(w - v) + O_y$$
(4.3)

Hier stehen  $O_x$  und  $O_y$  für ein geometrisches Offset in kartesischen Koordinaten, welches eine nicht exakte Einbaulage des Detektors korrigieren soll.

Der Nullpunkt der Ortsverteilungen auf beiden Detektoren ist relativ einfach zu bestimmen. Auf dem Projektildetektor ist es für die betrachtete Reaktion der Mittelpunkt der Verteilung der gestreuten Projektile aus dem Kanal des Zweifachektroneneinfangs. Auf dem Recoildetektor wird er durch den Mittelpunkt der H<sup>+</sup>-Ionen-Verteilung gegeben.



**Abbildung 4.1** Links: Ortsbild des Doppelelektroneneinfangs auf dem Projektildetektor. Rechts: Ortsbild des Recoildetektors (Rohdaten). Der horizontale Strahlstrich wird durch das ionisierte Restgas im Spektrometer erzeugt. Der vertikale Fleck in der Detektormitte stellt den Jetfleck dar.

Abbildung 4.1 zeigt die Ortsbilder des Projektils- und Rückstoßionendetektors. Durch Setzen einer Bedingung auf den Flugzeitpeak der H<sup>+</sup>-Rückstoßionen und den Nachweisort der Ar<sup>6+</sup>-Projektile wurde dabei der Reaktionskanal für den Zweifachelektroneneinfang ausgewählt.

Auf dem Ortsbild des Projektildetektors ist eine Ausschmierung um den Mittelpunkt der Verteilung festzustellen, welche die Bewegung der umgeladenen Projektile im Absaugfeld des Spektrometers widerspiegelt. Auf dem Recoildetektor ist eine horizontale Verteilung zu sehen, welche die Projektion der Ionen darstellt, die sich durch Ionisation des Restgases entlang der Strahlachse gebildet haben (Strahlstrich). Der vertikale Fleck oberhalb dieses Streifens stellt den Jetfleck dar. Die Ausbreitung in die y-Richtung kommt durch eine Anfangsgeschwindigkeit der Gasmoleküle aus dem Jet zustande.

#### 4.1.2 Flugzeitbestimmung der Rückstoßions

Die Flugzeiten der Rückstoßionen werden relativ zum MCP-Signal des Projektils gemessen und aus diesen werden dann die Impulse der Rückstoßionen in Flugzeitrichtung berechnet. Außerdem werden diese Werte für die Eichung des elektrischen Feldes einbezogen. Die Flugzeitverteilung der Rohdaten weist mehrere Peaks auf. Der erste davon ist der Photonenpeak. Die Photonen entstehen direkt zum Reaktionsnullzeitpunkt und ihre Flugzeit ist im Vergleich zu der Flugzeit der Ionen viel kleiner, sodass sie direkt nach der Entstehung auf den Detektor treffen. Damit wird der Nullpunkt der Flugzeitverteilung bestimmt. Die Detektoreffizienz ist für Photonen ca. 3-mal niedriger als für Ionen. Dazu werden die Photonen nur mit dem geometrischen Raumwinkel von ca.  $0,5\pi$  nachgewiesen, was im Verhältnis der Ereignisse im Photonenpeak im Vergleich zu denen im Rücktoßionenflugzeitpeak zu sehen ist. Nach der Bestimmung der Lage des Photonenpeaks kann man diesen auf 0 schieben und bekommt damit eine sehr genaue Vorstellung des eigentlichen Nullpunkts der Flugzeitverteilung, der für die Messung mit einer Projektilgeschwindigkeit von 0,2 a.u. -4543,7 ns beträgt.

Der Schwerpunkt der jeweiligen Verteilung ist gegeben durch die Flugzeit der Rückstoßionen, die keinen Anfangsimpuls besitzen:

$$t_{ges}(p_0 = 0) = 2\sqrt{\frac{m}{q} \frac{2x_B}{\left|\vec{E}\right|}}$$
 (4.4)

Der erste Peak gehört den H<sup>+</sup>-Ionen (m=1, q=1), aus den Flugzeitunterschieden erkennt man, dass der zweite den H<sub>2</sub><sup>+</sup>-Ionen (m=2, q=1) entspricht.



**Abbildung 4.2** Flugzeitverteilung (erste Peak:  $H^+$ -Ionen, zweite Peak:  $H_2^+$ -Ionen) für die Messung mit 0,2 a.u. Projektilgeschwindigkeit.

### 4.2 Bestimmung des elektrischen Feldes

Das elektrische Feld kann aus den Schwerpunkten der Flugzeitverteilungen berechnet werden. Aus der Differenz der Nullpunkte (siehe Gleichung 4.4) der Verteilung, für  $p_0=0$ , gilt:

$$t_1 - t_2 = 2\sqrt{\frac{2x_B}{\left|\vec{E}\right|}} \left(\sqrt{\frac{m_1}{q_1}} - \sqrt{\frac{m_2}{q_2}}\right)^2$$
(4.5)

Daraus kann man das elektrische Feld wie folgt berechnen:

$$\left|\vec{E}\right| = \frac{8x_B}{(t_1 - t_2)^2} \left(\sqrt{\frac{m_1}{q_1}} - \sqrt{\frac{m_2}{q_2}}\right)^2$$
(4.6)

Nach Einsetzen der Masse-Ladungs-Verhältnisse mit den jeweiligen Flugzeitmittelpunkten der zwei Ionen ( $H^+$  und  $H_2^+$ ), erhält man für das elektrische Feld den Wert von:

$$\left|\vec{E}\right| = 79,06\frac{V}{cm} \tag{4.7}$$

### 4.3 Bestimmung der Impulse

Mit der Kenntnis der Flugzeiten und den dazugehörigen Auftrefforten der in der Reaktion entstandenen Teilchen ist es möglich die Startimpulse der Rückstoßionen zu berechnen. Dabei werden auch die geometrischen Abmessungen des Spektrometers berücksichtigt. Der Impuls wird ermittelt, in dem man die Bewegungsgleichungen der Teilchen in dem Spektrometerfeld umformt und die Trajektorie der Teilchen innerhalb diesen rekonstruiert.

Für die Rückstoßionen setzten sich die Gleichungen für die Trajektorien aus der Beschleunigungs- und der Driftstrecke zusammen. Die Impulskomponenten in der Ortsrichtung werden aus den folgenden Bewegungsgleichungen gewonnen:

$$y_r = \frac{p_{r,y}}{m_r} t_{ges}$$

$$z_r = \frac{p_{r,z}}{m_r} t_{ges}$$
(4.8)

Aus 4.8 erhält man für die Komponenten  $p_{r,y}$ ,  $p_{r,z}$  des Anfangsimpulses  $\vec{p}_r$  eines lons der Masse m<sub>r</sub> und der Ladung q<sub>r</sub>:

$$p_{r,y} = \frac{m_r y_r}{t_{ges}}$$

$$p_{r,z} = \frac{m_r z_r}{t_{ges}}$$
(4.9)

Für die Impulskomponente in die Flugzeitrichtung spielt das elektrische Feld im Spektrometer eine Rolle. Die geladenen Teilchen erfahren in dem elektrischen Feld eine gleichförmige gleichmäßige Beschleunigung. Die Bewegungsgleichung in diesem Beschleunigungsfeld kann man folgendermaßen schreiben:

$$x_b = \frac{1}{2}at_b^2 + v_x^i t_b$$
 (4.10)

wobei  $t_b$  die Zeit bis zum Erreichen der Driftstrecke ist,  $x_b$  die Länge der Beschleunigungsstrecke und  $v_x^{i}$  die Anfangsgeschwindigkeit.

Nach der Zeit aufgelöst ergibt sich dann:

$$t_b = -\frac{v_x^i}{a} \pm \sqrt{\frac{v_x^{i2} + 2x_b a}{a^2}}$$
(4.11)

wobei die physikalischen, sinnvollen Ergebnisse nur bei positiven Vorzeichen möglich sind. Beim Erreichen der Driftstrecke besitzen die Teilchen die Geschwindigkeit  $v_b$ :

$$v_b = v_x^i + at_b \tag{4.12}$$

Nach Einsetzen von (4.11) in (4.12) bekommt man:

$$v_b = \sqrt{v_x^{i2} + 2x_b a}$$
(4.13)

Die Gesamtflugzeit setzt sich aus der Flugzeit in der Beschleunigungs- und in der Driftstrecke zusammen:

$$t_{ges} = t_b + t_d \tag{4.14}$$

mit

$$t_{d} = \frac{x_{d}}{v_{b}} = \frac{x_{d}}{\sqrt{v_{x}^{i2} + 2ax_{b}}}$$
(4.15)

und x<sub>d</sub> als die Länge der Driftstrecke.

Die Gesamtflugzeit ergibt sich dann zu:

$$t_{ges} = \frac{-v_x^i + \sqrt{v_x^{i2} + 2ax_b}}{a} + \frac{x_d}{\sqrt{v_x^{i2} + 2ax_b}}$$
(4.16)

Mit der Näherung kleiner Geschwindigkeiten  $v_x^{i^2} \ll 2ax_b$  und unter der Voraussetzung, dass die Driftstrecke doppelt so lange ist, wie die

Beschleunigungsstrecke  $x_d=2x_b$ , ergibt sich für die Gesamtflugzeit (Herleitung, siehe [22]):

$$t_{ges} = -\frac{v_x^i}{a} + 2\sqrt{\frac{x_d}{a}}$$
(4.17)

Für die Geschwindigkeitskomponente in die Flugzeitrichtung bekommt man schließlich:

$$v_{x,r} = v_x^i = 2\sqrt{ax_d} - at_{ges} = 2\sqrt{\frac{q|\vec{E}|x_d}{m}} - \frac{q|\vec{E}|}{m}t_{ges}$$
 (4.18)

und für die Impulskomponente:

$$p_{x,r} = 2\sqrt{q\left|\vec{E}\right|x_dm} - q\left|\vec{E}\right|t_{ges}$$
(4.19)

Für den Impuls der Rückstoßions gilt also insgesamt:

$$\vec{p}_{r} = \begin{pmatrix} 2\sqrt{q} |\vec{E}| x_{d} m - q |\vec{E}| t_{ges} \\ \frac{m_{r} y_{r}}{t_{ges}} \\ \frac{m_{r} z_{r}}{t_{ges}} \end{pmatrix}$$
(4.20)

Bei der nachgewiesenen Reaktion des Zweifachelektroneneinfangs:

$$Ar^{8+} + H_2 \rightarrow Ar^{6+} + 2H^+$$

gibt es im Endzustand drei Teilchen, die detektiert werden sollen, nämlich das Projektil und die zwei Rückstoßionen. Aufgrund der Impulserhaltung ist die Messung der Rückstoßionen ausreichend für ein kinematisch vollständiges Experiment. Für die weiteren Betrachtungen wird dies ausgenutzt um die Projektilimpulse zu bestimmen.

In Abbildung 4.3 ist zu erkennen, dass die Impulsverteilung der Teilchen symmetrisch um die Strahlachse liegt, da nur diese Richtung ausgezeichnet ist.



**Abbildung 4.3** Impulsverteilung um die Strahlachse. Wegen der Impulserhaltung und der besseren Auflösung auf dem Recoildetektor werden die Projektilimpulse über die Impulse der Rückstoßionen berechnet.

#### 4.3.1 Berechnung der Relativimpulse

Bei den in dieser Arbeit zu beschreibenden Ion-Molekül-Stößen spielt neben der Translationsbewegung und der Änderung des elektronischen Zustandes des Target-Moleküls, auch dessen Rotation und Schwingungen eine Rolle. Aus diesem Grund wird der Relativimpuls  $\vec{p}_{rel}$  der ionischen Fragmente zueinander bestimmt, aus welchem sich die Orientierung des Targetteilchens ablesen und die Aufbruchsenergie berechnen lässt.

Der Relativimpuls der Fragmente eines in einer Coulombexplosion auseinander brechenden diatomaren Moleküls ist gegeben durch die Differenz der Impulse der beiden Fragmente  $\vec{p}_1$  und  $\vec{p}_2$ :

$$\vec{p}_{rel} = \frac{\vec{p}_1 - \vec{p}_2}{2}$$
(4.21)

Daraus kann jetzt die kinetische Energie der Ionen (KER = Kinetic Energy Release) bestimmt werden, die frei wird, wenn das Molekül auseinander bricht:

$$E_{KER} = \frac{\left|\vec{p}_{rel}\right|^2}{2\mu}$$
(4.22)

wobei  $\mu = \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2}$  die reduzierte Masse der ionischen Targetfragmente ist.

## 4.4 Das Molekülsystem

Um Informationen bezüglich der Stellung des Targetmoleküls relativ zu der Strahlachse zu gewinnen wurde ein Koordinatensystem mit Kugelkoordinaten ausgewählt. Der Winkel  $\phi$  ist dabei der Azimutalwinkel in der x-y-Ebene,  $\theta$  ist der Polarwinkel zwischen der z-Achse und der Projektion des Gesamtimpulses in die x-z-Ebene.



Abbildung 4.4 Koordinatensystem mit Kugelkoordinaten.

Aus den berechneten Impulsen der Rückstoßionen können jetzt die Winkel bestimmt werden:

$$\tan \varphi_r = \frac{p_{rel,x}}{p_{rel,y}}$$

$$\cos \vartheta_r = \frac{p_{rel,z}}{|p_{rel}|} = \frac{p_{rel,z}}{\sqrt{p_{rel,x}^2 + p_{rel,y}^2}}$$
(4.23)

Mit den so gewonnenen Größen können Bedingungen auf das Molekül gesetzt werden, die dessen verschiedene Stellungen beim Aufbruch bezüglich der Strahlachse bestimmen lassen. Daraus resultieren Spektren, aus denen auf den Verlauf der Reaktion zurückgeschlossen werden kann.

Auch die Impulse des Projektils werden relativ zur Stellung der Molekülachse bestimmt:

$$\tan \varphi_{p} = \frac{p_{p,x}}{p_{p,y}}$$

$$\vartheta_{p} = \frac{p_{p,z}}{|p_{p,trans}|} = \frac{p_{p,z}}{\sqrt{p_{p,x}^{2} + p_{p,y}^{2}}}$$
(4.24)

Um die Projektilimpulse im Molekülsystem darzustellen ( $p_{x,mol}$ ,  $p_{y,mol}$ ) wird der Betrag des Projektilimpulses in der x-y-Ebene berechnet:

$$p_{x,mol} = p_{p,trans} \cos(\Delta \varphi) = \sqrt{p_{p,x}^{2} + p_{p,y}^{2}} \cos(\Delta \varphi)$$

$$p_{y,mol} = p_{p,trans} \sin(\Delta \varphi) = \sqrt{p_{p,x}^{2} + p_{p,y}^{2}} \sin(\Delta \varphi)$$
(4.25)

mit  $\Delta \varphi = \varphi_p - \varphi_r$  als Differenzwinkel zwischen den Polarwinkeln von Projektil und Recoil.

# 5. Ergebnisse

Im folgenden Kapitel werden die experimentellen Ergebnisse dargestellt. Diese sollen die Antworten auf die in der Motivation gestellten Fragen liefern. Aus den Impuls- und Energieverteilungen erhofft man sich Rückschlüsse auf den Verlauf des Zweifachelektroneneinfangs ziehen zu können.

Mit dem "over-barrier-Modell" lässt sich Abstand berechnen, bei welchem der erste bzw. zweite Elektroneneinfang stattfinden kann:

$$R_{i} = \left[2(q-i+1)^{\frac{1}{2}} \cdot i^{\frac{1}{2}} + i\right] / I_{i} \quad i = 1, 2, ..., N$$
(5.1)

wobei q die Ladung des Projektils, i die Anzahl der eingefangenen Elektronen und  $I_i$  die Ionisationsenergie sind.

Die Ionisationsenergie für den ersten Elektroneneinfang beim H<sub>2</sub>-Molekül beträgt 15,4 eV [13], und die zweite Ionisationsenergie liegt bei 36,4 eV. Die nach dieser Formel für dieses Experiment berechneten Abstände sind Projektilgeschwindigkeitsunabhängig und betragen für den ersten Elektroneneinfang 11,68 a.u. und für den zweiten Einfang 7,09 a.u.

Ziel dieser Arbeit ist, anhand zwei durchgeführten Messungen, mit 0,2 und 0,36 a.u. Projektilgeschwindigkeit, den Elektroneneinfang mit der Theorie vom "over-barrier-Modell" zu untersuchen. Dabei soll auf deren Verlauf eingegangen und entschieden werden, ob der Elektroneneinfang in diesem Experiment über ein- oder einen zweistufigen Prozess abgelaufen ist. Dafür werden die Ergebnisse jeweils zweier Fälle miteinander verglichen. Der erste Fall ist der Vergleich der gemessenen Werte bei zwei unterschiedlichen Projektilgeschwindigkeiten und einem festen Stoßparameter, woraus die größere Verteilung der kinetischen Energie zu erwarten ist. Der zweite Fall ist die Variation des Stoßparameters bei fester Geschwindigkeit, was die kleineren KER-Werte mit sich bringen soll.



**Abbildung 5.1** Schematische Darstellung der zu untersuchenden Fälle bei dem "overbarrier-Modell". Links: feste Stoßparameter bei unterschiedlichen Geschwindigkeiten; rechts: unterschiedliche Stoßparameter bei festen Geschwindigkeiten.

Die in diesem Kapitel vorgestellten Spektren und die Diskussion der Ergebnisse konzentrieren sich auf Zweifachelektroneneinfang und soweit nicht anders betont, wird die Formulierung Elektroneneinfang immer im Bezug auf Zweifachelektroneneinfang genommen.

## 5.1 Impulsverteilungen

Nach dem "over-barrier-Modell" wird die Flugbahn des Projektilions während des Stoßes in zwei Abschnitte unterteilt, in einen Abschnitt vor der Reaktionszone und in einen Abschnitt nach der Reaktionszone. Bei einem bestimmten Abstand R<sub>krit</sub>=R<sub>1</sub>, den man aus der Formel (5.1) berechnen kann, ist die Schwelle des Coulombpotenzials zwischen Wasserstoffmolekül und Projektil so weit abgesunken, dass das erste Elektron eingefangen werden kann. Bei dem Entfernen aus der Reaktionszone steigt die Schwelle des Coulombpotenzials wieder an, die Elektronen können aber noch bis zu dem Abstand R<sub>2</sub> von dem sich entfernenden Projektil eingefangen werden. Nach dem Stoß befindet sich das ionisierte Wasserstoffmolekül dissoziativen Zustand aus zwei einfach einem welchem geladenen in Wasserstoffionen resultieren. Die Dissoziation der Protonen hat seinen Ursprung in der abstoßenden Wirkung des Coulombpotenzials und wird daher auch als Coulombexplosion bezeichnet. Die einzelnen Protonen werden dann als Recoilionen auf dem Recoildetektor nachgewiesen. Nach weiterem Bearbeiten der Daten kann auf die Impulse zurückgeschlossen und die kinetische Energie der Ionen (Kinetic Energy Release = KER) bestimmt werden (siehe Kapitel 4.3).

In der Impulsverteilung spiegeln sich die Energien der einzelnen Fragmente wieder. Ein fester Energiewert wird durch eine Impulskugel repräsentiert. In Abbildung 5.2 ist der Vergleich zwischen den Impulsüberträgen für die Messungen mit zwei unterschiedlichen Projektilgeschwindigkeiten dargestellt. Zu sehen ist, dass sich für die größere Projektilgeschwindigkeit die Lage der meisten Impulsüberträgen nach innen, also zu kleineren Impulsen hin verschiebt. Zu den gleichen Ergebnissen kommt man bei der Betrachtung der Kurven für die Stoßparameter (Abbildung 5.3). Bei den zwei Messungen ist eine deutliche Verschiebung des Maximums zu den kleineren Werten des Stoßparameters bei steigender Geschwindigkeit festzustellen. Für größere Geschwindigkeiten ist auch eine Verschiebung zu größeren KER-Werten zu erwarten, was in Abbildung 5.4 zu erkennen ist. Der direkte Vergleich der Maxima dieser Verteilungen bestätigt diese Voraussage. Die kleineren Peaks im Bereich von Energiewerten unter 5 eV sind als Untergrundereignisse zu betrachten und haben für die Resultate keine weitere Bedeutung.



**Abbildung 5.2** Impulsverteilung des Projektils (über die Rückstoßionen berechnet) in xy-Richtung in atomaren Einheiten für den Doppelelektroneneinfang. Links: Ergebnisse für die Messung mit 0,2 a.u. Projektilgeschwindigkeit, die maximalen Impulsüberträge liegen um den Wert 14,9 a.u.; rechts: Messung mit 0,36 a.u. Projektilgeschwindigkeit, die maximalen Impulsüberträge liegen um den Wert 8,9 a.u.



**Abbildung 5.3** Verteilungen der Stoßparameter: links für die Messung mit 0,2 a.u. Projektilgeschwindigkeit; rechts für die Messung mit 0,36 a.u. Projektilgeschwindigkeit.



**Abbildung 5.4** Kinetische Energie der Rückstoßionen. Links: Messung mit 0,2 a.u. Projektilgeschwindigkeit, das Maximum liegt bei 18,6 eV; rechts: Messung mit 0,36 a.u. Projektilgeschwindigkeit, das Maximum liegt bei 19,9 eV.

Um die Aussagen über die Dynamik der Reaktion machen zu können ist es nötig die Ergebnisse in einem molekülfesten Koordinatensystem zu betrachten. Die Verteilung der Projektilionen wird dabei relativ zur Molekülachse beobachtet. Durch die Drehung des rechtshändigen Koordinatensystems und Darstellung der Ionenimpulse in diesem "neuen" Koordinatensystem gewinnt man Informationen bezüglich der Stellung der Molekülachse während der Reaktion. Durch das Setzen geeigneter Bedingungen, können die experimentellen Ergebnisse genauer untersucht und daraus mehr Informationen bezüglich des Reaktionsablaufes gewonnen werden. Auf den folgenden Bildern sind die Impulsverteilungen im Molekülsystem (gedrehtes Koordinatensystem) für beide Messungen und unter verschieden Stellungen des Targetmoleküls zu dem Projektilstrahl dargestellt.

Die Abbildung 5.5 stellt die Impulsverteilung des Projektils für den allgemeinen Fall des Zweifachelektroneneinfangs der beiden Messungen dar, ohne Festlegung weiteren Bedingungen.



**Abbildung 5.5** Impulsverteilung des Projektils im Molekülsystem. Links: Messung mit 0,2 a.u. Projektilgeschwindigkeit; rechts: Messung mit 0,36 a.u. Projektilgeschwindigkeit.

Aus diesen Bildern ist es ersichtlich, dass das Projektil viel öfters nach oben und unten streut, anstatt links oder rechts. Die Betrachtung der Abbildungen mit den Bedingungen auf die Stellung der Molekülachse zu der Strahlachse liefert weitere Ergebnisse bezüglich der Reaktionsdynamik. Das Koordinatensystem wird dabei so gewählt, dass die Molekülachse gleichzeitig die x-Achse ist. Im Folgenden sind die Verteilungen des Projektilimpulses dargestellt und zwei Fälle verglichen, in dem die Molekülachse senkrecht (das linke Bild) und parallel (das rechte Bild) zu der Strahlachse festgehalten wird.



**Abbildung 5.6** Impulsverteilung des Projektils mit der Unterscheidung der Stellung des Moleküls bezüglich des Projektilstrahls. Links: das Molekül steht senkrecht zur Strahlachse; rechts: das Molekül steht parallel zu der Strahlachse. Wegen der Ähnlichkeit der Verteilungen für beide Messungen, sind hier nur die Ergebnisse für den Fall der 0,2 a.u. Projektilgeschwindigkeit dargestellt.

Im Falle der parallelen Stellung des Moleküls zu der Strahlachse sind die Impulse isotrop verteilt. Bei der senkrechten Stellung des Moleküls zu der Strahlachse ist die Impulsverteilung ebenfalls isotrop, jedoch ist dies für den Fall kleinerer Impulsüberträge gewährleistet. Bei großen Impulsüberträgen kommt es zu Verzerrungen im Impulsübertragsbild, deren Ursache nicht eindeutig bestimmt werden kann.

#### 5.2 Energiespektren

Im folgenden Abschnitt werden Spektren der kinetischen Energie der Fragmente in Abhängigkeit des Impulsübertrages auf das Projektil und abhängig von der Stellung des Moleküls zu der Strahlachse dargestellt. Alle Ergebnisse beziehen sich weiterhin auf den Zweifachelektroneneinfang. Bei näherer Betrachtung kann man feststellen, dass die KER-Verteilung aus mehreren Kanälen besteht, die von dem Betrag des Transversalimpulses abhängig sind.

In Abbildung 5.7 ist die kinetische Energie der Fragmente gegen den Transversalimpuls des Projektils aufgetragen. Für den Fall der senkrechten Stellung des Moleküls zu der Strahlachse ist zu sehen, dass ein größerer Transversalimpuls zu leicht erhöhten Aufbruchsenergien führt. Dies hat seinen Ursprung in der

Berechnung der Energien, bei welcher der auf das Molekül übertragene Impuls auf beide Fragmente gleichmäßig verteilt wird. Bei sehr nahen Zusammenstößen kann aber der Transversalimpuls aus der Streuung in die Relativbewegung der Fragmente umgesetzt eigentlichen zueinander werden, was von der Energie der betrachtet Coulombexplosion getrennt werden müsste [5]. Für höhere Projektilgeschwindigkeiten wird dieses Effekt noch deutlicher.

#### a) 0,2 a.u. Projektilgeschwindigkeit



b) 0,36 a.u. Projektilgeschwindigkeit



**Abbildung 5.7** Transversalimpuls relativ zu der Energie der Ionen; a) Messung mit 0,2 a.u. Ionengeschwindigkeit; b) Messung mit 0,36 a.u Ionengeschwindigkeit; links: das Molekül steht parallel zu dem Projektilstrahl; rechts: die senkrechte Stellung des Moleküls zu der Strahlachse.

Die folgenden Verteilungen stellen die kinetische Energie der Fragmente dar. Für den Spezialfall, dass der Stoßparameter dem Abstand von dem zweiten Elektroneneinfang gleich ist, und das Molekül parallel bzw. senkrecht zu dem Projektilstrahl während der Reaktion ausgerichtet ist, kann der Transversalimpuls p<sub>trans</sub> ausgerechnet werden. Dieser Wert steht auch für den maximalen Impulsübertrag und den minimalen Stoßparameter. Dazu wird die Formel für den Stoßparameter, die aus der Rutherrfordschen Streuformel hergeleitet werden kann [21], benutzt:

$$b = \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0} q_{proj} q_{rec} \frac{2}{v_p p_{trans}}$$
(5.2)

wobei q<sub>proj</sub>, q<sub>rec</sub> die Ladung des Projektils bzw. des Recoilions, v<sub>p</sub> die Projektilgeschwindigkeit, p<sub>trans</sub> der Transversalimpuls und der Faktor  $e^2/4\pi\epsilon_0$  in atomaren Einheiten gleich 1 a.u. sind.

Bei sehr großen Stoßparametern, wie auch in diesem Experiment, ist die Rutherford-Formel nicht mehr exakt erfüllt. Diese Formel wird hier nur für die grobe Abschätzung der gesuchten Größen, wie z.B. des Transversalimpulses benutzt.

Aus 5.2 ergibt sich für den Transversalimpuls:

$$p_{trans} = \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0} q_{proj} q_{rec} \frac{2}{v_p b}$$
(5.3)

Als q<sub>rec</sub> wurde die Ladung 1, als q<sub>proj</sub> die Ladung 6 eingesetzt. Für den aus dieser Formel berechneten Transversalimpuls werden dann die Spektren der kinetischen Energie in Abhängigkeit von den verschiedenen Stellungen des Moleküls zu dem Ionenstrahl betrachtet. Um eine ausreichend gute Statistik zu bekommen wird ein Bereich von ±1 a.u. um den berechneten Wert ausgewählt. Abbildung 5.8 stellt schematisch dieses Verfahren dar. Das Spektrum der Impulsverteilung bezieht sich auf die Messung mit 0,2 a.u. Projektilgeschwindigkeit. Der mit der Formel 5.3 berechneter Transversalimpuls beträgt 11,3 a.u. und der für das KER-Spektrum ausgewählte Bereich dementsprechend 10,3 bis 12,3 a.u.



**Abbildung 5.8** Links: Schematische Darstellung des Spezialfalls, für den maximalen, nach dem "over-barrier-Modell" berechneten Stoßparameter; rechts: Impulsverteilung mit dem aus der Formel 5.3 gekennzeichnetem Transversalimpuls.

Für die zweite durchgeführte Messung mit 0,36 a.u. Projektilgeschwindigkeit ist der Impulsübertrag gleich 6,3 a.u. und der um diesen Wert so ausgewählte Bereich, dass der Stoßparameter für beide Messungen gleich bleibt, zwischen 5,7 und 6,8 a.u.

Die Analyse der KER-Verteilungen unter Berücksichtigung dieser Bedingungen lässt auf eine Energieänderung der Ionen während der Reaktion schließen. Die Auswahl zweier weiterer Impulsüberträge, welche bei kleineren Stoßparametern als die durch "over-barrier-Modell" berechneten Abständen das liegen, liefert die Vergleichsspektren. Um auch hierfür genügend Statistik für zu bekommen, werden wieder Impulsbereiche um den berechneten Wert ausgewählt. In Abbildung 5.9 sind die daraus resultierten Verteilungen für die Messung mit 0,2 a.u. Projektilgeschwindigkeit dargestellt. Dabei stellt die linke Reihe den Fall dar, bei welcher sich das Molekül parallel zu der Strahlachse befand. Die rechte Reihe zeigt dementsprechend Spektren bei denen die senkrechte Stellung des Moleküls bezüglich des Projektilstrahls betrachtet wird. Mit einem Strich ist die kinetische Energie für den Gleichgewichtsabstand des Wasserstoffmoleküls markiert. In Abbildung 5.10 sind dementsprechend die Vergleichsspektren bei einer Projektilgeschwindigkeit von 0,36 a.u. zu sehen. Mit Hilfe einer gaußschen Verteilung wurden aus diesen Spektren die maximalen Energiewerte ermittelt und für die Analyse der Ergebnisse in einer Tabelle zusammengefasst.

a) b ~ 7,09 a.u.





b) b ~ 8,9 a.u.





**Abbildung 5.9** Die kinetische Energie der Ionen in eV für die Messung mit 0,2 a.u. Projektilgeschwindigkeit. Links: die parallele Stellung des Moleküls zu der Strahlachse; rechts: senkrechte Stellung des Moleküls.

a) b ~ 7,09 a.u.





b) b ~ 8,9 a.u.





**Abbildung 5.10** Die kinetische Energie der Ionen in eV für die Messung mit 0,36 a.u. Projektilgeschwindigkeit. Links: die parallele Stellung des Moleküls zu der Strahlachse; rechts: senkrechte Stellung des Moleküls.

Stellung des Moleküls zu dem Strahl	KER <sub>max</sub> [eV] p <sub>trans</sub> ~ 9 a.u. (b ~ 7 a.u.)	KER <sub>max</sub> [eV] p <sub>trans</sub> ~ 7 a.u. (b ~ 9 a.u.)	KER <sub>max</sub> [eV] p <sub>trans</sub> ~ 3 a.u. (b ~ 20 a.u.)
0,2 a.u. Projektilgeschwindigkeit			
Parallel	16,96	17,2	17,41
Senkrecht	17,78	17,6	17,81
0,36 a.u. Projektilgeschwindigkeit			
Parallel	19,55	19,45	19,42
Senkrecht	18,28	18,26	18,29

**Tabelle 5.1** Maximale Werte der kinetischen Energie der Fragmentionen in Abhängigkeit von der Projektilgeschwindigkeit, Stellung des Moleküls im Bezug auf den Strahl und der Änderung des Stoßparameters.

Aus den Ergebnissen, die in der Tabelle 5.1 zusammengefasst sind, ist ersichtlich, dass für eine feste Projektilgeschwindigkeit von 0,2 a.u. die Energie der Ionen mit zunehmenden Stoßparameter ansteigt. Dies widerspricht den Erwartungen eines sichtbaren Abfalls der kinetischen Energie, was daran liegen sollte, dass mit den größeren Stoßparameter eine längere Zeitspanne zwischen den zwei Elektroneneinfängen in Verbindung steht, während deren das Molekül weiter auseinander schwingen kann. Nach der Coulombexplosion werden dann kleinere Impulsüberträge bzw. eine geringere daraus folgende kinetische Energie der Ionen erwartet. Für die zweite Messung bei einer Projektilgeschwindigkeit von 0,36 a.u. werden die Erwartungen bestätigt. In diesem Fall ist ein kleiner Abfall der kinetischen Energie mit steigendem Stoßparameter zu erkennen. Für den Fall, wenn das Molekül während der Reaktion senkrecht zu dem Strahl ausgerichtet war ist die Interpretation der Ergebnisse schwieriger, da ein eindeutiger Abfall bzw. Anstieg der kinetischen Energie nicht festgestellt werden kann. Bei Änderung der Geschwindigkeit aber gleich bleibenden Stoßparametern steigt die kinetische Energie mit Erhöhung der Geschwindigkeit. Bei dem Verlauf des Experiments mit der größeren Geschwindigkeit ist die Zeit zwischen den beiden Elektroneneinfängen und dadurch auch die Zeit für die Schwingung des Moleküls kürzer, was zu einem größeren Energieübertrag während der Coulombexplosion führt. Hier ist der Einfluss bei paralleler Stellung des Moleküls bezüglich der Strahlachse größer, da bei dieser Orientierung des Wasserstoffmoleküls das Projektil dichter an den beiden Kernen vorbeifliegen kann.

## 5.3 Potenzialkurven

Aus den mit Formel 5.3 berechneten Impulsüberträgen, 11,3 a.u. für die Messung mit 0,2 a.u. Projektilgeschwindigkeit und 6,3 a.u. für die Messung mit der 0,36 a.u. Projektilgeschwindigkeit, kann die maximale Zeit berechnet werden, die zwischen dem ersten und dem zweiten Elektroneneinfang vergeht. Nach dem "overbarrier-Modell" kann der Einfang sowohl auf dem "weg in" als auch auf dem "weg out" möglich sein. Deswegen kann der genaue Zeitpunkt der Reaktion nicht vorausgesehen werden. In dieser gesamten Zeit ist die Bewegung des angeregten Moleküls möglich. Die Analyse dieses Zeitwertes mit Hilfe von Potenzialkurven ermöglicht eine Aussage bezüglich der Dynamik des Moleküls.



**Abbildung 5.11** Korrelationsdiagramm von  $H_2$ , dargestellt sind die Grundzustandsfunktion und die Potenzialkurven der angeregten Zustände des Wasserstoffmoleküls [29].

Die maximale Zeitspanne zwischen dem ersten und dem zweiten Elektroneneinfang kann durch geometrische Überlegungen und der Annahme, dass sich das Projektil gleichförmig am Target vorbei bewegt, berechnet und beträgt für die Messung mit 0,2 Projektilgeschwindigkeit 1,1 fs. Für die Messung a.u. mit 0,36 a.u. Projektilgeschwindigkeit liegt die Dauer zwischen den beiden Elektroneneinfängen bei 0,6 fs. Diese Werte liegen weit unter der Oszillationsdauer des Wasserstoffmolekülions, welche ca. 8 fs [8] beträgt. Es ist somit sehr wahrscheinlich,

dass der Zweifachelektroneneinfang nicht wie zuerst erwartet in einem zweistufigen Prozess sondern in einem direkten Prozess abläuft.

# Zusammenfassung

In dem in dieser Arbeit vorgestellten Experiment wurde die Reaktion zwischen molekularem Wasserstoff und hochgeladenen langsamen Ar<sup>8+</sup>-Ionen untersucht. Ein Augenmerk wurde hierbei auf den Zweifachelektroneneinfang gelegt.

Anhand zwei durchgeführten Messungen mit unterschiedlichen Projektilgeschwindigkeiten 0,2 und 0,36 a.u. und unter zur Hilfenahme des so genannten "over-barrier-Modells" sollte die Dynamik des H<sub>2</sub>-Moleküls während des Elektroneneinfangprozesses untersucht werden. Aus den daraus resultierten Ergebnissen sollte die Frage, ob der Einfangsprozess simultan oder sequentiell stattgefunden hat beantwortet werden.

Durch einfache Berechnungen kann mit dem "over-barrier-Modell" die Distanz, welche das Projektil zwischen dem ersten und dem zweiten Elektroneneinfang zurücklegt, in Abhängigkeit von dem Stoßparameter ermittelt werden. Dieser Wert ist der Hauptbestand aller weiteren Berechnungen.

Die Spektren der Impulsüberträge in Abhängigkeit von der Ausrichtung des Moleküls zu dem Projektilstrahl haben gezeigt, dass das Projektil meist über und unter der Molekülachse streut anstatt links oder rechts am Molekül vorbei zu fliegen.

Die Auftragung der kinetischen Energie der Fragmente gegen den Transversalimpuls des Projektils (Abbildung 5.6) hat ergeben, dass größere Impulsüberträge für den Fall der senkrechten Stellung des Moleküls zu der Strahlachse, zu leicht erhöhten Aufbruchsenegien führt, was durch die Berechnung der Energie zu erklären ist.

Aus der Verteilung der kinetischen Energie (KER), welche die durch Dissoziation entstandenen Wasserstoffionen nach dem Stoß besitzen, kann auf den Verlauf der Reaktion zurück geschlossen werden.

Ein Vergleich der KER-Spektren für unterschiedliche Stoßparameter (Abbildung 5.8 und 5.9) bei festen Geschwindigkeiten hat für die zwei Messungen widersprüchliche Ergebnisse gezeigt. Zu erwarten war eine Verkleinerung der Energiewerte bei ansteigendem Stoßparameter. Dies konnte jedoch nur für den Fall in welchem die Projektilgeschwindigkeit 0,36 a.u. betrug bestätigt werden. Die Abweichung bei der ersten Messung kann durch statistische Fehler kommen, da die Anzahl der Messwerte, die für diese Messungen als "richtige" angenommen worden, durch das Setzen von verschiedenen Bedingungen stark reduziert wurde.

Letztendlich wurde anhand der Variation der Stoßparameter bei festen Projektilgeschwindigkeiten die Zeitskala während des Stoßes eingeschätzt. Es wurde die Annahme getroffen, dass der Zweifachelektroneneinfang als zweistufiger Prozess abgelaufen ist und die maximal mögliche Zeitspanne zwischen dem ersten und dem zweiten Elektroneneinfang berechnet. Der Vergleich der daraus resultierten Werte mit der Oszillationsdauer des Wasserstoffmoleküls hat die getroffene Annahme widerlegt. Beide Messungen sind laut "over-barrier-Modell" als einstufiger, schneller Übergang einzuordnen.

Das Ziel dieser Diplomarbeit war die Untersuchung der Reaktion des Zweifachelektroneneinfangs mit einem Augenmerk auf den Unterschied zwischen dem simultanen und dem sequentiellen Verlauf. Die Ergebnisse haben einen zweistufigen Prozess mit hoher Wahrscheinlichkeit ausgeschlossen. Obwohl alle theoretischen Anforderungen für den Einsatz des "over-barrier-Modells" erfüllt worden sind, hat sich herausgestellt, dass die gemessenen Werte nicht immer eindeutig interpretiert werden konnten. Das lässt darauf schließen, dass das Experiment noch verbessert werden kann, um mögliche Fehlerquellen zu reduzieren. Eine Möglichkeit zur Verbesserung wäre der Einbau eines Elektronendetektors, oder aber die Änderung des Projektilions. Auch längere Messzeiten wären statistisch gesehen von Vorteil. Für die Zukunft sind weitere Experimente mit veränderten Projektilgeschwindigkeiten Targetgasen und geänderten geplant.

# Literatur

- [1] P.W. Atkins, Ch.A. Trapp, *Physikalische Chemie*,
  4. Auflage, Wiley-VCH Verlag, Weinheim, 2006
- [2] A. Bárány, G. Astner, H. Cederquist, H. Danared, S. Huldt, P. Hvelplund, A. Johnson, H. Knudsen, L. Liljeby, K.-G. Rensfelt,
   Absolute cross sections for multi-electron processes in low energy Ar<sup>q+</sup>-Ar collisions: Comparison with theory,
   Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B9, 397, 1985
- [3] M. Barat, M.N. Gaboriaud, P. Roncin, *Multiple Electron Capture by Highly Charged Ions (electron-nucleus versus electron-electron interactions),* Physica Scripta, Vol. T46, 210, 1993
- [4] N. Bohr, J. Lindhard,K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 28, 7, 1954
- [5] A. Czasch,
   Fragmentierung diatomarer Moleküle durch langsame Streuprozesse,
   Diplomarbeit, Johann Wolfgang Goethe Universität Frankfurt am Main,
   Lawrence Berkeley National Laboratory Berkeley, 1999
- [6] W. Demtröder, *Experimentalphysik, Bd. 3. Atome, Moleküle und Festkörper*,
  3. Auflage, Springer Verlag, Berlin, 2005

- [7] W. Demtröder, Molekülphysik,
   *Theoretische Grundlagen und experimentelle Methoden*,
   Oldenburger Verlag, München Wien, 2003
- [8] Th. Ergler, B. Feuerstein, A. Rudenko, K. Zrost, C.D. Schröter, R. Moshammer, J. Ullrich,
   *Quantum-Phase Resolved Mapping of Ground-State Vibrational D<sub>2</sub> Wave Packets via Selective Depletion in Intense Laser Pulses,* Physical Review Letters, 97, 103004, 2006
- [9] European Organization for Nuclear Research www.cern.ch
- [10] H. Haken, H.Ch. Wolf, Molekülphysik und Quantenchemie, Springer Verlag, Berlin-Heidelberg, 1997
- [11] O. Hohn,

Planung und Aufbau der Strahlführung für nachbeschleunigte, hochgeladene Ionen an der Frankfurter EZR-(VE)RFQ-Anlage, Diplomarbeit, Johann Wolfgang Goethe Universität Frankfurt am Main, 1999

[12] O. Jagutzki,

Entwicklung eines Rückstoßionenimpulsspektrometers zur Untersuchung der Dynamik im Heliumatom, Doktorarbeit, Johann Wolfgang Goethe Universität Frankfurt am Main, 1994

- [13] M. Kimura, N. Kobayashi, S. Ohtani, H. Tawara, *State-selective one-electron capture from H and H<sub>2</sub> by slow, highly stripped C, N, O and Ne ions,* J. Phys. B: At. Mol. Phys. 20, 3873, 1987
- [14] K. Kreidi,

Photodoppelionisation von  $H_2$  – eine Analogie zum Doppelspalt, Diplomarbeit, Johann Wolfgang Goethe Universität Frankfurt am Main, 2005 [15] D. Meschede,*Gerthsen Physik*,23. Auflage, Springer Verlag Berlin, 2006

- [16] D.R. Miller,
   Free Jet Sources in Atomic and Molecular Beam Methods,
   Oxford University Press, Oxford New York, 1988
- [17] A. Niehaus,

A classical model for multiple-electron capture in slow collisions of highly charged ions with atoms, J. Phys. B, 19, 2925, 1986

- [18] A. Niehaus, Physics of slow, highly charged ion atom collisions
- [19] N. Neumann, D. Hant, L. Ph. Schmidt, J. Titze, M. Schöffler, O. Jagutzki, H. Schmidt-Böcking, R. Dörner,
   Untersuchung der Reaktionsdynamik bei Stößen von langsamen,
   hochgeladenen Ionen mit H<sub>2</sub>- und CO<sub>2</sub>- Molekülen,
   IKF Jahresbericht, 2007
- H. Ryufuku, K. Sasaki, T. Watanabe,
   Oscillatory behaviour of charge transfer cross sections as a function of the charge of projectiles in low-energy collisions,
   Physical Review A, Vol. 21, 745, 1980
- [21] L. Schmidt,

Effekte molekularer Symmetrien in der Elektronenemission bei langsamen He<sup>2+</sup>-He-Stößen: Eine kinematisch vollständige experimentelle Untersuchung, Doktorarbeit, Johann Wolfgang Goethe Universität Frankfurt am Main, 2000

in

[22] M. Schöffler,

> Entwicklung und Aufbau eines Abbildungssystems zur Messung von Elektronen jenseits niedriger Energien,

Diplomarbeit, Johann Wolfgang Goethe Universität Frankfurt am Main, 2002

[23] M. Schöffler,

> Grundzustandskorrelationen und dynamische Prozesse untersucht in Ion-Helium-Stößen,

Doktorarbeit, Johann Wolfgang Goethe Universität Frankfurt am Main, 2006

- [24] G. Scoles, D. Bassai, U. Buck, D. Lainé, Atomic and Molecular Beam Methods, Volume I, Oxford University Press, New York /Oxford, 1988
- [25] S.E. Sobottka, M.B. Williams, Delay Line Readout of Microchannel Plates, IEEE Trans. Nucl. Sct., 35, 348, 1988
- [26] J. Titze,

Untersuchung des Elektronentransfers in p-D<sub>2</sub>-Stößen, Der Doppelspaltversuch mit einem diatomaren Molekül, Diplomarbeit, Johann Wolfgang Goethe Universität Frankfurt am Main, 2004

[27] Th. Weber,

> Impulstransfer in Proton-Heliumstößen untersucht mit hochauflösender Rückstoßionenimpulsspektroskopie, Diplomarbeit, Johann Wolfgang Goethe Universität Frankfurt am Main, 1997

[28] Th. Weber, Untersuchung der verschränkten Bewegung freier Elektronenpaare emittiert Ein-Zweizentren Coulomb-Potenzialen aus und Photoabsorptionsprozessen, Doktorarbeit, Johann Wolfgang Goethe Universität Frankfurt am Main, 2003

- [29] R. M. Wood, A. K. Edwards, M. F. Steuer, Phys. Rev. A, 4, 1977
- [30] M. Wutz, H. Adam, W. Walcher, *Theorie und Praxis der Vakuumtechnik*, Friedrich Vieweg & Sohn Verlag, Braunschweig, 1988
- [31] www.roentdek.com
- [32] www.weltderphysik.de
- [33] www.wikipedia.de

# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei all den Leuten bedanken, die mein Studium und das Entstehen meiner Diplomarbeit ermöglicht haben und mich in dieser Zeit auf alle möglichen Art und Weisen unterstützt haben.

Als erstes geht mein Dankeschön an Reinhard Dörner und Horst Schmidt-Böcking. Danke für die Aufnahme in die Arbeitsgruppe und die Hilfestellung bei allen meinen Fragen und die Begeisterung für Physik, die ihr durch eure Arbeit weitergebt.

Vielen Dank an Nadine, die mich vom ersten Tag an begleitet, meine Tausend Fragen ertragen und keine ohne Antwort gelassen hat. Danke für deine Hilfe beim Experiment und beim Zusammenschreiben, für deine Zeit und Geduld, für die Korrektur und die moralische Unterstützung während meiner Diplomandenzeit.

Danke an Jasmin, Kathi, Lothar, Markus, Till, Lutz, Odi, Totti und Hong-Keun, die sich mit meinen Fragen bezüglich der Diplomarbeit immer wieder beschäftigt haben und mir sehr geholfen haben. Vielen Dank an Till für das Durchlesen und die Kritik der Arbeit. Mein besonderer Dank geht an Lutz und Achim für die Einweihung in ROOT und die ständige Unterstützung bei der Arbeit am Rechner.

Danke an Alle aus unserer Arbeitsgruppe, die während meiner Messzeit die Schichten übernommen und das Experiment behütet haben.

Vielen Dank an Anja, Hong-Keun, Achim, Tilo und Timo, die mir den Wechsel von polnisch auf Deutsch und die ersten Semestern in Frankfurt erleichtert haben. Danke Anja für die Gespräche "über Gott und die Welt" und das gemeinsame Lernen.
Zum Schluss möchte ich mir bei meiner Familie bedanken, der in Deutschland und in Polen. Zuerst die zwei wichtigsten Personen in meinem Leben. Danke dir Daniel für deine Liebe und Geduld, für die volle Unterstützung während meines Studiums, für den Mut, den du mir immer wieder zugesprochen hast und dafür gesorgt hast, dass ich es nicht aufgegeben habe. Danke, dass du immer für mich da bist. Danke dir Liz, dass du während der Schwangerschaft so brav die Nächte am Rechner mitgemacht hast und dass du jetzt schläfst, damit ich endlich fertig werden kann...Du bist mein größter Schatz.

Dziękuje mojej Rodzinie w Polsce, Rodzicom za umożliwienie podjęcia studiów. Dziekuje Tobie Mamo za to, że zawsze dla mnie jesteś i za to, jak mnie wychowałaś. Dziękuje Darkowi i Małgoch za pomoc we wszystkich problemach związanych z fizyką i komputerami, a także za rozmowy i wsparcie duchowe. Bez was nie skończyłabym tej pracy.