

# Ladungsändernde Stöße mit Ionen und Photonen Von Atomen zu Molekülen

## Habilitationsschrift

vorgelegt beim

Fachbereich 07

(Mathematik und Informatik, Physik, Geographie)

der

Justus-Liebig-Universität Gießen

von

Dr. Harald Bräuning

aus Hofheim / Ts.

Institut für Atom- und Molekülphysik

Justus-Liebig-Universität Gießen

2004



# Zusammenfassung

Diese Arbeit beschäftigt sich mit den elementaren Prozessen des Ladungstransfers und der Ionisation bei der Wechselwirkung von Atomen und Molekülen mit Ionen und Photonen. Die technologische Entwicklung der letzten zwei Jahrzehnte sowohl im Bereich der Beschleuniger<sup>1</sup> als auch im Bereich der experimentellen Methoden<sup>2</sup> erlauben heutzutage eine sehr detaillierte Untersuchung dieser Prozesse bis hin zu kinematisch vollständigen Experimenten. Derart hochdifferenzielle Messungen sind für strenge Überprüfung der vielfältigen theoretischen Modelle unerlässlich. Die Entwicklung *multi-hit* fähiger Detektoren für Elektronen und Ionen in Verbindung mit COLTRIMS ermöglicht es erstmals, die gleichen detaillierten Experimente auch für einfache Moleküle durchzuführen. Bei Molekülen ergibt sich mit der Orientierung der Molekülachse ein weiterer Freiheitsgrad, der einen signifikanten Einfluss besitzt.

Die Untersuchung der Photodoppelionisation, d.h. die Doppelionisation durch ein einzelnes Photon, an Zweielektronensystemen ist besonders geeignet, die Elektron-Elektron-Wechselwirkung zu studieren. Durch das Photon wird eine wohldefinierte Energie aber, bei Photonenenergien nahe der Doppelionisationsschwelle, kein Impuls übertragen. *Post-collision* Effekte, wie sie beim Ion-Atom-Stoß auftreten können, sind nicht möglich. Mittels COLTRIMS war es erstmals möglich, die Impulse aller drei Teilchen (Kern und zwei Elektronen) im Kontinuum nach der Photodoppelionisation von Helium mit  $4\pi$  Raumwinkel zu messen. Nahe der Doppelionisationsschwelle erlaubt die Wannier-Theorie eine qualitativ gute Beschreibung der Endzustandsverteilung. Dabei bietet es sich an, statt der Bewegung zweier Elektronen im Feld des He-Kernes die Bewegung des Kernes auf dem Sattel zwischen den Potentialen der sich entfernenden Elektronen zu betrachten. Die Messungen zeigen, daß diese Wannier-Beschreibung auch noch bei Photonenenergien von 20 eV über der Schwelle anwendbar ist. Vergleiche der absoluten Wirkungsquerschnitte mit *ab-initio* Rechnungen, die versuchen die Coulomb-Wechselwirkung aller drei Teilchen bei asymptotisch großen Abständen richtig zu beschreiben, zeigen, daß die Endzustandsverteilung auch stark durch die Wechselwirkung bei kleinen Abständen beeinflusst wird. Die sehr gute Übereinstimmung von *convergent close-coupling* Rechnungen mit den experimentellen Daten bestätigt dies.

Das molekulare Analogon zu Helium ist das D<sub>2</sub>-Molekül. Hier zeigt sich ein deutlicher Einfluss der Molekülachse auf die Emissionscharakteristik der Elektronen, der auch erhalten bleibt, wenn über den Impuls eines der beiden Elektronen und alle möglichen Orientierungen der Molekülachse integriert wird.

Experimente mit Ion-Ion-Stößen erlauben Untersuchungen an maßgeschneiderten Stoßsystemen. So können nur in Ion-Ion-Stößen reine Einelektronensysteme bei unterschiedlich-

---

<sup>1</sup>z.B. das Schwerionensynchrotron (SIS) der Gesellschaft für Schwerionenforschung (GSI) in Darmstadt oder Synchrotronstrahlungsquellen der 3. Generation wie die *Advanced Lightsource* (ALS) in Berkeley, USA

<sup>2</sup>z.B. die *Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy* (COLTRIMS)

sten Kernladungen untersucht werden. Einelektronensysteme haben für die Theorie den Vorteil, daß die schwer zu behandelnde Elektron-Elektron-Wechselwirkung nicht vorhanden ist. So ist es auch nur im Ion-Ion-Stoß möglich, den Ladungstransfer in einem reinen Einelektronensystem mit einem Molekül zu untersuchen. Die gemessenen absoluten Wirkungsquerschnitte im Stoßsystem  $\text{He}^{2+} + \text{H}_2^+$ , integriert über alle Orientierungen der Molekülachse, zeigen eine gute Übereinstimmung mit einem einfachen Modell von Shingal und Lin basierend auf der Linearkombination atomarer Orbitale, wobei jegliche Vibrationsanregung des Moleküls vernachlässigt wird. Vergleiche mit genaueren quantenmechanischen Rechnungen hingegen deuten auf einen starken Einfluss der Vibrationsanregung hin. Auch bei der Abhängigkeit des Wirkungsquerschnittes von der Ausrichtung des Moleküls ergeben sich signifikante Abweichungen zu dem einfachen Modell.

Neben Ion-Ion-Stößen mit Wasserstoff-Molekülonen wurden auch Stöße zwischen zwei Fulleren-Ionen erstmals in dieser Arbeit untersucht. Fullerene können als das Bindeglied zwischen einfachen Molekülen wie Wasserstoff und komplexen Systemen bzw. Festkörpern angesehen werden. Dabei wurde, allerdings bei höheren Relativgeschwindigkeiten, für das Stoßsystem  $\text{C}_{60}^{2+} + \text{C}_{60}^+$  der gleiche absolute Wirkungsquerschnitt gemessen wie von Rohmund und Campbell für das Stoßsystem  $\text{C}_{60}^+ + \text{C}_{60}$ . Bei diesen schweren Molekülen spielen Bahneffekte aufgrund der Coulomb-Abstoßung im Ion-Ion-Stoß somit keine Rolle. Basierend auf einem Modell frei beweglicher Löcher auf einer unendlich gut leitenden Kugel entwickelten Presnyakov *et al.* eine quantenmechanische Behandlung, die beide Stoßsysteme gleichzeitig sehr gut beschreibt. Die hohe Beweglichkeit und gegenseitige Abstoßung der Löcher führt im Ion-Ion-Stoß zu einer Anordnung, bei der die Ladung zweier der drei Löcher vollständig abgeschirmt wird. Das aktive Loch sieht somit ein Potential, welches mit jenem im Stoß mit dem neutralen Fulleren vergleichbar ist.

Es besteht aber auch ein anwendungsbezogenes Interesse an Wirkungsquerschnitten für ladungsändernde Stöße bei schweren Ionen wie z.B. Blei oder Uran. Moderne Teilchenbeschleuniger und Speicherringe sollen immer intensivere Ionenstrahlen beschleunigen und speichern. Dabei kann es zu Stößen zwischen den Ionen im Strahl kommen, deren Schwerpunktsenergie im keV-Bereich liegt bei Strahlenergien von einigen GeV. Ändert sich bei diesen Stößen die Ladung der Ionen, so gehen diese im nächsten Umlenkmagneten der Strahlführung verloren. Dies kann nicht nur die maximal erreichbare Strahlintensität beschränken, sondern auch eine signifikante Energiemenge lokal auf der Strahlrohrwandung deponieren. Für die meisten kernphysikalischen oder atomphysikalischen Experimente werden Ionen mit relativ hohen Ladungszuständen verwendet, bei denen ladungsändernde Stöße vernachlässigbar sind. Für viele andere Experimente wie z.B. in der Plasmaphysik kann es aber aufgrund der Raumladungsgrenze von Vorteil sein, mit niedrig geladenen Ionen zu arbeiten. Hier zeigen die Messungen, daß für Ladungszustände bis  $q = 4+$  bei den für die Zukunft geplanten Strahlintensitäten die Verluste durch ladungsändernde Stöße nicht vernachlässigbar sind. Auch die Ionisation spielt im Vergleich zum Ladungstransfer bei einigen Systemen eine entscheidende Rolle. Aufgrund der Vielelektronen-Natur der schweren Ionen und der geringen Schwerpunktsenergie bei Stößen im Ionenstrahl sind theoretische Untersuchungen derzeit nahezu unmöglich. Hier ist man somit auf experimentelle Daten angewiesen.

# Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	iii
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2 Experimentelle Methoden</b>	<b>13</b>
2.1 <i>Crossed-Beams</i> Experimente . . . . .	13
2.2 COLTRIMS . . . . .	22
<b>3 Einfache atomare Systeme</b>	<b>31</b>
3.1 Photodoppelionisation von He . . . . .	31
3.2 Ladungstransfer in Eielektronensystemen . . . . .	43
3.3 Ladungstransfer in Quasi-Eielektronensystemen . . . . .	49
<b>4 Einfache Moleküle</b>	<b>55</b>
4.1 Photodoppelionisation von D <sub>2</sub> . . . . .	56
4.2 Ion-Ion-Stöße mit H <sub>2</sub> <sup>+</sup> . . . . .	61
4.2.1 Totale Wirkungsquerschnitte . . . . .	63
4.2.2 Differentielle Wirkungsquerschnitte . . . . .	68
4.3 Elektroneneinfang in HeH <sup>+</sup> . . . . .	72
<b>5 Fullerene</b>	<b>79</b>
5.1 Stöße zwischen Fulleren-Ionen . . . . .	80
5.2 Stöße mit He <sup>2+</sup> . . . . .	90
5.3 Stöße hochgeladener Ionen mit neutralem C <sub>60</sub> . . . . .	92
<b>6 Homonukleare Stöße schwerer Ionen</b>	<b>101</b>
6.1 Elektronentransfer . . . . .	102
6.1.1 Mehrfach geladene Ionen . . . . .	103
6.1.2 Einfluss metastabiler Ionen . . . . .	107
6.1.3 Vergleich mit der Theorie . . . . .	114
6.2 Ionisation . . . . .	117
6.3 Intensitätsverluste in Beschleunigern und Speicherringen . . . . .	123
<b>7 Ausblick</b>	<b>133</b>

A Atomare Einheiten	139
Literaturverzeichnis	141
Index	159
Danksagung	163

# Kapitel 1

## Einleitung

*Unter Forschung auf dem Gebiet der reinen Wissenschaft verstehe ich Forschung, die ohne jede Absicht auf künftige Anwendung auf industrielle Probleme gemacht wird, sondern einzig unter dem Gesichtspunkt der Erweiterung unserer Kenntnisse der Naturgesetze. Ich möchte nur ein Beispiel von der 'Nützlichkeit' dieser Art von Forschung geben . . . — ich meine die Anwendung von Röntgenstrahlen in der Chirurgie.*

J.J. Thomson (1916)<sup>1</sup>

Diese Worte von J.J. Thomson haben auch heute nicht im geringsten an ihrer Gültigkeit verloren. Und sie gelten ganz besonders auch für die atomare Stoßphysik. Gerade in einem solchen Bereich, welcher der Alltagserfahrung relativ weit entrückt ist, ist es schwierig dem Aussenstehenden begreiflich zu machen, welchen Sinn es hat, für das Auge unsichtbare Gebilde wie einzelne Atome mit ebenso unsichtbaren Teilchen wie Ionen, Elektronen und Photonen<sup>2</sup> zu beschießen. Doch sind gerade diese Teilchen die Sonden, mit denen wir grundlegendes Wissen über die Natur auf atomarer und bei entsprechend hohen Energien sogar auf subatomarer Ebene erhalten. Sie erlauben es, präzise Information über den Aufbau der Atomhülle zu erhalten und Theorien wie z.B. die Quantenelektrodynamik mit erstaunlicher Genauigkeit zu testen. Doch atomare Stoßprozesse spielen nicht nur im Mikrokosmos eine Rolle. Unser gesamtes Wissen über das Universum beruht auf der elektromagnetischen Strahlung<sup>3</sup>, die wir empfangen. Die wichtigste Komponente ist dabei immer noch das sichtbare Licht, welches die Atome in Sternen oder interstellaren Gaswolken aussenden. Das Kontinuum des Sonnenspektrums zum Beispiel wird stark durch Absorption von Strahlung tieferer Schichten durch H<sup>-</sup> Ionen geprägt, welche durch Anlagerung von Elektronen

---

<sup>1</sup>Teil einer Ansprache, die Sir J.J. Thomson im Namen einer Abordnung des Conjoint Board of Scientific Studies im Jahre 1916 an Lord Crewe, damals Lord President of the Council, gerichtet hat. Text aus: R.L. Weber und E. Mendoza, 1981, *Kabinett physikalischer Raritäten* (Vieweg Verlag) p. 4. Original: G.P. Thomson, 1965, *J.J. Thomson and the Cavendish Laboratory in His Days* (Doubleday, New York) p. 167–168.

<sup>2</sup>Üblicherweise beinhaltet der Begriff 'atomare Stoßphysik' nur Stöße mit Ionen und Elektronen. In dieser Arbeit werden jedoch auch die Photonen mit Energien oberhalb einiger 10 eV dazugerechnet.

<sup>3</sup>Die Neutrino-Astronomie steht erst in ihren Anfängen.

an neutralen Wasserstoff selbst in der Photosphäre der Sonne bei Temperaturen um 5770 K in ausreichender Anzahl entstehen können (Aller, 1971). In der Sonnenkorona werden Linien von stark ionisierten Elementen wie z.B.  $\text{Fe}^{9+}$  beobachtet. Bei der Entstehung dieser Ionen spielen Prozesse wie Photoionisation und Photorekombination, aber auch Elektronenstoßionisation oder di-elektronische Rekombination eine entscheidende Rolle (Scheffler und Elsässer, 1974).

Es ist also für viele Problemstellungen nicht ausreichend, lediglich die Struktur der Atome, d.h. Besetzung der Zustände und Bindungsenergien der Elektronen, zu kennen. Auch die Dynamik der Stoßprozesse selbst, angefangen vom totalen Wirkungsquerschnitt bis hin zur Winkelverteilung gestreuter und emittierter Teilchen, ist von großer Bedeutung. Während jedoch die statische Struktur und insbesondere die Übergangsenergien, d.h. Differenzen von Bindungsenergien, heute von theoretischer Seite sehr gut berechnet werden können, angefangen mit Multikonfiguration-Hartree-Fock Methoden bis hin zu QED Korrekturen, ist die theoretische Beschreibung eines atomaren Stoßprozesses oft noch problematisch. Bei Stößen mit Ionen kann die Bewegung der beiden Stoßpartner aufgrund der großen Masse klassisch als eine Coulomb-Trajektorie behandelt werden (*semiclassical approximation*, SCA) und nur die Wechselwirkung der Kerne mit den Hüllenelektronen wird quantenmechanisch beschrieben. Bei Stößen mit Elektronen ist dies nicht möglich. Ist die Geschwindigkeit der Projektilionen deutlich größer als die klassische Orbitalgeschwindigkeit des gebundenen Elektrons, so kann das Projektil als eine kurze, schwache Störung angesehen werden. Störungstheoretische Ansätze liefern hier eine gute Beschreibung des Stoßprozesses. Dies ist nicht der Fall bei geringen Projektilgeschwindigkeiten. Hier können sich die Elektronen auf das veränderliche Zwei-Zentren-Potential einstellen und es bilden sich molekulare Orbitale aus. Neben dem erheblich größeren Aufwand molekulare Orbitale zu berechnen, erschwert die zeitliche Veränderung des Zwei-Zentren-Potentials die Behandlung, da sich die Orbitale dadurch ständig ändern. Auch das  $n$ -Teilchen Kontinuum bei der Ionisation von mehr als einem Elektron ist oft nicht einfach zu behandeln. Bei niedrigen Elektronenenergien ist die Wechselwirkung der freien Elektronen untereinander signifikant und muss aufgrund der unendlichen Reichweite der Coulomb-Kraft über große Distanzen berücksichtigt werden. Die hierbei auftretenden Diskrepanzen zwischen Experiment und Theorie lassen sich vor allem auf diese Dynamik und die Vielteilchenaspekte des Stoßes zurückführen.

Die Untersuchung von atomaren Stößen ist somit immer noch ein sehr wichtiges und aktives Feld. Dabei ist die atomare Stoßphysik durchaus schon eine recht 'alte' Disziplin der 'modernen' Physik. Erste systematische Untersuchungen zur Elektronenstoßionisation von Atomen und Molekülen begannen bereits Ende des 19. und Anfang des 20. Jahrhunderts durch Experimente von Lenard (1894, 1904) und Bloch (1912) zur Ionisationseffizienz von Kathodenstrahlen in Gasen. Diese Experimente wurden begleitet von einer klassischen Beschreibung durch Thomson (1912). Seitdem wurden sowohl auf experimenteller als auch auf theoretischer Seite große Fortschritte erzielt. Moderne Ionenquellen und Beschleunigeranlagen stellen Ionen mit einem weitem Bereich an Ionisationsgraden bis hin zu nackten Ionen und Energien von einigen eV bis über 1 GeV/u für Stoßexperimente zur Verfügung. Die Entdeckung der Synchrotronstrahlung (Elder *et al.*, 1947b,a,

1948) und der Bau von Synchrotronstrahlungsquellen ermöglichen detaillierte Studien der Wechselwirkung von Photonen mit Materie. Die Anwendung von Synchrotronstrahlung zum Beispiel zur Materialanalyse und XUV Lithographie sei hier nur am Rande erwähnt.

Neben der raschen Entwicklung von Beschleunigeranlagen und Synchrotronstrahlungsquellen haben auch die experimentellen Methoden signifikante Fortschritte gemacht. Koinzidenztechniken sowie orts- und energieauflösende Detektorsysteme erlauben die Messung nicht nur totaler sondern auch hochdifferentieller Wirkungsquerschnitte bei einer Vielfalt an Stoßsystemen. Damit werden immer genauere Vergleiche mit der Theorie möglich. Ein großer Schritt in der Entwicklung experimenteller Methoden war dabei die *Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy* (COLTRIMS), die um 1990 von J. Ullrich *et al.* entwickelt wurde. Diese Methode erlaubt es, für eine Vielzahl von Systemen die Impulsvektoren aller Teilchen im Endzustand mit  $4\pi$  Raumwinkel zu messen. Von einem möglichen Spin der Teilchen abgesehen, erhält man so eine kinematisch vollständige Beschreibung. Die Methode wurde dabei bereits auf eine Reihe von verschiedenen Experimenten wie z.B. Elektronenstoßionisation, Ladungstransferreaktionen, Ionisation im Stoß mit langsamen und schnellen Ionen, Photodoppelionisation und viele andere mehr angewandt. Ein ausführlicher Überblick findet sich in Dörner *et al.* (2000). Eine kurze Beschreibung der Funktionsweise eines COLTRIMS Spektrometers wird in Kapitel 2.2 gegeben.

Von den vielen Einsatzgebieten von COLTRIMS werden in dieser Arbeit vor allem die Untersuchungen zur Photodoppelionisation von Helium (Kapitel 3.1) und  $D_2$  (Kapitel 4.1) vorgestellt. Unter der Photodoppelionisation ist die Doppelionisation eines Atoms oder Moleküls durch ein einzelnes Photon zu verstehen. Der Hamilton-Operator eines Elektrons im Feld eines Kernes mit der Ladung  $Z$  und im elektromagnetischen Feld mit dem Vektorpotential  $\vec{A}$  unter Vernachlässigung des Spins ist gegeben durch <sup>4</sup>

$$\hat{H} = \frac{1}{2}(-i\nabla + \vec{A})^2 - \frac{Z}{r} \quad (1.1)$$

Im Falle der Absorption (oder auch Emission im allgemeinen Falle) eines einzelnen Photons können alle Terme in  $\vec{A}^2$  vernachlässigt werden und die Terme, welche linear in  $\vec{A}$  sind, als Störung behandelt werden. Das Übergangsmatrixelement für linear polarisierte Photonen mit Polarisationsvektor  $\vec{\epsilon}$  ergibt sich dann zu

$$M_{fi} = \langle \psi_f | e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} \vec{\epsilon} \cdot \nabla | \psi_i \rangle \quad (1.2)$$

Die ebene Welle  $e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}$  kann entwickelt werden nach

$$e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} = 1 + i\vec{k} \cdot \vec{r} + \dots \quad (1.3)$$

Bei niedrigen Photonenenergien ist der Photonenimpuls vernachlässigbar und die Reihenentwicklung kann nach dem ersten Term abgebrochen werden. In dieser sogenannten Dipolnäherung ergibt sich dann für das Matrixelement

$$M_{fi} = \langle \psi_f | \vec{\epsilon} \cdot \nabla | \psi_i \rangle \quad (1.4)$$

---

<sup>4</sup>In dieser Arbeit werden atomare Einheiten (au) verwendet.

Diese Näherung ist für die in dieser Arbeit diskutierten Experimente bei Photonenenergien nur wenige 10 eV über der Doppelionisationsschwelle immer gültig. Im Falle der Doppelionisation durch ein Photon sind nun zwei Elektronen zu betrachten. Dabei zeigt es sich, daß die Doppelionisation im Bild unabhängiger Teilchen, wenn die Gesamtwellenfunktion als Produkt von Einteilchenwellenfunktionen geschrieben werden kann, unmöglich ist. Nur durch die Elektron-Elektron-Wechselwirkung kann es zur Photodoppelionisation kommen. Da bei diesem Prozess durch das Photon eine wohldefinierte Energie aber kein Impuls auf das System übertragen wird und das System auch nicht vor oder nach der Wechselwirkung, wie z.B. beim Ion-Atom-Stoß, gestört wird, ist die Photodoppelionisation das ideale Mittel, die Elektron-Elektron-Wechselwirkung sowohl im Zweielektronenkontinuum als auch im Grundzustand zu studieren. Wie oben schon erwähnt, ist dabei gerade die Behandlung des Kontinuums aufgrund der langreichweitigen Coulomb-Wechselwirkung ein Problem. Diese und die Symmetrien des Prozesses bestimmen wesentlich die Winkelverteilung der Elektronen im Endzustand. Rechnungen zeigen aber auch, daß die Berücksichtigung der Elektron-Elektron-Wechselwirkung in der Grundzustandswellenfunktion z.B. durch eine entsprechende Hylleraas-Entwicklung ebenfalls von Bedeutung ist, um eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment zu erhalten.

Während somit Auswahlregeln und Elektron-Elektron-Wechselwirkung die Elektronenverteilung im Kontinuum bei niedrigen Photonenenergien dominieren, ist dies bei hohen Photonenenergien nicht der Fall. Bei der Photodoppelionisation mit Photonen im keV Bereich wechselwirkt das Photon im wesentlichen mit einem Elektron, welches fast die gesamte Energie übertragen bekommt und sich sehr schnell entfernt. Das zweite Elektron findet sich dann in einem veränderten Potential wieder, zu dem seine Wellenfunktion keine Eigenfunktion mehr ist. Es gibt dann einen Überlapp mit dem Kontinuum, so daß es zur Ionisation des zweiten Elektrons kommen kann, bevor die Wellenfunktion relaxiert. Man spricht bei diesem Prozess von *shake-off*. Gleiches gilt auch für die Compton-Streuung von Photonen an gebundenen Elektronen. Auch hier kann es durch *shake-off* zur Doppelionisation kommen. Allerdings wird bei der Compton-Streuung die gesamte Impuls- und Energiebilanz alleine durch gestreutes Photon und Compton-Elektron garantiert, während bei der Photoionisation das verbleibende Ion den Impuls des Elektrons kompensieren muss. Mittels COLTRIMS ist es somit möglich, zwischen Photoeffekt und Compton-Streuung bei der Photodoppelionisation zu unterscheiden (Spielberger *et al.*, 1995). Das Verhältnis der totalen Wirkungsquerschnitte von Doppel- zu Einfachionisation für Compton-Streuung and Photoeffekt im Helium wurden mit dieser Methode von Spielberger *et al.* (1996, 1999) für Photonenenergien im Bereich 40–100 keV gemessen. Ein kinematisch vollständiges Experiment könnte aber auch Aufschluss über eine mögliche Korrelation im Grundzustand vom Helium geben. Die Messung von Compton-Elektron und gestreutem Photon erlaubt es, den Anfangsimpuls des Elektrons vor dem Stoß zu messen. Dies wird z.B. verwendet, um Elektronenimpulsverteilungen in Festkörpern zu messen (Tschentscher, 1993). Bei einem völlig unkorreliertem Verhalten der Elektronen im Grundzustand muss die Winkelverteilung des *shake-off* Elektrons aufgrund seines 1s Zustandes isotrop sein. Abweichungen hiervon würden auf Korrelationen hindeuten. Eine Beeinflussung aufgrund der Elektron-Elektron-Wechselwirkung im Kontinuum sollte durch eine Überprüfung der Energieabhängigkeit herauszufiltern sein.

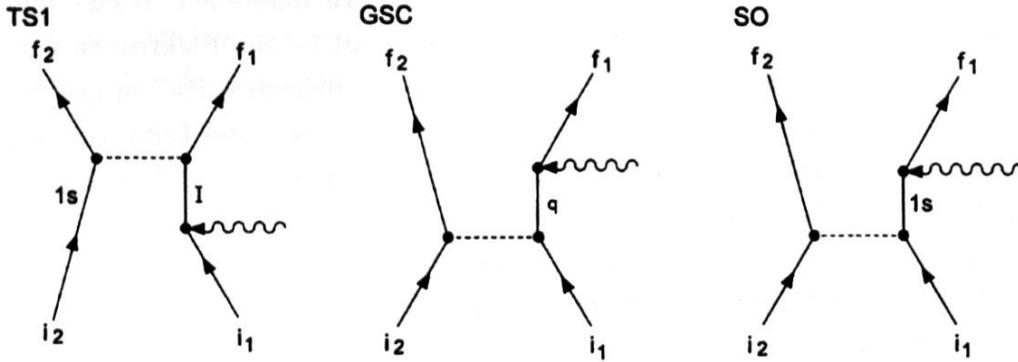


Abbildung 1.1: Diagramme der many body perurbation theory (MBPT) in zweiter Ordnung für die Photodoppelionisation (aus Spielberger (1996)).

Allerdings ist ein derartiges Experiment derzeit technisch nicht durchführbar. Zum einen ist der Nachweis des gestreuten Compton-Photons nur mit kleinem Raumwinkel möglich, zum andern ist es sehr schwierig hochenergetische Elektronen mit  $4\pi$  Raumwinkel nachzuweisen (siehe Kapitel 2.2). Auch ist es ungewiss, ob die Genauigkeit eines COLTRIMS Spektrometers für diese Untersuchungen ausreicht. Die prinzipielle Möglichkeit besteht jedoch.

Bei der Berechnung des Matrixelementes nach Gleichung 1.2 wird nur die Wechselwirkung mit dem Photon als Störung betrachtet. Dies setzt voraus, daß die Anfangs- und Endzustandswellenfunktionen  $\psi_i$  und  $\psi_f$  die Elektron-Elektron-Wechselwirkung bereits beinhalten, z.B. durch Verwendung von entsprechenden Hylleraas-Funktionen für den Grundzustand (Andersson und Burgdörfer, 1993). Einen anderen Weg geht die Vielteilchen-Störungstheorie (*many-body perturbation theory*, MBPT) (Brückner, 1955; Goldstone, 1957), der hier ebenfalls kurz skizziert werden soll. Hier wird sowohl die Wechselwirkung mit dem Photon

$$\hat{H}_{WW} = -i\vec{A}\nabla \quad (1.5)$$

als auch die Wechselwirkung der Elektronen untereinander

$$\hat{V}_{ee} = \frac{1}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \quad (1.6)$$

als Störung betrachtet (McGuire *et al.*, 1995). Wie oben angesprochen, wird für die Wechselwirkung mit dem Photon meist als weitere Vereinfachung die Dipolnäherung verwendet. Die Terme der Reihenentwicklung entsprechen jeweils den verschiedenen Wechselwirkungen innerhalb des untersuchten Systems. Der Term erster Ordnung in der MBPT entspricht der reinen Absorption eines Photons, d.h. der Einfachionisation. Die Photodoppelionisation wird durch die Terme zweiter Ordnung beschrieben. Diese sind in Abbildung 1.1 anschaulich in Form von Feynman-Graphen dargestellt. Der erste Beitrag wird als TS1 (*two-step 1*) bezeichnet. Es handelt sich um einen Zweistufen-Prozess mit einer Wechselwirkung mit

dem Photon. Das Photon wird zunächst absorbiert und das beteiligte Elektron geht in einen angeregten oder Kontinuumszustand  $I$  über, während das zweite Elektron im Grundzustand verbleibt. Die anschließende Wechselwirkung der beiden Elektronen untereinander führt dann zur Doppelionisation. Das Matrixelement für den TS1 Prozess ergibt sich dann durch Summation über alle Zwischenzustände  $I$  zu (McGuire, 1997)

$$M_{TS1} = \sum_I \langle \psi_{f1} \psi_{f2} | \hat{V}_{ee} | I \psi_{i2} \rangle G(I) \langle I | \hat{H}_{WW} | \psi_{i1} \rangle \quad (1.7)$$

wobei die Zwischenzustände  $I$  durch die Greensfunktion  $G(I)$  beschrieben werden. Der TS1 Prozess ist der dominante Prozess für die Photodoppelionisation bei niedrigen bis mittleren Photonenenergien (Keller, 2000).

Die beiden anderen Prozesse, SO (*shake-off*) und GSC (*ground state correlation*), stellen den zeitumgekehrten Prozess dar. Hier führt die Elektron-Elektron-Wechselwirkung im gebundenen Zustand dazu, daß ein Elektron in das Kontinuum gehoben wird, während das zweite im Grundzustand (SO) oder in einem angeregten Zustand  $q$  (GSC) verbleibt. Da hierbei die Energieerhaltung verletzt wird, ist dies nur innerhalb der Heisenbergschen Unschärferelation für sehr kurze Zeiten möglich. Es handelt sich somit um einen virtuellen Zustand. Erst die nachfolgende Absorption des Photons stellt die Energieerhaltung sicher und führt zur Doppelionisation. Der hier skizzierte mit SO bezeichnete Prozess ist dabei nur eine andere Darstellung des bereits oben diskutierten *shake-off* Prozesses, wie auch die identische Bezeichnung zeigt. Das entsprechende Matrixelement ergibt sich zu (McGuire, 1997)

$$M_{SO/GSC} = \sum_I \langle \psi_{f1} | \hat{H}_{WW} | I \rangle G(I) \langle I \psi_{f2} | \hat{V}_{ee} | \psi_{i1} \psi_{i2} \rangle \quad (1.8)$$

Es wurde bereits erwähnt, daß die COLTRIMS Methode für eine Vielzahl von Experimenten eingesetzt werden kann, u.a. auch Ion-Atom-Stöße. Ein Beispiel hierfür, allerdings mit einem molekularen Ion, wird in Kapitel 4.3 gegeben. Bei Stößen zwischen Ionen und Atomen liefert neben der Ionisation auch der Ladungstransfer einen signifikanten Beitrag. Dieser konnte erstmals von Henderson (1922) nachgewiesen werden. Seither wurden eine Fülle von Arbeiten, sowohl experimenteller als auch theoretischer Natur, über ladungsändernde Stöße zwischen Ionen und Atomen veröffentlicht. Neben dem reinen Interesse an den grundlegenden Mechanismen spielen ladungsändernde Stöße nicht nur in der oben erwähnten Astrophysik eine Rolle, sondern auch in anderen Bereichen wie Festkörperphysik und Plasmaphysik, aber auch in der Fusionsforschung und beim Bau moderner Beschleunigeranlagen für intensive Ionenstrahlen.

Neben den Stößen zwischen Ionen und Atomen spielen gerade in Gebieten wie der Plasmaphysik oder der Fusionsforschung auch Stöße zwischen einzelnen Ionen eine bedeutende Rolle. Trotz bemerkenswerter Fortschritte auf dem Gebiet der Untersuchung ladungsändernder Ion-Ion-Stöße (Melchert, 1997) sind diese Stoßsysteme experimentell noch lange nicht so detailliert untersucht worden wie bei Ion-Atom-Stößen. Dies liegt im wesentlichen an den experimentellen Schwierigkeiten, die insbesondere in den geringen Teilchendichten in einem Ionenstrahl im Vergleich zu einem Gas- oder gar Festkörpertarget liegen.

Diese experimentellen Schwierigkeiten und die *crossed-beams* Methode zur Untersuchung von Ion-Ion-Stößen werden in Kapitel 2.1 diskutiert.

Trotz der experimentellen Schwierigkeiten, ist die Untersuchung von Ion-Ion-Stößen in vielerlei Hinsicht von großem Interesse. In Beschleunigern und Speicherringen treten bei hohen Strahlintensitäten ladungsändernde Stöße zwischen den Ionen auf. Durch die Änderung der Ladung gehen diese Ionen dem Strahltransport verloren, was neben dem offensichtlichen Verlust an Strahlintensität auch zu einer signifikanten Wärmebelastung der Strahlrohre direkt hinter den Umlenkmagneten führen kann. Aufgrund der Raumladungsgrenze kann man höchste Intensitäten nur mit niedrigen Ladungszuständen erreichen. Andererseits möchte man oft schwere Ionen wie Gold oder Uran verwenden. Für diese Viel-elektronensysteme sind theoretische Rechnungen jedoch sehr schwierig. Insbesondere liegt die Schwerpunktsenergie bei den Stößen der Ionen im Strahl untereinander im keV Bereich, selbst bei GeV Strahlenergien, so daß störungstheoretische Ansätze ebenfalls sehr ungenau sind. Hier sind experimentelle Daten von großer Bedeutung, die in Kapitel 6 vorgestellt und analysiert werden.

Neben diesem anwendungsbezogenen Interesse gibt es aber auch ein starkes grundlegendes Interesse an der Untersuchung von Ion-Ion-Stößen. Die Behandlung der Dynamik von Vielteilchensystemen ist theoretisch sehr anspruchsvoll, insbesondere wenn, im Gegensatz zur Photoionisation, die elektronischen Zustände sowohl vor als auch nach dem Stoß durch das langreichweitige Coulomb-Potential der beiden Kerne beeinflusst werden. Viele Theorien betrachten deshalb nur ein Elektron und beschreiben die Wirkung der verbleibenden Elektronen z.B. durch ein effektives Potential. Experimente mit Stößen zwischen zwei Ionen erlauben es nun, auf die theoretischen Begebenheiten maßgeschneiderte Untersuchungen durchzuführen. Im Ion-Atom-Stoß sind die einzigen reinen Einelektronensysteme Stöße nackter Ionen mit atomarem Wasserstoff. Mit Ion-Ion-Stößen ergeben sich deutlich mehr Möglichkeiten. Hier ist das einfachste Stoßsystem mit einem Elektron  $H^+ + He^+$  (Rinn *et al.*, 1985, 1986) bzw. für resonante Stöße  $He^{2+} + He^+$  (Melchert *et al.*, 1995; Krüdener *et al.*, 1997) wie in Abbildung 1.2 gezeigt. Neben reinen Einelektronensystemen können im Ion-Ion-Stoß auch eine ganze Reihe von Quasi-Eielektronensystemen untersucht werden wie z.B.  $He^{2+} + B^{2+}$ ,  $He^{2+} + C^{3+}$ ,  $He^{2+} + N^{4+}$  und  $He^{2+} + O^{5+}$  (Melchert *et al.*, 1997; von Diemar *et al.*, 1999; Skiera *et al.*, 2001), die jeweils eine volle 1s Schale und ein Elektron in der äußeren 2s Schale besitzen. Die absoluten Wirkungsquerschnitte der letzten drei Reaktionen sind exemplarisch ebenfalls in Abbildung 1.2 dargestellt. Derartige Messungen erlauben es, die theoretischen Annahmen bei der Reduktion eines Vielteilchensystems auf ein einzelnes aktives Elektron zu überprüfen.

Letztendlich gibt es aber auch grundlegende Unterschiede zwischen einem Ion-Atom- und einem Ion-Ion-Stoß. Abbildung 1.2 zeigt den aus Theorie und Experimenten gemittelten Wirkungsquerschnitt für die resonante Reaktion  $H^+ + H$  (Pfaff, 1992). Der Wirkungsquerschnitt zeigt den bei resonanten Reaktionen im Ion-Atom-Stoß typischen Verlauf: bei großen Stoßgeschwindigkeiten kommt es zu einem steilen Abfall, während er zu kleinen Stoßgeschwindigkeiten hin leicht ansteigt. Das Wechselwirkungspotential zwischen dem Proton und dem Wasserstoffatom im einlaufenden Kanal der Trajektorie ist dabei aufgrund der Polarisierbarkeit des Atoms leicht attraktiv (Bransden und McDowell, 1992).

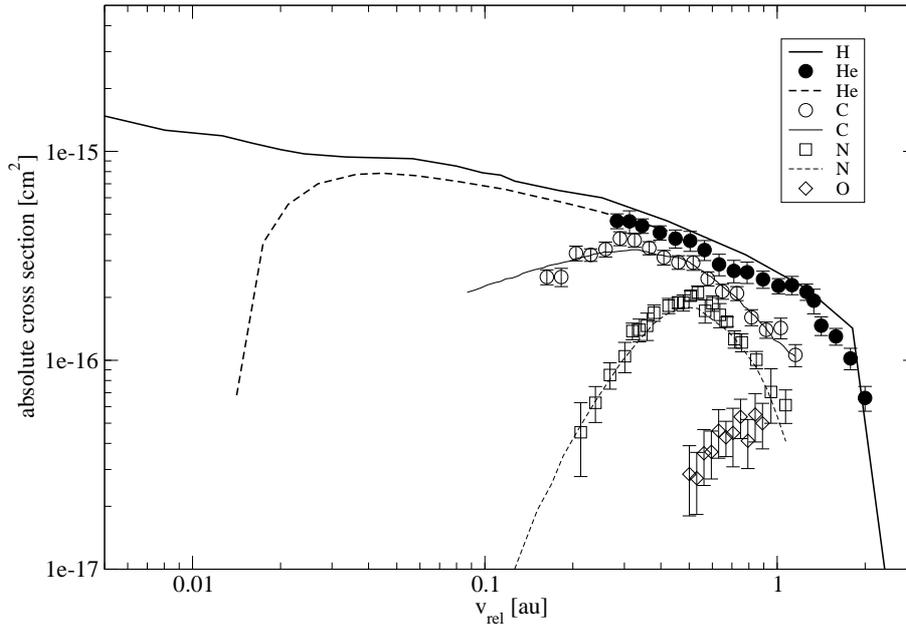


Abbildung 1.2: Wirkungsquerschnitte von resonanten Einelektronensystemen und nicht resonanten Quasi-Einelektronensystemen im Vergleich. Resonante Einelektronensysteme: dicke durchgezogene Linie -  $H^+ + H$  (Pfaff, 1992), gefüllte Kreise -  $He^{2+} + He^+$  (Melchert et al., 1995), dicke gestrichelte Linie - Theorie  $He^{2+} + He^+$  (Bardsley et al., 1989). Nicht resonante Quasi-Einelektronensysteme: offene Kreise -  $He^{2+} + C^{8+}$  (Melchert et al., 1997), dünne durchgezogene Linie - Theorie  $He^{2+} + C^{8+}$  (Opradolce et al., 1997), offene Quadrate -  $He^{2+} + N^{4+}$  (von Diemar et al., 1999), dünne gestrichelte Linie - Theorie  $He^{2+} + N^{4+}$  (von Diemar et al., 1999), offene Rauten -  $He^{2+} + O^{5+}$  (von Diemar et al., 1999).

Im Gegensatz hierzu wirkt im Ion-Ion-Stoß sowohl im einlaufenden als auch im auslaufenden Teil der Trajektorie die abstoßende Coulomb-Kraft. Dies führt dazu, daß der resonante Wirkungsquerschnitt z.B. der Reaktion  $He^{2+} + He^+$  auch bei sehr kleinen Relativgeschwindigkeiten wieder steil abfällt, wie Abbildung 1.2 deutlich zeigt. Der Grund liegt darin, daß bei diesen geringen Geschwindigkeiten die Coulomb-Abstoßung verhindert, daß sich die Stoßpartner genug annähern, um ein Elektron austauschen zu können.

Interessanterweise gibt es nur wenige Messungen an reinen Einelektronensystem im Ion-Ion-Stoß. Die bisher einzigen Messungen wurden für die oben erwähnten Systeme  $H^+ + He^+$  (Angel et al., 1978; Peart et al., 1983; Rinn et al., 1985, 1986; Watts et al., 1986) und  $He^{2+} + He^+$  (Melchert et al., 1995; Krüdener et al., 1997) durchgeführt. Demgegenüber steht eine ganze Reihe von theoretischen Untersuchungen für die Stoßsysteme  $H^+ + X^{(Z-1)+}$ , mit  $X^{(Z-1)+} = He^+, Li^{2+}, Be^{3+}, B^{4+}$  und  $C^{5+}$  (Ford et al., 1982; Winter, 1987; Ermolaev und McDowell, 1987),  $X^{Z+} + X^{(Z-1)+}$  mit  $X = He, Li, Be$  und  $B$  (Schmidt et al., 1990; Tharamel et al., 1994) und  $He^{2+} + Li^{2+}$  (Keim et al., private Mitteilung). Neueste experimentelle Ergebnisse zu dem letztgenannten Stoßsystem werden in Kapitel 3.2 vorgestellt.

Mit der fortschreitenden Entwicklung experimenteller und theoretischer Methoden ergibt sich auch die Möglichkeit, immer komplexere Stoßsysteme zu untersuchen. Von besonderem Interesse sind hierbei sicherlich Moleküle, angefangen von einfachen diatomaren Molekülen wie  $\text{H}_2$  bis hin zu komplexen Molekülen wie z.B. Fullereene oder auch biologisch relevante Moleküle wie Uracil, um nur eines zu nennen. Bei der Wechselwirkung von Photonen, Elektronen oder Ionen mit Molekülen im Gegensatz zu Atomen ergeben sich entsprechend der Geometrie des Moleküls weitere Freiheitsgrade. Bei der Verwendung diatomarer Moleküle, wie den in Kapitel 4 behandelten, ergibt sich genau ein zusätzlicher Freiheitsgrad: die Ausrichtung der internuklearen Achse zum Zeitpunkt der Wechselwirkung. Entsprechend dieser Ausrichtung kann eine starke Variation des Wirkungsquerschnitts beobachtet werden. Dies gilt für eine ganze Reihe von Prozessen, wie z.B. die Photodoppelionisation (siehe Kapitel 4.1), den Elektronentransfer oder auch die Ionisation im Stoß mit Ionen.

Um allerdings die Lage der internuklearen Achse bestimmen zu können, müssen nicht nur an das Experiment sondern auch an den Stoßprozess selbst bestimmte Anforderungen gestellt werden. Die meisten Experimente basieren dabei auf der sogenannten *axial recoil approximation* (Zare, 1972). Diese Näherung ist gültig, wenn die Fragmentation schnell ist im Vergleich zur Rotation oder Vibration des Moleküls. In diesem Fall entfernen sich die Fragmente entlang der internuklearen Achse voneinander und die Messung des Relativgeschwindigkeitsvektors zwischen beiden Fragmenten ergibt direkt die Ausrichtung der internuklearen Achse zum Zeitpunkt des Stoßes. Damit können allerdings nur Prozesse studiert werden, die zu einem dissoziativen Endzustand führen. Dies gilt z.B. für die Photodoppelionisation von  $\text{D}_2$ . Hier gelang es mit COLTRIMS erstmals koinzident zur Orientierung der Molekülachse die Winkelverteilung eines der beiden Elektronen zu messen (Dörner *et al.*, 1998b). Dabei bietet sich natürlich der Vergleich zum atomaren Zweielektronensystem Helium an. Die Ergebnisse werden in Kapitel 4.1 diskutiert.

Als ein Beispiel im Bereich der Ion-Atom-Stöße sei hier der Elektroneneinfang im Stoßsystem  $\text{O}^{8+} + \text{D}_2$  bei 16 MeV Stoßenergie genannt (Cheng *et al.*, 1992). Gleichzeitige Ionisation (Transferionisation) oder Anregung des intermediären  $\text{D}_2^+$  Ions führt zum Aufbruch des Moleküls. Abbildung 1.3 zeigt den gemessenen Wirkungsquerschnitt in Abhängigkeit von der Ausrichtung der Molekülachse relativ zum Strahl. Die ausgeprägte Winkelabhängigkeit kann im Rahmen eines Interferenzmodells (Wang *et al.*, 1989; Wang und McGuire, 1991) erklärt werden. Eine solche Interferenz in Stößen zwischen Ionen und Wasserstoffmolekülen wurde erstmals von Tuan und Gerjuoy (1960) erwähnt, aber nicht weiter verfolgt. Die Interferenz ergibt sich aus der kohärenten Addition der beiden Transferamplituden von den beiden atomaren Zentren bei Stößen unterhalb 1 MeV Stoßenergie. Die für die Interferenz verantwortliche Phase ergibt sich zu  $(\vec{q} \cdot \vec{\rho})$ , wobei  $\vec{q}$  der Impulsübertrag auf das Projektil und  $\vec{\rho}$  die Molekülachse bedeuten.

Ein von der Molekülorientierung abhängiger Wirkungsquerschnitt wurde auch bei der Mehrfachionisation von Molekülen in Stößen mit Ionen (Werner *et al.*, 1997; Siegmann *et al.*, 2001) beobachtet, wie z.B. Abbildung 1.4 zeigt. Hier stimmen die experimentellen Daten sehr gut mit einem statistischen Modell von Kabachnik *et al.* (1998) überein, welches allerdings keine Interferenz zwischen den beiden Streuzentren beinhaltet.

Alle diese Experimente basieren jedoch auf Mehrelektronenprozessen, sei es nun die

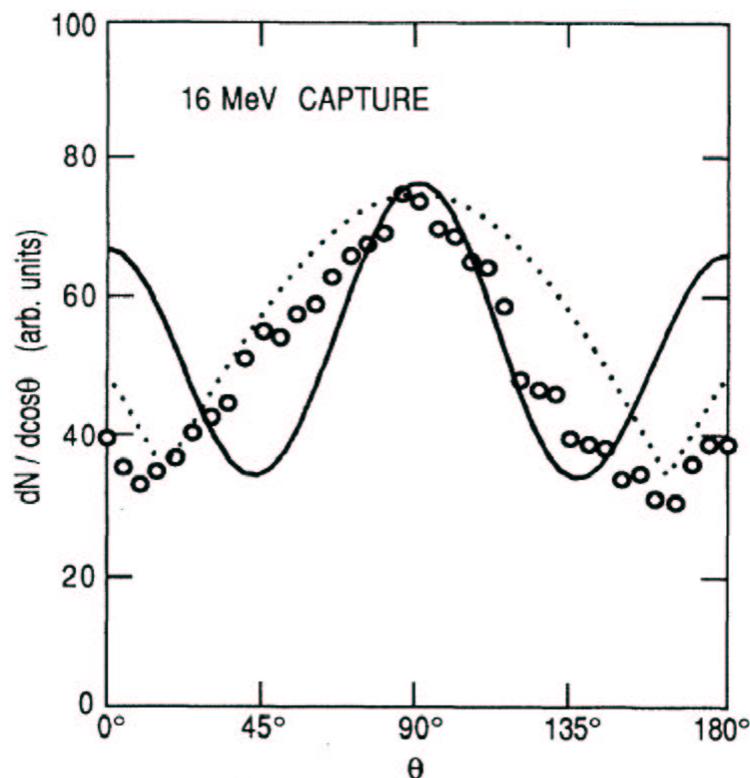


Abbildung 1.3: Wirkungsquerschnitt für Elektronentransfer mit Ionisation oder Anregung als Funktion des Winkels zwischen Molekülachse und Strahlrichtung im Stoßsystem  $16 \text{ MeV } \text{O}^{8+} + \text{D}_2$  (Cheng et al., 1992). Durchgezogene Linie - Theorie von Wang et al. (1989); Wang und McGuire (1991), Gepunktete Linie - Fit der Funktion  $f(\theta) = 1 + c_1 \cos(c_2 \cos \theta)$  an die experimentellen Daten.

direkte Mehrfachionisation oder komplexere Prozesse wie Transferionisation. Bei der Verwendung neutraler Moleküle ist man auf solche Mehrelektronenprozesse angewiesen, um einen dissoziativen Zustand zu erreichen. Wie weiter oben im Falle von Ion-Atom-Stößen bereits ausführlich diskutiert wurde, stellen Mehrelektronensysteme immer eine gewisse Schwierigkeit in der Behandlung von Stößen dar. Es ist deshalb von Interesse, auch im Bereich der Stöße von Ionen mit Molekülen ein reines Einelektronensystem zu untersuchen. Die kann aber nur ein Ion-Ion-Stoß sein. Eines der einfachsten Systeme ist dabei  $\text{He}^{2+} + \text{H}_2^+$ . Für dieses System und einige andere Systeme mit  $\text{H}_2^+ / \text{D}_2^+$  wurden erstmals an der Justus-Liebig Universität Giessen und an der Kansas State University totale und differentielle Wirkungsquerschnitte gemessen. Die Ergebnisse werden in Kapitel 4.2 ausführlich diskutiert werden.

Ein weiteres Molekülion von weitreichendem Interesse ist  $\text{HeH}^+$ . Es ist das einfachste heteronukleare Molekül mit zwei Elektronen. Zudem ist es im wesentlichen nur als Ion gebunden. Im neutralen Zustand dissoziiert es in He und H. In astrophysikalischer Hinsicht

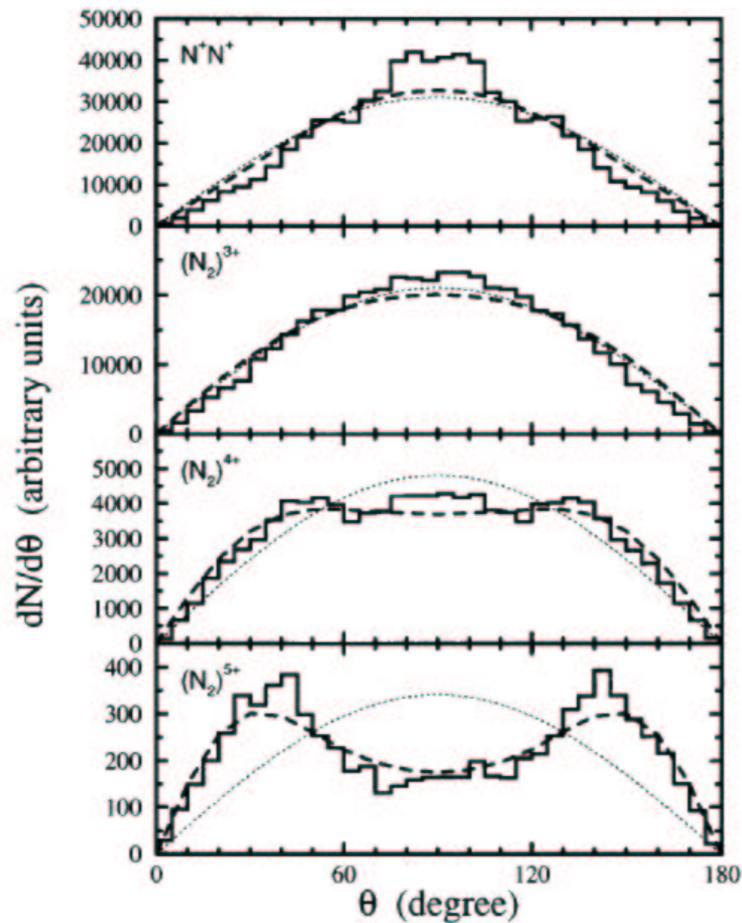


Abbildung 1.4: Abhängigkeit der Mehrfachionisation von  $N_2$  durch  $200 \text{ keV He}^+$  von der Ausrichtung der Molekülachse (Werner et al., 1997). Histogramm - experimentelle Daten, gepunktete Linie -  $\sin(\theta)$  Verteilung für einen orientierungsunabhängigen Prozess, gestrichelte Linie - statistisches Modell von Kabachnik et al. (1998).

ist  $\text{HeH}^+$  von Interesse, weil es aus den beiden im Universum am häufigsten vorkommenden Elementen, Helium und Wasserstoff, synthetisiert werden kann. Es besteht somit die Erwartung, dieses Molekülion in planetarischen Nebeln beobachten zu können (Roberge und Dalgarno, 1982). Allerdings zeigen Studien am planetarischen Nebel NGC 7027, daß die  $\text{HeH}^+$  Dichte deutlich geringer ist als angenommen (Moorhead et al., 1988). Untersuchungen von Tanabe et al. (1993) zur dissoziativen Rekombination zeigen zusätzlich zur bekannten Rekombination um 0 eV Schwerpunktsenergie auch eine Resonanz bei etwa 20 eV, welche einen Beitrag zu der geringen beobachteten Dichte liefern könnte. Es gibt auch weitere Experimente zum Elektroneneinfang bei höheren Energien. Das erste kinematisch fast vollständige Experiment konnte jedoch erst unter Anwendung von COLTRIMS

von Wu *et al.* (1998) im keV Bereich durchgeführt werden. Hierbei konnte neben der Orientierung des Moleküls auch der Q-Wert und der transversale Impulstransfer (Streuwinkel) im Stoß  $\text{HeH}^+ + \text{He}$  gemessen werden. Dies erlaubte es, u.a. den Einfang in unterschiedlich angeregte Zustände zu trennen. Die Messungen werden in Kapitel 4.3 vorgestellt.

Im Gegensatz zu diesen einfachen, diatomaren Molekülen erscheinen Fullerene wie  $\text{C}_{60}$  sicherlich als sehr komplexe Gebilde. Seit ihrer Entdeckung (Kroto *et al.*, 1985) sind Fullerene Gegenstand zahlreicher Untersuchungen. Verglichen mit der gesamten Forschungsaktivität in einem beliebigen Fachgebiet, haben Fullerene den größten Einfluss in der physikalischen Chemie sowie in den verwandten Gebieten der Atom- und Molekülphysik (Campbell und Rohmund, 2000). Die Attraktivität von Fullerenen liegt vor allem darin, einen Cluster mit wohldefinierter Masse und maximal möglicher Symmetrie zur Verfügung zu haben, der zudem einfach durch Sublimation für Experimente in die Gasphase gebracht werden kann. Dies erlaubt es, das Verhalten komplexer molekularer Systeme mit einer großen Anzahl von Freiheitsgraden zu untersuchen. Viele beobachtete Phänomene lassen sich dabei am besten durch eine kollektive Bewegung der Valenzelektronen, wie z.B. Plasmonanregung, beschreiben. Dies deutet auf eine gewisse Ähnlichkeit zu Festkörpern hin. Eine freie Bewegung der Elektronen liegt auch dem im Kapitel 5.1 diskutierten theoretischen Modell zu Grunde, welches eine gute Übereinstimmung zu den im gleichen Kapitel beschriebenen Experimenten zum Elektronentransfer zwischen zwei Fulleren-Ionen bzw. einem Fullerenion und einem  $\text{He}^{2+}$  Ion liefert. Man kann also Fullerene als das Verbindungsglied zwischen einfachen Molekülen und Festkörpern betrachten.

Eine Gemeinsamkeit zu den einfachen Molekülen liegt aber in der Tatsache, daß auch Fullerene fragmentieren können. Während es im niederenergetischen Bereich bereits sehr viele Stoßexperimente mit Fullerenen und Fullerenionen gibt, existieren nur sehr wenige Untersuchungen im hochenergetischen Bereich mit schweren Ionen. Dabei gibt es einige signifikante Unterschiede zwischen relativ niederenergetischen Stößen im keV Bereich und hochenergetischen Stößen im MeV/u Bereich. Diese werden in Kapitel 5.3 näher betrachtet.

# Kapitel 2

## Experimentelle Methoden

So unterschiedlich die Fragestellungen an die Natur sind, so unterschiedlich sind auch die experimentellen Methoden. Neue Fragestellungen erfordern oft neue Methoden; sei es um einfach nur präziser zu messen, oder um neue Größen zu bestimmen (wie z.B. den Impuls des Rückstoßions). Andererseits erlauben neue experimentelle Methoden auch neue Fragestellungen. Es ergibt sich so ein fruchtbares Wechselspiel, das sich bis auf Rutherfords klassisches Streuexperiment zurückführen läßt.

Die Darstellung experimenteller Methoden in dieser Arbeit muss sich angesichts der Fülle von verschiedenen Techniken auf jene beschränken, die in unmittelbarem Zusammenhang mit den hier präsentierten Ergebnissen stehen. Diese sind zum einen die *crossed-beams* Methode zur Untersuchung von Ion-Ion-Stößen und zum anderen die Methode der *Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy* (COLTRIMS) zur Untersuchung der Photodoppelionisation. Beide Methoden werden in den folgenden Abschnitten kurz vorgestellt, soweit es für das Verständnis der in den folgenden Kapiteln diskutierten Ergebnisse nötig ist. Für tieferegehende Informationen muss auf die zahlreichen Publikationen, Diplom- und Doktorarbeiten verwiesen werden.

### 2.1 *Crossed-Beams* Experimente

Die meisten Experimente der atomaren Stoßphysik, wie z.B. das klassische Streuexperiment von Rutherford, basieren auf der Wechselwirkung eines Teilchenstrahls<sup>1</sup> definierter Energie mit einem ruhenden Target. Selbst Atome in Gastargets kann man hier als ruhend betrachten, da die Projektilenergie meist um Größenordnungen höher ist, als deren thermische Energie.

Ein ruhendes Ionentarget zur Untersuchung von Ion-Ion-Stößen herzustellen ist jedoch sehr schwierig. Ionen werden in Plasmen erzeugt, einem Gemisch aus freien Elektronen, Ionen (positiv und negativ geladen) und neutralen Teilchen. Der Plasmazustand wird oft auch als vierter Aggregatzustand bezeichnet. Durch die Quasineutralität eines Plasmas lassen sich im Prinzip sehr hohe Ionendichten erzeugen. Als Target für einen Ionenstrahl ist ein

---

<sup>1</sup>Wie in der Einführung bereits erwähnt, sollen hierzu in dieser Arbeit auch Photonen zählen.

Plasma jedoch völlig ungeeignet. Dies hat mehrere Gründe. Der gravierendste Punkt ist die Unbestimmtheit des Zustandes der Ionen im Plasma. Es kommt zu ständigen Wechselwirkungen der freien Elektronen und Ionen im Plasma durch Ionisation und Rekombination. Dabei bildet sich ein Ionisationsgleichgewicht, dessen Ionisationsgrad  $x$  in einfachen Fällen nur von der Temperatur  $T$  und dem Druck  $p$  abhängt und durch die Saha-Gleichung (Saha, 1921) beschrieben wird:

$$\frac{x^2 p}{1 - x^2} = \left( \frac{2pm_e}{h^2} \right)^{3/2} (kT)^{5/2} e^{-E_I/kT} \quad (2.1)$$

Hier bedeuten  $E_I$  die Ionisationsenergie des Gases,  $m_e$  die Elektronenmasse,  $h$  das Plancksche Wirkungsquantum und  $k$  die Boltzmann-Konstante. Die Saha-Gleichung setzt ein thermodynamisches Gleichgewicht zwischen allen energieaustauschenden Bestandteilen des Plasmas voraus. Dies ist in dünnen, heißen Plasmen genausowenig gegeben wie in dichten, kalten Plasmen. Zudem beschreibt die Saha-Gleichung strenggenommen nur einen mittleren Ionisationsgrad. Ionisation und Rekombination sind statistische Prozesse, so daß immer auch Ionen unterschiedlichen Ionisationsgrades vorliegen. Hinzukommt noch, daß ein Plasma ebenfalls ein Elektronentarget darstellt mit dem der Projektilionenstrahl wechselwirken kann. Diese undefinierte Targeteigenschaft hinsichtlich des Zustandes und die nicht zu vermeidende Wechselwirkung des Projektilstrahles mit dem Magnetfeld des Plasmaeinschlusses machen ein Plasma zu einem sehr ungeeigneten Target.

Eine sehr saubere Präparation der Ionen hinsichtlich Ladung, thermischer Energie und auch innerer Anregung erlauben Ionenfallen. In Ionenfallen wird die Coulomb-Abstoßung der gleich-geladenen Ionen durch äußere elektrische und magnetische Felder kompensiert und die Ionen so in einem wohldefinierten Raumbereich eingeschlossen. Entsprechend der Anordnung der äußeren Felder unterscheidet man verschiedene Typen von Ionenfallen. Die Penningfalle (Penning, 1937) z.B. verwendet eine Anordnung statischer elektrischer Felder mit einem überlagerten Magnetfeld. Bei der Paulfalle (Paul und Steinwedel, 1953; Paul *et al.*, 1958) werden zeitabhängige elektrische Quadrupolfelder zum Einschluss der Ionen verwendet.

Durch die lange Speicherzeit ist es möglich, ein Iontarget zu erhalten, in dem alle Ionen, d.h. auch solche, die sich anfangs in einem metastabilen Zustand befanden, im Grundzustand sind. Zudem können in Verbindung mit einer Ionenkühlung sehr kalte Targets hergestellt werden. Allerdings lassen sich in Fallen aufgrund der gegenseitigen Abstoßung nur äußerst geringe Teilchendichten speichern. Die typische Anzahl an gespeicherten Ionen beträgt bestenfalls einige tausend. Damit lassen sich durchaus Wechselwirkungen der Ionen in der Falle untereinander, insbesondere bei sehr geringen Relativgeschwindigkeiten, untersuchen. Als Iontarget für einen Ionenstrahl sind derartige Fallen allerdings aufgrund der geringen Teilchendichte ungeeignet.

Zur Untersuchung von Stößen zwischen zwei Ionen verwendet man aus den oben genannten Gründen zwei Ionenstrahlen, die unter einem Winkel  $\beta$  zur Kreuzung gebracht werden. Entsprechend der Wahl des Winkels  $\beta$  kann man zwei experimentelle Ansätze unterscheiden. Im Falle von  $\beta \approx 0^\circ$  spricht man von einem *merged-beams* Experiment (siehe Abbildung 2.1). Die Idee hierbei ist es, die beiden Strahlen über eine längere Strecke zu

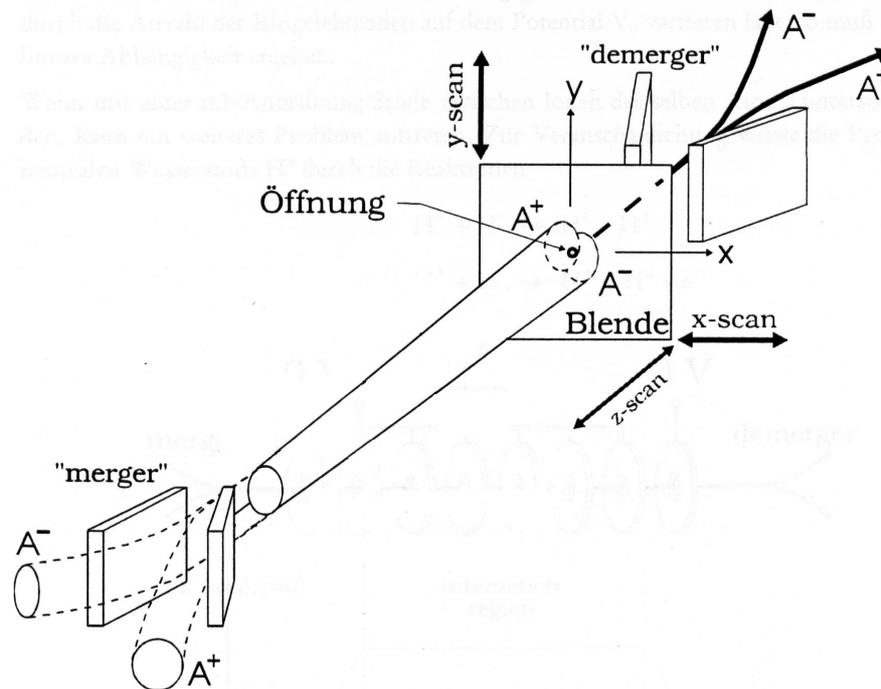


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung eines merged-beams Experiments. Die Ionenstrahlen werden mittels des 'mergers' überlagert und mit dem 'demerger' wieder voneinander getrennt. Die bewegliche Lochblende dient der Messung des Strahlüberlapps.

überlagern, um so die im Vergleich zu Gastargets immer noch sehr geringen Dichten in den Ionenstrahlen durch eine große Wechselwirkungszone zu kompensieren. Im Gegensatz dazu spricht man bei Winkeln von  $\beta \geq 10^\circ$  von einem *crossed-beams* Experiment (siehe Abbildung 2.2). *Crossed-beams* Experimente besitzen eine wohldefinierte Wechselwirkungszone, deren Größe im wesentlichen nur durch den Durchmesser der Ionenstrahlen und den Kreuzungswinkel bestimmt ist. Dies hat einige wesentliche Vorteile gegenüber der langen, ausgedehnten Wechselwirkungszone der *merged-beams* Experimente. Zur Bestimmung absoluter Wirkungsquerschnitte ist es notwendig, den Überlapp beider Ionenstrahlen möglichst genau zu bestimmen. Dies ist im Kreuzungspunkt zweier Strahlen deutlich präziser durchzuführen, als wenn zwei Strahlen über eine längere Strecke zusammengeführt werden. Im letzteren Fall wäre es notwendig, den Überlapp mindestens am Anfang und am Ende der Wechselwirkungszone zu bestimmen. Zudem ist der Strahlüberlapp bei einer langen Wechselwirkungszone wesentlich anfälliger auf geringfügige Lageänderungen der Ionenstrahlen als bei einem Kreuzungspunkt. Ferner erlaubt nur eine wohldefinierte Wechselwirkungszone die Messung von Streuwinkeln ohne Parallaxenfehler.

Ein unter Umständen entscheidender Vorteil der *merged-beams* Konfiguration sollte aber nicht verschwiegen werden. Nur mit *merged-beams* Experimenten ist es möglich, beliebig kleine Relativgeschwindigkeiten im Ion-Ion-Stoß zu erhalten. Für die Relativgeschwin-

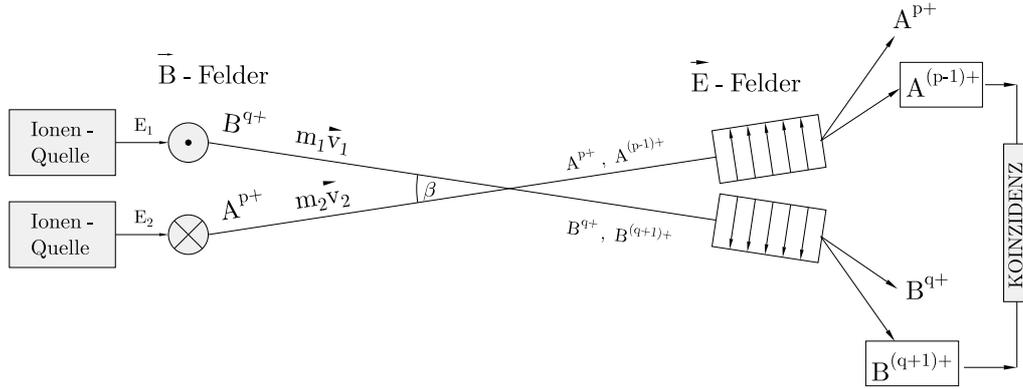


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung eines crossed-beams Experiments.

digkeit  $v_{rel}$  und deren Betrag  $v_{rel}$  gilt

$$\vec{v}_{rel} = \vec{v}_2 - \vec{v}_1 \quad (2.2)$$

$$v_{rel} = \sqrt{v_2^2 + v_1^2 - 2v_2v_1 \cos \beta} \quad (2.3)$$

wobei  $\vec{v}_1$  und  $\vec{v}_2$  die Geschwindigkeiten der Ionen in den beiden Strahlen bedeuten. Diese sind experimentell durch die maximalen Beschleunigungsspannungen der Ionenquellen sowie Ionenmasse ( $m_1$  und  $m_2$ ) und Ladung ( $q_1$  und  $q_2$ ) in einem bestimmten Rahmen vorgegeben. Minimale Relativgeschwindigkeiten können bei gegebenem  $\vec{v}_1$  und  $\vec{v}_2$  durch sehr kleine Wechselwirkungswinkel von  $\beta \approx 0^\circ$  erreicht werden, während maximale Relativgeschwindigkeiten sehr großen Winkel von  $\beta \approx 180^\circ$  erfordern. Beides bedingt eine *merged-beams* Konfiguration. Mit der reduzierten Masse

$$\mu = \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2} \quad (2.4)$$

ergibt sich dann die Schwerpunktsenergie  $E_{cm}$  im Stoß zu

$$E_{cm} = \frac{1}{2} \mu v_{rel}^2 = \mu \left( \frac{E_1}{m_1} + \frac{E_2}{m_2} - 2\sqrt{\frac{E_1 E_2}{m_1 m_2}} \cos \beta \right) \quad (2.5)$$

Hierbei sind  $E_1$  und  $E_2$  die Energien der entsprechenden Ionen.

Die Rate  $R$  der im Wechselwirkungsvolumen  $V$  stattfindenden Reaktionen ist direkt proportional zum Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  des zu untersuchenden Prozesses:

$$R = \sigma \int_V v_{rel} n_1 n_2 dV \quad (2.6)$$

Die  $n_{1,2}$  sind die Teilchendichten in den Ionenstrahlen, die mit den direkt meßbaren Stromdichten  $j_{1,2}$  über die Beziehung

$$\vec{j}_{1,2} = n_{1,2}\vec{v}_{1,2} \quad (2.7)$$

verknüpft sind. Durch Messung der Rate  $R$  und Bestimmung des durch die Experimentbedingungen vorgegebenen Volumenintegrals kann dann der Wirkungsquerschnitt ermittelt werden. Die Berechnung des Volumenintegrals ist für *merged-beams* und *crossed-beams* Experimente unterschiedlich. Im folgenden werden nur die Verhältnisse bei *crossed-beams* Experimenten diskutiert, da diese für die in den nachfolgenden Kapiteln vorgestellten Untersuchungen von Bedeutung sind. Für eine Diskussion von *merged-beams* Experimenten sei z.B. auf Melchert (1997) verwiesen.

Im folgenden sei  $x_{1,2}$  die Flugrichtung der beiden Ionenstrahlen,  $z$  die Richtung senkrecht zur Stoßebene und  $y_{1,2}$  die Richtung senkrecht zur Ebene  $x_{1,2} - z$ . Die Stromdichten  $j_{1,2}$  hängen nicht von der Strahlrichtung ab, d.h.  $j_{1,2} \equiv j_{1,2}(y_{1,2}, z)$ . Damit läßt sich Gleichung 2.6 schreiben als

$$R = \sigma \frac{v_{rel}}{v_1 v_2} \int_V j_1(y_1, z) j_2(y_2, z) dV \quad (2.8)$$

Da das Wechselwirkungsvolumen bei einer *crossed-beams* Anordnung rautenförmig ist, gelten folgende Beziehungen

$$dV = \sin \beta dx_1 dx_2 dz \quad (2.9)$$

$$dy_{1,2} = \sin \beta dx_{1,2} \quad (2.10)$$

Damit wird Gleichung 2.8 zu

$$R = \sigma \frac{v_{rel}}{v_1 v_2 \sin \beta} \int_z \left[ \int_{y_1} j_1(y_1, z) dy_1 \int_{y_2} j_2(y_2, z) dy_2 \right] dz \quad (2.11)$$

Die Integrale

$$J_{1,2}(z) = \int_{y_{1,2}} j_{1,2}(y_{1,2}, z) dy_{1,2} \quad (2.12)$$

geben die nur noch von  $z$  abhängige eindimensionale Stromdichte wieder, die leicht experimentell bestimmt werden kann. Dazu wird, wie in Abbildung 2.3 gezeigt, eine horizontale Schlitzblende durch den Kreuzungsbereich beider Ionenstrahlen gefahren. Die durch die Schlitzblende tretenden Stromdichten  $J_{1,2}(z)$  werden mit Faraday-Cups gemessen und als Funktion der Position  $z$  aufgezeichnet. Es ist jedoch nicht möglich, die Stromdichten gleichzeitig mit der Reaktionsrate zu messen, weil die Schlitzblende die Ionenstrahlen sehr stark abschwächt. Zur Normierung ist es ferner unerlässlich, während der gesamten Messung den tatsächlichen Ionenstrom zu messen. Mit den Beziehungen zwischen Stromdichte und Strom

$$I_{1,2} = q_{1,2} \int_z J_{1,2}(z) dz \quad (2.13)$$

und dem sogenannten Formfaktor

$$F = \frac{\int_z J_1(z) dz \int_z J_2(z) dz}{\int_z J_1(z) J_2(z) dz} \quad (2.14)$$

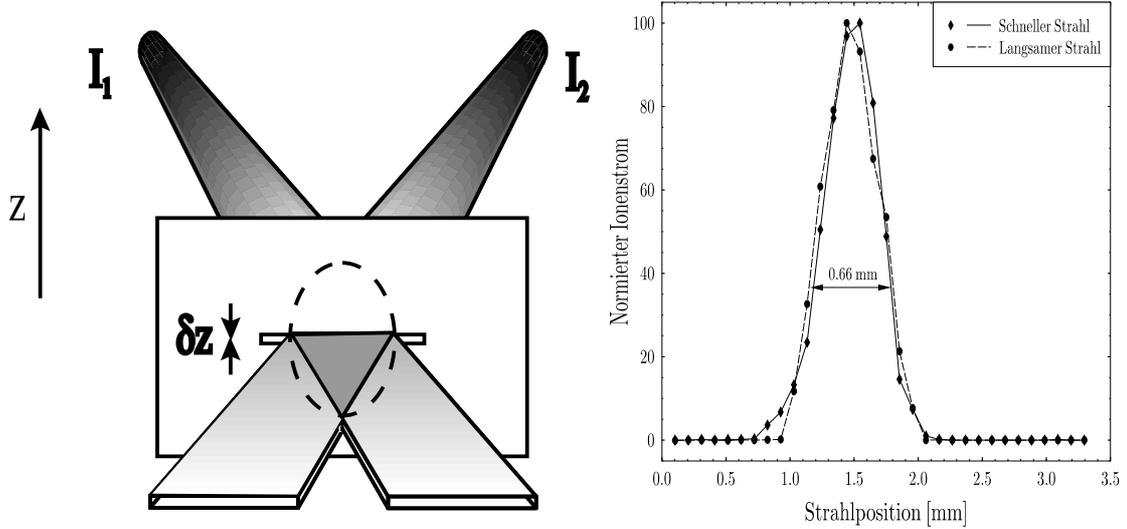


Abbildung 2.3: Bestimmung des Formfaktors  $F$  (aus von Diemar (1998)): Eine horizontale Schlitzblende (links) wird im Kreuzungspunkt senkrecht durch beide Strahlen gefahren und die eindimensionalen Stromdichten  $J_{1,2}(z)$  werden als Funktion der Blendenposition gemessen. Man erhält damit das vertikale Strahlprofil. Ein typisches Strahlprofilspektrum ist rechts dargestellt.

läßt sich Gleichung 2.11 umschreiben in folgende Bestimmungsgleichung für den Wirkungsquerschnitt

$$\sigma = \frac{v_1 v_2 \sin \beta}{v_{rel}} \frac{RF q_1 q_2}{I_1 I_2} \quad (2.15)$$

$I_{1,2}$  sind die über die gesamte Messzeit gemittelten Ströme. Der Formfaktor  $F$  wird vor, nach und gegebenenfalls in gewissen Zeitabständen während einer Messung bestimmt. Intensitätsschwankungen der Ionenstrahlen beeinflussen den Formfaktor nicht, solange sich die Intensitätsverteilung nicht ändert.

Die Messung der eindimensionalen Stromdichten, d.h. des Formfaktors  $F$ , kann vermieden werden, wenn ein Ionenstrahl mit gleichmäßiger Geschwindigkeit senkrecht zur Stoßebene über den zweiten, ortsfesten Ionenstrahl verschoben wird. Man tastet quasi durch diese Verschiebung mit dem Ionenstrahl beide Strahlprofile ab. Dies wird in einer nun zeitabhängigen Reaktionsrate  $R(t)$  wiedergegeben. Aus dieser zeitabhängigen Reaktionsrate kann dann unter Kenntnis der mittleren Ionenströme zur Normierung direkt der Wirkungsquerschnitt berechnet werden. Bei Ionenstrahlen kann die Verschiebung aufgrund der oft meterlangen Strahlzweige nur durch Ablenkung des Strahles in elektrischen oder magnetischen Feldern erfolgen. Neben dem nicht zu vernachlässigenden Aufwand die Ablenkspannungen so präzise zu steuern, daß der Ionenstrahl mit konstanter Geschwindigkeit bewegt wird, kann auch der Detektoruntergrund zeitabhängig werden, da sich die Position des Ionenstrahls z.B. in Bezug auf Blenden ständig ändert. In Ion-Ion-Stößen wird dieses Verfahren deshalb kaum benutzt. Es ist allerdings häufig das Verfahren der Wahl in

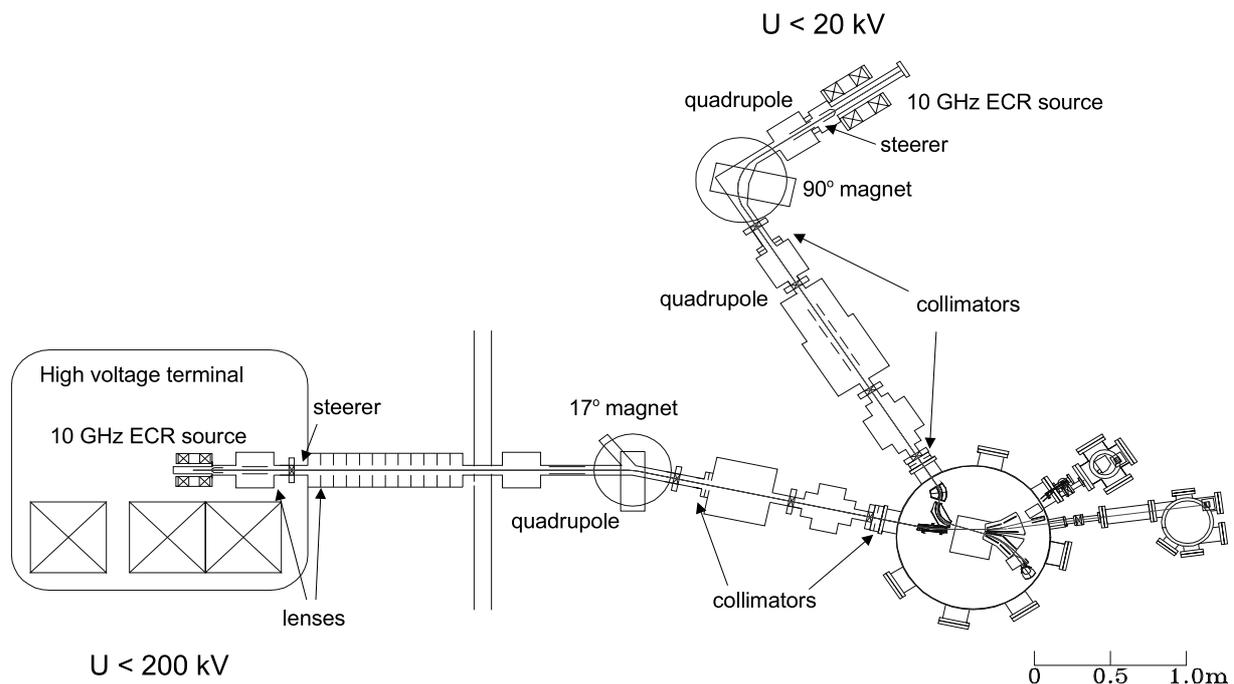


Abbildung 2.4: *Schematischer Aufbau des Giessener crossed-beams Experiments.*

Elektron-Ion Stößen. Hier ermöglicht es die relativ kompakte Bauform der Elektronenkanone, diese und den zur Elektronenstrommessung notwendigen Faraday-Cup als komplette Einheit mechanisch zu verfahren, während die Lage des Ionenstrahls festgehalten wird (Müller *et al.*, 1985).

Fast alle in dieser Arbeit beschriebenen Ion-Ion-Experimente wurden am Giessener *crossed-beams* Experiment durchgeführt. Der schematische Aufbau ist in Abbildung 2.4 skizziert. Zwei vollpermanente 10 GHz Elektron-Zyklotron-Resonanz (EZR) Ionenquellen (Schlapp, 1995; Trassl, 1999; Brötz, 2000) liefern mehrfach geladene Ionen sowohl von gasförmigen als auch von festen Elementen. Die EZR-Quellen liegen auf einem Potential von maximal 20 kV (niederenergetischer Strahl) bzw. maximal 200 kV (hochenergetischer Strahl). Durch Variation der Beschleunigungsspannungen kann ein weiter Bereich an Schwerpunktsenergien abgedeckt werden. Ein 90° Magnet im niederenergetischen Strahlzweig und ein 17° Magnet im hochenergetischen Strahlzweig trennen die aus den Quellen kommenden Ionen nach dem Verhältnis von Masse zu Ladung. Da unterschiedliche Ionen unter bestimmten Umständen ein gleiches Masse-zu-Ladungs Verhältnis haben können, wie z.B.  ${}^4\text{He}^{2+}$  und  $\text{H}_2^+$ , ist diese Trennung nicht immer eindeutig.

Bei Ladungszuständen bis etwa  $q = 8$  können im Wechselwirkungsbereich für gut kollimierte Ionenstrahlen Ströme von einigen nA bis hin zu einigen 100 nA erreicht werden. Damit sind Ionenstrahlen sehr dünne Targets. Um die Verhältnisse zu verdeutlichen, wird ein Strahl von  $\text{Xe}^{4+}$  Ionen bei 40 keV Energie betrachtet. Der im Faraday-Cup gemessene elektrische Ionenstrom betrage 200 nA. Dies entspricht typischen Experimentbedingungen

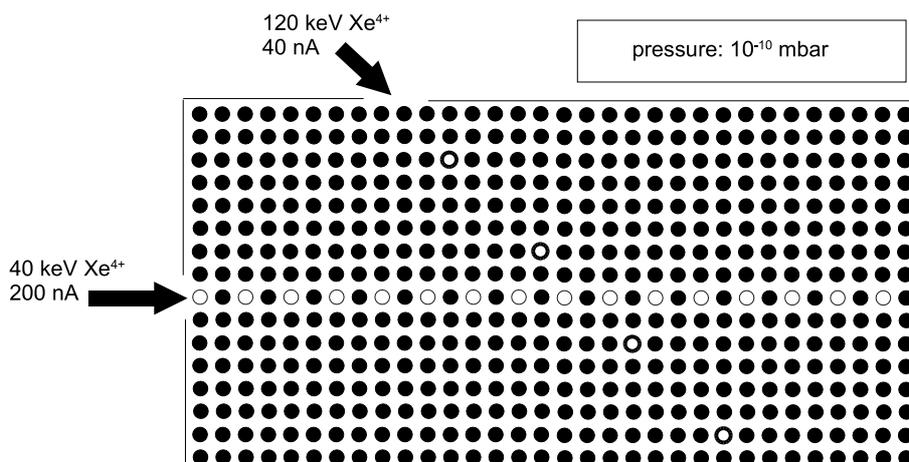


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung der Dichteverhältnisse in Ionenstrahlen und im Restgas.

im Giessener *crossed-beams* Experiment für den niederenergetischen Strahlzweig. Unter Berücksichtigung der Ionenladung von  $q = 4$  ergibt sich damit ein Teilchenstrom von ca.  $3 \times 10^{11} \text{ s}^{-1}$ . Bei 40 keV Ionenenergie und einem Strahldurchmesser von 5 mm ergibt sich eine Ionendichte im Strahl von etwa  $6.3 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$ . Verglichen mit den für Ion-Atom-Stöße schon geringen Dichten in Gastargets, wie z.B. dem in Kapitel 2.2 beschriebenen Überschallgasjet mit Teilchendichten von bis zu  $10^{12} \text{ cm}^{-3}$ , sind die Dichten in Ionenstrahlen außerordentlich gering.

Entsprechend den geringen Teilchendichten in den Ionenstrahlen liefert die Wechselwirkung mit dem Restgas in der Streukammer einen um Größenordnungen höheren Beitrag als die eigentlichen Ion-Ion-Reaktionen. Es sehr gutes Vakuum von  $10^{-10}$  mbar oder besser in der Wechselwirkungszone ist deshalb die absolute Voraussetzung für die Durchführbarkeit der Experimente. Trotz dieses guten Vakuums ist die Teilchendichte im Restgas immer noch um Größenordnungen höher als in den Ionenstrahlen. Abbildung 2.5 verdeutlicht dies eindrucksvoll. Die Streukammer des Giessener *crossed-beams* Experiments besteht aus den eben aufgeführten Gründen aus einer inneren und einer äußeren Kammer. Die innere Kammer beinhaltet die Wechselwirkungszone mit einem typischen Restgasdruck von etwa  $5 \times 10^{-11}$  mbar. Der Weg der Ionenstrahlen durch diese Kammer beträgt nur 25 cm um die Restgaswechselwirkung weiter zu minimieren. Direkt vor Eintritt in diese innere Kammer reinigen elektrostatische Sektorfelder (siehe Abbildung 2.6) die Ionenstrahlen von Umladeprodukten entlang der langen Strahlführung von den Ablenkmagneten bis zur Streukammer. In der Wechselwirkungszone werden die Strahlen unter einem Winkel von  $\beta = 17.5^\circ$  gekreuzt. Direkt hinter der Wechselwirkungszone trennen zweistufige Analysatoren die Reaktionsprodukte von den direkten Strahlen, deren Ströme in Faraday-Cups gemessen werden. Die Reaktionsprodukte werden von Einzelteilchenzählern nachgewiesen. Im hochenergetischen Strahl kommt dabei ein ortsempfindlicher Micro-Channel-Plates-

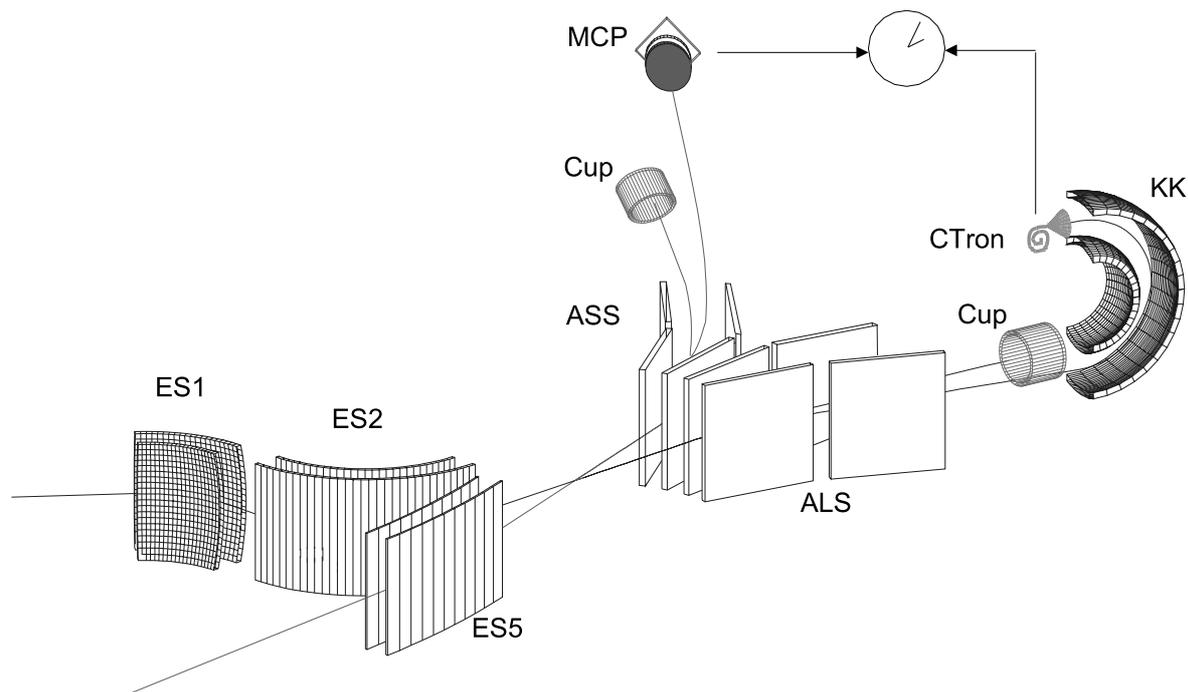


Abbildung 2.6: Schematischer Aufbau der Wechselwirkungszone im Giessener crossed-beams Experiment. *ES1, ES2, ES5* - elektrostatische Sektorfelder zur Strahlreinigung vor der Wechselwirkungszone, *ALS, ASS* - elektrostatische Analysatoren, *KK* - Kugelkondensator, *MCP* - ortsempfindlicher Micro-Channel-Plates-Detektor, *CTron* - Channeltron, *Cup* - Faraday-Cups. Der Winkel zwischen den beiden Ionenstrahlen beträgt  $\beta = 17.5^\circ$ .

Detektor zum Einsatz. Zur Unterdrückung eines möglichen Untergrundes durch Schlitzstreuung und ähnlichem ist dieser in einem Abstand von über einem Meter außerhalb der Kammer angebracht. Im niederenergetischen Strahlzweig wird ein Channeltron-Detektor verwendet, der innerhalb der Streukammer aber außerhalb der Streuebene angebracht ist. Zur Unterdrückung von möglichem Untergrund werden die Reaktionsprodukte durch einen Kugelkondensator aus der Streuebene heraus gelenkt.

Trotz all dieser Anstrengungen liegt das typische Verhältnis von echten Reaktionen zu Restgaswechselwirkungen je nach Wirkungsquerschnitt im Bereich von  $1 : 10^2$  bis  $1 : 10^3$ . Ändern beide an der Reaktion beteiligten Ionen ihre Ladung, wie z.B. beim Ladungstransfer, so kann der Untergrund durch den koinzidenten Nachweis beider Reaktionsprodukte weiter stark unterdrückt werden. Dabei wird die zeitliche Korrelation zwischen den beiden Detektorsignalen gemessen. Nur Reaktionsprodukte aus einem Ion-Ion-Stoß sind zeitlich korreliert im Gegensatz zu den Wechselwirkungen mit dem Restgas, wo der zeitliche Abstand beider Detektorsignale rein zufälliger Natur ist. Diese Methode läßt sich allerdings nicht zur Messung von reinen Ionisationsquerschnitten anwenden, da hier nur ein Stoßpartner seine Ladung ändert. Eine Reduzierung des Untergrundes wie bei der Koinzidenzmethode ist hierbei nicht möglich. Der Untergrundbeitrag kann aber durch die Methode der

gepulsten Strahlen bestimmt werden. Dabei wird zyklisch nacheinander auf dem Detektor für die Ionisationsprodukte der reine Detektoruntergrund ohne Strahlen, der Untergrund mit dem niederenergetischen und der Untergrund mit dem hochenergetischen Strahl alleine sowie die Summe aus allen Untergrundbeiträgen und der echten Reaktionen bestimmt. Durch Abzug der Untergrundbeiträge erhält man dann die Reaktionsrate. Allerdings ist es ohne die Koinzidenz nicht möglich, zu entscheiden, ob die Ionen das Elektron durch Ionisation oder durch Ladungstransfer verloren haben. Somit erhält man mit dieser Methode nur den totalen Verlustquerschnitt als Summe von Transferquerschnitt und Ionisationsquerschnitt. Aufgrund des hohen Untergrundes und der niedrigen Reaktionsraten sind diese Messungen des Verlustquerschnittes sehr langwierig und mit großen statistischen Fehlern behaftet. Zur Bestimmung des Ionisationsquerschnittes ist entsprechend noch die Kenntnis des Transferquerschnittes notwendig, dessen Fehler jedoch im Allgemeinen deutlich kleiner ist.

Ausführliche Beschreibungen des Giessener *crossed-beams* Experiments inklusive der Strahlführung, Detektoren und Messmethoden finden sich bei Meuser *et al.* (1996), von Diemar (1998) und Diehl (2001).

Wie am Anfang erwähnt, ist es mit einem *crossed-beams* Aufbau möglich, auch Streuwinkel (Pfeiffer *et al.*, 1995) und Q-Werte (Pfeiffer *et al.*, 1999) zu messen. Die Kinematik bei gekreuzten Ionenstrahlen unterscheidet sich aufgrund der Bewegung beider Stoßpartner allerdings stark von der Kinematik im Stoß mit einem ruhenden Target. Neben den rein kinematischen Transformationen vom Laborsystem in das Stoßsystem sind dabei auch ionenoptische Verzerrungen zu berücksichtigen, die sich aus dem Energieübertrag im Stoß ergeben. Eine ausführliche Behandlung dieser Problematik findet sich in Melchert (1997).

## 2.2 COLTRIMS

Bei jeder ladungsändernden Wechselwirkung zwischen einem geladenen Teilchen oder Photon mit einem neutralen Atom bleibt das Target immer als Ion, als sogenanntes Rückstoßion, zurück. Dem Rückstoßion wird durch den Stoßprozess ein Impuls übertragen, welcher Rückschlüsse auf die physikalischen Eigenschaften des Stoßprozesses zuläßt. Ein Beispiel hierfür ist z.B. die Ionisation durch Photonen bei Photonenenergien im Bereich einiger 10 keV. In diesem Energiebereich gibt es mit der direkten Photoionisation und der Ionisation durch Compton-Streuung zwei konkurrierende Prozesse. Im Fall der Compton-Streuung wird die gesamte Impulsbilanz durch Compton-Elektron und gestreutes Photon ausgeglichen. Das verbleibende einfach geladene Ion ist nur ein unbeteiligter Zuschauer und ihm wird kein Impuls übertragen. Die Verhältnisse sind anders bei der Photoionisation. Das Photon wird absorbiert (vernichtet) und ein Elektron mit der entsprechenden Energie und damit einem entsprechenden Impuls emittiert. Der Photonenimpuls ist selbst bei diesen Energien vernachlässigbar klein gegenüber dem Impuls des Elektrons im Kontinuum. Das heißt, im Gegensatz zur Compton-Streuung kann die Impulserhaltung nicht durch Photon und Elektron alleine erfüllt werden. Das Rückstoßion selbst muss den Elektronenimpuls kompensieren. Es erhält somit einen signifikanten Impuls, der, bei vernachlässigbarem

Photonenimpuls, exakt den Impuls des Elektrons widerspiegelt. Damit kann nicht nur zwischen Compton-Streuung und direkter Photoionisation unterschieden werden (Spielberger *et al.*, 1995, 1996, 1999); die Messung des Impulses des Rückstoßions im Falle der Photoionisation ist (bei vernachlässigbarem Photonenimpuls) völlig äquivalent zur Messung des Elektronenimpulses, d.h. zur Messung von Elektronenenergie und Emissionsrichtung.

Ein weiteres Beispiel ist der Ladungstransfer im Ion-Atom-Stoß. Durch die Streuung erhält das Projektil entsprechend seiner Geschwindigkeit  $v_p$  und dem Streuwinkel  $\theta_p$  eine Impulskomponente  $k_{p\perp} = m_p v_p \sin \theta_p$  senkrecht zu seiner ursprünglichen Bewegungsrichtung. Diese transversale Impulskomponente kann nur durch einen äquivalenten Transversalimpuls  $k_{r\perp} = -k_{p\perp}$  des Rückstoßions kompensiert werden. Durch die Messung des Rückstoßionenimpulses ist es somit möglich, auch sehr kleine Streuwinkel zu messen, die sonst experimentell nur schwer zugänglich sind. Ist der Ladungstransfer nicht resonant, so besitzt die Reaktion einen nicht verschwindenden Q-Wert  $Q_c$ . Beim Transfer muss also entweder Energie aufgewendet werden oder es wird Energie gewonnen. Diese Energie kann nur aus der Bewegung des Projektils kommen. Dieses ändert somit seine Energie und seinen longitudinalen Impuls. Wieder muss das Rückstoßion diese Impulsänderung kompensieren. Es erhält damit aufgrund des Ladungstrfers einen longitudinalen Impuls von

$$k_{r\parallel} = -\frac{n_c v_p}{1 + \gamma^{-1}} - \frac{Q_c}{v_p} \quad (2.16)$$

Hierbei ist  $n_c$  die Anzahl der transferierten Elektronen und  $\gamma$  der relativistische  $\gamma$ -Faktor. Bei schnellen Projektilen ist diese relativ geringe Impulsänderung des Projektils aufgrund des sehr großen Anfangsimpulses nur für wenige Stoßsysteme direkt messbar (Park, 1978; Schuch *et al.*, 1988; Wu *et al.*, 1996). Allein die Messung des Rückstoßionenimpulses erlaubt es somit, Projektilstreuwinkel und Q-Wert einer Reaktion zu messen.

Historisch gesehen, haben diese Schwierigkeiten, die sehr kleine Impulsänderung im Ion-Atom-Stoß zu messen, zur Entwicklung des ersten Spektrometers zur Bestimmung der transversalen Rückstoßimpulse geführt (Ullrich und Schmidt-Böcking, 1987). Ein wesentliches Problem bei der Bestimmung der Rückstoßimpulse ist jedoch die thermische Bewegung der Targetatome. Bei Raumtemperatur ist die thermische Impulsverteilung so breit (ca. 4 au für Helium), daß die typischerweise zu messenden Impulse aus dem Stoßprozeß völlig überdeckt werden. Es ist deshalb notwendig, mit sehr kalten Gastargets bei Temperaturen im Bereich von 1 K und niedriger zu arbeiten. Daher leitet sich auch der Begriff *COLd Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy* (COLTRIMS) ab. Ein modernes COLTRIMS System besteht somit im wesentlichen aus einem kalten, lokalisierten Gastarget, großflächigen, ortsauflösenden Detektoren für die Rückstoßionen und eventuelle Elektronen sowie einer Anordnung von elektrischen und gegebenenfalls magnetischen Feldern zum Nachweis der Flugbahn und damit des Anfangsimpulses aller Teilchen auf den Detektoren. Mit einem solchen modernen COLTRIMS System lassen sich Impulsaufösungen von bis zu 0.05 au erreichen. Einen ausführlichen Überblick über COLTRIMS und die vielfältigen Anwendungen weit über den Rahmen dieser Arbeit hinaus geben Dörner *et al.* (2000).

Kalte Gastargets lassen sich am besten durch eine Überschallexpansion des Targetgases in das Vakuum der Experimentkammer erreichen. Dabei wird die ungeordnete thermische

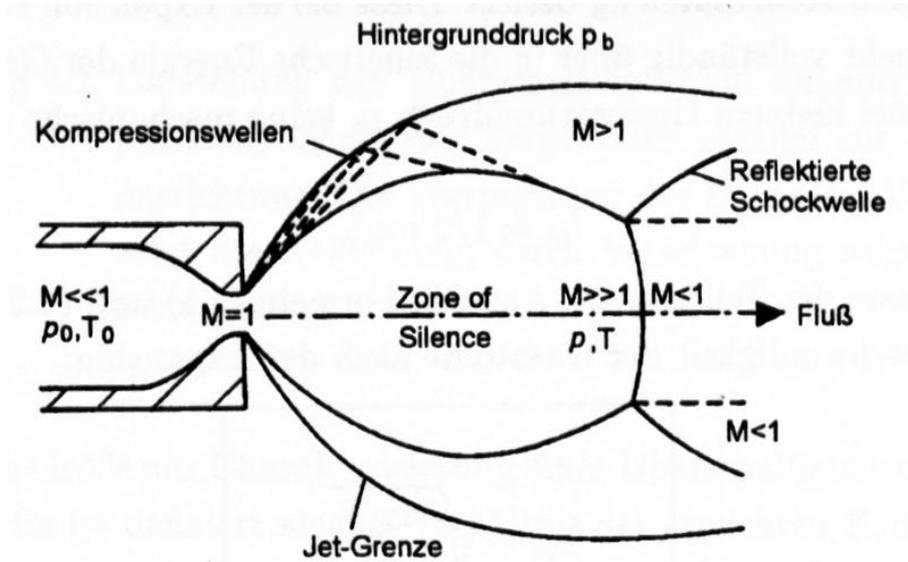


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung der freien Überschallerexpansion (nach Miller (1988)).  $p_0$  und  $T_0$  bedeuten Druck und Temperatur des Vorratsvolumens,  $p$  und  $T$  Druck und Temperatur im Jet.  $M$  gibt die Machzahl an.

Bewegung in eine gerichtete Bewegung mit geringer interner Impulsunschärfe umgewandelt. Diese gerichtete Bewegung manifestiert sich dann lediglich als ein fester Impulsoffset während der Messung und kann somit kompensiert werden. Der bei COLTRIMS verwendete Überschallgasjet folgt der Theorie des freien Jets (Miller, 1988). Das Targetgas mit der Temperatur  $T_0$  bei einem Druck  $p_0$  expandiert durch eine kleine Düse in ein Medium mit dem Druck  $p_b$ . Für  $p_0/p_b \geq 2$  stellt sich eine Überschallerexpansion ein, wie sie schematisch in Abbildung 2.7 dargestellt ist. In einem typischen COLTRIMS System liegt das Verhältnis typischerweise bei  $p_0/p_b \approx 10^8$  und die Expansionseigenschaften sind somit in einem weiten Bereich unabhängig vom Druck  $p_b$  in der Experimentkammer. Bei der Expansion aus der Düse bildet sich ein Volumen aus, in dem die Geschwindigkeit der Atome  $v$  größer ist als die Schallgeschwindigkeit. Dieser Bereich wird entsprechend die 'zone of silence' genannt. Für die Intensitätsverteilung  $I$  in diesem Bereich gilt in guter Näherung  $I \sim \cos^4 \alpha$ , wobei  $\alpha$  der Winkel relativ zur Expansionsachse ist. Ein Skimmer mit 0.3–0.7 mm Durchmesser im Abstand von 5–15 mm über der Düse kollimiert aus dieser breiten Verteilung einen Gasstrahl aus, der auch senkrecht zur Ausbreitungsrichtung eine sehr geringe Impulsunschärfe aufweist. Der Überschallbereich ist von einer Übergangszone aus Schock- und Kompressionswellen umgeben.

Die adiabatische Expansion führt zu einer starken Abkühlung des Targetgases, die für ein ideales Gas durch die Adiabatengleichung beschrieben werden kann:

$$\frac{p}{p_0} = \left( \frac{T}{T_0} \right)^{\frac{\kappa}{\kappa-1}} \quad \text{mit} \quad \kappa = \frac{5}{3} \quad (2.17)$$

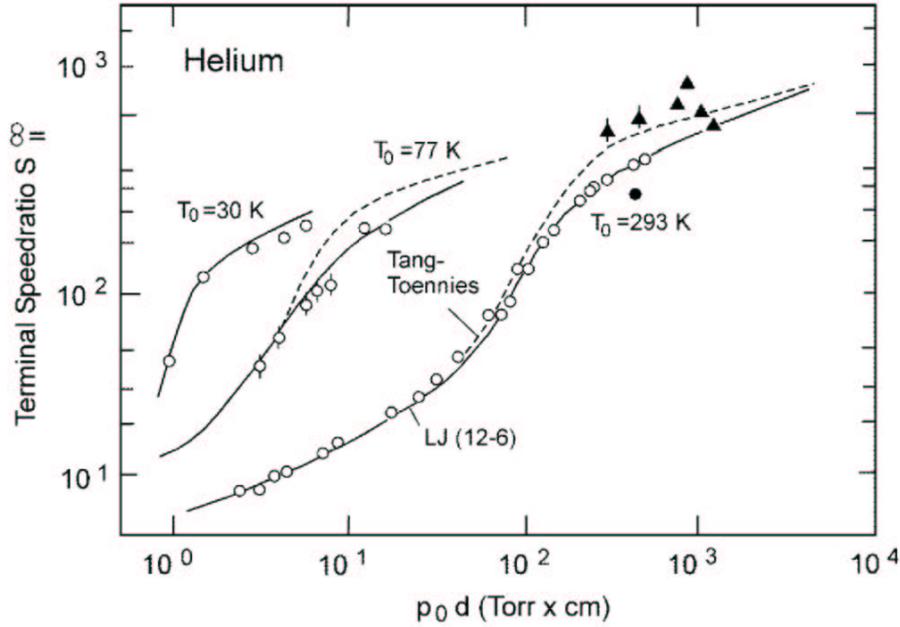


Abbildung 2.8: Speedratio  $S$  für Helium-Überschallgasjets als Funktion des Produkts  $p_0 d$  für verschiedene Temperaturen  $T_0$  (aus Brusdeylins et al. (1989)).

wobei  $p$  und  $T$  Druck und Temperatur in der Überschallzone beschreiben. Für die Geschwindigkeit  $v$  der Atome mit der Masse  $m$  in der Überschallzone erhält man dann

$$v = \sqrt{\frac{5kT_0}{m}} \quad (2.18)$$

Eine wichtige Größe zur Charakterisierung des Überschalljets ist das sogenannte *Speedratio*  $S$ , welches die Geschwindigkeitsverteilung im Überschalljet um die mittlere Geschwindigkeit  $v$  angibt. Für ein ideales einatomiges Gas ergibt sich dann folgender Zusammenhang zwischen *Speedratio* und Temperatur im Jet:

$$S = \sqrt{\frac{5 T_0}{2 T}} \quad (2.19)$$

Das reale Speedratio ist abhängig von den Streuquerschnitten im Jet und damit von Gasart, Ausgangsdruck  $p_0$  und Temperatur  $T_0$  sowie Durchmesser  $d$  der Düse (Brusdeylins et al., 1989; Pedemonte et al., 1999). Die Abhängigkeit für Helium vom Produkt  $p_0 d$  und für verschiedene Temperaturen  $T_0$  ist in Abbildung 2.8 dargestellt. Der typische Durchmesser der Düse beträgt  $30 \mu\text{m}$ . Bei Raumtemperatur benötigt man um ein hohes Speedratio zu erhalten einen Vordruck von  $p_0 \approx 30$  bar (Jagutzki, 1994; Spielberger, 1996). Dies führt zu einem großen Gasanfall in der Reaktionskammer. Alle in dieser Arbeit beschriebenen

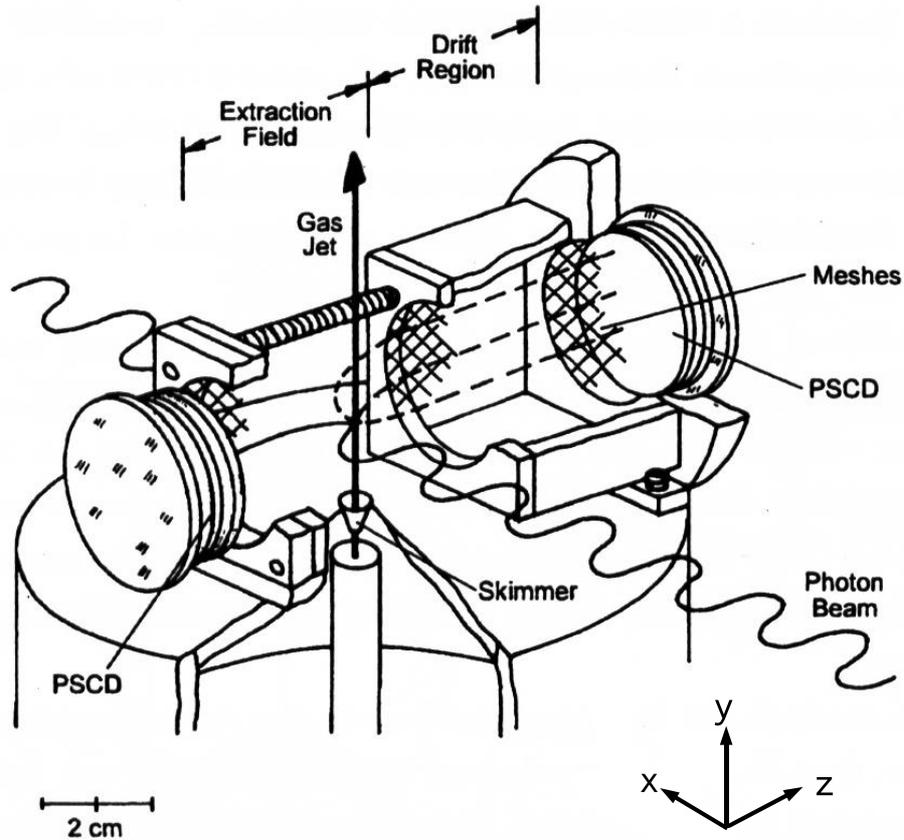


Abbildung 2.9: Schematischer Aufbau eines COLTRIMS Spektrometers zum kombinierten Nachweis von Rückstoßionen und Elektronen (aus Spielberger (1996)).

Experimente wurden deshalb mit einem auf  $T_0 = 14$  K vorgekühlten Helium-Gas durchgeführt. Damit ist ein Vordruck von  $p_0 \approx 1$  bar ausreichend (Mergel, 1996). Typische Teilchendichten im Überschallgasjet liegen im Bereich  $10^{11}$ – $10^{12}$   $\text{cm}^{-3}$ .

Die im Kreuzungsvolumen von Gasjet und Projektilstrahl entstehenden Ionen und Elektronen werden durch ein homogenes elektrisches Feld abgesaugt und auf ortsempfindlichen Micro-Channel-Plates-Detektoren nachgewiesen. Bei Feldstärken im Bereich 0.3–10 V/cm sind die Trajektorien empfindlich auf den Anfangsimpuls des Teilchens, d.h. Auftreffort und Flugzeit sind ein direktes Maß für diesen Anfangsimpuls. Eine Driftstrecke bewirkt eine weitere Aufweitung der Trajektorien entsprechend der Anfangsbedingungen und erlaubt unter anderem eine optimale Ausnutzung des Detektors. Abbildung 2.9 zeigt schematisch den Aufbau eines typischen COLTRIMS Spektrometers. Die Abbildungseigenschaften für die Ionenkomponente sind im wesentlichen linear. Der Rückstoßionenimpuls  $p^0$  ergibt sich somit zu

$$p_x^0 = m \frac{x}{t} \quad (2.20)$$

$$p_y^0 = m \frac{y}{t} \quad (2.21)$$

$$p_z^0 = ma(t(p_x^0 = 0) - t) \quad (2.22)$$

$m$  ist dabei die Ionenmasse und  $a$  die Beschleunigung der Ionen im Spektrometer, in die auch die Ionenladung eingeht.  $x$ ,  $y$  und  $t$  sind der gemessene Auftreffort und Flugzeit der Rückstoßionen. Für die Berechnung von  $p_x^0$  und  $p_y^0$  kann dabei die Flugzeit für alle Ionen unabhängig von  $p_z^0$  in guter Näherung als konstant angenommen werden. Die Linearität für  $p_z^0$  gilt streng genommen nur für den nun zu behandelnden Fall eines zeitfokussierenden Spektrometers.

Neben dem Anfangsimpuls beeinflusst auch das endliche Wechselwirkungsvolumen stark den Auftreffort und die Flugzeit. Hierbei sind zwei Fälle zu betrachten. Die endliche Ausdehnung der Wechselwirkungszone entlang der Spektrometerachse  $z$  führt zu unterschiedlich langen Beschleunigungsstrecken und damit zu einer Abhängigkeit der Flugzeit vom Ort bei gleichem Impuls  $p_z^0$ . Dies kann behoben werden, wenn die Driftstrecke doppelt so lang ist, wie die Beschleunigungsstrecke (Wiley und McLaren, 1955). In diesem Fall wird die Flugzeit in guter Näherung unabhängig vom Ort entlang der Spektrometerachse. Man spricht deshalb auch von zeitfokussierenden Spektrometern. Das im Kapitel 5.3 verwendete Flugzeitspektrometer verwendet die gleiche Geometrie, obwohl hier nur die absoluten Flugzeiten und nicht die Anfangsimpulse gemessen wurden. Voraussetzung für die Näherung ist, daß der im elektrischen Feld aufgenommene Impuls deutlich größer ist als der ursprüngliche, zu messende, Rückstoßionenimpuls. Dies ist bei den COLTRIMS Spektrometern der Fall.

Die endliche Ausdehnung der Wechselwirkungszone senkrecht zur Spektrometerachse führt bei gleichem Impuls  $p_{x,y}^0$  zu unterschiedlichen Orten auf dem Detektor. Hierfür gibt es keine so einfache Lösung. Mergel (1996) gelang es durch Einbau einer elektrostatischen Linse, diesen Effekt zu kompensieren und auch eine Ortsfokussierung zu erhalten. Dies führt u.a. zu einer deutlich längeren Driftstrecke als beim reinen zeitfokussierenden Spektrometer. Zudem läßt sich die Spektrometergeometrie nicht mehr analytisch berechnen sondern muss durch ionenoptische Simulationen (z.B. mit dem Ionenoptik-Programm SIMION) bestimmt werden.

Besteht das Kontinuum des Endzustandes aus mehr als zwei Teilchen, so müssen neben dem Rückstoßion noch die Impulse der anderen Teilchen bestimmt werden. Aufgrund der Impulserhaltung genügt es bei  $n$  Teilchen, die Impulse von  $n - 1$  Teilchen zu messen, um ein kinematisch vollständiges Experiment zu erhalten. Bei der Photodoppelionisation muss somit neben dem Rückstoßionenimpuls noch der Impuls eines der beiden Elektronen gemessen werden. Elektronen werden durch das gleiche elektrische Feld wie die Ionen auf einen entsprechenden ortsempfindlichen Detektor geleitet. Auch hier können Flugzeit und Auftreffort direkt in den Impuls umgerechnet werden. Aufgrund ihrer geringeren Masse haben die Elektronen bei gegebenem Impuls jedoch eine deutlich höhere Energie als die Ionen. Dies führt zu einer stärkeren Aufweitung der Trajektorien und die Impulsbestimmung ist weniger abhängig vom endlichen Wechselwirkungsvolumen. Aufgrund der höheren Energie können die Elektronen aber auch leicht das Spektrometer verlassen. Es ist damit unter Umständen nicht mehr möglich, den Impuls des Elektrons mit  $4\pi$  Raumwinkel zu bestimmen. Aus diesem Grund sind die meisten Elektronendetektoren bei COLTRIMS

Spektrometern sehr dicht an der Wechselwirkungszone angebracht. Dennoch können in einem Spektrometer wie in Abbildung 2.9 gezeigt nur Elektronen bis etwa 2 eV Energie mit  $4\pi$  Raumwinkel nachgewiesen werden. Für die Ionen besteht aufgrund ihrer geringen Energie dieses Problem nicht.

Für die in Kapitel 3.1 beschriebenen Messungen zur Photodoppelionisation bei 20 eV über der Schwelle war es jedoch nötig, Elektronen mit bis zu 10 eV Energie mit  $4\pi$  Raumwinkel nachzuweisen. Durch die Überlagerung eines homogenen Magnetfeldes von typischerweise 10–20 G parallel zum elektrischen Feld werden die Elektronen auf Spiralbahnen (Zyklotronbahnen) gezwungen und somit auch bei höherer Energie im Spektrometer gehalten (Moshhammer *et al.*, 1996; Kollmus *et al.*, 1997). Trotz der komplexeren Trajektorie kann aus Auftreffort und Flugzeit wieder der Anfangsimpuls berechnet werden. Die einzige Ausnahme bilden hierbei Elektronen, deren Flugzeit ein ganzzahliges Vielfaches der Zyklotronperiode beträgt. Alle diese Elektronen treffen unabhängig von ihrem Impuls am gleichen Ort auf den Detektor. In diesem Fall geht die Impulsinformation verloren. Der senkrechte Bereich fehlender Ereignisse in der Elektronenimpulsverteilung in Abbildung 3.2 unten links entspricht genau Elektronen mit einer Flugzeit von gerade einer Zyklotronperiode. Zudem wird in der Nähe dieser Punkte die Impulsauflösung schlechter. Dennoch ist der Verlust an Raumwinkel für ein kinematisch vollständiges Experiment vernachlässigbar gering.

Wie oben schon erwähnt, sind Detektoren mit einer guten Orts- und Zeitauflösung die dritte wichtige Komponente eines COLTRIMS Systems. Deshalb werden Micro-Channel-Plates (MCP) Detektoren (Mergel *et al.*, 1997) mit 48 mm bzw. 86 mm Durchmesser benutzt, bei denen eine Zeitauflösung von 400 ps erreicht wurde (Bräuning *et al.*, 1997). Eine Chevron-Anordnung (2 MCPs) oder ein z-Stack (3 MCPs) erlauben eine hohe Verstärkung und eine klare Trennung der Signale vom Rauschen. Die Ionen werden dabei typischerweise mit 2000–3000 V auf die Detektoroberfläche beschleunigt. Dies ist ausreichend, um die maximale Nachweiswahrscheinlichkeit zu erreichen, die entsprechend der offenen Fläche eines MCPs etwa 60% beträgt. Abbildung 2.10 zeigt beispielhaft die Pulshöhenverteilung und Nachweiseffizienz für  $\text{He}^+$  Ionen. Für die Elektronen reichen 200–300 eV Auftreffenergie aus, um eine maximale Effizienz zu garantieren.

Zur Ortsauslese wurden zunächst Wedge&Strip Anoden, wie die in Abbildung 2.11 gezeigte, verwendet (Spielberger, 1996; Mergel *et al.*, 1997). Bei diesen Anoden erfolgt die Ortskodierung durch Ladungsteilung (Jagutzki *et al.*, 2002b). Der Ort berechnet sich dabei aus den auf die Strip- (S), Wedge- (W) und Mäander-Elektrode (M) auftreffenden Ladungen zu

$$x = \frac{S}{S + W + M} \quad (2.23)$$

$$y = \frac{W}{S + W + M} \quad (2.24)$$

Damit können Auflösungen von bis zu 0.05 mm bei einem Durchmesser der Anode von 50 mm erreicht werden. Die Notwendigkeit, Ladungen zu messen, hat jedoch auch gravierende Nachteile. Die Verstärker müssen sehr genau abgeglichen werden, da sonst die

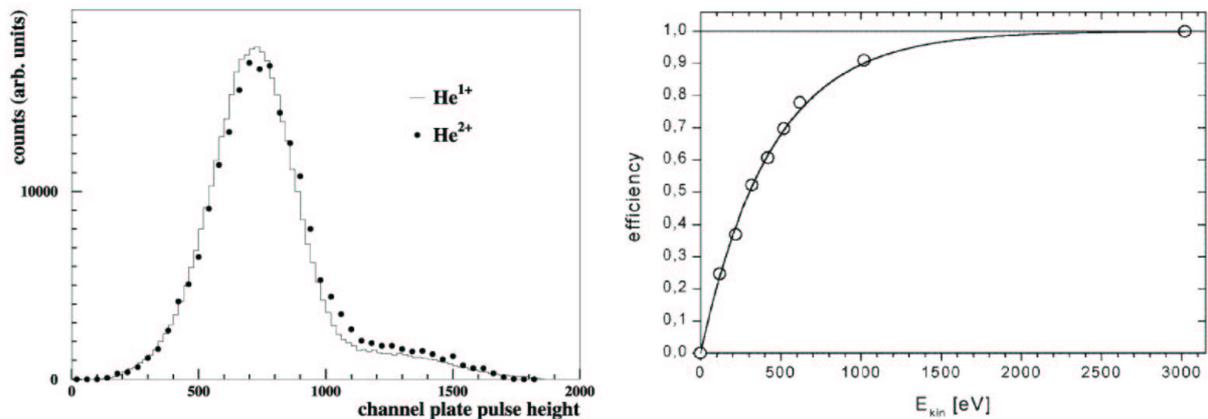


Abbildung 2.10: Links: Pulshöhenverteilung für  $\text{He}^+$  und  $\text{He}^{2+}$  Ionen bei einem  $z$ -Stack MCP-Detektor mit 3000 V Beschleunigungsspannung für die Ionen (Dörner et al., 1996). Rechts: Relative Effizienz (normiert auf die Effizienz bei 3000 eV Ionenenergie) für  $\text{He}^+$  Ionen als Funktion der Energie beim Auftreffen auf einen  $z$ -Stack MCP-Detektor (Mergel, 1996).

Abbildung stark verzerrt wird. Durch die nötigen langen Integrationszeiten für die Ladungsmessung ist die maximale Rate für den Detektor auf etwa  $10^4 \text{ s}^{-1}$  beschränkt. Damit ist es auch nicht möglich, mehrere nahezu gleichzeitige Ereignisse auf dem Detektor nach-

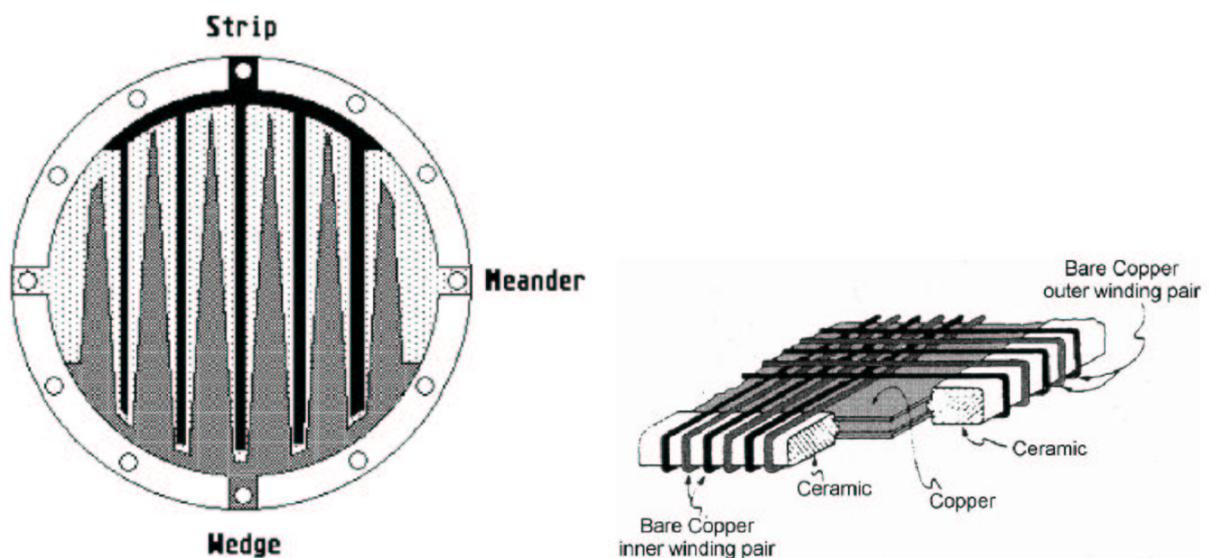


Abbildung 2.11: Links: Wedge&Stip-Anode (aus Mergel et al. (1997)). Rechts: Delayline-Anode (aus Sobottka und Williams (1988)).

zuweisen, wie es z.B. beim Nachweis beider ionischen Fragmente aus der Photodoppelionisation von  $D_2$  (siehe Kapitel 4.1) notwendig ist.

Die Nachteile der Wedge&Strip-Anoden werden durch die Verwendung von Delayline-Anoden gelöst (Jagutzki *et al.*, 2002c). Eine Ortsauslese bei MCP-Detektoren mittels einer Delayline wurde bereits von Sobottka und Williams (1988) vorgeschlagen. Abbildung 2.11 zeigt eine schematische Darstellung der verwendeten Delayline-Anoden. Um eine Kupferplatte sind isoliert zwei Drahtpaare gewickelt (je ein Paar für x und y Richtung). Jedes Paar verhält sich wie eine Lecher-Leitung und die Laufzeit der Signale zu den beiden Enden der Leitung ist abhängig vom Auftreffort der Elektronen auf die Leitung. Damit reduziert sich die Ortsauslese auf die Messung von Zeitdifferenzen zwischen den Enden der Leitung. Typische Laufzeiten von Ende zu Ende liegen dabei im Bereich 50–100 ns je nach Größe der Anode. Diese kurze Laufzeit und die Verwendung schneller Zeitelektronik erlaubt es, mit Delaylines Raten bis in den Bereich  $10^6 \text{ s}^{-1}$  zu verarbeiten. Moderne TDCs (*Time-to-Digital Converter*) erlauben es zudem, pro Kanal mehrere Signale aufzunehmen, sofern sie einen zeitlichen Mindestabstand haben (typischerweise 10 ns bei derzeit erhältlichen Modulen). Dies erlaubt eine echte Multi-Hit-Fähigkeit von Delayline-Detektoren. Lediglich Ereignisse, deren zeitlicher Abstand geringer ist, werden nicht als zwei getrennte Ereignisse erkannt. Dies ist auch der Grund für den senkrechten Bereich fehlender Ereignisse in der Impulsverteilung der  $D^+$  Fragmente in Abbildung 4.2. In neueren Entwicklungen werden statt zwei Lecher-Leitungen im Winkel von  $90^\circ$  drei Leitungen im Winkel von  $60^\circ$  verwendet (Jagutzki *et al.*, 2002a). Damit ist die Ortsinformation stark überbestimmt und auch Ereignisse mit einem geringeren zeitlichen Abstand können rekonstruiert werden. Neuere Messungen von Weber *et al.* (2004) zur Photodoppelionisation von  $D_2$  mit koinzidentem Nachweis beider ionischen Fragmente und beider Elektronen z.B. verwenden diese neue drei-lagige Delayline-Anode.

# Kapitel 3

## Einfache atomare Systeme

Wie in der Einleitung erwähnt, ist die Behandlung von Vielteilchensystemen aufgrund der Elektron-Elektron-Wechselwirkung sehr anspruchsvoll. Es besteht somit ein Interesse, dynamische Prozesse zunächst an einfachen atomaren Systemen zu untersuchen, um einen besseren Vergleich mit theoretischen Rechnungen zu ermöglichen.

### 3.1 Photodoppelionisation von He

Der langsame Aufbruch eines gebundenen Systems in mehr als zwei geladene Teilchen ist immer noch eines der fundamentalsten Probleme der Atomphysik. Der entscheidende Faktor bei diesem Problem ist die langreichweitige Coulomb-Wechselwirkung. Die damit verbundene Wechselwirkung aller Teilchen untereinander bis zu großen Abständen hin fordert einen hohen Grad an Korrelation in der Endzustandswellenfunktion. Dies gilt insbesondere für die leichten Elektronen, während die Kernbewegung aufgrund der großen Masse der Kerne in guter Näherung oft klassisch beschrieben werden kann. Die Photodoppelionisation eines Zweielektronensystems, d.h. die gleichzeitige Ionisation von zwei Elektronen durch ein einzelnes Photon, ist besonders geeignet, dieses Problem zu studieren, da (a) die Energiedeposition im System über die Photonenenergie sehr genau kontrolliert werden kann und (b) der übertragene Drehimpuls über den Dipoloperator genau bekannt ist. Beides gilt nicht für die Ionisation durch geladene Teilchen. Das einfachste atomare Zweielektronensystem ist dabei das Helium, welches in diesem Abschnitt behandelt werden soll.

Einer der integralsten Messwerte zur Photodoppelionisation ist das Verhältnis von Doppelionisation zur Einfachionisation. Dieses Verhältnis steigt ab der Doppelionisationsschwelle von 79 eV an und erreicht bei Energien um 150–250 eV ein Maximum bevor es zu höheren Energien asymptotisch den Wert 1.67% erreicht. Erste Messungen dieses Verhältnisses wurden vor fast 40 Jahren von Carlson (1967) durchgeführt. Nachfolgende Messungen ergaben für den Maximalwert des Verhältnisses unterschiedliche Werte im Bereich 3.4–5.2%, während beim asymptotischen Grenzwert eine gute Übereinstimmung bestand (siehe Dörner *et al.* (1996b) für eine ausführliche Diskussion).

Den höchsten Grad an Information erhält man jedoch, wenn die Impulsvektoren aller

Teilchen im Endzustand koinzident gemessen werden. Erste Messungen dieser Art mittels koinzidenter Elektronenspektroskopie wurden von Schwarzkopf *et al.* (1993) für ausgewählte Geometrien und gleiche Energieaufteilung zwischen den beiden Elektronen durchgeführt. Auch folgende Experimente (Schwarzkopf *et al.*, 1994; Schwarzkopf und Schmidt, 1995; Huetz *et al.*, 1994; Lablanquie *et al.*, 1995; Dawber *et al.*, 1995) blieben immer auf bestimmte Energieaufteilungen und Geometrien beschränkt. Die Ursache dieser Beschränkung liegt in dem geringen Raumwinkel der Elektronenspektrometer. Dieser erlaubt es, nur bestimmte Winkel gleichzeitig zu messen. Zudem sind die verwendeten Spektrometer nur sensitiv auf eine durch die Betriebsspannung festgelegte Energie. Die Messung vollständig differentieller Wirkungsquerschnitte für mehrere Winkel und Elektronenenergien erfordert also viele Messungen, bei denen die Position des Spektrometers und/oder seine Betriebsspannung geändert werden muss. Dies macht die vollständige Abtastung des Endzustandes nicht praktikabel, so daß sich die Experimente auf bestimmte Geometrien konzentrierten.

Die Anwendung der *Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy* (COLTRIMS) auf das Studium der Photodoppelionisation erlaubte nicht nur die exakte Bestimmung des Verhältnisses von Doppel- zu Einfachionisation zu 3.7% im Maximum (Dörner *et al.*, 1996b), sondern auch erstmals die vollständige Bestimmung der Impulsvektoren aller drei Teilchen im Endzustand mit vollem  $4\pi$  Raumwinkel bei 80 eV Photonenenergie, d.h. 1 eV über der Doppelionisationsschwelle (Dörner *et al.*, 1996a). Abgesehen von der Bestimmung der Spins handelt es sich somit um ein kinematisch vollständiges Experiment.

Für die Einfachionisation kann innerhalb der Dipolnäherung der winkelabhängige Wirkungsquerschnitt parametrisiert werden durch (Schmidt, 1992)

$$\frac{d^2\sigma(\theta, \phi)}{d\Omega} = \frac{\sigma}{4\pi} \left\{ 1 + \beta \left[ \frac{3}{4} (1 - \sin^2\phi \sin^2\theta + S_1 \cos^2\theta - S_1 \cos^2\phi \sin^2\theta) - \frac{1}{2} \right] \right\} \quad (3.1)$$

$\theta$  bezeichnet den Polarwinkel bezüglich des elektrischen Feldvektors der Photonen,  $\phi$  den Azimutwinkel um diese Achse und  $\sigma$  den totalen Wirkungsquerschnitt. Der Stokesparameter  $S_1$  gibt den Grad der linearen Polarisation an. Für vollständig linear polarisiertes Licht mit  $S_1 = 1$  reduziert sich 3.1 zu

$$\frac{d^2\sigma(\theta, \phi)}{d\Omega} = \frac{\sigma}{4\pi} \left\{ 1 + \beta \left( \frac{3}{2} \cos^2\theta - \frac{1}{2} \right) \right\} \quad (3.2)$$

In beiden Gleichungen ist  $\beta$  der sogenannte Asymmetrieparameter (siehe auch Abbildung 3.1). Für die Einfachionisation in den  $\text{He}^+(n=1)$  Grundzustand ergibt sich aufgrund des Photonenspins  $\beta = 2$ . Die Winkelverteilung des emittierten Elektrons zeigt damit die typische Dipolcharakteristik.

Bei der Doppelionisation geht durch die Elektron-Elektron-Wechselwirkung bei nicht zu hohen Photonenenergien diese Dipolcharakteristik für ein einzelnes Elektron verloren. Wie Abbildung 3.1 zeigt, liegt der Asymmetrieparameter  $\beta$  bei 1 eV (Dörner *et al.*, 1996a), 20 eV (Bräuning *et al.*, 1997) und 21 eV (Wehlitz *et al.*, 1991; Maulbetsch und Briggs, 1993b) über der Schwelle nahe Null und entspricht damit einer annähernd isotropen Verteilung. Wie erwartet, gibt es eine gute Übereinstimmung zwischen den mit COLTRIMS

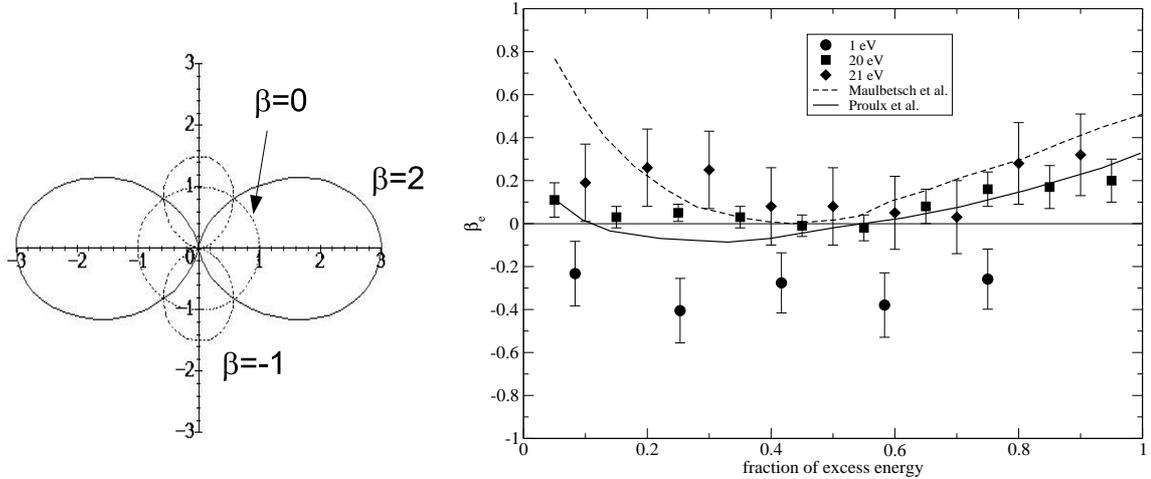


Abbildung 3.1: Links: Emissionscharakteristiken für ausgewählte Asymmetrieparameter  $\beta = -1, 0$  und  $2$ . Rechts: Asymmetrieparameter  $\beta_e$  für die Emission eines Elektrons als Funktion des Anteils an der Überschussenergie. Experimente: Kreise - 1 eV über der Schwelle (Dörner et al., 1996a), Quadrate - 20 eV über der Schwelle (Bräuning et al., 1997), Rauten - 21 eV über der Schwelle (Wehlitz et al., 1991; Maulbetsch und Briggs, 1993b). Theorie für 21 eV: durchgezogene Linie - 2SC-Rechnung (Proulx und Shakeshaft, 1993), gestrichelte Linie - 3C-Rechnung (Maulbetsch und Briggs, 1993b).

gewonnenen Daten bei 20 eV und den mit klassischer Elektronenspektroskopie gewonnenen Daten bei 21 eV. Auch die Energieverteilungsfunktion zwischen den beiden Elektronen ist in diesem Bereich nahe der Schwelle flach. Erst bei höheren Energien ab etwa 100 eV über der Schwelle (Knapp *et al.*, 2002b) findet die Wechselwirkung des Photons bevorzugt mit einem einzelnen Elektron und nicht mit dem Elektronenpaar statt. In diesem Fall wird der dominante Anteil der Photonenenergie auf nur ein Elektron übertragen, dessen Winkelverteilung dann wieder den Fingerabdruck der Dipolverteilung widerspiegelt (Knapp *et al.*, 2002a). Bei den hier betrachteten Energien nahe der Doppelionisationsschwelle ist dies jedoch nicht der Fall. Somit zeigt auch die Verteilung der Impulse in der linken Spalte von Abbildung 3.2 sowohl bei 80 eV Photonenenergie (Dörner *et al.*, 1996a) als auch bei 99 eV Photonenenergie (Bräuning *et al.*, 1997) (1 eV bzw. 20 eV über der Doppelionisationsschwelle) keine signifikante Abweichung von einer isotropen Verteilung. Entscheidend sind vielmehr die Winkelkorrelationen der beiden Elektronen untereinander. Der Vorteil der kinematisch vollständigen Experimente ist es, daß die experimentellen Daten in jedes beliebige Koordinatensystem transformiert werden können. Statt die traditionellen Elektronenimpulse  $\vec{k}_1$  und  $\vec{k}_2$  im Laborsystem zu betrachten, bietet es sich an, die Elektronen als ein Paar zu beschreiben und molekulare Jacobi-Koordinaten zu verwenden (Feagin und Briggs, 1986; Feagin, 1995, 1996). Den Jacobi-Koordinaten entsprechen die Impulse

$$\vec{k}_r = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 \quad (3.3)$$

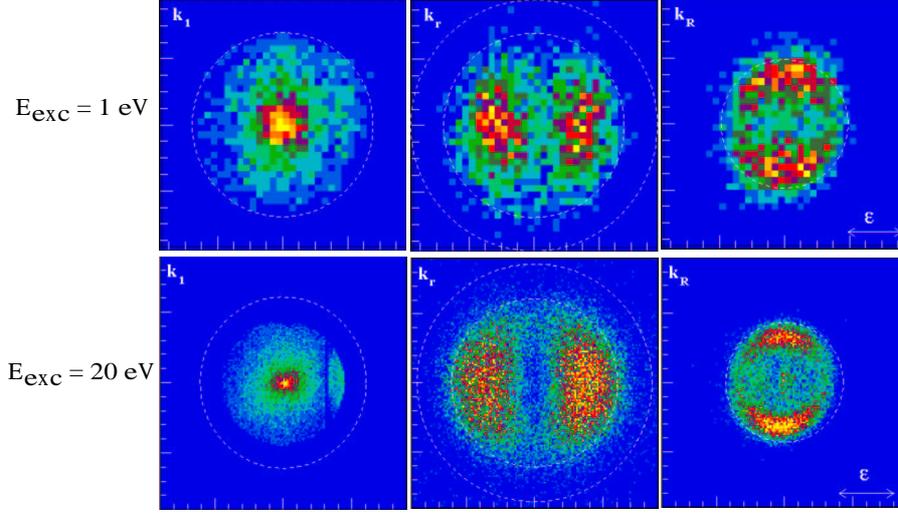


Abbildung 3.2: Impulsverteilungen für die Photodoppelionisation von He mit 80 eV (oben) und 99 eV (unten) Photonen. Die Abbildungen sind Projektionen auf die  $y$ - $z$  Ebene ( $y$  - Richtung des He-Gasjets,  $z$  - Richtung der Polarisationsachse) für Impulse  $k_x$  in  $x$  ( $x$  - Richtung des Photonenstrahls) mit  $-0.2\text{au} < k_x < 0.2\text{au}$ . Links: Impulsverteilung  $\vec{k}_1$  eines einzelnen Elektrons. Mitte: Impulsverteilung  $\vec{k}_r = \vec{k}_1 + \vec{k}_2$  des Rückstoßions. Rechts: Impulsverteilung  $\vec{k}_R = \frac{1}{2}(\vec{k}_1 - \vec{k}_2)$  der Elektronen in ihrem Schwerpunktsystem.

$$\vec{k}_R = \frac{1}{2}(\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \quad (3.4)$$

$\vec{k}_r$  entspricht hier dem Impuls des Schwerpunktes des Elektronenpaares und  $\vec{k}_R$  ist die Relativbewegung der Elektronen in ihrem Schwerpunktsystem. Der Impuls des Rückstoßions kompensiert gerade den Schwerpunktsimpuls:  $\vec{k}_{ion} = -\vec{k}_r$ . Diese Wahl der Jacobi-Koordinaten eröffnet eine neue Perspektive zur Betrachtung der Photodoppelionisation (Dörner *et al.*, 1998a). Die Verwendung der einzelnen Elektronenimpulse  $\vec{k}_1$  und  $\vec{k}_2$  entspricht dem Bild zweier aus dem Potential des  $\text{He}^{2+}$  Kernes entweichender Elektronen (siehe Abbildung 3.3). Die Winkelverteilung wird dabei durch die Elektron-Ion- und Elektron-Elektron-Wechselwirkung beeinflusst. Die Jacobi-Impulse hingegen beschreiben die Bewegung des Ions im Sattelpunkt des Zwei-Zentrenpotentials (Abbildung 3.3), welches von den beiden sich voneinander entfernenden Elektronen gebildet wird. Die entsprechenden Impulsverteilungen sind in Abbildung 3.2 dargestellt. Im Mittel stehen somit  $\vec{k}_r$  bzw.  $\vec{k}_{ion}$  senkrecht zu  $\vec{k}_R$ . Dies entspricht einer Bewegung des Ions entlang des Sattels aus dem Zwei-Zentrenpotential der Elektronen heraus. Bei einer Bewegung senkrecht zum Sattel würde, stark bildlich betrachtet, das Ion in einen der beiden Potentialtöpfe hineinfallen. D.h. im System des Ions betrachtet, das entsprechende Elektron würde beim Ion verbleiben und nicht ionisiert werden.

Ionisationsprozesse nahe der Schwelle, wie hier diskutiert, können oft sehr gut im Rahmen der Wannier-Theorie (Wannier, 1953; Huetz *et al.*, 1991; Feagin, 1995, 1996) beschrie-

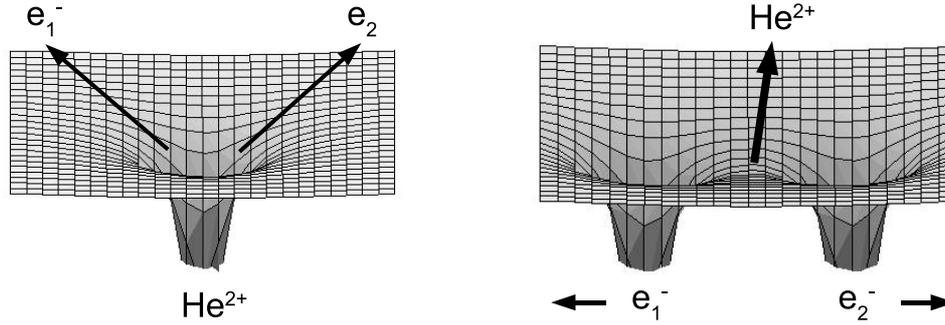


Abbildung 3.3: *Betrachtungsweisen der Photodoppelionisation. Links: Bewegung zweier Elektronen im Potential des  $\text{He}^{2+}$  Kerns. Rechts: Bewegung des  $\text{He}^{2+}$  Kerns entlang des Sattels im Zwei-Zentrenpotential der entweichenden Elektronen.*

ben werden. Eine wichtige Größe im Rahmen dieser Theorie für die Photodoppelionisation ist die Projektion des Gesamtdrehimpulses  $\vec{L}$  auf die Achse  $\vec{R}$  zwischen den beiden Elektronen:  $K = \vec{L} \cdot \vec{R}$ . Der Gesamtdrehimpuls des Systems beträgt  $L = 1$  aufgrund des vom Photon eingebrachten Drehimpulses. Damit ergeben sich die zwei Wannier-Zustände  $K = 0$  und  $K = 1$ . Der Zustand  $K = 0$  entspricht einer Separation des Elektronenpaares entlang der Polarisationsachse der Photonen und der Zustand  $K = 1$  entsprechend einer Separation senkrecht zur der Polarisationsachse. Wie aus Abbildung 3.2 direkt ersichtlich, wird der  $K = 1$  Zustand bevorzugt. Auch Lablanquie *et al.* (1995) und Viefhaus *et al.* (1996a) beobachteten einen dominanten Beitrag des  $K = 1$  Zustandes nahe der Schwelle bei ihren Messungen zur Winkelverteilung der Elektronen. Die Abbildungen 3.4 und 3.5 zeigen die entsprechenden Asymmetrieparameter als Funktion des Anteils der Überschussenergie in der entsprechenden Bewegungskomponente. Geht sämtliche Überschussenergie in die Bewegung  $\vec{k}_R$  der Elektronen in ihrem Schwerpunktsystem, so verbleibt das Rückstoßion und damit der Schwerpunkt des Elektronenpaares in Ruhe, d.h.  $\vec{k}_r = 0$ . Dies bezeichnet man auch als den 'cold-ion' Grenzfall. Aufgrund der Auswahlregeln in der Photodoppelionisation von Helium kann dieser nicht ganz erreicht werden. Die Wannier-Theorie sagt jedoch für ihn bei reiner  $K = 1$  Anregung und 20 eV Überschussenergie die Asymmetrieparameter  $\beta_r \simeq \frac{7}{5}$  für die Bewegung des Massenschwerpunktes der Elektronen und  $\beta_R \simeq -1$  für die Bewegung der Elektronen in ihrem Schwerpunktsystem voraus. Die gemessenen Werte zeigen somit deutlich auch eine leichte Beimischung der  $K = 0$  Anregung (Bräuning *et al.*, 1997).

Mehr Informationen erhält man aus den vollständig (dreifach) differentiellen Wirkungsquerschnitten  $\frac{d^3\sigma}{dE_1 d\Omega_1 d\Omega_2}$ . Dies gilt insbesondere bei den von Dörner *et al.* (1996a, 1998a) und Bräuning *et al.* (1997, 1998) durchgeführten kinematisch vollständigen Experimenten bei Photonenenergien bis 20 eV über der Schwelle. Dabei ergeben die in Abbildung 3.2 dargestellten Impulsverteilungen nach Normierung auf den totalen Wirkungsquerschnitt

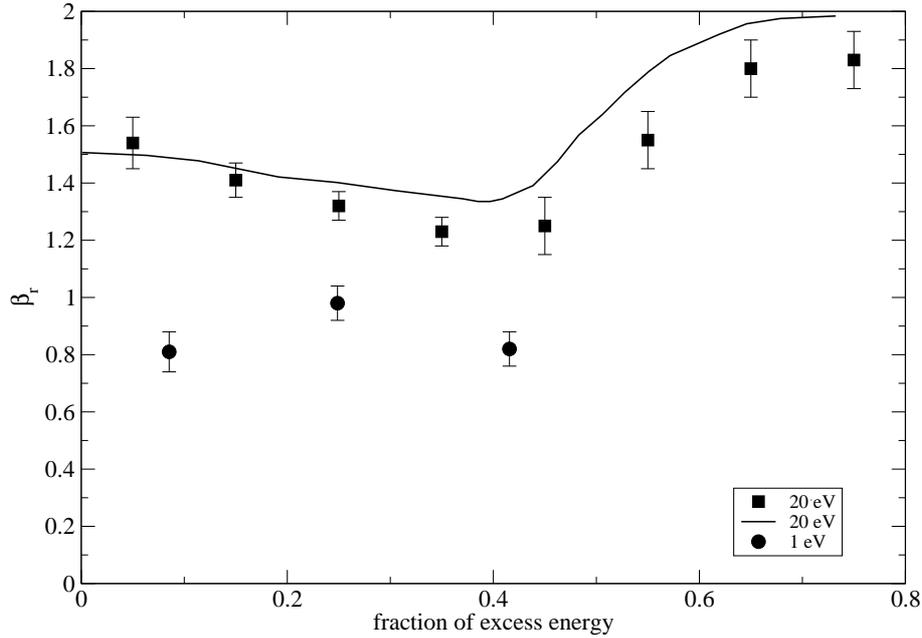


Abbildung 3.4: Asymmetrieparameter  $\beta_r$  für die Bewegung des Schwerpunktes des Elektronenpaares als Funktion des Anteils an der Überschussenergie. Experimente: Kreise - 1 eV über der Schwelle (Dörner et al., 1996a), Quadrate - 20 eV über der Schwelle (Bräuning et al., 1997). Theorie: 2SC-Rechnung (Pont und Shakeshaft, 1996).

und Umrechnung der Impulsvektoren in Elektronenenergie und Emissionswinkel direkt die vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitte. Wie bereits von mehreren Autoren beschrieben (Huertz *et al.*, 1991; Schwarzkopf *et al.*, 1993; Maulbetsch und Briggs, 1995; Malegat *et al.*, 1997a,b), werden die vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitte stark von Auswahlregeln für den Zweielektronen-Kontinuumszustand geprägt. So ist z.B. bei der Photodoppelionisation von Helium die antiparallele Elektronenemission mit gleicher Energieaufteilung ( $\vec{k}_1 = -\vec{k}_2$ ) aufgrund des  $^1P^o$  Charakters des Zweielektronen-Kontinuumszustandes verboten. Dies wurde bereits von Schwarzkopf *et al.* (1993) bei der ersten Messung von vollständig differentiellen Wirkungsquerschnitten für eine ausgewählte Geometrie beobachtet. Eine ausführliche Diskussion der Auswahlregeln findet sich bei Maulbetsch und Briggs (1995). Für Helium sind dabei folgende Zustände verboten:

1.  $\vec{k}_1$  und  $\vec{k}_2$  senkrecht zur Polarisationsachse
2.  $\vec{k}_1 = -\vec{k}_2$
3.  $k_1 = k_2$  und  $\theta_1 = \pi - \theta_2$
4.  $\vec{k}_1 = \vec{k}_2$

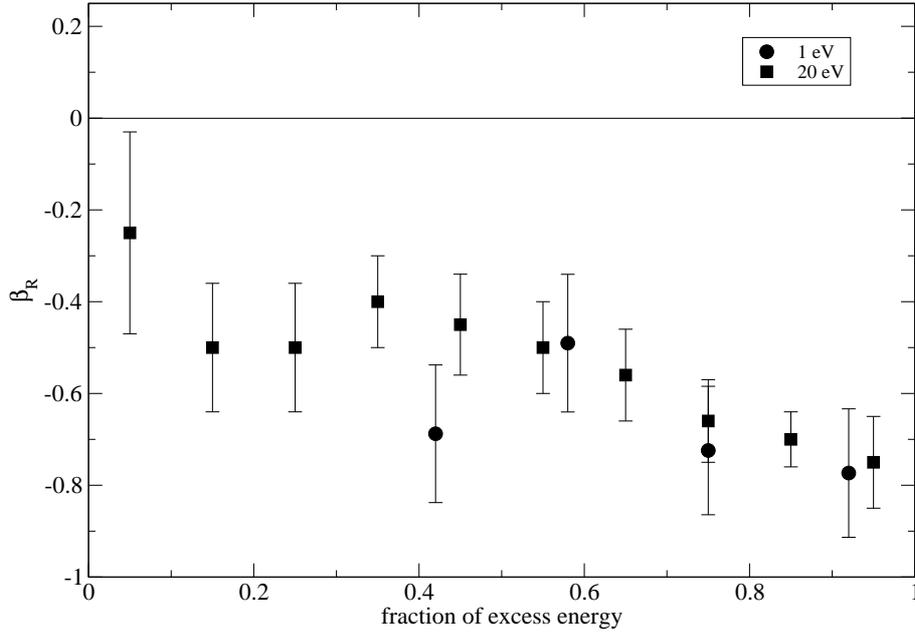


Abbildung 3.5: Asymmetrieparameter  $\beta_R$  für die Relativbewegung der Elektronen in ihrem Schwerpunktsystem als Funktion des Anteils an der Überschussenergie. Experimente: Kreise - 1 eV über der Schwelle (Dörner et al., 1996a), Quadrate - 20 eV über der Schwelle (Bräuning et al., 1997).

Hierbei spiegelt die letzte Regel lediglich die Coulomb-Abstoßung der beiden Elektronen wider. Diese verhindert, daß sich beide Elektronen als Paar mit identischen Impulsvektoren bewegen. Abbildung 3.6 verdeutlicht die Auswahlregeln für gleiche Energieaufteilung.

Ein Vergleich mit den dreifach differentiellen Wirkungsquerschnitten zeigt, daß die oben angesprochene Wannier-Beschreibung von Feagin (1995, 1996) zwar nahe der Schwelle den Verlauf der differentiellen Wirkungsquerschnitte gut wiedergibt, aber bei 20 eV über der Schwelle und bei sehr ungleicher Energieaufteilung auf die beiden Elektronen signifikante Abweichungen auftreten (Dörner *et al.*, 1998a).

Huetz und Mitarbeitern gelang die Parametrisierung des dreifach differentiellen Wirkungsquerschnittes zunächst im Rahmen der Wannier-Theorie (Huetz *et al.*, 1991) und später exakt (Malegat *et al.*, 1997a). Der Wirkungsquerschnitt ergibt sich dabei in der Dipolnäherung zu

$$\frac{d^3\sigma}{dE_1 d\Omega_1 d\Omega_2} \sim |(\cos\theta_1 + \cos\theta_2)a_g(E_1, \theta_{12}) + (\cos\theta_1 - \cos\theta_2)a_u(E_1, \theta_{12})|^2 \quad (3.5)$$

Die Funktionen  $a_g$  und  $a_u$  hängen von der Energieaufteilung und dem Winkel  $\theta_{12}$  zwischen den beiden Elektronen ab. In der exakten Parametrisierung sind  $a_g$  und  $a_u$  gegeben durch eine Partialwellenzerlegung und enthalten die Matrixelemente des Dipoloperators. Ihre Berechnung ist somit nicht trivial. Die ungerade Funktion  $a_u$  ist antisymmetrisch gegen

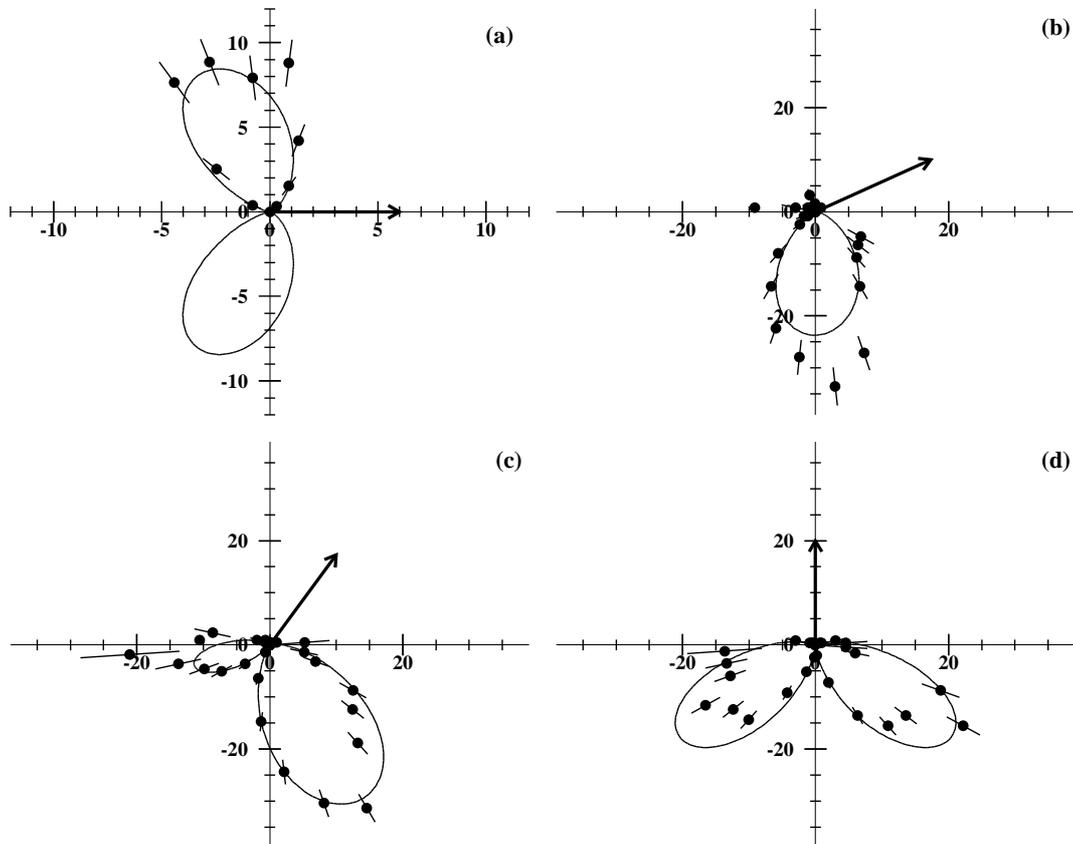


Abbildung 3.6: Absolute dreifach differentielle Wirkungsquerschnitte  $\frac{d^3\sigma}{dE_1 d\Omega_1 d\Omega_2}$  in  $b \text{ eV}^{-1} \text{ sr}^{-2}$  für 99 eV Photonenenergie bei gleicher Energieaufteilung und verschiedenen Emissionswinkeln eines Elektrons (Bräuning et al., 1998). Die feste Emissionsrichtung ist jeweils durch den Pfeil angegeben und beträgt  $\theta_1 = 0^\circ$  (a),  $\theta_1 = 30^\circ$  (b),  $\theta_1 = 60^\circ$  (c) und  $\theta_1 = 90^\circ$  (d). Die Linie entspricht den berechneten Wirkungsquerschnitten nach der Parametrisierung von Huetz und Mitarbeitern (siehe Text), die bei  $0^\circ$  an die experimentellen Daten angefitzt wurde.

Vertauschung der Elektronen und verschwindet wenn  $E_1 = E_2$ . In diesem Falle ist der dreifach differentielle Wirkungsquerschnitt nur noch von  $|a_g|^2$  abhängig. Die Funktion  $|a_g|^2$  kann mit einigem Erfolg durch eine Gaußfunktion mit einem Maximum bei  $180^\circ$  beschrieben werden (Schwarzkopf et al., 1993; Huetz et al., 1994; Pont und Shakeshaft, 1996; Briggs

und Schmidt, 2000). Für den Wirkungsquerschnitt ergibt sich somit

$$\left. \frac{d^3\sigma}{dE_1 d\Omega_1 d\Omega_2} \right|_{E_1=E_2} = a(\cos\theta_1 + \cos\theta_2)^2 \exp\left\{-\frac{1}{2}[(\theta_{12} - 180^\circ)/\gamma]^2\right\} \quad (3.6)$$

wobei  $a$  eine Normierungskonstante ist. Durch einen Fit an die experimentellen Daten ergibt sich bei Energien um 20 eV über der Schwelle eine Halbwertsbreite der Gaußfunktion von  $91^\circ \pm 2^\circ$  (Schwarzkopf und Schmidt, 1995; Malegat *et al.*, 1997a; Dörner *et al.*, 1998a; Bräuning *et al.*, 1998). Zu niedrigeren Überschussenergien hin nimmt die Halbwertsbreite stetig ab und beträgt bei 1 eV über der Schwelle nur noch  $67^\circ \pm 3^\circ$  (Dawber *et al.*, 1995; Dörner *et al.*, 1998a). Abbildung 3.6 zeigt exemplarisch den in dieser Parametrisierung berechneten Wirkungsquerschnitt mit Messungen bei 20 eV über der Schwelle von Bräuning *et al.* (1998). Die Parameter in Gleichung 3.6 wurden dabei nur an die Daten für  $\theta_1 = 0$  angefitet. Die Übereinstimmung mit dem Experiment ist sehr gut. Es sollte jedoch noch einmal darauf hingewiesen werden, daß in der exakten Ableitung die Funktion  $|a_g|^2$  eine komplizierte Funktion ist, welche die Matrixelemente enthält, und selbst im Rahmen der einfachen Wannier-Beschreibung nicht notwendigerweise eine Gaußfunktion sein muss (Kazansky und Ostrovsky, 1993).

Erste *ab initio* Rechnungen wurden von Maulbetsch *et al.* (Maulbetsch und Briggs, 1993b,a, 1994; Maulbetsch *et al.*, 1995) sowie Shakeshaft *et al.* (Proulx und Shakeshaft, 1993; Pont und Shakeshaft, 1995; Pont *et al.*, 1996) durchgeführt. Die verwendeten Methoden unterscheiden sich dabei signifikant. Maulbetsch und Briggs berechnen direkt das entsprechende Matrixelement

$$M(\vec{k}_1, \vec{k}_2) = \langle \Psi_{\vec{k}_1, \vec{k}_2}^{(-)} | V | \Psi_i \rangle \quad (3.7)$$

Die Anfangswellenfunktion  $\Psi_i(r_1, r_2)$  wird dabei durch die einfache Form

$$\Psi_i(r_1, r_2) = N [\exp(-ar_1 - br_2) + \exp(-ar_2 - br_1)] \exp(cr_{12}) \quad (3.8)$$

beschrieben, wobei  $r_1$  und  $r_2$  der Abstand der Elektronen vom Kern bedeutet und  $r_{12}$  den Abstand der Elektronen untereinander beschreibt.  $N$  ist ein Normierungsfaktor und die Parameter  $a$ ,  $b$  und  $c$  werden durch Minimierung der Bindungsenergie bestimmt. Die Endzustandswellenfunktion  $\Psi_{\vec{k}_1, \vec{k}_2}^{(-)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$  wird durch ein Produkt aus drei Coulomb-Wellenfunktionen  $C(X, \vec{k}, \vec{r})$  dargestellt

$$\Psi_{\vec{k}_1, \vec{k}_2}^{(-)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \approx \sqrt{2}(2\pi)^{-3} e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1 + i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2} C(-Z, \vec{k}_1, \vec{r}_1) C(-Z, \vec{k}_2, \vec{r}_2) C\left(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}\vec{k}_{12}, \vec{r}_{12}\right) \quad (3.9)$$

mit

$$C(X, \vec{k}, \vec{r}) = e^{-X\pi/2k} \Gamma(1 - iX/k) {}_1F_1(iX/k, 1, -ikr - i\vec{k} \cdot \vec{r}) \quad (3.10)$$

Das Matrixelement 3.7 kann damit auf ein zweidimensionales Integral reduziert und numerisch ausgewertet werden. Aufgrund der Verwendung von drei Coulomb-Wellenfunktionen im Endzustand wird diese Methode als 3C-Methode bezeichnet.

Im Gegensatz zu Maulbetsch und Briggs beschreiben Pont und Shakeshaft die Endzustandswellenfunktion nur durch ein Produkt aus zwei Coulomb-Wellenfunktionen

$$\Psi_{k_1, k_2}^{(-)}(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \approx \sqrt{2}(2\pi)^{-3} e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1 + i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2} C(-Z_1, \vec{k}_1, \vec{r}_1) C(-Z_2, \vec{k}_2, \vec{r}_2) \quad (3.11)$$

Der Elektron-Elektron-Wechselwirkung wird hierbei durch die Verwendung der effektiven Kernladungen  $Z_1$  und  $Z_2$  Rechnung getragen. Aufgrund dieser Abschirmung wird diese Methode als 2SC-Methode bezeichnet. Zudem wird nicht direkt das Matrixelement 3.7 ausgewertet, sondern eine Flussgleichung, die in ein Oberflächenintegral übergeht, dessen einziger Beitrag aus dem Bereich der klassischen asymptotischen Bewegung der beiden Elektronen kommt. Da die 2SC-Wellenfunktion in diesem Bereich exakt ist, ist es mit der 2SC-Methode im Prinzip möglich, exakte Wirkungsquerschnitte zu erhalten. Zudem werden gestörte Grundzustandswellenfunktionen verwendet.

Die 3C-Rechnungen haben Schwierigkeiten, verlässliche, absolute Wirkungsquerschnitte insbesondere nahe der Schwelle zu erhalten (Maulbetsch und Briggs, 1995). Auch die Abhängigkeit des Asymmetrieparameters  $\beta_e$  der Elektronen von der Energieaufteilung wird nicht so gut wiedergegeben wie von den 2SC-Rechnungen (siehe Abbildung 3.1). Bei symmetrischer Energieaufteilung jedoch ergeben 3C- und 2SC-Rechnungen nahezu gleiche Werte. Die 2SC-Rechnungen spiegeln auch sehr gut die Abhängigkeit des Asymmetrieparameters  $\beta_r$  des Schwerpunktes wider (siehe Abbildung 3.4).

In einer vergleichenden Studie erhielten Maulbetsch und Briggs (1995) eine gute Übereinstimmung im Verlauf des Wirkungsquerschnittes zwischen den beiden Rechnungen und experimentellen Daten von Schwarzkopf *et al.* (1993), Schwarzkopf und Schmidt (1995) sowie Dawber *et al.* (1995). Die Übereinstimmung ist besonders gut nahe der Schwelle oder für symmetrische Energieaufteilung zwischen den beiden Elektronen. Gleiches gilt auch für die experimentellen Daten von Bräuning *et al.* (1998) wie Abbildung 3.7 zeigt. Hierbei ist anzumerken, daß die Rechnungen für 18.6 eV über der Schwelle durchgeführt wurden, während die experimentellen Daten bei 20 eV über der Schwelle gemessen wurden. Neuere Untersuchungen (Pont *et al.*, 1996) und Vergleiche mit Messungen von Lablanquie *et al.* (1995) bei 4 eV und 18.6 eV über der Schwelle haben jedoch gerade bei stark asymmetrischer Energieverteilung auf die beiden Elektronen und bei Emission eines Elektrons in Richtung des Polarisationsvektors eine signifikante Diskrepanz sowohl zwischen den Rechnungen als auch zwischen Theorie und Experiment festgestellt. Abbildung 3.7 zeigt dies ebenfalls deutlich. Dabei sind nicht nur die Unterschiede zwischen den 3C- und 2SC-Rechnungen von Bedeutung. Die Ergebnisse der 3C Rechnungen sind ferner noch von der gewählten Eichung abhängig. Wie aus Abbildung 3.7 ersichtlich, gibt es erhebliche Unterschiede zwischen der Längen- und der Geschwindigkeitseichung der 3C-Rechnungen.

Eine ausführliche Studie über die Abhängigkeit der berechneten dreifach differentiellen Wirkungsquerschnitte für die Photodoppelionisation von Helium von der Eichung (Längeneichung, Geschwindigkeitseichung und Beschleunigungseichung) wurde von Lucey *et al.* (1998) durchgeführt. Die Autoren kommen dabei zu dem Schluss, daß der differentielle Wirkungsquerschnitt bestimmt wird durch die Wechselwirkung aller drei Teilchen im Kontinuum bei geringen Abständen und weniger im asymptotischen Grenzfall

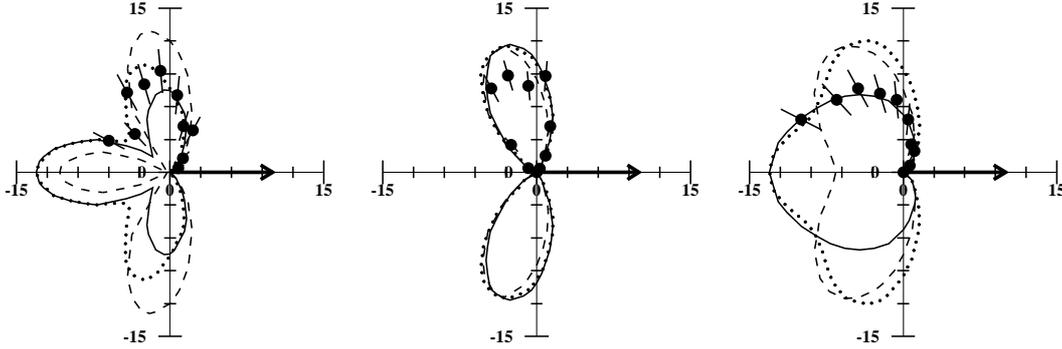


Abbildung 3.7: Absolute dreifach differentielle Wirkungsquerschnitte  $\frac{d^3\sigma}{dE_1 d\Omega_1 d\Omega_2}$  in  $b \text{ eV}^{-1} \text{ sr}^{-2}$  für 99 eV Photonenenergie bei einer festen Emissionsrichtung  $\theta_1$  eines Elektrons (Bräuning et al., 1998). Die Emissionsrichtung ist durch den Pfeil angegeben und liegt auf der Polarisationsachse. Die Elektronenenergie beträgt  $E_1 = 3 \text{ eV}$  (links),  $E_1 = E_2$  (mitte) und  $E_1 = 17 \text{ eV}$  (rechts). Die Linien geben theoretische Rechnungen bei 97.6 eV Photonenenergie wieder (Pont et al., 1996): durchgezogene Linie - 3C-Rechnungen in der Geschwindigkeitseichung, gestrichelte Linie - 3C-Rechnungen in der Längeneichung, gepunktete Linie - 2SC-Rechnungen.

bei großen Abständen, in dem alle analytischen Wellenfunktionen eine gute Beschreibung liefern. Rechnungen mit analytischen Endzustandswellenfunktionen werden somit immer eichungsabhängige Wirkungsquerschnitte liefern, solange sie nicht auch innerhalb der ersten 20 au des Kontinuums eine gute Beschreibung liefern.

Diese Signifikanz der kleinen Abstände läßt vermuten, daß *close-coupling* Rechnungen eventuell der bessere Weg sind, obwohl hierbei Konvergenzprobleme bei niedrigen Energien und symmetrischer Energieaufteilung auftreten können. *Convergent close-coupling* (CCC) Rechnungen (Bray und Stelbovics, 1992) wurden erstmals von Kheifets und Bray (1996, 1998a,b) auf die Berechnung differentieller Wirkungsquerschnitte in der Photodoppelionisation angewandt. Diese Methode lieferte bereits sehr gute absolute Wirkungsquerschnitte für die Elektronenstoßionisation (Bray und Stelbovics, 1993; Bray et al., 1993; Bray und Fursa, 1996). Beschreibt man die Photodoppelionisation als einen Zweistufen-Prozess, so ergeben sich gewisse Ähnlichkeiten zur Elektronenstoßionisation. Im ersten Schritt absorbiert ein Elektron die gesamte Energie des Photons und wechselwirkt dann im zweiten Schritt mit dem verbleibenden einfach geladenen Ion. Die Photoionisation wird damit zu einem wesentlichen Teil durch Elektronenstreuung am  $\text{He}^+$  bestimmt.

Die Abbildungen 3.8 und 3.9 zeigen deutlich die sehr gute Übereinstimmung der CCC-Rechnungen mit den experimentellen Daten für eine ganze Reihe verschiedener Geometrien und Energieaufteilungen. Hierbei fällt besonders auf, daß die Rechnungen nahezu unabhängig von der verwendeten Eichung sind. Als Grundzustandswellenfunktion wurde dabei eine Hylleraas-Entwicklung (Hart und Herzberg, 1957) mit 20 Termen verwendet, die 99.98% der Korrelationsenergie wiedergibt.

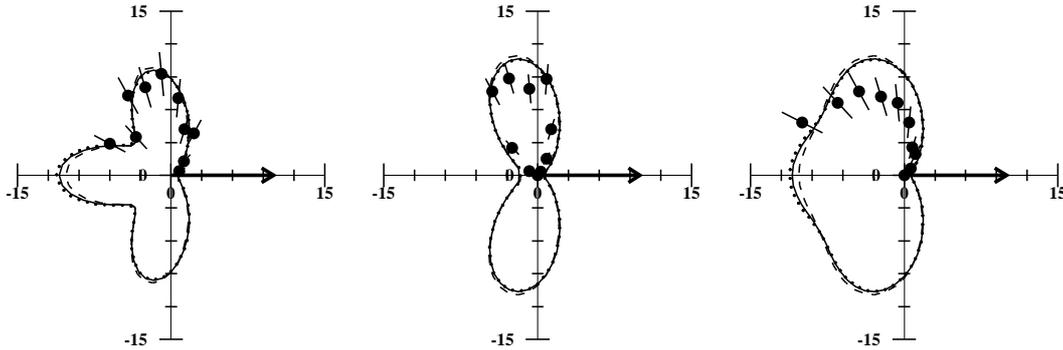


Abbildung 3.8: Absolute dreifach differentielle Wirkungsquerschnitte  $\frac{d^3\sigma}{dE_1 d\Omega_1 d\Omega_2}$  in  $b \text{ eV}^{-1} \text{ sr}^{-2}$  für 99 eV Photonenenergie bei einer festen Emissionsrichtung  $\theta_1$  eines Elektrons (Bräuning et al., 1998). Die Emissionsrichtung ist durch den Pfeil angegeben und liegt auf der Polarisationsachse. Die Elektronenenergie beträgt  $E_1 = 3 \text{ eV}$  (links),  $E_1 = E_2$  (mitte) und  $E_1 = 17 \text{ eV}$  (rechts). Die Linien geben die CCC-Rechnungen wieder: durchgezogene Linie - Geschwindigkeitseichung, gestrichelte Linie - Längeneichung, gepunktete Linie - Beschleunigungseichung.

Trotz dieser guten Übereinstimmung hat die Modellierung der Photodoppelionisation als Elektronenstoßionisation auch einige Probleme. Der Zweielektronen-Kontinuumszustand wird durch einen Satz von Pseudozuständen beschrieben, die sich aus der Diagonalisierung des  $\text{He}^+$  Hamiltonians in eine abgeschnittene, orthogonale Einelektronen-Laguerre-Basis ergeben. Dies impliziert, daß nur ein Elektron ins unendliche entweicht. Die Doppelionisation wird dann mit der Anregung von Pseudozuständen positiver Energie beschrieben. Die Randbedingungen sind unabhängig von Energie und Winkel, wobei ein Elektron asymptotisch das einfach geladene Ion und das andere Elektron asymptotisch das zweifach geladene Ion sieht. Dies ist gerechtfertigt bei stark asymmetrischer Energieaufteilung auf die Elektronen, d.h. einem schnellen und einem langsamen Elektron im Kontinuum. Es ist sicherlich nicht gerechtfertigt bei symmetrischer Energieaufteilung. Erstaunlicherweise ist die Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie aber auch in diesem Fall sehr gut, sowohl bei der Elektronenstoßionisation als auch bei der Photodoppelionisation. Lediglich der verschwindende Wirkungsquerschnitt für  $\vec{k}_1 = \vec{k}_2$  wird nicht gut wiedergegeben, wie Abbildung 3.8 zeigt. Hier liefern die CCC-Rechnungen einen kleinen, aber endlichen Beitrag, der aus der unterschiedlichen Behandlung der beiden Elektronen resultiert.

Die CCC-Methode kann also sehr erfolgreich zur Beschreibung der Photodoppelionisation von Helium eingesetzt werden. Da aber die Elektronen stark unterschiedlich behandelt werden, ist eine weitere Überprüfung der Theorie bei niedrigeren Photonenenergien erforderlich, wo die oben besprochenen Probleme stärker hervortreten sollten.

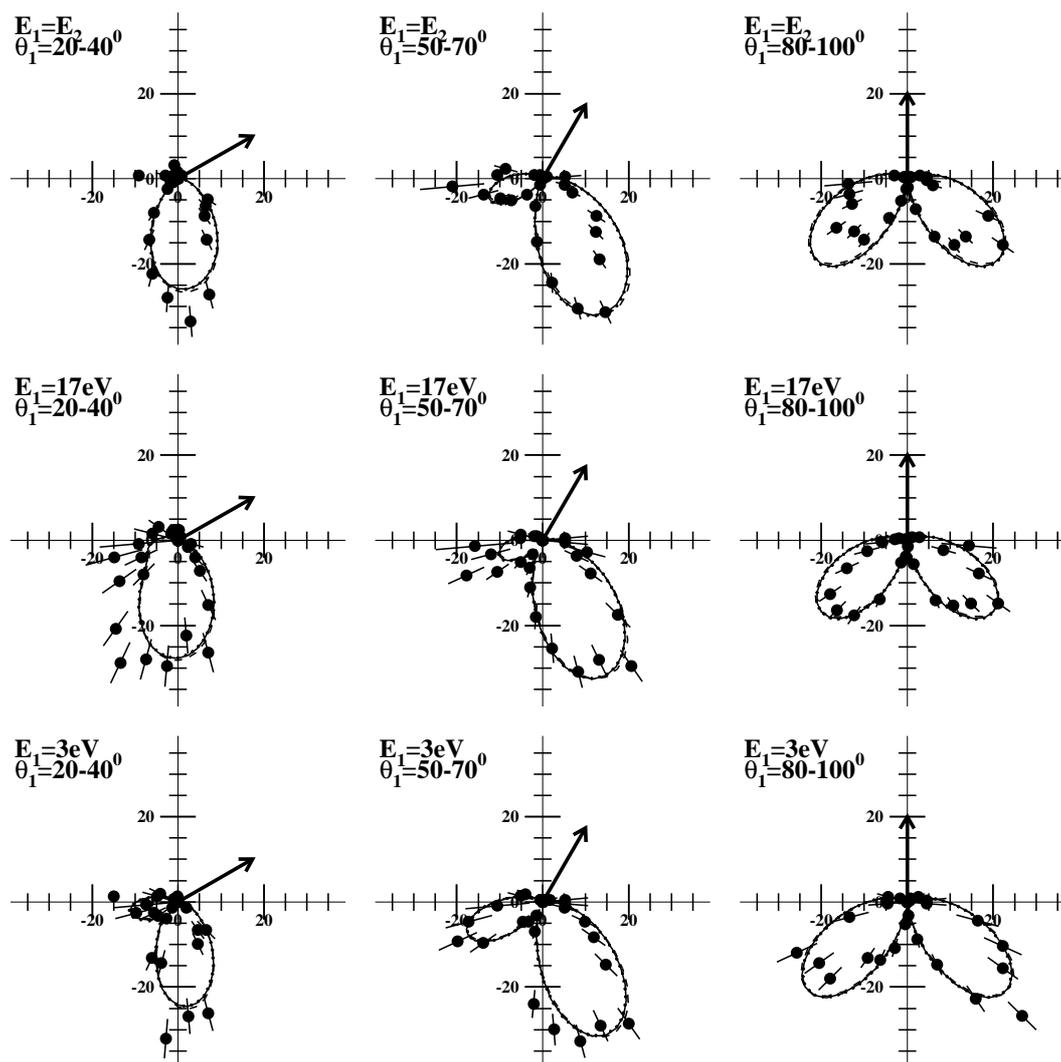


Abbildung 3.9: Absolute dreifach differentielle Wirkungsquerschnitte  $\frac{d^3\sigma}{dE_1 d\Omega_1 d\Omega_2}$  in  $b eV^{-1} sr^{-2}$  für 99 eV Photonenenergie im Vergleich mit CCC-Rechnungen (Bräuning et al., 1998). Die Emissionsrichtung des fixierten Elektrons ist durch den Pfeil angegeben. Die Polarisationsachse der Photonen entspricht der x-Achse. Theorie: durchgezogene Linie - Geschwindigkeitseichung, gestrichelte Linie - Längeneichung, gepunktete Linie - Beschleunigungseichung.

## 3.2 Ladungstransfer in Einelektronensystemen

Wie in der Einleitung erwähnt, gibt es durchaus einige Rechnungen zum Ladungstransfer für verschiedene Stoßsysteme mit nur einem Elektron. Für die meisten dieser Stoßsysteme impliziert dies einen Ion-Ion-Stoß. Allerdings gibt es derzeit nur wenige experimentelle Untersuchungen. Die bis vor kurzem einzigen Messungen zum Ladungstransfer an reinen

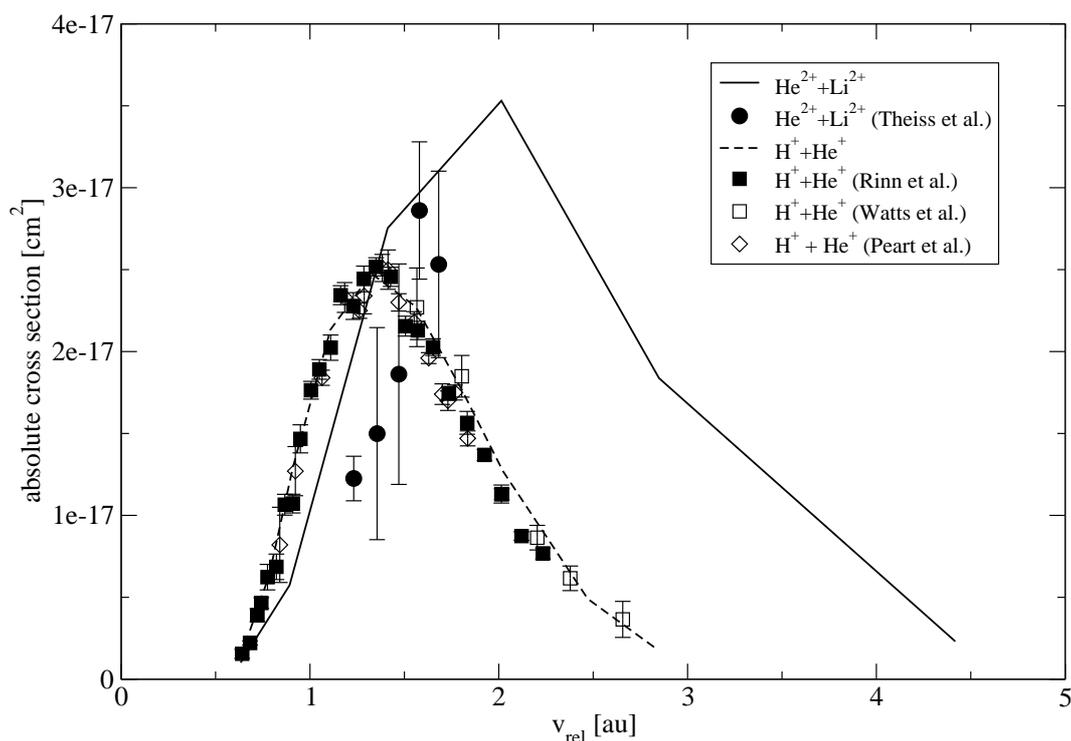


Abbildung 3.10: Absolute Wirkungsquerschnitte für die Ladungstransferreaktionen  $\text{H}^+ + \text{He}^+$  (geschlossene Quadrate - Rinn et al. (1985), offene Quadrate - Watts et al. (1986), offene Rauten - Peart et al. (1983), gestrichelte Linie - Rechnungen (M. Keim et al., private Mitteilung)) und  $^3\text{He}^{2+} + \text{Li}^{2+}$  (Kreise - Theiss et al. (2004), durchgezogene Linie - Rechnungen (M. Keim et al., private Mitteilung)).

Einelektronensystemen in Ion-Ion-Stößen wurden bei den Stoßsystemen  $\text{H}^+ + \text{He}^+$  (Angel *et al.*, 1978; Peart *et al.*, 1983; Rinn *et al.*, 1985; Watts *et al.*, 1986) und  $\text{He}^{2+} + \text{He}^+$  (Jognaux *et al.*, 1978; Peart und Dolder, 1979; Melchert *et al.*, 1995) durchgeführt. Diese Messungen wurden nun erweitert durch neueste Messungen von Theiss *et al.* (2004) am Stoßsystem  $^3\text{He}^{2+} + \text{Li}^{2+}$ . Die gemessenen Wirkungsquerschnitte für die beiden nicht resonanten Systeme  $\text{H}^+ + \text{He}^+$  sowie  $^3\text{He}^{2+} + \text{Li}^{2+}$  sind in Abbildung 3.10 dargestellt.

Die ebenfalls gezeigten Rechnungen (M. Keim, private Mitteilung) basieren auf der Basis-Generator-Methode (Kroneisen *et al.*, 1999; Kirchner *et al.*, 1999). Gerade für das Stoßsystem  $\text{H}^+ + \text{He}^+$  gibt es eine Vielzahl theoretischer Untersuchungen für den Ladungstransfer, angefangen von Rechnungen in der Coulomb-Born-Näherung (Sinha und Sil, 1976) über *Continuum-Distorted-Wave* (CDW) Rechnungen (Belkic *et al.*, 1979) bis hin zu gekoppelten Kanalrechnungen mit atomaren (Fritsch und Lin, 1982; Winter, 1982; Bransden *et al.*, 1983) und molekularen Wellenfunktionen (Winter und Hatton, 1980; Kimura und Thorson, 1981). Die besten Übereinstimmungen ergeben sich bei den gekoppelten Kanalrechnungen mit atomaren Basisfunktionen. Die Coulomb-Born-Rechnungen ergeben

bei den höheren Relativgeschwindigkeiten zu geringe Wirkungsquerschnitte, während die CDW-Rechnungen das Maximum und den Abfall zu niedrigeren Geschwindigkeiten nicht wiedergeben. Einen ausführlichen Vergleich zwischen Experiment und Theorie für das System  $H^+ + He^+$  geben Watts *et al.* (1986). Die folgende Diskussion beschränkt sich deshalb ausschließlich auf die neueren Rechnungen mit der Basis-Generator-Methode, da hier die meisten Rechnungen für die im folgenden behandelten Stoßsysteme vorliegen.

Die Basis-Generator-Methode ist eine spezielle Methode zur Expansion nach Basiswellenfunktionen zur Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung mittels gekoppelter Kanalgleichungen. Ausgangspunkt ist ein endlicher Satz von  $V$  Eigenfunktionen  $\Phi_\nu^0$ , die sogenannte generierende Basis, des ungestörten Targetatoms bzw. Targetions mit dem Hamilton-Operator  $\hat{H}_0$ :

$$\hat{H}_0 \Phi_\nu^0 = E_\nu \Phi_\nu^0 \quad \text{mit} \quad \nu = 1, \dots, V \quad (3.12)$$

Die  $E_\nu$  sind dabei die Energieeigenwerte der gebundenen Zustände. Ausgehend von dieser Basis werden sukzessive neue Basen generiert, deren Struktur sich der Dynamik des Stoßprozesses anpasst. Dies geschieht durch wiederholte Anwendung des Schrödinger-Operators  $\hat{O} = \hat{H}_0 + \hat{V}_p(t) - i\partial_t$  auf die Basis:

$$\Phi_\nu^u(t) = \hat{O} \Phi_\nu^{u-1}(t) = \hat{O}^u \Phi_\nu^0 \quad \text{mit} \quad u = 1, \dots, U \quad (3.13)$$

$\hat{V}_p(t)$  ist der Operator des vom Projektil induzierten, zeitabhängigen Potentials. Damit ergibt sich ein  $(U + 1) \times V$  dimensionaler Satz von Funktionen, welche bereits Anteile der exakten Wellenfunktion enthalten. Ein Nachteil dieses Konstruktionsschemas ist jedoch, daß es mit wachsender Ordnung  $u$  immer komplexer wird. Für ein gegebenes  $\hat{V}_p(t)$  ist es deshalb nützlich, einen alternativen Satz an Funktionen  $\chi_\nu^\mu(t)$  mit  $\nu = 1, \dots, N$  und  $\mu = 1, \dots, M$  einzuführen, der mindestens den gleichen oder sogar einen größeren Funktionenraum  $R^{MN}$  aufspannt. Dabei gilt folgende Konstruktionsvorschrift

$$\chi_\nu^\mu(t) = \hat{X}(\hat{V}(t))^\mu \chi_\nu^0 \quad (3.14)$$

wobei die Abbildung  $\hat{X}$  nur Potenzen des Potentials  $\hat{V}(t)$  enthält. Ferner müssen noch zwei Bedingungen erfüllt sein:

1. Die Eigenzustände  $\Phi_\nu^0$  der Anfangsbedingungen müssen vollständig im Funktionenraum  $R^{0N}$  enthalten sein.
2. Die Anwendung des Operators  $(\hat{H}_0 + \hat{V}(t) - i\partial_t)$  muss jeden Zustand  $\chi_\nu^\mu(t)$  auf eine Linearkombination  $\mathcal{L}_{\mu\nu}$  der Zustände  $\chi_\lambda^\kappa(t)$  mit  $\lambda = 1, \dots, L$  und  $\kappa = 1, \dots, K$  abbilden. Die Parameter  $L$  und  $K$  sind entsprechend  $\mu$  und  $\nu$  zu wählen.

Im Falle einer reinen Coulomb-Wechselwirkung erhält man

$$\chi_\nu^\mu(t) = \hat{W}_p \chi_\nu^{\mu-1}(t) = \hat{W}_p^\mu \chi_\nu^0 \quad \text{mit} \quad \mu = 1, \dots, M; \nu = 1, \dots, N \quad (3.15)$$

$\hat{W}_p$  ist das regularisierte Projektilpotential entsprechend (Kroneisen *et al.*, 1999)

$$\hat{V}_p(t) \rightarrow \hat{V}_p(t; \epsilon) = -Z_p \hat{W}_p(t; \epsilon) \quad (3.16)$$

$$\hat{W}_p(t; \epsilon) = \frac{1}{\sqrt{r_p(t)^2 + \epsilon^2}} \quad (3.17)$$

$$\hat{V}_t(t) \rightarrow \hat{V}_t(t; \epsilon_t) = -Z_t \hat{W}_t(t; \epsilon_t) \quad (3.18)$$

$$\hat{W}_t(t; \epsilon_t) = \frac{1}{\sqrt{r^2 + \epsilon_t^2}} \quad (3.19)$$

$r$  und  $r_p(t)$  sind dabei der Abstand des Elektrons vom Targetkern bzw. Projektilkern.  $Z_p$  und  $Z_t$  geben die Kernladungen wieder und  $\epsilon$  und  $\epsilon_t$  sind zu wählende Parameter. Diese Regularisierung ist notwendig, um divergente Matrixelemente zu vermeiden. Sie ist äquivalent zur Einführung einer endlichen Größe der Projektil- und Targetkerne. Für die generierende Basis  $\chi_\nu^0(t)$  können in guter Näherung die Eigenfunktionen  $\Phi_\nu^0$  des ungestörten Systems eingesetzt werden (Kirchner *et al.*, 1999; Skiera *et al.*, 2001). Die Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung ergibt sich dann mit den regularisierten Potentialen in Form folgender gekoppelter Kanalgleichungen

$$i \sum_{\mu=0}^M \sum_{\nu} \dot{c}_\nu^\mu(t) \langle \chi_{\nu'}^0 | \hat{W}_p(t)^{\mu'+\mu} | \chi_\nu^0 \rangle = \sum_{\mu=0}^M \sum_{\nu} c_\nu^\mu(t) \langle \chi_{\nu'}^0 | \hat{W}_p(t)^{\mu'} (-\frac{1}{2} \Delta + \hat{V}_t + \hat{V}_p(t) - i\partial_t) \hat{W}_p(t)^\mu | \chi_\nu^0 \rangle \quad (3.20)$$

Der Vorteil der Basis-Generator-Methode liegt in der Vermeidung einer festen räumlichen Struktur (atomare Orbitale, molekulare Orbitale etc.) für die Basis. Die Zustände passen sich vielmehr selbst im Verlauf des Stoßes an die Zwei-Zentren-Geometrie des Stoßsystems an. Damit ermöglicht diese Methode sowohl die Darstellung atomarer Orbitale bei asymptotisch großen Abständen der Stoßpartner als auch die Darstellung intermediärer quasi-molekularer Zustände. Ferner erlaubt sie die Beschreibung des physikalisch zugänglichen Kontinuums im Stoß und damit die Behandlung nicht nur von Ladungstransfer sondern auch von Ionisation.

Die Rechnungen für den Elektronentransfer nach der Basis-Generator-Methode stimmen sehr gut mit den Messungen für das Stoßsystem  $H^+ + He^+$  von Peart *et al.* (1983), Rinn *et al.* (1985) und Watts *et al.* (1986) überein (siehe Abbildung 3.10). Auch die Ionisationsquerschnitte von Rinn *et al.* (1986) für dieses Stoßsystem werden von der Theorie relativ gut wiedergegeben. Die experimentellen Werte werden nur leicht überschätzt, wie Abbildung 3.11 zeigt. Im Gegensatz hierzu liegen die Messungen von Peart *et al.* (1983) und Watts *et al.* (1986) sowohl deutlich unterhalb den Rechnungen mit der Basis-Generator-Methode und als auch den Daten von Rinn *et al.* (1986). Für die Ionisation gibt es ebenfalls eine Fülle von älteren Rechnungen in den unterschiedlichsten Näherungen. CDW-Rechnungen (Belkic, 1980; Miraglia, 1983) ergeben, wie beim Ladungstransfer auch, zu hohe Wirkungsquerschnitte bei kleinen Relativgeschwindigkeiten. Das gleiche gilt für

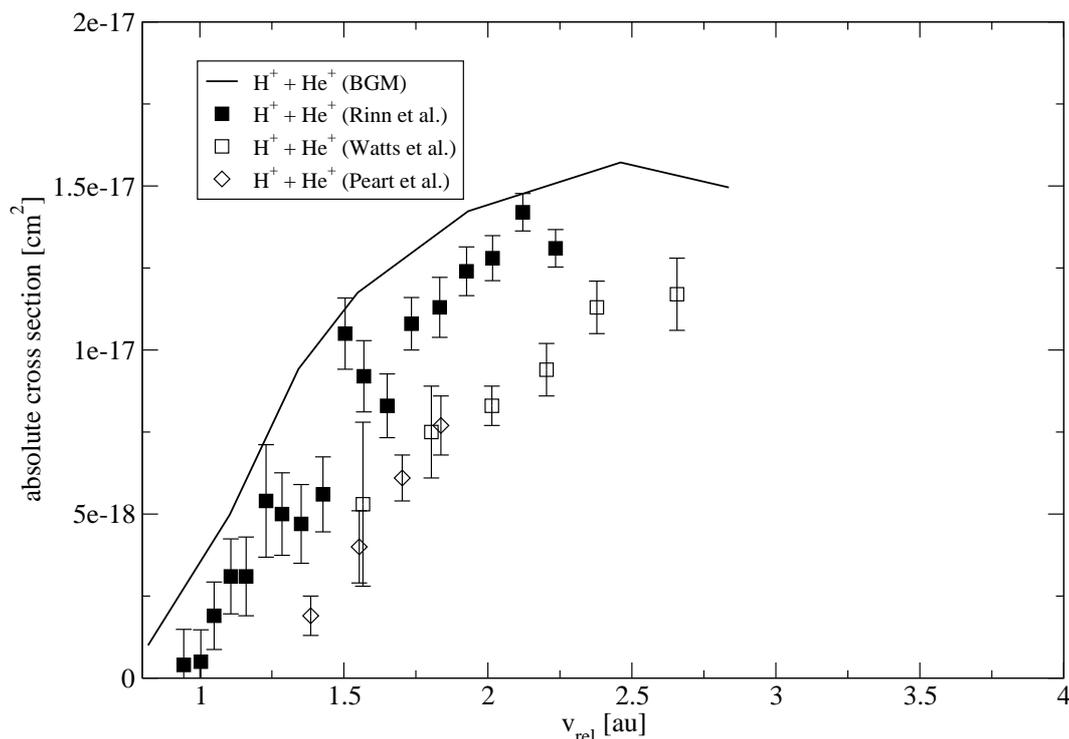


Abbildung 3.11: Absolute Wirkungsquerschnitte für die Ionisation im Stoßsystem  $H^+ + He^+$  (geschlossene Quadrate - Rinn et al. (1986), offene Quadrate - Watts et al. (1986), offene Rauten - Peart et al. (1983), Linie - Rechnungen (M. Keim et al., private Mitteilung)).

Rechnungen von Salin (1969). Andere Rechnungen in erster Bornschen-Näherung (Bates und Griffing, 1953), mit gekoppelten Kanälen (Fritsch und Lin, 1983) oder in der *multiple-scattering* Näherung (Garibotti und Miraglia, 1980, 1982; Miraglia, 1983) zeigen aufgrund der großen experimentellen Unsicherheiten eine bessere Übereinstimmung. Ein ausführlicher Vergleich findet sich in Watts *et al.* (1986) und Rinn *et al.* (1986).

Die Rechnungen nach der Basis-Generator-Methode überschätzen auch leicht den gemessenen Wirkungsquerschnitt (Theiss *et al.*, 2004) für die Reaktion  ${}^3He^{2+} + Li^{2+}$ . Allerdings sind bei diesem Stoßsystem auch erhebliche experimentelle Probleme zu beachten, die zu einem zu geringen gemessenen Wirkungsquerschnitt führen können. Lithium kommt in der Natur in zwei Isotopen vor,  ${}^6Li$  und  ${}^7Li$ , wobei  ${}^7Li$  mit einer Häufigkeit von 92.5% das häufigere Isotop ist. Wie schon in Kapitel 2.1 erwähnt, ist die Selektion der Ionensorte durch Umlenkmagnete allein nicht immer eindeutig. Im Falle von  ${}^7Li^{2+}$  kann dabei dem Strahl ein nicht zu vernachlässigender Anteil an  $N^{4+}$  überlagert sein, der aus dem immer vorhandenen Stickstoffanteil in der EZR-Quelle kommt. Gleiches gilt für  ${}^6Li^{2+}$  und  $C^{4+}$  aus  $CO_2$ , welches ebenfalls oft in der EZR-Quelle vorhanden ist. Der Effekt dieser Verunreinigung im Ionenstrahl ist ein im Vergleich zur Zählrate zu hoher, gemessener Strom und damit ein zu niedriger, berechneter Wirkungsquerschnitt. Durch Aufnahme eines Massen-

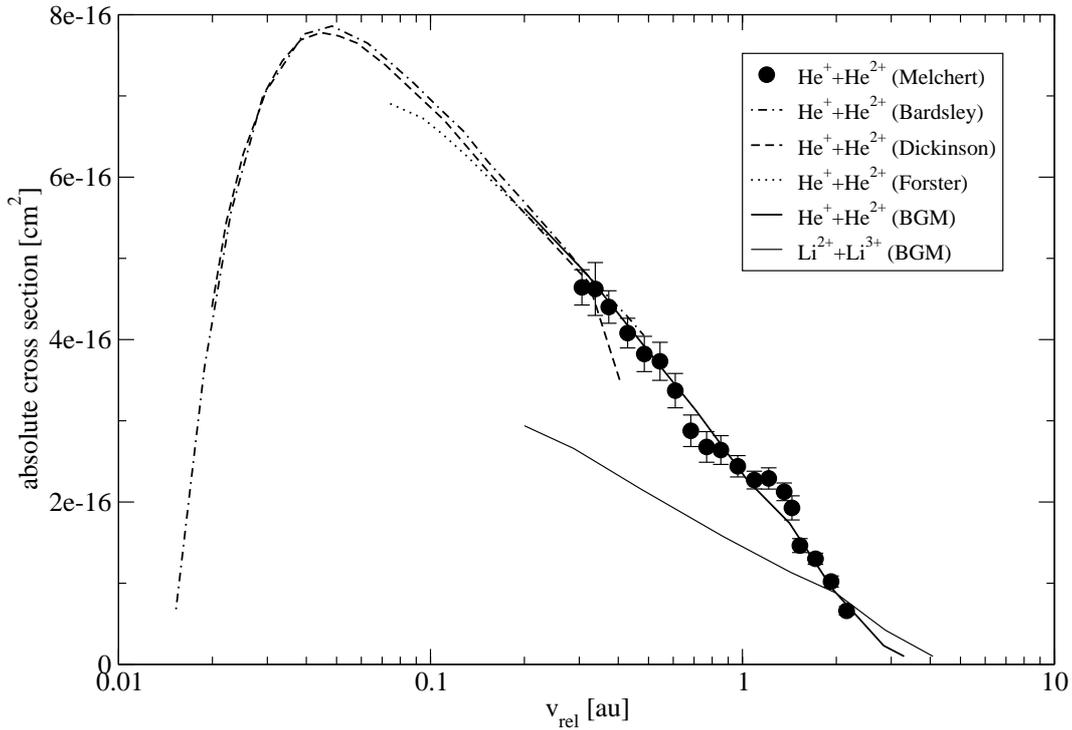


Abbildung 3.12: Absolute Wirkungsquerschnitte für die resonanten Ladungstransferreaktionen  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{He}^+$  (Kreise - Melchert et al. (1995), durchgezogene Linie - (M. Keim et al., private Mitteilung, punktierte Linie - Forster et al. (1988), gestrichelte Linie - Dickinson und Hardie (1979), strich-punktierte Linie - Bardsley et al. (1989)) und  $\text{Li}^{3+} + \text{Li}^{2+}$  (dünne Linie - M. Keim et al., private Mitteilung)).

spektrums der aus der EZR-Quelle kommenden Ionen kann über die Ströme der  $\text{N}^{3+}$  und  $\text{N}^{5+}$  Ionen versucht werden, den Anteil an  $\text{N}^{4+}$  im Strahl abzuschätzen. Dies ist jedoch mit großen Unsicherheiten verbunden, die den Hauptanteil der in Abbildung 3.10 angegebenen Fehlerbalken für dieses Stoßsystem darstellen.

${}^3\text{He}^{2+} + \text{He}^+$  ist das einzige bisher untersuchte resonante Einelektronensystem mit zwei Ionen als Stoßpartner. Abbildung 3.12 zeigt die von Melchert *et al.* (1995) gemessenen Wirkungsquerschnitte im Vergleich mit verschiedenen Rechnungen, die alle eine sehr gute Übereinstimmung mit dem Experiment zeigen. Bardsley *et al.* (1989) wandten die asymptotische Theorie des symmetrischen resonanten Elektroneneinfangs auf Ion-Ion-Stöße an, wobei für die klassische Bewegung der Kerne Coulomb-Trajektorien zugelassen wurden. Dickinson und Hardie (1979) benutzten eine *perturbed stationary states* Näherung während Forster *et al.* (1988) eine *semiclassical impact parameter* Näherung mit einer atomaren Basis und entsprechenden Translationsfaktoren verwendeten. Die Rechnungen (M. Keim, private Mitteilung) mit der Basis-Generator-Methode sind ebenfalls in sehr guter Übereinstimmung mit den experimentellen Daten.

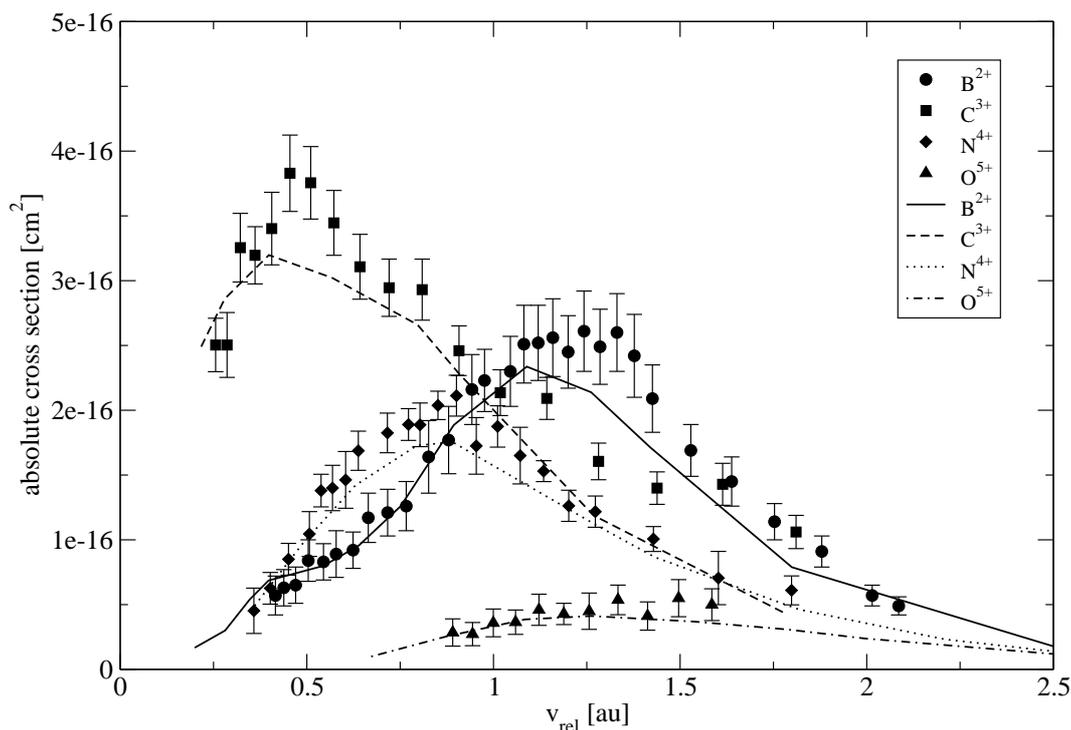


Abbildung 3.13: Absolute Wirkungsquerschnitte für die Ladungstransferreaktionen  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{B}^{2+}$  (Kreise - Skiera et al. (2001), durchgezogene Linie),  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{C}^{3+}$  (Quadrate - Melchert et al. (1995), gestrichelte Linie),  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{N}^{4+}$  (Rauten - von Diemar et al. (1999), punktierte Linie),  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{O}^{5+}$  (Dreiecke - von Diemar et al. (1999), strich-punktierte Linie). All Rechnungen wurden nach der Basis-Generator-Methode durchgeführt (Skiera et al., 2001).

### 3.3 Ladungstransfer in Quasi-Einelektronensystemen

Deutlich mehr Messungen gibt es für Quasi-Einelektronensysteme, sowohl für resonante (von Diemar, 1998) als auch für nicht-resonante Systeme (von Diemar *et al.*, 1999; Skiera *et al.*, 2001). Abbildung 3.13 zeigt die gemessenen Wirkungsquerschnitte für die nicht-resonanten Systeme  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{B}^{2+}$  (Skiera *et al.*, 2001),  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{C}^{3+}$  (Melchert *et al.*, 1995),  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{N}^{4+}$  und  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{O}^{5+}$  (von Diemar *et al.*, 1999). In den Rechnungen wurden die Stoßsysteme als Einelektronensysteme behandelt. In dem betrachteten Energiebereich von einigen keV bis einigen 100 keV Schwerpunktsenergie sind die K-Elektronen völlig passiv. Ihre Abschirmung des Kernpotentials kann somit als unabhängig von der zeitlichen Entwicklung des Stoßes betrachtet werden. Für  $\text{B}^{2+}$  wurde eine generierende Basis von  $N = 35$  Funktionen verwendet, für die anderen Systeme eine mit  $N = 20$  Funktionen. Die Anzahl der Iterationen betrug in allen Fällen  $M = 8$ .

Die Rechnungen im Rahmen der Basis-Generator-Methode stimmen sehr gut mit den gemessenen Wirkungsquerschnitten überein (Skiera *et al.*, 2001). Lediglich bei höheren Sto-

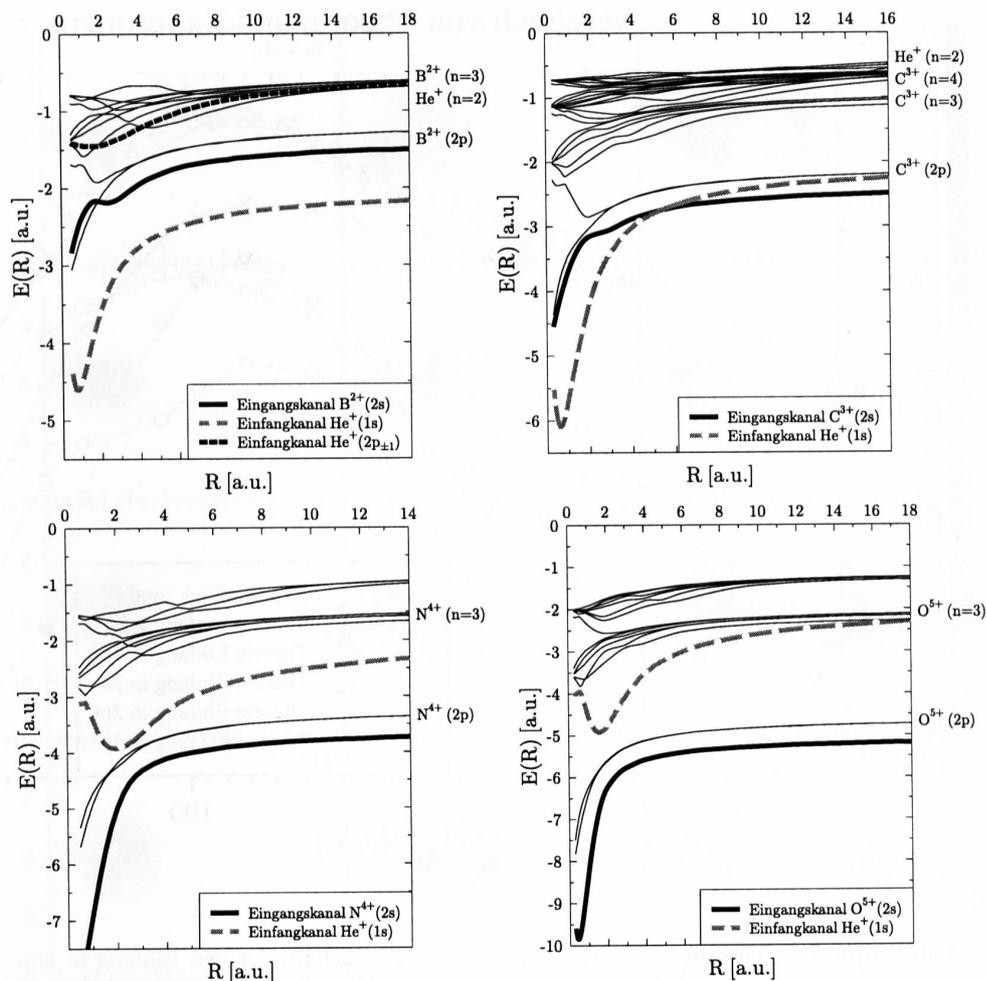


Abbildung 3.14: Korrelationsdiagramme der Quasimoleküle  $(\text{HeB})^{4+}$ ,  $(\text{HeC})^{5+}$ ,  $(\text{HeN})^{6+}$  und  $(\text{HeO})^{7+}$  (Keim, 1999).

ßenergien gibt es leichte Abweichungen zwischen Theorie und Experiment, die eventuell auf Darstellungsprobleme der bewegten Projektilorbitale bei hohen Einschussenergien durch die verwendete generierende Basis zurückzuführen sind. Beim Stoßsystem  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{C}^{3+}$  allerdings sind die Abweichungen bei hohen Energien deutlich größer. Die Ursache für diese signifikante Abweichung ist noch nicht verstanden (Kirchner *et al.*, 1999).

Für Stöße mit den Stoßpartnern  $\text{C}^{3+}$ ,  $\text{N}^{4+}$  und  $\text{O}^{5+}$  erhält man den größten Wirkungsquerschnitt für  $\text{C}^{3+}$  und den niedrigsten für  $\text{O}^{5+}$ . Der Ladungstransfer in diesen Stoßsystemen wird dominiert vom Einfang in den Grundzustand des  $\text{He}^+$  Ausgangskanals. Bei niedrigen Stoßenergien ist somit die Kopplung des 2s Eingangskanals mit dem 1s Ausgangskanal des  $\text{He}^+$  entscheidend. Wie die Korrelationsdiagramme in Abbildung 3.14 zeigen, nimmt der energetische Abstand dieser quasimolekularen Zustände von  $\text{C}^{3+}$  nach  $\text{O}^{5+}$  zu. Dies

führt zu einer geringeren Stärke der Matrixelemente für die relevante radiale Kopplung (Kirchner *et al.*, 1999). Entsprechend der höheren Orbitalgeschwindigkeit des 2s Elektrons im  $O^{5+}$  verschiebt sich auch die Lage des Maximums für den Wirkungsquerschnitt zu höheren Relativgeschwindigkeiten.

Das Stoßsystem  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{B}^{2+}$  hingegen verhält sich ganz anders. Zum einen wird das Maximum des Wirkungsquerschnittes erst bei deutlich höheren Relativgeschwindigkeiten im Vergleich zur klassischen Orbitalgeschwindigkeit des 2s Elektrons erreicht. Zum andern liegt der Wirkungsquerschnitt selbst in einem weiten Bereich von Relativgeschwindigkeiten deutlich unter dem von  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{C}^{3+}$ . Wie Abbildung 3.14 zeigt, unterscheidet sich auch das Korrelationsdiagramm des Komplexes  $(\text{HeB})^{4+}$  in einem wesentlichen Punkt deutlich von den anderen Korrelationsdiagrammen. Im Gegensatz zu den drei anderen Stoßsystemen liegt der 2s Eingangskanal von  $\text{B}^{2+}$  energetisch zwischen den Ausgangskanälen für den Einfang in die K- bzw. L-Schale des  $\text{He}^+$ . Bei niedrigen Stoßenergien geht in diesem Fall der Transfer dominant in den  $2p_{\pm 1}$  Zustand des  $\text{He}^+$ , während bei hohen Energien der Transfer vorwiegend in den 1s Zustand wie bei den anderen drei Stoßsystemen geht.

Neben den Rechnungen mittels der Basis-Generator-Methode existieren auch Rechnungen von Opradolce *et al.* für die Systeme  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{C}^{3+}$  (Opradolce *et al.*, 1997) und  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{N}^{4+}$  (von Diemar *et al.*, 1999). Diese Rechnungen wurden im Rahmen einer molekularen Näherung durchgeführt. Hierbei wird der Ladungstransfer beschrieben als Übergang zwischen den adiabatischen Zuständen des Quasi-Moleküls, das sich während des Stoßes ausbildet. Dies liefert vor allem dann eine gute Beschreibung des Stoßes, wenn die Relativgeschwindigkeit viel kleiner ist als die klassische Orbitalgeschwindigkeit der Elektronen:  $v_{rel} \ll v_e$ . Zudem erlaubt es diese Näherung, die Stoßprozesse anschaulich anhand von Korrelationsdiagrammen wie denen in Abbildung 3.14 zu beschreiben. Wie auch bei den Rechnungen mit der Basis-Generator-Methode wird nur ein aktives Elektron in einem durch den eingefrorenen  $1s^2$  Zustand abgeschirmten Kernpotential betrachtet. Für dieses abgeschirmte Potential wird im Falle des  $\text{C}^{4+}$  Kernes folgendes Modellpotential verwendet (Gargaud *et al.*, 1981):

$$V_{\text{C}^{4+}}(r) = -\frac{2(1 + 4.180286r) \exp(-7.72625r) + 4}{r} \quad (3.21)$$

Mit diesem Potential weichen die berechneten Energieeigenwerte des  $\text{C}^{3+}$  Ions maximal um 0.12% von den experimentell bestimmten Werten ab. Die verwendete, kleine molekulare Basis (Opradolce *et al.*, 1997) erlaubt nur den Einfang in den 1s Zustand des  $\text{He}^+$ . Die Dynamik des Stoßes wurde in der Stoßparameternäherung mit geradlinigen Trajektorien behandelt. Tests mit Coulomb-Trajektorien haben keinen Unterschied im Ergebnis gezeigt. Auch diese Rechnungen zeigen eine sehr gute Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen (siehe Abbildung 3.15).

Im Gegensatz zu den Rechnungen mit molekularen Orbitalen (MO-Rechnungen), wie die von Opradolce *et al.*, können Rechnungen mit atomaren Basissätzen (AO-Rechnungen) auch auf Geschwindigkeitsbereiche ausgedehnt werden, in denen das Modell des Quasimoleküls nicht mehr adäquat ist, d.h. in Bereiche, wo die Relativgeschwindigkeit gleich oder größer ist, als die klassische Orbitalgeschwindigkeit. Sind die atomaren Wellenfunktionen

um die beiden Kerne zentriert, so spricht man von Zwei-Zentren-Rechnungen. Um die AO-Rechnungen auch auf den quasimolekularen Bereich bei sehr kleinen Relativgeschwindigkeiten auszudehnen, werden zu den atomaren Basisfunktionen sogenannte Pseudozustände hinzugenommen. Man spricht dann von  $AO^+$ -Rechnungen. Die Pseudozustände werden aus den Wellenfunktionen des vereinigten Atoms abgeleitet, um die quasimolekulare Eigenschaft des Stoßes zu repräsentieren. Sie können aber auch aus Kontinuumszuständen abgeleitet werden, um Ionisationsprozesse im Stoß zu beschreiben. Die Pseudozustände können dabei um einen der beiden Kerne zentriert sein oder um ein drittes Zentrum zwischen den beiden Kernen.

$AO^+$ -Rechnungen wurden von Sidky und Lin für den Ladungstransfer im Stoßsystem  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{C}^{3+}$  durchgeführt (Melchert *et al.*, 1997). Dabei wurden 85 atomare Wellenfunktionen zentriert um die beiden Kerne verwendet sowie zusätzliche Pseudozustände mit positiver Energie um den  $\text{He}^{2+}$  Kern zur Verbesserung der Konvergenz bei kleinen Kernabständen. Für das aktive 2s Elektron im  $\text{C}^{3+}$  wurde abweichend zu den Rechnungen von Opradolce *et al.* folgendes Modellpotential verwendet:

$$V_e(r) = -\frac{4 + (2 - 2.47r) \exp(-2.47r)}{r} \quad (3.22)$$

Wie bei Opradolce *et al.* wurde die Kernbewegung entlang geradliniger Trajektorien betrachtet. Die totalen Wirkungsquerschnitte wurden durch Lösung der *close-coupling* Gleichungen berechnet. Die Rechnungen zeigen ebenfalls eine sehr gute Übereinstimmung mit den experimentellen Werten.

Es existieren somit für die hier beschriebenen Quasi-Einelektronensysteme Rechnungen basierend auf drei unterschiedlichen theoretischen Ansätzen, die alle eine gute bis sehr gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten aufweisen. Die Basis-Generator-Methode wurde dabei als einzige auf alle vier beschriebenen Stoßsysteme angewandt und beschreibt auch das abweichende Verhalten des Stoßsystems  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{B}^{2+}$  sehr gut. Lediglich beim Stoßsystem  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{C}^{3+}$  ergeben sich bei großen Relativgeschwindigkeiten signifikante Unterschiede zu den experimentellen Daten. Dieses Stoßsystem ist auch das einzige System, bei dem alle drei Theorien miteinander verglichen werden können. Abbildung 3.15 zeigt diesen Vergleich der drei Theorien mit dem Experiment. Hierbei ergibt sich, daß obwohl die totalen Wirkungsquerschnitte von allen Theorien relativ gut wiedergegeben werden, es doch im Detail zu Widersprüchen kommt. Die MO-Rechnungen von Opradolce *et al.* betrachten aufgrund der geringen Basis nur Einfang in den 1s Zustand des  $\text{He}^+$ . Diese Rechnungen stimmen sehr gut mit den experimentellen Werten überein. Die  $AO^+$ -Rechnungen von Sidky und Lin berücksichtigen Endzustände bis  $n = 4$  und stimmen innerhalb der Fehlerbalken ebenfalls noch sehr gut mit den experimentellen Daten überein. Sidky und Lin geben aber auch Wirkungsquerschnitte für den reinen Einfang in den 1s Endzustand an (Melchert *et al.*, 1997). Bei niedrigen Relativgeschwindigkeiten ist dies der dominante Kanal und der Unterschied zur vollständigen Rechnung ist sehr gering. Bei sehr hohen Relativgeschwindigkeiten hingegen ergeben die  $AO^+$ -Rechnungen für den Einfang in den 1s Zustand nur noch etwa 50% des totalen Wirkungsquerschnittes und liegen somit deutlich unter den experimentellen Werten. Dies ist in direktem Widerspruch zu den MO-Rechnungen, die auch bei

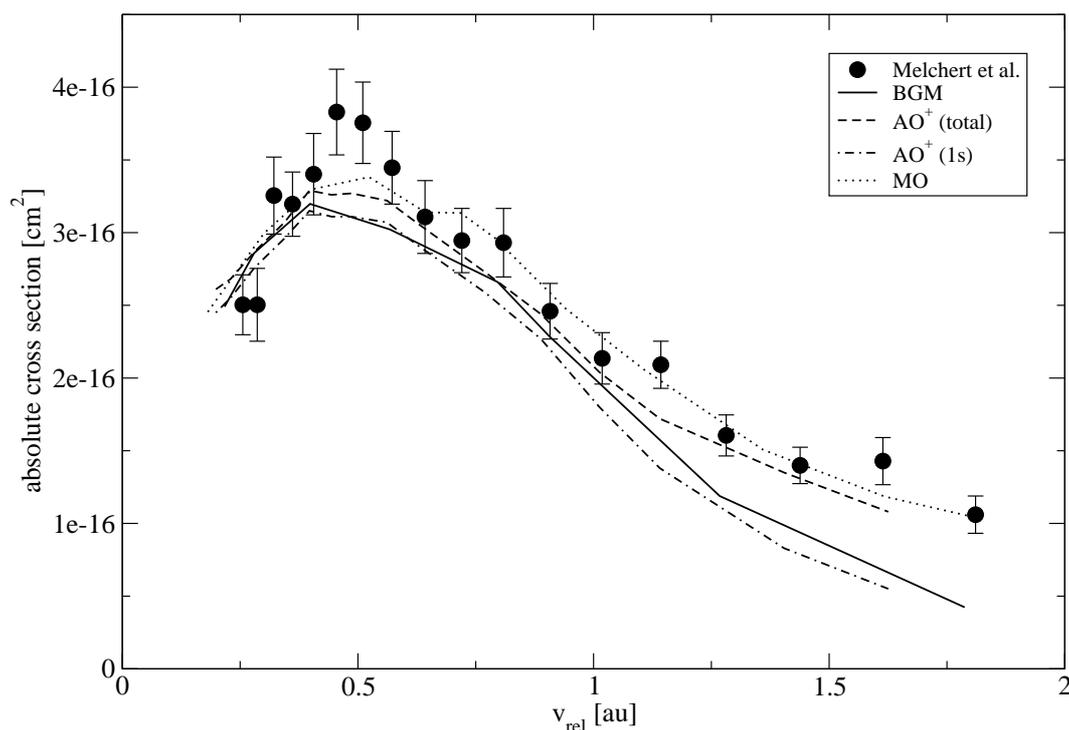


Abbildung 3.15: Gemessene Wirkungsquerschnitte (Symbole) (Melchert et al., 1997) für den Ladungstransfer im Stoßsystem  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{C}^{8+}$  im Vergleich zu Rechnungen: durchgezogene Linie - Basis-Generator-Methode (Kirchner et al., 1999), gestrichelte Linie -  $\text{AO}^+$ -Rechnung mit Endzuständen bis  $n=4$ , strich-punktierte Linie -  $\text{AO}^+$ -Rechnung nur mit 1s Endzustand (Melchert et al., 1997), punktierte Linie - MO-Rechnungen (Opradolce et al., 1997).

diesen Geschwindigkeiten die experimentellen Werte durch den Einfang in den 1s Zustand sehr gut wiedergeben. Die Rechnungen mit der Basis-Generator-Methode berücksichtigen ebenfalls den Einfang in angeregte Zustände des  $\text{He}^+$ . Dennoch ergeben die Rechnungen eine gute Übereinstimmung zu den  $\text{AO}^+$ -Rechnungen für den Einfang ausschließlich in den 1s Zustand. Ferner beträgt bei der Basis-Generator-Methode der Anteil des Einfangs in die angeregten Zustände nur etwa 20% des Anteils für den Einfang in den 1s Zustand. Das ist im Widerspruch zu den  $\text{AO}^+$ -Rechnungen bei hohen Relativgeschwindigkeiten. Gerade dort hat die Basis-Generator-Methode auch Schwierigkeiten, die experimentellen Daten zu reproduzieren. Diese Unterschiede im Detail der einzelnen Theorien zeigen, dass die Reproduktion der totalen Wirkungsquerschnitte sicherlich eine notwendige, aber noch keine hinreichende Bedingung für die Gültigkeit einer Theorie ist.



# Kapitel 4

## Einfache Moleküle

Wie bereits in der Einleitung erwähnt, erhält man bei diatomaren Molekülen durch die Orientierung der Molekülachse einen weiteren Freiheitsgrad (Alignment). Das einfachste Molekül ist das Wasserstoffmolekül  $H_2$ . Abbildung 4.1 zeigt die Potentialkurven für den  $H_2$  Grundzustand, die drei niedrigsten Zustände des  $H_2^+$  Ions und den dissoziativen  $H_2^{2+}$  Zustand. Gleichwertig, aber für experimentelle Zwecke oft günstiger, ist das  $D_2$  Molekül, da es die gleiche Masse hat wie das Heliumatom. Als reines Zweielektronensystem bietet

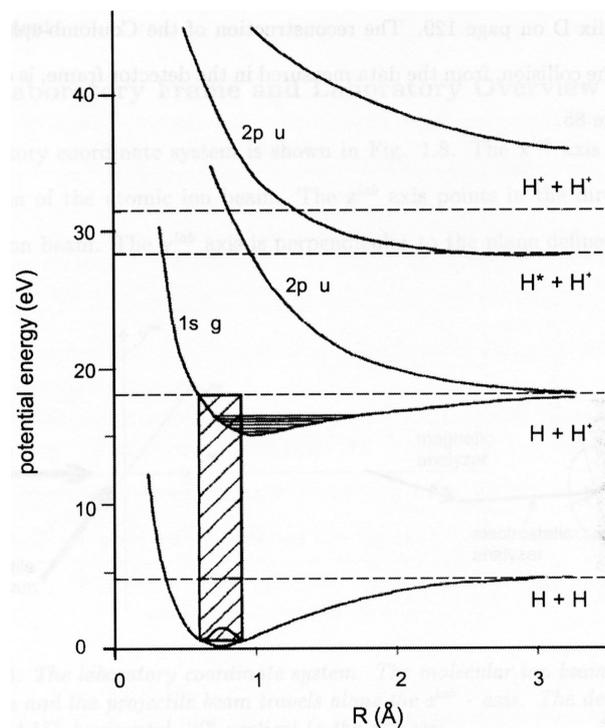


Abbildung 4.1: Potentialkurven des  $H_2$  und  $H_2^+$  Grundzustandes sowie der drei niedrigsten  $H_2^+$  Zustände (Los und Grovers, 1978).

	$R_0$ [nm]	$E_\infty$ [eV]	$E_0$ [eV]
H <sub>2</sub>	0.074144	31.668	51.089
D <sub>2</sub>	0.074152	31.752	51.171

Tabelle 4.1: Gleichgewichtsabstand  $R_0$ , Energie  $E_\infty$  des  $H^+ + H^+$  bzw.  $D^+ + D^+$  Systems bei  $R \rightarrow \infty$  und Schwellenenergie  $E_0$  der Doppelionisation bei  $R = R_0$

sich bei der Photodoppelionisation der Vergleich mit Helium als atomares System (siehe Kapitel 3.1) an. Anders als im Helium erfolgt die Ejektion der Elektronen im Molekül aber in einem Zwei-Zentren-Potential. Dies wird in Abschnitt 4.1 diskutiert.

Das Wasserstoffmolekülion hingegen ist ein reines Einelektronen-System und damit besser geeignet zur Untersuchung von Alignment-Effekten in Stößen mit Ionen als das neutrale Molekül. Dies hat zwei Gründe. Zum einen muss nur ein Elektron entfernt werden (z.B. durch Elektronentransfer), um zu einem dissoziativen Endzustand zu kommen. Beim neutralen Molekül hingegen muss gleichzeitig eine Ionisation oder Anregung stattfinden. Dies macht die theoretische Behandlung schwierig und erfordert einige Annahmen bezüglich des Einflusses dieser Ionisation oder Anregung (Kimura, 1985; Kimura *et al.*, 1986; Wang *et al.*, 1989; Wang und McGuire, 1991). Zum anderen ist bei einem Zweielektronensystem die Elektron-Elektron-Wechselwirkung zu beachten. Die Rolle der Elektronenkorrelation im Einelektronentransfer ist dabei noch nicht vollständig verstanden (Busnego *et al.*, 1998; Sant'Anna *et al.*, 2000). Der Ladungstransfer in Ion-Ion-Stößen mit Wasserstoffmolekülionen wird in Abschnitt 4.2 diskutiert.

## 4.1 Photodoppelionisation von D<sub>2</sub>

Wie schon erwähnt sind die einfachsten Zweielektronensysteme Helium für Atome und Wasserstoff (H<sub>2</sub> oder D<sub>2</sub>) für Moleküle. Beide haben im Endzustand einen nackten Kern bzw. zwei nackte Kerne ohne interne elektronische Struktur. Im Gegensatz zu Helium führt dies beim Wasserstoff jedoch zu einer Coulomb-Explosion mit zwei Konsequenzen: (a) der Endzustand ist ein Vier-Teilchen-Kontinuum und die Bewegung der Elektronen erfolgt in einem Zwei-Zentren-Potential und (b) der Nachweis beider Kerne erlaubt die Bestimmung der Molekülorientierung. Die Photodoppelionisation von Helium wurde bereits in Kapitel 3.1 behandelt. In diesem Abschnitt schließlich wird die Photodoppelionisation von H<sub>2</sub> bzw. D<sub>2</sub> behandelt. Wie auch beim Helium, wurden alle hier vorgestellten Messungen mit linear polarisiertem Licht durchgeführt.

Erste Messungen zum totalen Wirkungsquerschnitt für die Photodoppelionisation von H<sub>2</sub> wurden von Dujardin *et al.* (1987) und Kossmann *et al.* (1989) von der Schwelle bis etwa 140 eV Photonenenergie durchgeführt. Die Photodoppelionisation kann dabei als direkter Franck-Condon-Übergang vom H<sub>2</sub> Grundzustand in den H<sup>+</sup>+H<sup>+</sup> Kontinuumszustand angesehen werden. Die Schwellenenergien sind in Tabelle 4.1 angegeben. Im Gegensatz zu atomaren Systemen sind die Schwellenenergien bei Molekülen nicht fest, sondern eine

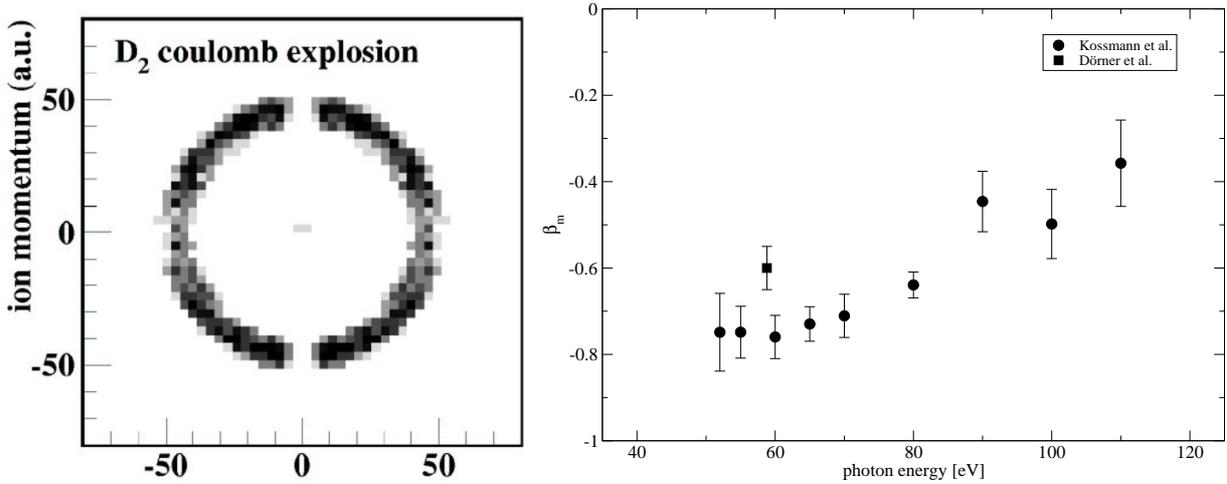


Abbildung 4.2: Links: Impulsverteilung der D<sup>+</sup> Fragmente nach Photodoppelionisation von D<sub>2</sub> bei 58.8 eV Photonenenergie (Dörner et al., 1998b). Die x-Achse entspricht der Polarisationsachse. Rechts: Asymmetrieparameter  $\beta_m$  der Fragmentverteilung als Funktion der Photonenenergie: Kreise - H<sub>2</sub> Kossmann et al. (1989), Quadrat - D<sub>2</sub> Dörner et al. (1998b).

Funktion des internuklearen Abstands. Und dieser ist selbst im Vibrationsgrundzustand nicht konstant.

Winkelaufgelöste Koinzidenzmessungen zwischen den beiden H<sup>+</sup> Fragmenten erlauben die Untersuchung des Einflusses der Orientierung des Moleküls auf die Wirkungsquerschnitte. Hier wurde erstmals von Kossmann *et al.* (1989) eine starke Asymmetrie festgestellt. In der Dipolnäherung wird die Photodoppelionisation durch die zwei Übergangsamplituden  $D_\Sigma$  und  $D_\Pi$  aus dem molekularen Grundzustand in das Kontinuum beschrieben.  $D_\Sigma$  beschreibt den Übergang wenn Polarisationsvektor und Molekülachse parallel liegen, während  $D_\Pi$  den senkrechten Fall beschreibt. Der Asymmetrieparameter  $\beta_m$  der Fragmente ergibt sich dann zu

$$\beta_m = 2 \frac{D_\Sigma^2 - D_\Pi^2}{D_\Sigma^2 + D_\Pi^2} \quad (4.1)$$

Kossmann et al. beobachteten eine deutliche Dominanz der  $D_\Pi$  Amplitude, d.h. der Wirkungsquerschnitt wird maximal, wenn die Molekülachse senkrecht zur Polarisationsrichtung steht. Die von Dörner *et al.* (1998b) mittels COLTRIMS aufgenommene Impulsverteilung der Fragmente nach der Photodoppelionisation von D<sub>2</sub> (Abbildung 4.2 links) zeigt dies ebenfalls deutlich. Dies entspricht einem negativen Asymmetrieparameter, dessen Energieabhängigkeit ebenfalls von Kossmann *et al.* gemessen wurde und in Abbildung 4.2 rechts dargestellt ist. Der von Dörner *et al.* bei 58.8 eV Photonenenergie gemessene Wert ist dabei in akzeptabler Übereinstimmung mit den älteren Daten von Kossmann.

Erste Messungen von dreifach differentiellen Wirkungsquerschnitten für die Emission beider Elektronen wurden von Reddish *et al.* (1997) durchgeführt. Allerdings wurde hier-

bei über alle Orientierungen des Moleküls integriert. Die Messungen wurden im Rahmen der Parametrisierung von Huetz (siehe Kapitel 3.1) bei  $E_1 = E_2 = 10$  eV analysiert und mit Messungen am Helium verglichen. Trotz einer großen Ähnlichkeit in der Form zeigen sich auch Unterschiede, die auf den Einfluss molekularer Effekte schließen lassen. Dennoch werden auch diese dreifach differentiellen Wirkungsquerschnitte stark durch Auswahlregeln ähnlich dem Helium beeinflusst (Walter und Briggs, 2000). Diese sind jedoch teilweise nicht mehr so streng, da der Drehimpuls der beiden Photoelektronen alleine im molekularen System keine gute Quantenzahl ist. Die Kontinuumswellenfunktion der Elektronen hat keine reine  $P$  Symmetrie mehr. Zum einen hat der molekulare Grundzustand bereits Komponenten mit größerem Drehimpuls, zum andern kann eine Streuung der Elektronen an den Kernen zu einer Mischung der Drehimpulse führen.

Unter Verwendung der COLTRIMS Methode gelang Dörner *et al.* (1998b) erstmals die koinzidente Messung der Impulse beider Fragmente und eines Elektrons mit  $4\pi$  Raumwinkel. Dies erlaubt es, direkt den Einfluss der Molekülorientierung auf die Emission zumindest eines der beiden Elektronen zu studieren. Über die Emissionsrichtung des zweiten Elektrons wird dabei integriert. Trotzdem läßt sich ein signifikanter Einfluss der Molekülachse auf die Elektronenemission erkennen wie Abbildung 4.3 zeigt. Hierbei wurde auch über alle Elektronenenergien integriert. Für Helium ist die Emissionscharakteristik eines Elektrons im wesentlichen isotrop und unabhängig von der Polarisationsachse der Photonen. Dies wurde bereits in Kapitel 3.1 ausführlich diskutiert und spiegelt sich auch im Asymmetrieparameter von  $\beta_e \approx 0$  wider, der in Abbildung 4.4 als Funktion der Elektronenenergie dargestellt ist. Ebenfalls in Abbildung 4.4 dargestellt ist der Asymmetrieparameter  $\beta_e$  für die Elektronenemission bei  $D_2$  integriert über alle Orientierungen des Moleküls. Wie bei den dreifach differentiellen Wirkungsquerschnitten für die Elektron-Elektron-Koinzidenz von Reddish *et al.* zeigt sich auch hier bereits ein leichter Unterschied zu Helium. Der Asymmetrieparameter für  $D_2$  ist systematisch höher. Die Isotropie wird durch die ausgezeichnete Achse des Moleküls gebrochen und die Emission erfolgt mit leichter Bevorzugung in Richtung der Polarisationsachse, auch wenn über alle Orientierungen des Moleküls integriert wird.

Noch deutlicher erkennt man den Einfluss des Moleküls, wenn man die beiden Extremfälle betrachtet, d.h. wenn die Molekülachse parallel bzw. senkrecht zur Polarisation steht. Beide Fälle sind ebenfalls in Abbildung 4.3 dargestellt. Man erkennt deutlich die Bevorzugung der Emission in Richtung der Polarisationsachse, die noch verstärkt wird, wenn die Molekülachse parallel zur Polarisation liegt. Abbildung 4.5 zeigt die entsprechenden Asymmetrieparameter  $\beta_e$  als Funktion der Elektronenenergie. Die azimuthale Winkelverteilung der Elektronenemission um die Polarisationsachse herum zeigt jedoch keinen Einfluss der Molekülachse und ist, wie bei Helium auch, isotrop.

Erste theoretische Untersuchungen der Photodoppelionisation von  $H_2$  wurden von Feagin *et al.* (Feagin, 1998; Reddish und Feagin, 1999) im Rahmen der Wannier-Theorie durchgeführt. Die Doppelionisationsamplitude ergibt sich dann zu (Feagin, 1998)

$$\begin{aligned}
 f(\vec{R}_N) \sim & \cos^2 \theta_N (g_\Sigma(E_1, E_2, \theta_{12}) \cos \theta_1 + g_\Sigma(E_2, E_1, \theta_{12}) \cos \theta_2) \\
 & + \sin^2 \theta_N (g_\Pi(E_1, E_2, \theta_{12}) \cos \theta_1 + g_\Pi(E_2, E_1, \theta_{12}) \cos \theta_2) \\
 & + \sin \theta_N \cos \theta_N ([g_\Sigma(E_1, E_2, \theta_{12}) - g_\Pi(E_1, E_2, \theta_{12})] \sin \theta_1 \cos(\phi_1 - \phi_N))
 \end{aligned}$$

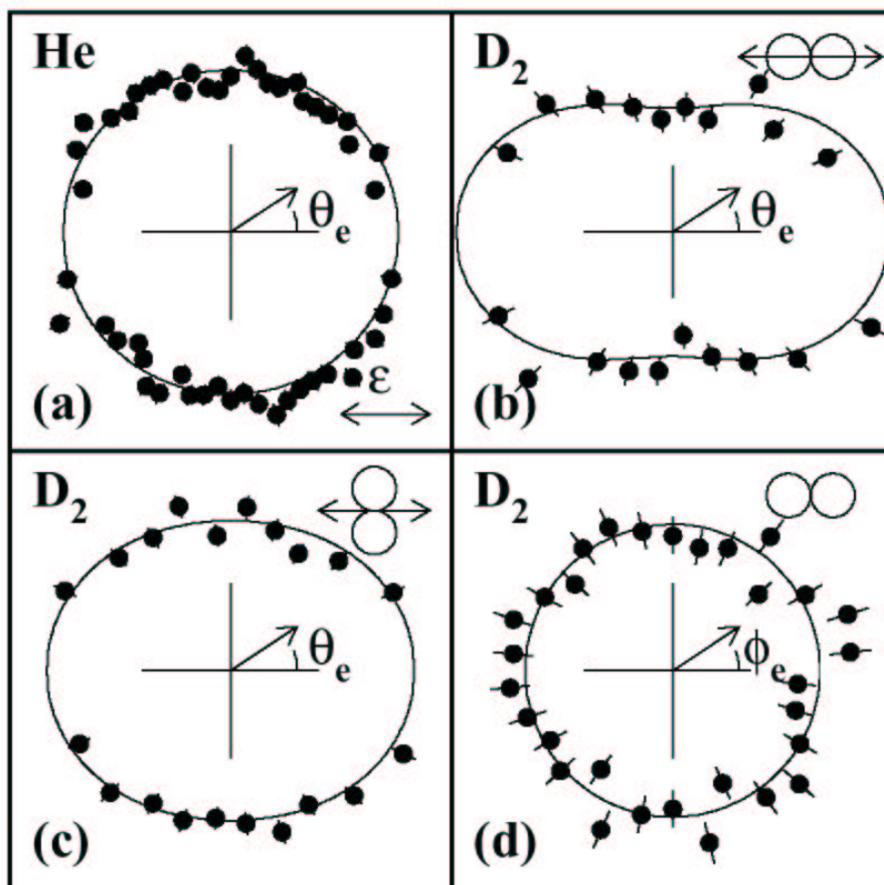


Abbildung 4.3: Winkelverteilung eines der beiden Elektronen nach Photodoppelionisation von D<sub>2</sub> bei 58.8 eV Photonenenergie (Dörner et al., 1998b). Es wurde über alle Elektronenenergien integriert. a) Helium (86 eV Photonenenergie): Linie - Fit mit  $\beta_e = 0 \pm 0.04$ , b) D<sub>2</sub> mit Molekülachse parallel zur Polarisationsachse: Linie - Fit mit  $\beta_e = 0.4 \pm 0.1$ , c) D<sub>2</sub> mit Molekülachse senkrecht zur Polarisationsachse: Linie - Fit mit  $\beta_e = 0.14 \pm 0.08$ , d) D<sub>2</sub> mit Molekülachse senkrecht zur Polarisationsachse und Polarisationsachse zeigt aus der Bildebene heraus: Linie - Kreis für isotrope Verteilung.

$$+ [g_{\Sigma}(E_2, E_1, \theta_{12}) - g_{\Pi}(E_2, E_1, \theta_{12})] \sin \theta_2 \cos(\phi_2 - \phi_N) \quad (4.2)$$

$\theta_{1,2,N}$  bezeichnen hierbei die Polarwinkel der Elektronen und der Molekülachse relativ zur Polarisationsachse und  $\phi_{1,2,N}$  die entsprechenden Azimutwinkel um die Polarisationsachse. Wie bei der Parametrisierung von Huetz im Falle der Photodoppelionisation von Helium (Kapitel 3.1) sind die Funktionen  $g_{\Sigma}$  und  $g_{\Pi}$  abhängig von den Elektronenenergien  $E_1$  und  $E_2$  sowie dem Winkel  $\theta_{12}$  zwischen den beiden Emissionsrichtungen. Da beim Molekül die in der Elektronenbewegung vorhandene Energie nicht nur von der Photonenenergie wie beim Helium, sondern auch vom internuklearen Abstand abhängt, gehen bei  $g_{\Sigma}$  und  $g_{\Pi}$  beide Energien explizit ein. Für den Fall  $g_{\Sigma} = g_{\Pi}$  ergibt sich direkt die entsprechende Am-

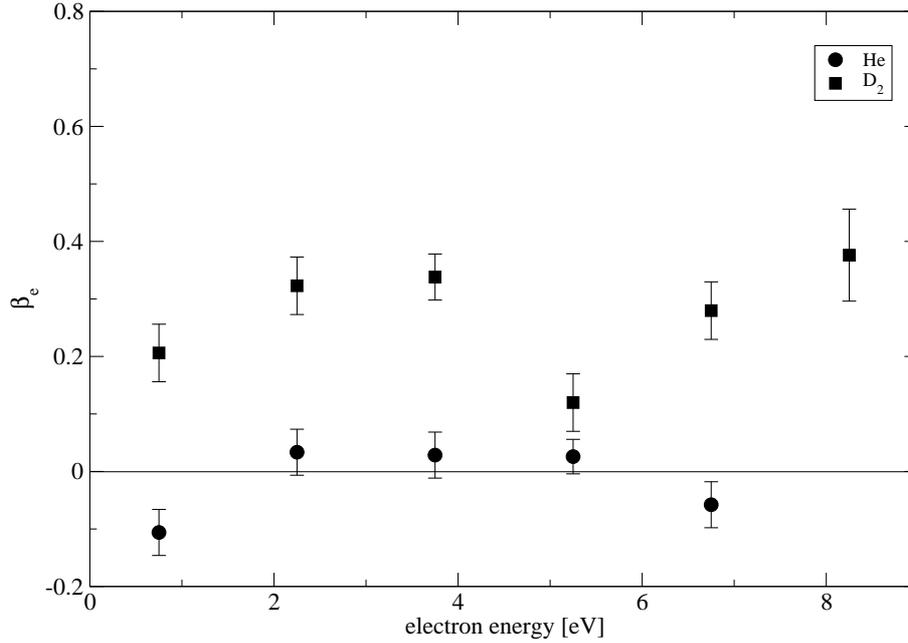


Abbildung 4.4: Asymmetrieparameter  $\beta_e$  als Funktion der Elektronenenergie bei ca. 7 eV Überschussenergie (Dörner et al., 1998a): Kreise - Helium (86 eV Photonenenergie), Quadrate -  $D_2$  (58.8 eV Photonenenergie) integriert über alle Orientierungen der Molekülachse.

plitude für Helium. Ferner wird  $f(\vec{R}_N)$  unabhängig von den Azimutwinkeln, wenn die Molekülachse senkrecht oder parallel zur Polarisationsachse liegt. Dies ist in Übereinstimmung mit den in Abbildung 4.3 gezeigten Ergebnissen.

In einer ersten Näherung können die Funktionen  $g_\Sigma$  und  $g_\Pi$  in Analogie zum Helium durch eine Gauß-Funktion beschrieben werden. Die in Abbildung 4.5 gezeigten Asymmetrieparameter werden dabei am besten beschrieben, wenn die Gauß-Funktionen Halbwertsbreiten von  $135^\circ$  für  $g_\Sigma$  und  $110^\circ$  für  $g_\Pi$  haben. Dies ist deutlich größer als der Wert von  $91^\circ$  für Helium.

Die Messung vollständig differentieller Wirkungsquerschnitte, d.h. der koinzidente Nachweis beider Elektronen und beider Fragmente gelang vor kurzen Weber *et al.* (2004) bei 75.5 eV Photonenenergie. Abbildung 4.6 zeigt deutlich den Einfluss der Molekülachse auf die Elektronenemissionscharakteristik für symmetrische Energieaufteilung und koplanare Geometrie. Die für Helium verbotenen Zustände mit  $\vec{k}_1 = -\vec{k}_2$  und  $k_1 = k_2$  bei  $\theta_1 = \pi - \theta_2$  sind im Falle von  $D_2$  deutlich erlaubt. Nach Gleichung 4.2 von Feagin (1998) berechnete Wirkungsquerschnitte stimmen erstaunlich gut mit den experimentellen Daten überein. Zur Berechnung der Amplituden  $g_\Sigma$  und  $g_\Pi$  wurde ein einfaches Modell verwendet (Weber *et al.*, 2004), bei dem eine Ein-Zentren-Entwicklung des  $H_2$  Grundzustandes (Joy und Parr, 1958) verwendet wurde und der Elektronenendzustand durch eine *convergent close-coupling* Entwicklung im Feld einer Punktladung mit  $Z = 2$  beschrieben wurde (Kheifets und Bray, 1998b). Die dennoch in Abbildung 4.6 sichtbaren Diskrepanzen zwischen Theorie

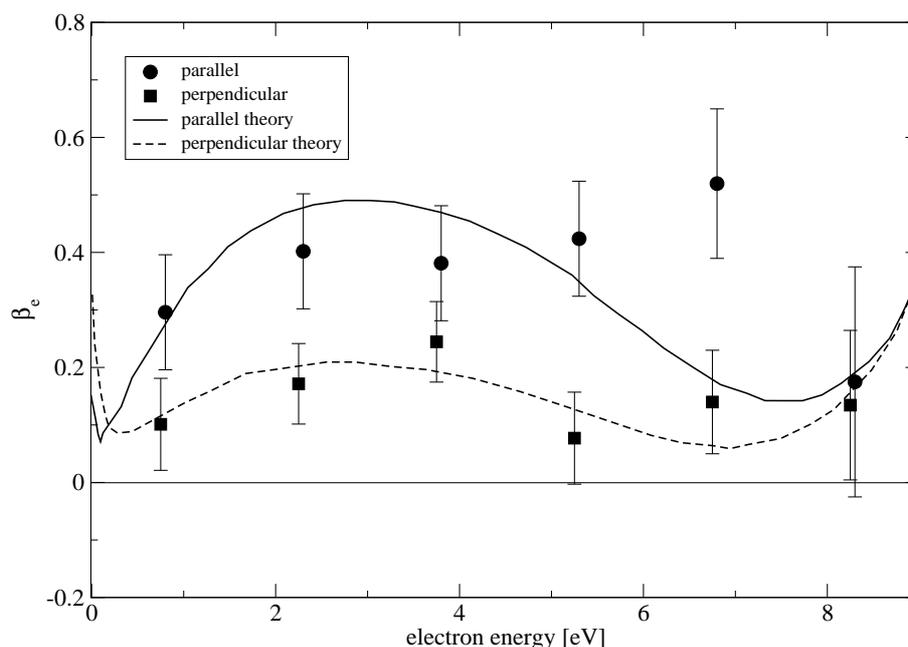
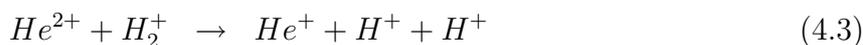


Abbildung 4.5: Asymmetrieparameter  $\beta_e$  für  $D_2$  als Funktion der Elektronenenergie bei 58.8 eV Photonenenergie (Dörner et al., 1998a). Experiment: Kreise - Molekülachse parallel zur Polarisationsachse, Quadrate - Molekülachse senkrecht zur Polarisationsachse. Theorie (Feagin, 1998): durchgezogene Linie - Molekülachse parallel zur Polarisationsachse, gestrichelte Linie - Molekülachse senkrecht zur Polarisationsachse.

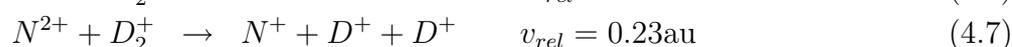
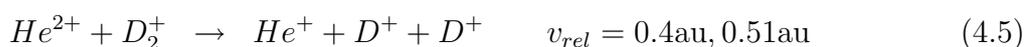
und Experiment lassen vor allem Zweifel an der Ein-Zentren-Beschreibung aufkommen. Eine richtige molekulare Behandlung könnte hier zu noch besserer Übereinstimmung führen.

## 4.2 Ion-Ion-Stöße mit $H_2^+$

Wie oben erwähnt, ist das Wasserstoffmolekülion als reines Einelektronensystem besonders geeignet, Alignment-Effekte bei Elektronentransfer im Schwerionenstoß zu untersuchen. Die ersten Messungen im Ion-Ion-Stoß mit Wasserstoffmolekülionen wurden von Bräuning *et al.* (2001c) für totale Wirkungsquerschnitte bei den Reaktionen



und von Reiser *et al.* (2003) für differentielle Wirkungsquerschnitte bei den Reaktionen



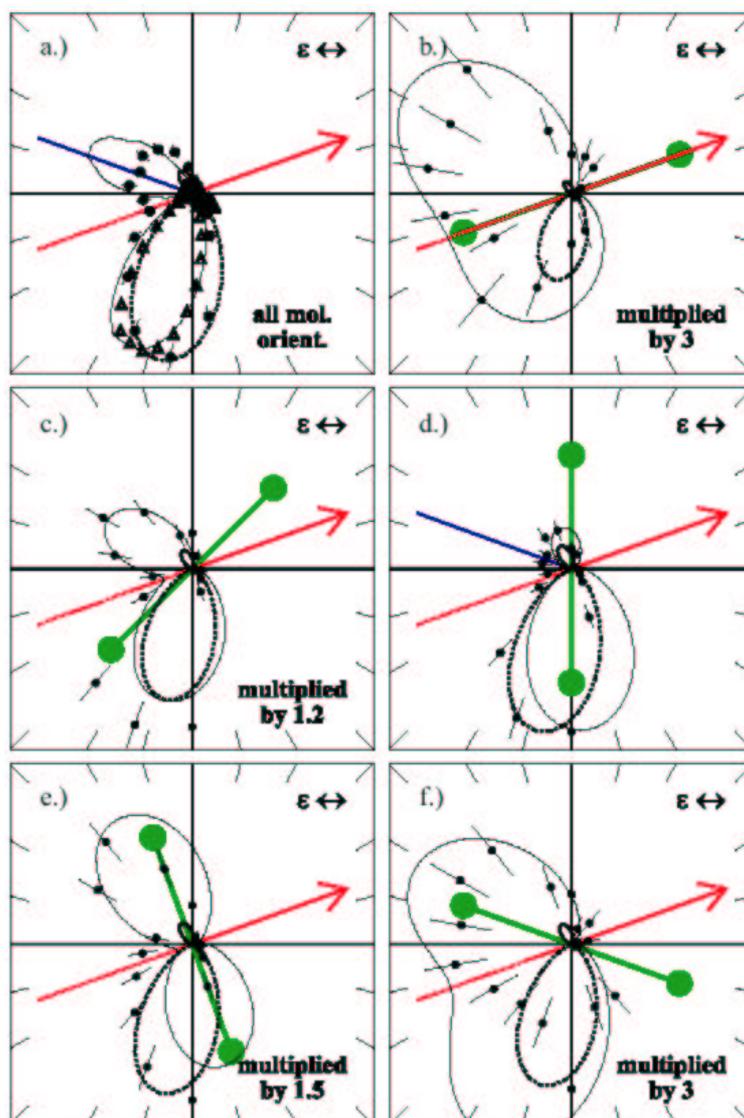


Abbildung 4.6: Vollständig differentielle Wirkungsquerschnitte für Photodoppelionisation von  $D_2$  bei symmetrischer Energieaufteilung, koplanarer Geometrie und festem Emissionswinkel  $\theta_1 = 20^\circ \pm 10^\circ$  (Pfeil) für verschiedene Ausrichtungen der Molekülachse (Weber et al., 2004). Theorie: dünne Linie - Feagin (Feagin, 1998) (siehe Text), Dreiecke - wie durchgezogene Linie mit  $g_\Sigma = g_\Pi$ , dicke Linie - Fit an Helium Daten mit Gauß-Funktion. Die Geraden kennzeichnen spezielle Fälle für Auswahlregeln: dunkle Gerade -  $k_1 = k_2$  und  $\theta_1 = \pi - \theta_2$ , helle Gerade -  $k_1 = -k_2$ . (Bild aus Weber et al. (2004))

durchgeführt. Die Tabelle 4.2 zeigt die wichtigsten Eigenschaften des  $H_2^+$  Ions.

	$R_0$ [nm]	$D_0$ [eV]	$\nu_0$ [eV]	$E_{ion}$ [eV] (at $R = \infty$ )	$E'_{ion}$ [eV] (at $R = R_0$ )
$H_2^+$	0.106	2.79	0.285	16.25	29.97

Tabelle 4.2: Eigenschaften des  $H_2^+$  Ions (Brandsen und Joachain, 1992):  $R_0$  - Gleichgewichtsabstand,  $D_0$  - Dissoziationsenergie,  $\nu_0$  - Grundzustandsvibrationsfrequenz,  $E_{ion}$  - Ionisationspotential.

### 4.2.1 Totale Wirkungsquerschnitte

Abbildung 4.7 zeigt die absoluten totalen Wirkungsquerschnitte für die Reaktionen 4.3 und 4.4. Dabei wurde über alle Orientierungen der Molekülachse integriert. Der Wirkungsquerschnitt für die Reaktion 4.3 zeigt die für Elektronentransfer in nicht-resonanten Stoßsysteme-

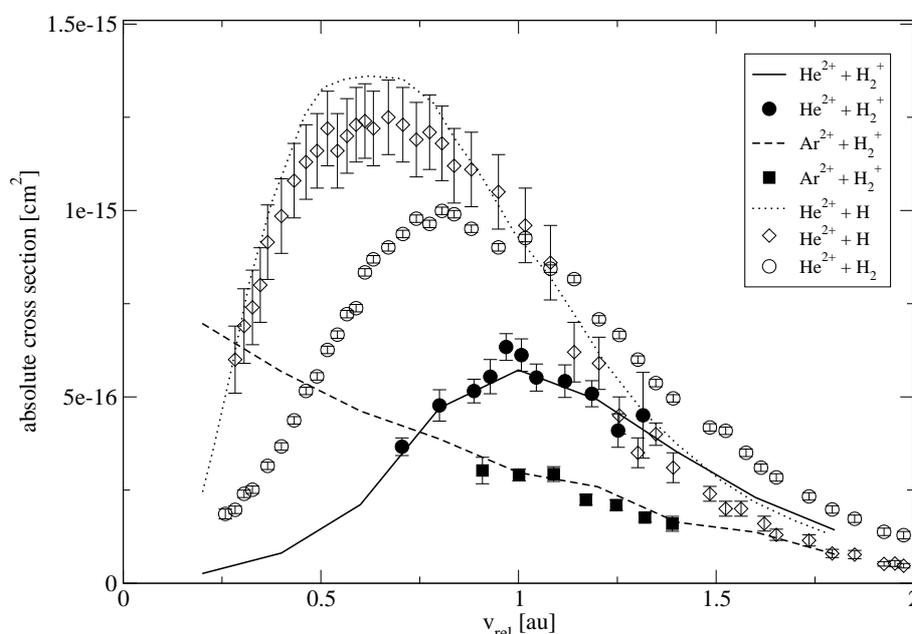


Abbildung 4.7: Totale Wirkungsquerschnitte für die Reaktionen  $He^{2+} + H_2^+ \rightarrow He^+ + H^+ + H^+$  (volle Kreise, durchgezogene Linie) und  $Ar^{2+} + H_2^+ \rightarrow Ar^+ + H^+ + H^+$  (volle Quadrate, gestrichelte Linie) als Funktion der Relativgeschwindigkeit. Die Symbole entsprechen experimentellen Daten von Bräuning et al. (2001c); die durchgezogene und gestrichelte Linie basieren auf Rechnungen nach dem Modell von Shingal und Lin (1989). Zum Vergleich sind ebenfalls totale Wirkungsquerschnitte für die Reaktionen  $He^{2+} + H_2 \rightarrow He^+ + H_2^+$  (offene Kreise) und  $He^{2+} + H \rightarrow He^+ + H^+$  (offene Rauten) nach Shah und Gilbody (1978) dargestellt. Die gepunktete Linie zeigt Rechnungen von Hatton et al. (1979); Winter und Hatton (1980) und Brandsen et al. (1983) für  $He^{2+} + H \rightarrow He^+ + H^+$ .

men typische Abhängigkeit von der Relativgeschwindigkeit. Zum Vergleich sind ebenfalls die Wirkungsquerschnitte für Elektronentransfer in den Stoßsystemen  $\text{He}^{2+} + \text{H}_2$  und  $\text{He}^{2+} + \text{H}$  (Shah und Gilbody, 1978) dargestellt. Auch diese beiden Systeme zeigen eine starke Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts von der Relativgeschwindigkeit. Die Lage des Maximums verschiebt sich dabei zu niedrigeren Relativgeschwindigkeiten und der Absolutwert im Maximum nimmt zu. Er ist bei  $\text{He}^{2+} + \text{H}$  maximal. Interessanterweise ist bei dieser Reaktion der Elektronentransfer in den  $2s$  Zustand von  $\text{He}^+$  resonant und trägt mit etwa 16%–22% zum Gesamtquerschnitt bei. Das ist nicht der Fall beim Stoßsystem  $\text{He}^{2+} + \text{H}_2^+$ , welches einen relativ großen  $Q$ -Wert besitzt. Für den Transfer in den  $2s$  Zustand von  $\text{He}^+$  ergibt sich  $Q = -16.3$  eV. Dieses Stoßsystem hat entsprechend auch den niedrigsten Wirkungsquerschnitt im Vergleich zu den beiden Stoßsystemen mit  $\text{H}$  bzw.  $\text{H}_2$ . Für das Stoßsystem  $\text{Ar}^{2+} + \text{H}_2^+$  ist der  $Q$ -Wert für den Transfer in den  $3p$  Zustand vom  $\text{Ar}^+$  mit  $Q = -2.3$  eV dem Betrag nach deutlich kleiner. Dieses Stoßsystem ist näher an einem resonanten Elektronentransfer und der in Abbildung 4.7 gezeigte Wirkungsquerschnitt zeigt eine leichte Zunahme mit abnehmender Relativgeschwindigkeit.

Für Ion-Atom-Stöße, insbesondere für reine Einelektronensysteme wie  $\text{He}^{2+} + \text{H}$ , gibt es eine Reihe verlässlicher Rechnungen. Die in Abbildung 4.7 gezeigten theoretischen Rechnungen für  $\text{He}^{2+} + \text{H}$  stimmen sehr gut mit den experimentellen Werten überein. Sie basieren auf molekularen Orbitalen mit 10 Zuständen und *plane-wave* Translationsfaktoren für  $v_{rel} < 0.65$  au (Hatton *et al.*, 1979; Winter und Hatton, 1980) sowie atomaren Orbitalen mit 20 Zuständen und *plane-wave* Translationsfaktoren für  $v_{rel} > 0.65$  au (Brandsen *et al.*, 1983). Für Stöße mit Molekülen hingegen gibt es nur wenige theoretische Rechnungen, insbesondere bei niedrigen und mittleren Energien. *Close-coupling* Rechnungen zum Elektroneneinfang aus neutralen Molekülen wurden von Kimura mit molekularen Basisfunktionen für  $\text{H}^+ + \text{H}_2$  (Kimura, 1985) und  $\text{Ar}^+ + \text{H}_2$  (Kimura *et al.*, 1986) berechnet. In beiden Fällen variiert der Wirkungsquerschnitt mit der Orientierung der molekularen Achse. In jüngster Zeit wurden die Rechnungen von Kimura auf komplexere Moleküle wie  $\text{CH}_4$  (Kimura *et al.*, 1995),  $\text{C}_2\text{H}_2$  (Kimura *et al.*, 1996) und  $\text{CO}$  (Kimura *et al.*, 2000) ausgedehnt. Auch hier ergeben sich Variationen des Wirkungsquerschnittes mit der Ausrichtung des Moleküls. Es lassen sich im Formalismus dieser Rechnungen jedoch keine besonderen Terme erkennen, denen gezielt die Ursache für Alignment oder Interferenzeffekte zugewiesen werden kann.

Ausgehend von den Überlegungen von Tuan und Gerjuoy (1960) und Deb *et al.* (1988) entwickelten Shingal und Lin (1989) ein ähnliches Modell. Sie beschreiben aber die Streuamplituden in der Stoßparameter-Näherung und rechnen nach der Methode der gekoppelten Kanäle mit atomaren Basisfunktionen statt in der Brinkman-Kramers Näherung wie Tuan und Gerjuoy. Es wird weiterhin nur ein aktives Elektron betrachtet, d.h. die Elektron-Elektron-Wechselwirkung wird vernachlässigt. Die Ergebnisse sind in guter Übereinstimmung mit experimentellen Daten für die Stoßsysteme  $\text{H}^+ + \text{H}_2$  und  $\text{He}^{2+} + \text{H}_2$ .

Das Modell von Shingal und Lin (1989) läßt sich aber auch direkt auf Stöße mit Wasserstoffmolekülonen anwenden. Die Anfangszustandswellenfunktion wird durch eine Linearkombination atomarer Orbitale (*Linear Combination of Atomic Orbitals* LCAO) darge-

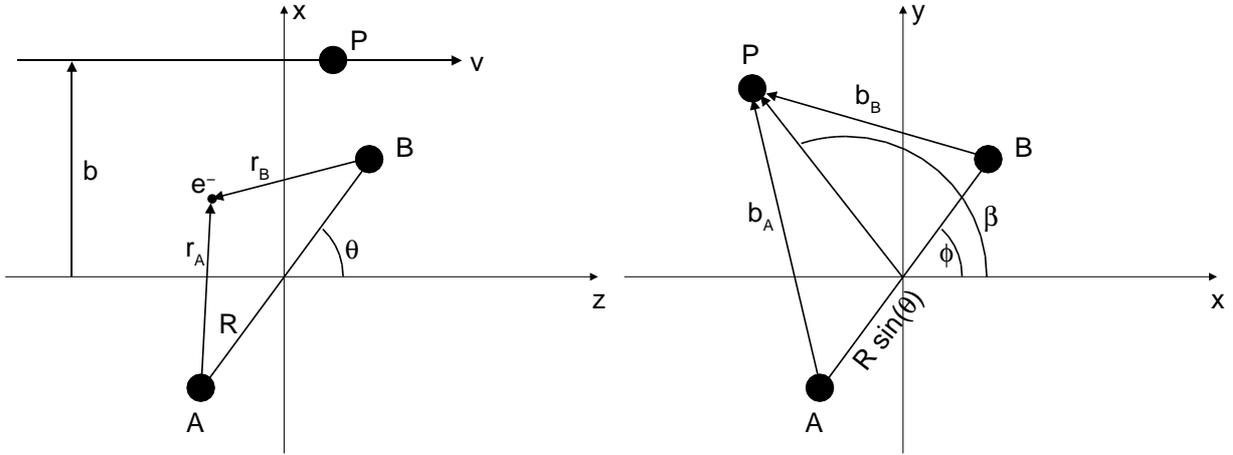


Abbildung 4.8: Koordinaten im Laborsystem für Ion- $H_2^+$  Stöße: A,B - Kerne des Wasserstoffmolekülions, R - internuklearer Abstand, P - Projektil, v - Projektilgeschwindigkeit (definiert z-Achse), b,  $b_A$ ,  $b_B$  - Stoßparameter,  $\beta$  - Winkel zwischen Stoßparameter und x-Achse in x-y Ebene,  $\theta$  - Winkel zwischen Molekülachse und z-Achse,  $\phi$  - Winkel zwischen Molekülachse und x-Achse in x-y-Ebene. Der Ursprung des Koordinatensystems liegt in der Mitte des Moleküls.

stellt:

$$\Psi_i = \frac{1}{\sqrt{2}}[\varphi(\vec{r}_A) + \varphi(\vec{r}_B)] \quad (4.8)$$

$\varphi(\vec{r}_A)$  und  $\varphi(\vec{r}_B)$  sind atomare Wasserstoffwellenfunktionen zentriert auf den jeweiligen Kern A bzw. B des Moleküls (siehe Abbildung 4.8).  $\vec{r}_A$  und  $\vec{r}_B$  sind entsprechend die Koordinaten des Elektrons bezüglich der beiden Kerne. Die höhere Bindungsenergie des Elektrons im Molekülion im Vergleich zum neutralen Atom wird dabei durch eine effektive Kernladung von  $Z_{eff} = 1.25$  in den atomaren Wellenfunktionen berücksichtigt. Der internukleare Abstand R wird festgehalten und beträgt 2 au entsprechend dem Gleichgewichtsabstand. Prinzipiell wäre es jedoch möglich, auch Variationen des internuklearen Abstandes durch Adaption der effektiven Kernladung zu berücksichtigen. Neben dem internuklearen Abstand wird auch die Orientierung des Moleküls während des Stoßes als im Raum fixiert angenommen. Bei typischen Stoßzeiten im Bereich von  $10^{-16}$  s bei den hier betrachteten Relativgeschwindigkeiten im Vergleich zu Vibrationszeiten im Bereich  $10^{-14}$  s und noch längeren Rotationszeiten ist diese Annahme gerechtfertigt.

Im Endzustand bewegt sich das Elektron mit dem Projektil und seine Wellenfunktion ist gegeben durch

$$\Psi_f = \psi_f(\vec{r}_P) \exp(i\vec{v}_{rel} \cdot \vec{r} - iv_{rel}^2 t/2 - i\epsilon_f t) \quad (4.9)$$

Hierbei ist  $\psi_f$  die auf das Projektil zentrierte atomare Wellenfunktion des Endzustandes und der Exponentialterm der von der Relativgeschwindigkeit abhängige *plane-wave* Translationsfaktor, der die Bewegung des Projektils relativ zum Koordinatenursprung

berücksichtigt.  $\vec{r}_P$  gibt den Ortsvektor des Elektrons relativ zum Projektil und  $\vec{r}$  den Ortsvektor relativ zum Koordinatenursprung an. Die Bindungsenergie im Endzustand ist gegeben durch  $\epsilon_f$ .

In erster Ordnung Störungsrechnung ist die Übergangsamplitude gegeben durch

$$a_{fi} = \langle \Psi_f | V_P | \Psi_i \rangle \quad (4.10)$$

Die Wechselwirkung zwischen Elektron und Projektil wird durch das Störpotential  $V_P$  beschrieben. Mit den angegebenen Wellenfunktionen erhält man so für die Übergangsamplitude

$$a_{fi} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[ \int d\vec{r} dt V_P \psi_f(\vec{r}_P) \varphi(\vec{r}_A) \times \exp(-i\vec{v}_{rel} \cdot \vec{r} + i\omega t + iv_{rel}^2 t/2) \right. \\ \left. + \int d\vec{r} dt V_P \psi_f(\vec{r}_P) \varphi(\vec{r}_B) \times \exp(-i\vec{v}_{rel} \cdot \vec{r} + i\omega t + iv_{rel}^2 t/2) \right] \quad (4.11)$$

Hierbei ist  $\omega = \epsilon_f - \epsilon_i$ . Sieht man von den Translationsfaktoren ab, so beschreibt das erste Integral die Elektronentransferamplitude in erster Ordnung Störungsrechnung für den Stoß des Projektils mit dem Atom A und entsprechend das zweite Integral die Amplitude für den Stoß mit Atom B. Die Integration über  $d\vec{r}$  erfolgt bezüglich des Koordinatenursprungs. Analog gilt für die Integration über die Zeit, daß für  $t = 0$  das Projektil seine nächste Annäherung an den Koordinatenursprung hat. Beide Integrale können nun stark vereinfacht werden, wenn durch eine Koordinatentransformation der Nullpunkt für Ort und Zeit in das Atom A für das erste Integral und in das Atom B für das zweite Integral gelegt wird. Durch diese Koordinatentransformation ergibt sich auch explizit die Abhängigkeit von der Orientierung des Moleküls. Man erhält dann für die Übergangsamplitude

$$a_{fi} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left( A(\vec{b}_A) + A(\vec{b}_B) \exp \left[ -iR \cos \theta \left( \frac{v_{rel}}{2} - \frac{\omega}{v_{rel}} \right) \right] \right) \quad (4.12)$$

$\vec{b}_{A,B}$  sind die Stoßparameter in Bezug auf den Kern A bzw. den Kern B und  $A(\vec{b}_{A,B})$  sind die entsprechenden, stoßparameterabhängigen Übergangsamplituden für einen Ion-Atom-Stoß. Der Winkel  $\theta$  beschreibt den Winkel zwischen Molekülachse und Strahlachse. Die Berechnung der Elektronentransferamplituden für Stöße mit Molekülen wurde somit im wesentlichen auf die Berechnung entsprechender Amplituden für Stöße mit Atomen reduziert, für die es bereits vielfältige Methoden gibt.

Die Elektronentransferwahrscheinlichkeit in Abhängigkeit vom Stoßparameter ergibt sich dann zu

$$P(\vec{b}) = |a_{fi}|^2 \quad (4.13)$$

Es sollte an dieser Stelle noch einmal explizit darauf hingewiesen werden, daß im Gegensatz zum Ion-Atom-Stoß der Stoßparameter hier kein Skalar mehr ist, sondern ein Vektor  $\vec{b} = (b, \beta)$ , der in der Ebene senkrecht zur Projektilbewegung liegt. Dies liegt daran, daß die Molekülachse die im Ion-Atom-Stoß vorhandene Zylindersymmetrie um die Richtung der Projektilbewegung bricht. Ferner kann die Transferwahrscheinlichkeit unphysikalische Werte größer als Eins erreichen, wenn die atomaren Wahrscheinlichkeiten  $|A(\vec{b})|^2$  nahe

Eins liegen. Dies kann durch eine geeignete Näherung vermieden werden (Ryufuku und Watanabe, 1978; Shingal und Lin, 1989).

Der differentielle Wirkungsquerschnitt in Abhängigkeit von der Orientierung des Moleküls ergibt sich schließlich zu

$$\sigma(\theta, \phi) = \int_0^{2\pi} \int_0^\infty bP(b, \beta)dbd\beta \quad (4.14)$$

Die Definition der Winkel ist in Abbildung 4.8 gezeigt. Dabei hängt der Wirkungsquerschnitt nur schwach von  $\phi$  ab. Durch Integration über alle Orientierungen des Moleküls erhält man den totalen Wirkungsquerschnitt

$$\sigma = \frac{1}{4\pi} \int \sigma(\theta, \phi)d\Omega \quad (4.15)$$

Die nach diesem Modell berechneten totalen Wirkungsquerschnitte für die Reaktionen 4.3 und 4.4 sind ebenfalls in Abbildung 4.7 gezeigt. Die atomaren Transferamplituden wurden dabei mit *close-coupling* Rechnungen bestimmt. Für das  $\text{He}^{2+}$  Ion mit einem reinen Coulomb-Potential wurden 10 Zustände berücksichtigt. Für  $\text{Ar}^{2+}$  wurde nur der Einfang in den  $\text{Ar}^+(3p)$  Zustand berücksichtigt. Für das  $\text{Ar}^{2+}$  Potential wurde ein Modell-Potential

$$V_{\text{Ar}}(r) = \frac{-2 + (-16 + 2.1703r)e^{-2.1703r}}{r} \quad (4.16)$$

gewählt, das die Bindungsenergie des  $\text{Ar}^+(3p)$  Zustandes von 27.6 eV reproduziert (Chen *et al.*, 2001). Wie Abbildung 4.7 zeigt, stimmen die berechneten Wirkungsquerschnitte sehr gut mit den experimentellen Daten überein.

Eine semi-klassische Beschreibung von Ion-Molekül-Stößen wurde von Caillat *et al.* (private Mitteilung) verwendet, um totale Wirkungsquerschnitte für die Reaktionen 4.3 und 4.4 mittels *close coupling* Rechnungen zu erhalten. Dabei wird die relative Ion-Molekül-Bewegung klassisch beschrieben. Die Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung erfolgt durch Expansion der Wellenfunktion nach atomaren Zuständen zentriert auf das Ion und molekularen Zuständen zentriert auf das Molekül unter Verwendung von *plane-wave* Translationsfaktoren. Abbildung 4.9 zeigt die so berechneten totalen Wirkungsquerschnitte im Vergleich mit den experimentellen Daten. Geht man vom Vibrationsgrundzustand  $\nu = 0$  für das Molekül aus, so ergeben sich signifikante Abweichungen zwischen Theorie und Experiment. Da die Molekülionen im heißen Plasma einer EZR-Quelle erzeugt werden, kann man davon ausgehen, auch vibrationsangeregte Zustände zu erhalten. Allein durch die Ionisation der neutralen Moleküle aus dem Vibrationsgrundzustand erhält man bei Franck-Condon-Übergängen vibrationsangeregte Molekülionen, ohne daß explizite Anregung stattfindet. Dies liegt daran, daß die Potentialminima im neutralen Molekül und im Molekülion bei unterschiedlichen Abständen liegen (siehe Abbildung 4.1). Unter Berücksichtigung dieser Franck-Condon verteilten Vibrationszustände erhält man eine deutlich bessere, wenn auch noch nicht gute, Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Es deutet sich an, daß eine stärkere Vibrationsanregung der Moleküle zu einer besseren Übereinstimmung führen würde. Es ist auch nicht unwahrscheinlich, daß bei der Erzeugung der Molekülionen noch weitere Vibrationszustände angeregt werden. Jedoch lassen sich in dieser Hinsicht von experimenteller Seite keine Aussagen treffen.

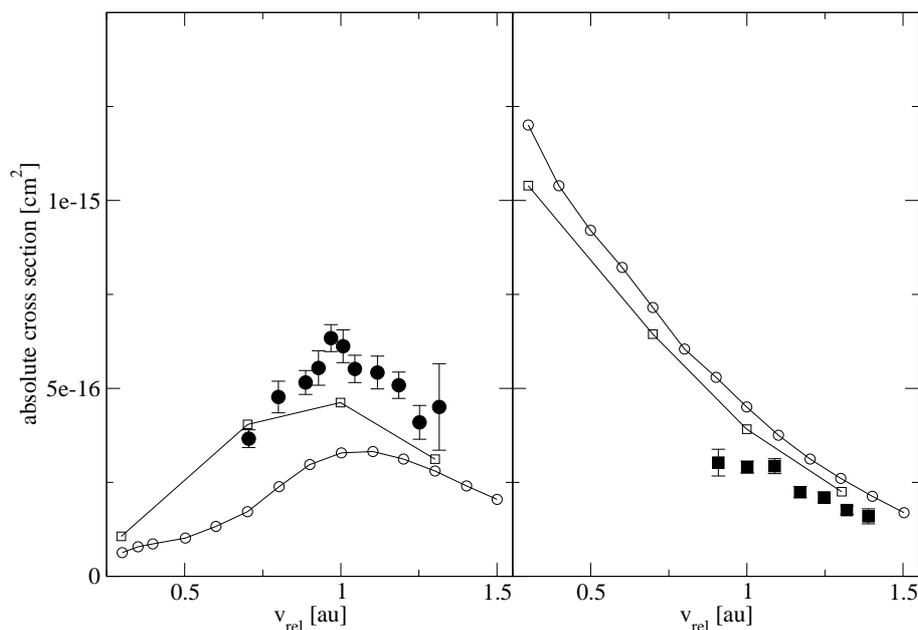


Abbildung 4.9: *Totale Wirkungsquerschnitte für die Reaktionen  $\text{He}^{2+} + \text{H}_2^+ \rightarrow \text{He}^+ + \text{H}^+ + \text{H}^+$  (links) und  $\text{Ar}^{2+} + \text{H}_2^+ \rightarrow \text{Ar}^+ + \text{H}^+ + \text{H}^+$  (rechts) (Bräuning et al., 2001c) im Vergleich mit quantenmechanischen Rechnungen von Caillat et al. (private Mitteilung). Geschlossene Symbole - Experimente, offene Kreise - Theorie für Vibrationsgrundzustand  $\nu = 0$ , offene Quadrate - Theorie für Franck-Condon verteilte vibrationsangeregte Zustände.*

## 4.2.2 Differentielle Wirkungsquerschnitte

Das oben diskutierte Modell von Shingal und Lin (1989) sagt eine starke Abhängigkeit des Wirkungsquerschnittes von der Orientierung des Wasserstoffmoleküls voraus. Wie Abbildung 4.10 zeigt, variiert diese Abhängigkeit ferner mit der Ionensorte und der Relativgeschwindigkeit. Diese Alignmenteffekte wurden von Reiser *et al.* (2003) am Ion-Ion-Experiment der Kansas State University (siehe Abbildung 4.11) für die Reaktionen 4.5, 4.6 und 4.7 untersucht. Die ionenoptischen Komponenten sind speziell zum koinzidenten Nachweis aller drei Teilchen im Endzustand ( $2\text{D}^+$  und einfach geladenes atomares Ion) ausgelegt (Reiser und Cocke, 2003).  $\text{D}_2^+$  wurde verwendet, weil es das gleiche Masse-zu-Ladungs-Verhältnis hat wie  $\text{He}^+$ , mit dem die ionenoptischen Komponenten und die Detektoren getestet wurden.

Abbildung 4.12 zeigt den gemessenen relativen Wirkungsquerschnitt der Reaktionen 4.5, 4.6 und 4.7 in Abhängigkeit vom Winkel  $\theta$  zwischen Molekülachse und Relativbewegung im Vergleich mit den theoretischen Vorhersagen nach dem Modell von Shingal und Lin (1989). Dabei wurden zu Zwecken der Statistik alle experimentellen Daten unter Ausnutzung der Rotationssymmetrie um die Achse der Relativbewegung in den Winkelbereich  $0^\circ$ – $90^\circ$  projiziert und für die Darstellung um den Winkel  $\theta = 90^\circ$  symmetrisiert. Auch gilt zu berücksichtigen, daß gerade um  $90^\circ$  herum, wenn das Molekül senkrecht zur Rela-

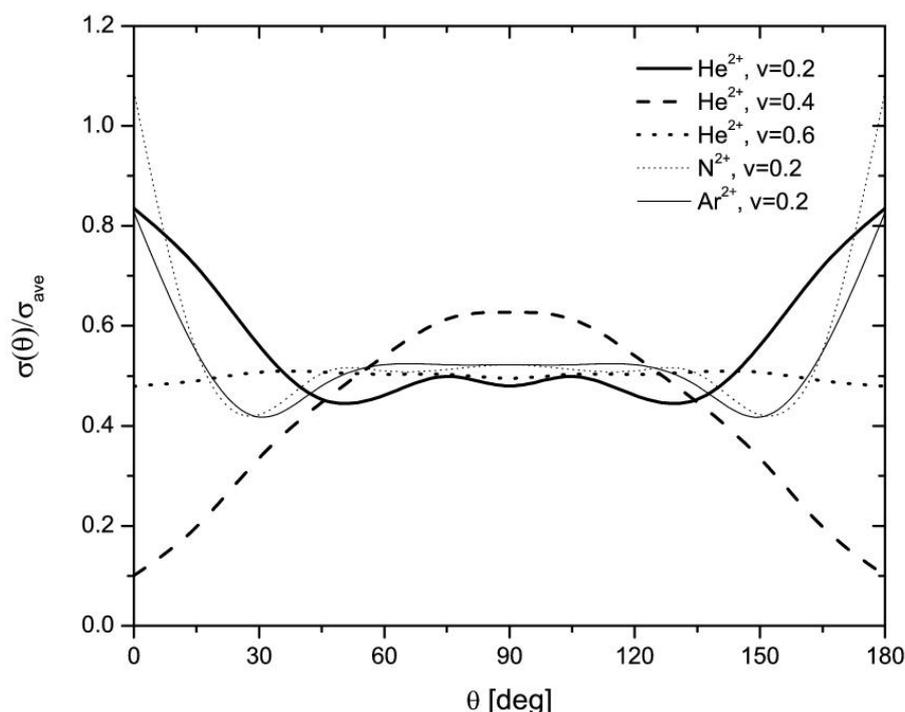


Abbildung 4.10: Gerechnete Wirkungsquerschnitte für Elektronentransfer in Abhängigkeit vom Winkel  $\theta$  zwischen Molekülachse und Relativbewegung für die Stoßsysteme  $He^{2+} + H_2^+$ ,  $Ar^{2+} + H_2^+$  und  $N^{2+} + H_2^+$  (Reiser, 2002).

tivbewegung steht, beide Fragmente nahezu gleichzeitig auf den Detektor auftreffen. Dies führt zu Totzeitproblemen beim koinzidenten Nachweis beider Fragmente und bedingt die größere statistische Unsicherheit in diesem Bereich.

Für das Stoßsystem  $He^{2+} + D_2^+$  ergibt sich zumindest eine qualitative Übereinstimmung mit der Theorie. Sowohl die experimentellen Daten als auch die Theorie zeigen ein Maximum des Wirkungsquerschnittes, wenn die Molekülachse senkrecht zur Relativbewegung steht. Für die höhere Relativgeschwindigkeit sagt die Theorie ein stark verbreitertes Maximum voraus, welches ansatzweise vom Experiment auch wiedergegeben wird. Im Gegensatz zur Theorie fällt der experimentelle Wirkungsquerschnitt jedoch viel stärker ab und wird über einen weiten Winkelbereich konstant.

Ein anderes Bild ergibt sich bei den Stoßsystemen  $Ar^{2+} + D_2^+$  und  $N^{2+} + D_2^+$ . Hier zeigt das Experiment ein sehr breites, flaches Maximum bei  $90^\circ$ . Die Theorie zeigt zwar ein ähnliches, ebenfalls breites und flaches lokales Maximum bei  $90^\circ$ , der berechnete Wirkungsquerschnitt jedoch steigt stark zu  $0^\circ$  und  $180^\circ$  an. Dieser Anstieg wird vom Experiment in keinsten Weise wiedergegeben. Der Vorteil des Modells von Shingal und Lin ist jedoch, daß die Alignmenteffekte eindeutigen Termen zugewiesen werden können. Wertet man Gleichung 4.13 aus, so erhält man für die Transferwahrscheinlichkeit als Funktion der

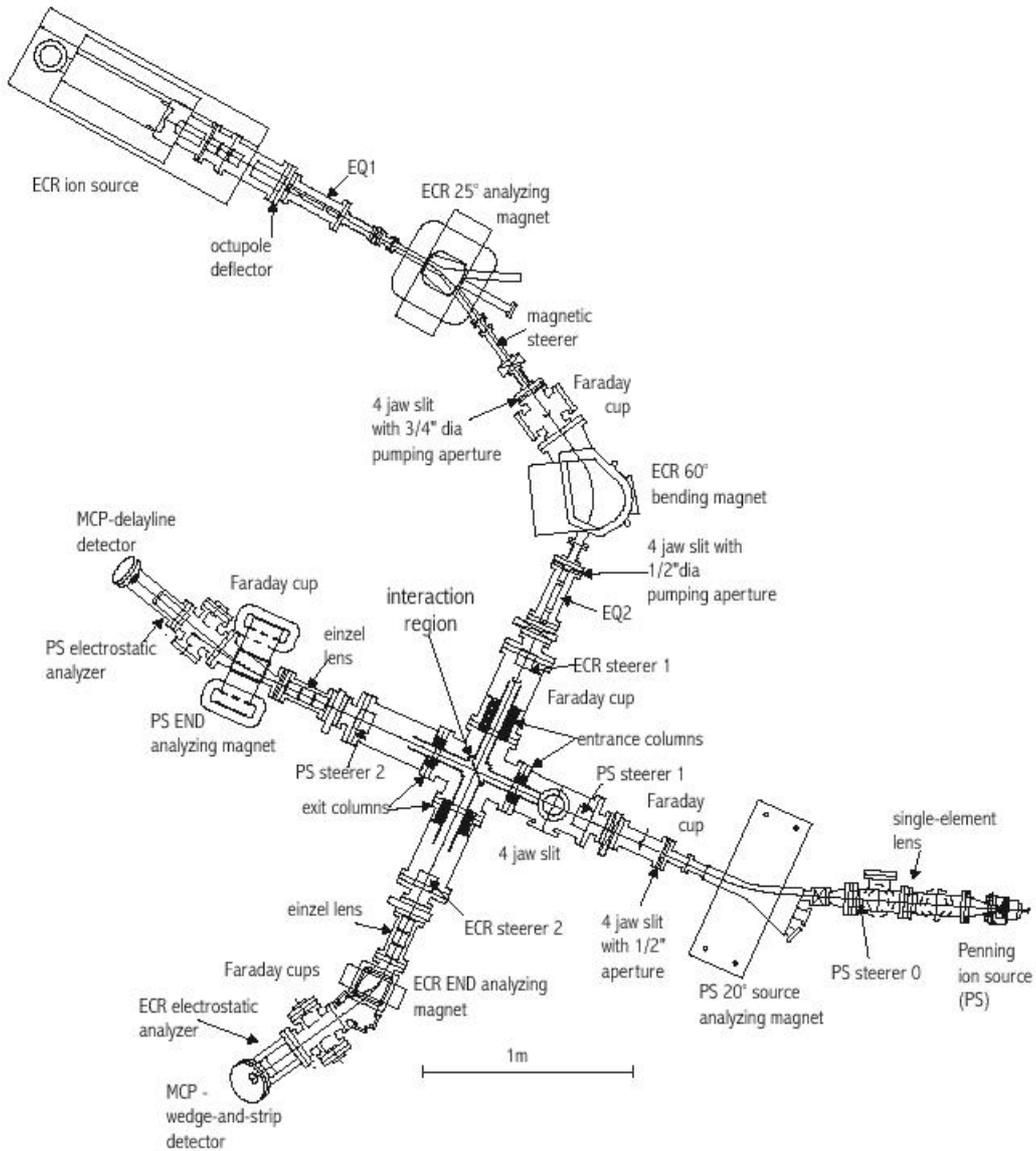


Abbildung 4.11: Schematischer Aufbau des Ion-Ion-Experimentes an der Kansas State University (Reiser, 2002).

Ausrichtung des Moleküls

$$P(\theta) = \frac{1}{2} \left[ |A(\vec{b}_A)|^2 + |A(\vec{b}_B)|^2 + 2\Re(A(\vec{b}_A)A^*(\vec{b}_B)) \cos(\Theta_0 \cos(\theta)) \right] \quad (4.17)$$

mit  $\Theta_0 = -R \left( \frac{v_{rel}}{2} - \frac{\omega}{v_{rel}} \right)$ . Zwei Terme sind für die Alignmenteffekte verantwortlich. Ein wichtiger Term ist die relative Phase zwischen den beiden Streuzentren  $\cos(\Theta_0 \cos(\theta))$ , die über  $\Theta_0$  von der Relativgeschwindigkeit und dem Q-Wert abhängt (siehe Abbildung 4.13).

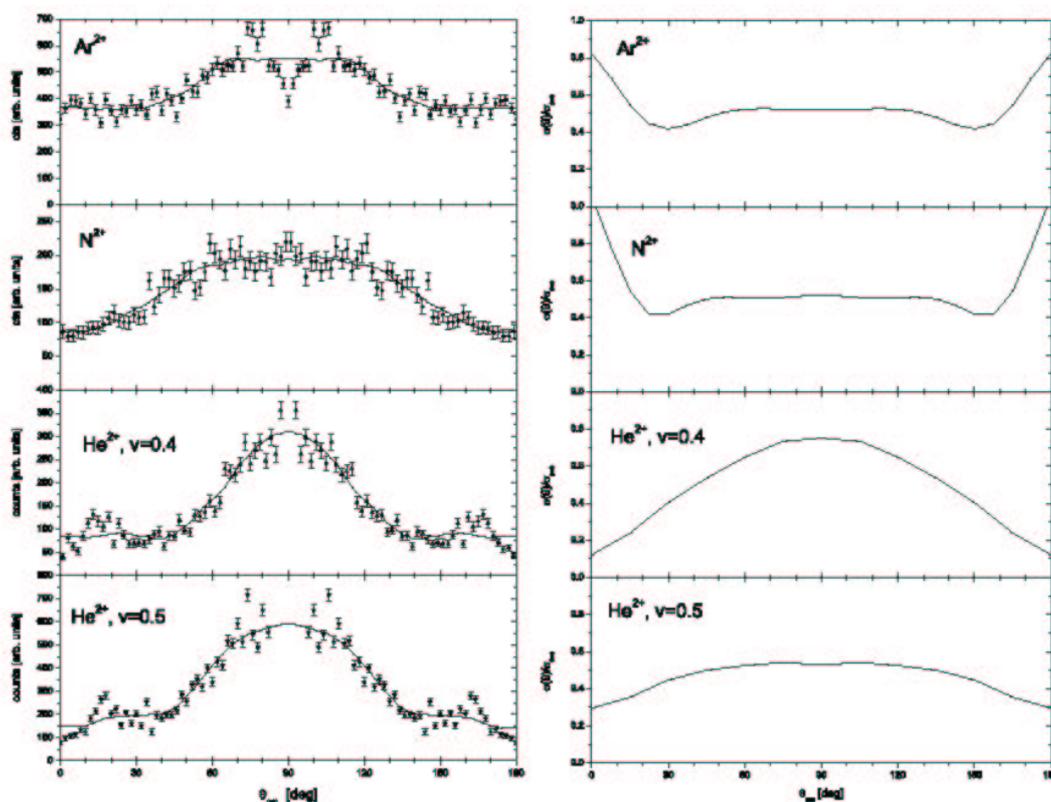


Abbildung 4.12: Wirkungsquerschnitte für Elektronentransfer in Abhängigkeit vom Winkel  $\theta$  zwischen Molekülachse und Relativbewegung für die Stoßsysteme  $Ar^{2+}, N^{2+}, He^{2+} + H_2^+$  (Reiser et al., 2003). Links: experimentelle Daten (die Linie ist eine Glättung der Datenpunkte) symmetrisiert um  $90^\circ$ . Rechts: theoretische Vorhersagen nach dem Modell von Shingal und Lin (1989).

Sie bestimmt im wesentlichen die Abhängigkeit des Wirkungsquerschnittes von der Molekülausrichtung im Stoßsystem  $He^{2+} + D_2^+$ . Der zweite Term ist der räumliche Überlapp der beiden atomaren Streuamplituden  $\Re(A(\vec{b}_A)A^*(\vec{b}_B))$ , der ebenfalls von der Ausrichtung der Molekülachse abhängt. Er ist minimal, wenn die Molekülachse senkrecht zur Relativbewegung steht ( $\theta = 90^\circ$ ) und wird maximal, wenn sie in Richtung der Relativbewegung liegt ( $\theta = 0^\circ$  bzw.  $\theta = 180^\circ$ ). Wie Abbildung 4.13 zeigt, ist für die Stoßsysteme  $Ar^{2+} + D_2^+$  und  $N^{2+} + D_2^+$  bei der hier betrachteten Relativgeschwindigkeit von  $v_{rel}=0.19$  au bzw.  $v_{rel}=0.23$  au der Phasenfaktor  $\Theta_0$  nahezu Null. Hier wird die Winkelabhängigkeit des Wirkungsquerschnittes im wesentlichen durch den Überlapp der atomaren Streuamplituden bestimmt, der für  $\theta = 0^\circ$  und  $\theta = 180^\circ$  maximal wird. Ferner zeigen die atomaren Streuamplituden für diese beiden nahezu resonanten Stoßsysteme eine sehr starke Oszillation als Funktion des Stoßparameters  $b$ . Geringe Verschiebungen der beiden Streuzentren gegeneinander können somit zu starken Änderungen im Term  $\Re(A(\vec{b}_A)A^*(\vec{b}_B))$  führen, die den

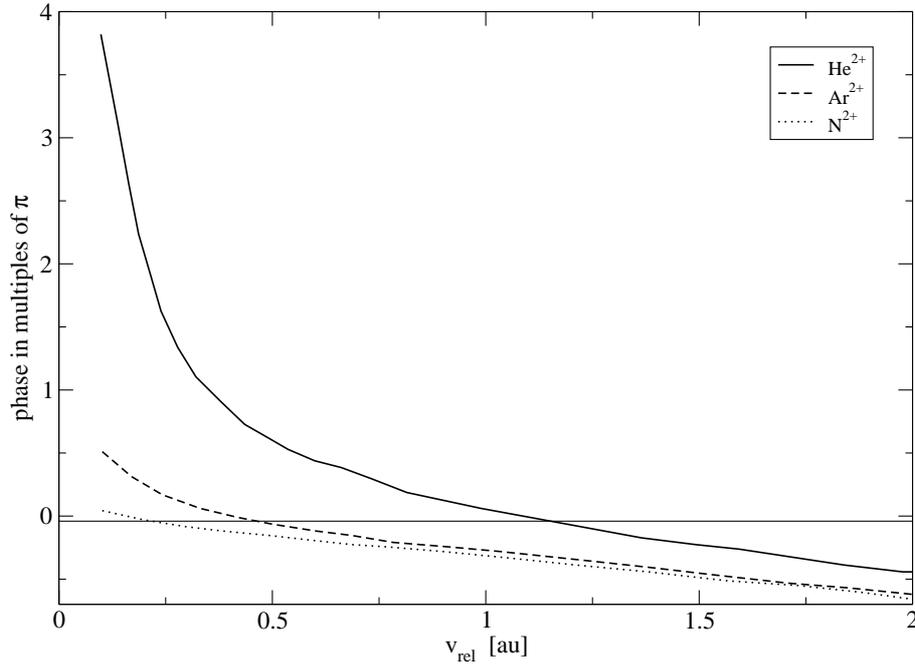


Abbildung 4.13: Phasenfaktor  $\Theta_0$  als Funktion der Stoßgeschwindigkeit für die Stoßsysteme  $Ar^{2+}, N^{2+}, He^{2+} + H_2^+$  (Reiser, 2002).

Einfluss dieses Terms auf den Wirkungsquerschnitt stark erhöhen. Diese starke Erhöhung und somit der starke Einfluss dieses Terms wird vom Experiment jedoch nicht wiedergegeben.

### 4.3 Elektroneneinfang in $HeH^+$

Wie schon in der Einleitung erwähnt, ist das Molekülion  $HeH^+$  von weitreichendem Interesse. Während das Ion im Grundzustand gebunden ist, besitzt das neutrale Molekül  $HeH$  nur einen repulsiven Grundzustand. Jedoch gibt es viele angeregte Zustände von  $HeH$ , die gebunden sind (Michels und Harris, 1963; Theodorakopoulos *et al.*, 1984; Petsalakis *et al.*, 1988; Miller und Schaefer, 1970). Die höher gelegenen angeregten  $HeH$  Zustände, die asymptotisch zum  $He(1s2l)+H(1s)$  Komplex gehören (siehe Abbildung 4.14), wurden z.B. durch dissoziative Rekombination von  $HeH^+$  mit Elektronen untersucht (Tanabe *et al.*, 1993, 1994; Sundström *et al.*, 1994; Strömholm *et al.*, 1996). Untersuchungen zur kinetischen Energie der dissoziierten neutralen Fragmente  $He$  und  $H$  nach Elektroneneinfang in  $HeH^+$  im Stoß mit Alkali-Atomen wurden von van der Zande *et al.* (1986) durchgeführt. Alle diese Experimente untersuchen jedoch immer nur einen Teilaspekt des Elektroneneinfangs mit Dissoziation.

Das erste, kinematisch fast vollständige Experiment zum dissoziativen Elektronenein-

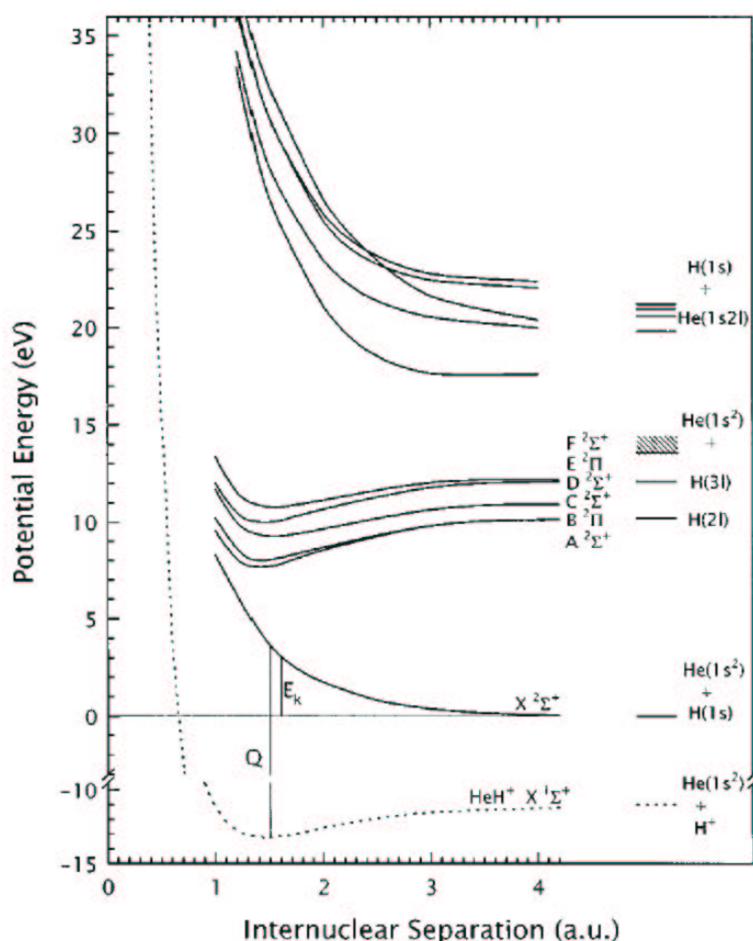


Abbildung 4.14: Potentialkurven für HeH (Theodorakopoulos et al., 1984; Petsalakis et al., 1988; Miller und Schaefer, 1970; Orel et al., 1995) und HeH<sup>+</sup> (Green et al., 1974). (Bild aus Wu et al. (1998))

fang wurde von Wu *et al.* (1998) mit dem Stoßsystem



durchgeführt. Durch Kombination der *Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy* (COLTRIMS) mit dem orts aufgelösten Nachweis eines der Fragmente können gleichzeitig Streuebene, transversaler und longitudinaler Impulstransfer im Stoß, kinetische Energie der Fragmente und Ausrichtung der Molekülachse bestimmt werden. Da von Wu *et al.* nur der Ort eines Fragmentes und nicht seine Flugzeit gemessen wurde, kann nicht die tatsächliche Lage der Molekülachse im Raum bestimmt werden, sondern nur ihre Projektion auf eine Ebene senkrecht zur Strahlrichtung. Dadurch ist das Experiment kinematisch nicht ganz vollständig.

Mittels COLTRIMS wird der komplette Impulstransfer auf das He<sup>+</sup> Rückstoßion ge-

messen. Der zur Strahlrichtung transversale Impulstransfer bestimmt mit der Strahlachse die Streuebene. Der longitudinale Impulstransfer  $p_{\parallel}$  ergibt den Energieverlust<sup>1</sup>  $Q$  der Reaktion zu  $Q = p_{\parallel}v + v^2/2$  (Mergel *et al.*, 1995). Die Reaktion 4.18 ist eine endotherme Reaktion und Abbildung 4.15c zeigt die gemessenen Energieverluste. Es lassen sich drei Peaks erkennen, die Energieverluste von  $Q = 17, 23$  und  $41$  eV entsprechen. Diese kann man den in Abbildung 4.14 gezeigten drei Gruppen von Zuständen des HeH Moleküls zuordnen: Grundzustand, niedrig angeregte Zustände und hoch angeregte Zustände.

Die Fragmente wurden mittels einem senkrecht zur Strahlachse stehenden ortsempfindlichen Detektor im Abstand  $L$  vom Target nachgewiesen. Der auf dem Detektor gemessene Abstand  $R$  der Wasserstofffragmente zum Schwerpunkt des (He+H) Komplexes ist ein Maß für die kinetische Energie  $E_k$  der Fragmente im Schwerpunktsystem nach

$$R = L \sin \theta \sqrt{\left(\frac{m_{He}}{m_H}\right) \left(\frac{E_k}{E_0}\right)} \quad (4.19)$$

Hierbei sind  $m_H$  und  $m_{He}$  die Massen von Wasserstoff und Helium und  $E_0$  die Strahlenergie. Analog erhält man die Abstände der Heliumfragmente durch Vertauschen der Massen in Gleichung 4.19. Zwar wurde von Wu *et al.* der Winkel  $\theta$  der Molekülachse relativ zur Strahlachse nicht gemessen, doch zeigt sich aus geometrischen Überlegungen, daß beim verwendeten Experimentaufbau die meiste Intensität von Stößen mit  $\theta \approx 90^\circ$  kommt. Der gemessene Abstand  $R$  ist somit ein direktes Maß für die kinetische Energie der Fragmente  $E_k$ . Abbildung 4.15b zeigt den gemessenen Abstand als Funktion des Energieverlustes im Stoß. Im Vergleich zeigt Abbildung 4.15a die erwartete Abhängigkeit aufgrund der Potentiale in Abbildung 4.14.

Für den Einfang in den Grundzustand bei  $Q = 17$  eV ist eine deutliche Korrelation zwischen Abstand  $R$ , d.h. kinetischer Energie  $E_k$ , und Energieverlust  $Q$  zu erkennen. Wie aus Abbildung 4.14 erkennbar, führen kleinere internukleare Abstände zu einer höheren kinetischen Energie. Andererseits benötigt der Übergang vom HeH<sup>+</sup> zum neutralen HeH bei kleineren internuklearen Abständen mehr Energie, führt also zu einem größeren Energieverlust. Auch die Anwesenheit verschiedener Vibrationsanregungen spiegelt sich in den gemessenen Daten durch die im Vergleich zur Auflösung von etwa 1 eV deutlich breitere Verteilung des Energieverlusts wider.

Ein anderes Bild ergibt sich für den Einfang in die unteren angeregten Zustände bei  $Q = 23$  eV. Die für den Grundzustand beobachtete Korrelation ist hier nicht zu erkennen. Die Lebensdauer dieser angeregten Zustände ist mit  $10^{-12}$ – $10^{-9}$  s deutlich größer als die Vibrationsperiode von etwa  $10^{-15}$  s (Petsalakis *et al.*, 1988). D.h. Elektronentransfer und Dissoziation finden unkorreliert bei unterschiedlichen internuklearen Abständen statt. Ein weiterer Unterschied zum Einfang in den Grundzustand ist die höhere kinetische Energie der Fragmente. Dies ist ein direkter Hinweis darauf, daß diese Zustände über Prädissoziation durch Wechselwirkung mit dem He(1s<sup>2</sup>)+H(1s) Grundzustand zerfallen. Ein schwächerer Beitrag kommt vom radiativen Zerfall in den HeH Grundzustand mit anschließender Dissoziation. Hier ergibt sich die gleiche Verteilung der kinetischen Energie

<sup>1</sup>Der hier definierte Energieverlust  $Q$  entspricht dem negativen  $Q$ -Wert der Reaktion.

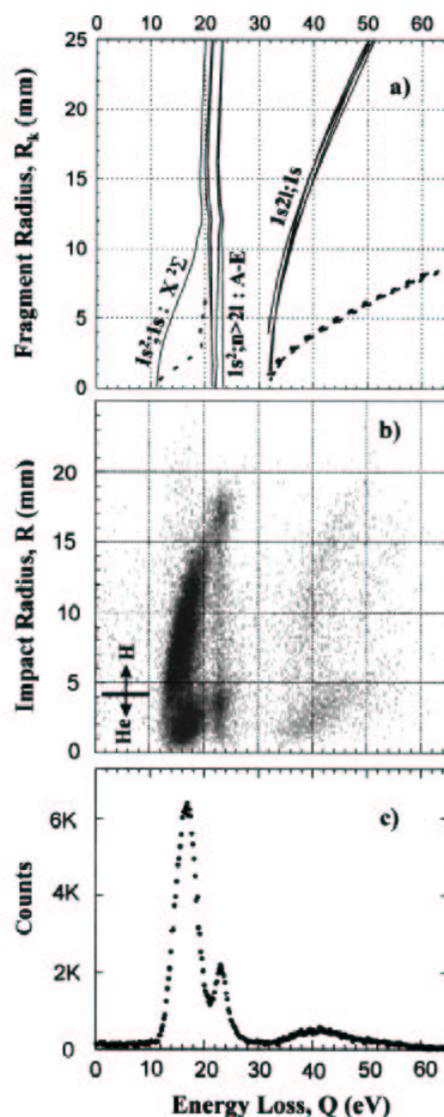


Abbildung 4.15: a) Erwartete Abhängigkeit des Fragmentabstandes  $R$  relativ zum Massenschwerpunkt vom Energieverlust  $Q$ . Die durchgezogenen Linien gelten für das Wasserstofffragment, die gestrichelten Linien für das Heliumfragment. Die Bezeichnungen entsprechen den asymptotischen ( $\text{He}+\text{H}$ ) Konfigurationen. Bei den Kurven mit der Bezeichnung  $1s^2; n > 2l$  wurde von einer Prädissoziation über das Grundzustandspotential ausgegangen. b) Gemessene Abhängigkeit des Fragmentabstandes  $R$  relativ zum Massenschwerpunkt vom Energieverlust  $Q$ . c) Gemessener Energieverlust. (Bild aus Wu et al. (1998))

wie beim direkten Einfang in den Grundzustand.

Die höheren angeregten Zustände verhalten sich im Hinblick auf die Korrelation zwischen  $R$  und  $Q$  ähnlich wie der Grundzustand. Im Prinzip sind diese Zustände gebunden, allerdings mit einem Gleichgewichtsabstand von über 3.5 au (Miller und Schaefer,

1970). In dem Bereich um 1.5 au (Gleichgewichtsabstand für  $\text{HeH}^+$ ) hingegen, in dem die Franck-Condon-Übergänge vom  $\text{HeH}^+$  in  $\text{HeH}$  durch Elektroneneinfang stattfinden, dissoziieren diese Zustände in die neutralen Fragmente  $\text{He}(1s2l)$  und  $\text{H}(1s)$ . Alternativ kann es auch zu einer Autoionisation des  $\text{HeH}$  in diesen Zuständen kommen. Aufgrund der starken Abhängigkeit des Potentials vom internuklearen Abstand im Bereich des Franck-Condon-Überganges ist dieser Prozess jedoch schwach.

Neben der Energie der Fragmente erhält man aus dem Auftreffort der Fragmente auch die Orientierung der Molekülachse im Azimuth  $\phi$  um die Strahlachse. Die experimentellen Daten sind in Abbildung 4.16 dargestellt. Für den Grundzustand und die hohen angeregten Zustände ergibt sich ein klares Maximum der Elektronentransferwahrscheinlichkeit, wenn das Molekül senkrecht zur Streuebene ausgerichtet ist. Für diese beiden Gruppen von Zuständen ist die Dissoziationszeit klein im Vergleich zur Rotationsdauer des Moleküls. Die gemessene Ausrichtung entspricht somit der Ausrichtung beim Elektronentransfer. Dies gilt nicht für die unteren angeregten Zustände. Wie oben schon erwähnt, besitzen diese lange Lebensdauern im Vergleich zur Vibrationsperiode und auch zur Rotationsperiode in der Größenordnung von  $10^{-13}$  s. Damit wird jeglicher Alignmenteffekt durch die zufällige Anzahl von Rotationen vor der Dissoziation zerstört. Entsprechend ist in Abbildung 4.16b keine signifikante Abhängigkeit der Transferwahrscheinlichkeit vom Azimutwinkel zu erkennen.

Bei der obigen Diskussion wurde die Tatsache ignoriert, daß  $\text{HeH}$  im Gegensatz zu  $\text{H}_2$  zwei unterschiedlich schwere Kerne besitzt. Dies könnte eine Asymmetrie im Impulsübertrag bewirken, so daß ein größerer Impulsübertrag auf ein bestimmtes Ende favorisiert wird. Dies würde das Maximum der Winkelverteilung in Abbildung 4.16a und 4.16c von  $\phi = 90^\circ$  verschieben. Die experimentellen Daten zeigen kein Anzeichen dafür, doch läßt sich ein solcher Effekt aufgrund der verbleibenden Messunsicherheit nicht ausschließen. So zeigen neuere Messungen von Bräuning und Prior (1998), bei denen die komplette Orientierung der Molekülachse im Raum gemessen wurde, im Bereich  $\theta = 30^\circ\text{--}90^\circ$  Anzeichen für eine Asymmetrie im azimuthalen Winkel  $\phi$ , abhängig davon, ob der Wasserstoffkern in Flugrichtung liegt oder der Heliumkern.  $\theta$  ist hierbei der Winkel zwischen Molekülachse und Flugrichtung des Massenschwerpunktes, die in erster Näherung mit der Strahlrichtung identisch ist. Auch wurde für den gleichen Winkelbereich eine doppelt so hohe Transferwahrscheinlichkeit in den  $\text{HeH}$  Grundzustand beobachtet, wenn der Wasserstoffkern in Flugrichtung lag. Aufgrund des notwendigen, koinzidenten Nachweises beider Fragmente auf einem Detektor mit den dadurch entstehenden Totzeitproblemen sind diese Messungen und ihre Auswertung recht schwierig. Weitere Messungen werden deshalb noch durchgeführt (L. Schmidt *et al.*, private Mitteilung).

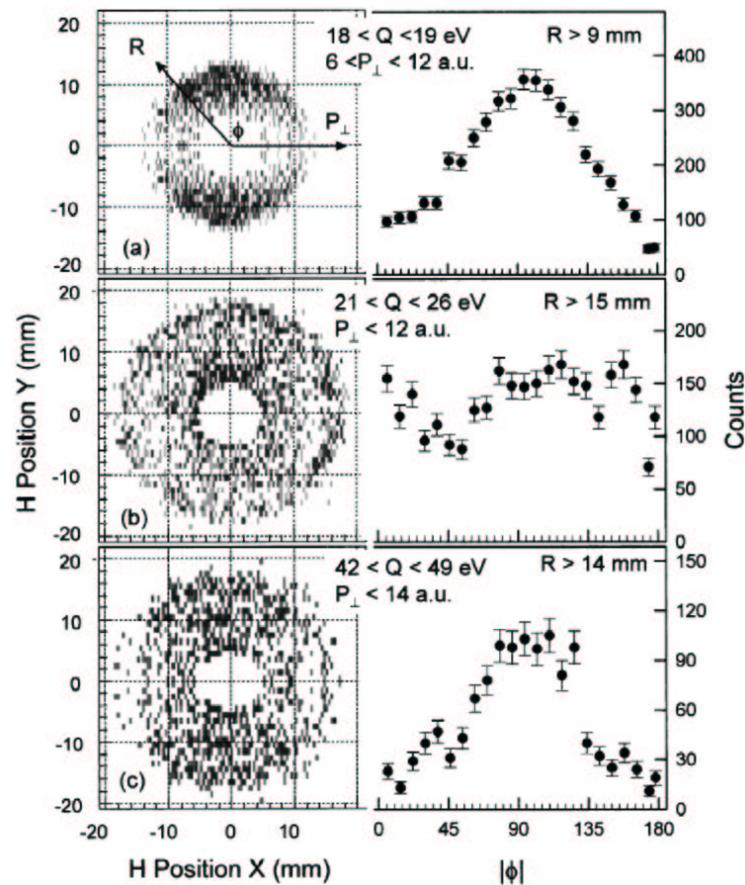


Abbildung 4.16: Links: Verteilung der Wasserstofffragmente projiziert auf eine Ebene senkrecht zur Strahlrichtung für den HeH Grundzustand (a), niedrige angeregte Zustände (b) und höher angeregte Zustände (c) und für den angegebenen Bereich des transversalen Impulsübertrages  $p_{\perp}$ . Die x-Achse der zweidimensionalen Verteilung ist gegeben durch die Richtung des transversalen Impulsübertrags und liegt damit immer in der Streuebene. Rechts: Entsprechende  $|\phi|$  Verteilung für den äußersten Ring der zweidimensionalen Verteilung. (Bild aus Wu et al. (1998))



# Kapitel 5

## Fullerene

Im Vergleich zu den einfachen Molekülen im vorangegangenen Kapitel scheinen Fullere eine äußerst komplexes Gebilde zu sein. So besteht das 'Standard'-Fulleren  $C_{60}$  aus 60 Kohlenstoffatomen in einer sphärischen Anordnung, wobei die Kerne in Hexagonen und Pentagonen angeordnet sind, wie in Abbildung 5.1 dargestellt. Es existieren auch andere Fullerene mit unterschiedlicher Anzahl von Kohlenstoffatomen, aber immer in sphärischer Anordnung mit 12 Pentagonen und einer variablen Anzahl von Hexagonen. Die Tatsache, daß ein solcher Polyeder aus Pentagonen und Hexagonen immer genau 12 Pentagone ausweisen muss, geht auf einen Satz von Euler zurück. Besonders stabil sind dabei jene

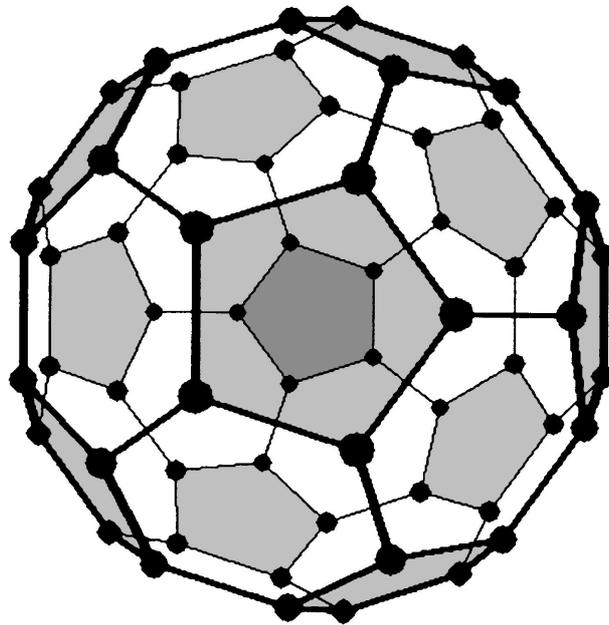


Abbildung 5.1: *Perspektivische Darstellung des Fullerenens  $C_{60}$ : die Kohlenstoffatome besetzen die Ecken von 12 Pentagonen (schattiert dargestellt) und 20 Hexagonen.*

Fullerene, bei denen die Pentagone voneinander getrennt sind. Sie erfüllen dann die sogenannte 'isolated pentagon rule' (IPR). Das in Abbildung 5.1 gezeigte  $C_{60}$  ist ein solches Fulleren. Das kleinste denkbare Fulleren ist das  $C_{20}$ . Nach theoretischen Vorhersagen ist jedoch das  $C_{28}$  das kleinste stabile Fulleren (Martin, 1996).

Mit 360 Elektronen ist das  $C_{60}$  auch ein Paradebeispiel für ein Vielelektronensystem. Es besitzt sogar deutlich mehr Elektronen als die im folgenden Kapitel behandelten schweren Ionen. Ihre vollkommen andere Anordnung erleichtert jedoch die Behandlung dieses komplexen Systems erheblich. So sind die Elektronen auf die Kugelschale des Fulleren beschränkt. Die Elektronen der äußeren Schale der Kohlenstoffatome sind in erster Näherung  $sp^2$  hybridisiert. Es existieren drei starke  $\sigma$ -Bindungen, die im wesentlichen das Gerüst des Moleküls bilden, und eine  $\pi$ -Bindung, die senkrecht zur Kugeloberfläche steht. Die  $\pi$ -Elektronen weisen eine niedrigere Bindungsenergie auf und sind vor allem für die chemischen Eigenschaften des Fulleren verantwortlich. Zudem sind sie stark delocalisiert und sehr beweglich, nahezu vergleichbar mit dem Leitungsband eines Festkörpers. Dies spiegelt sich auch in der hohen Polarisierbarkeit von  $540 a_0^3$  (Scheidemann *et al.*, 1994) ( $a_0$  ist der Bohr-Radius) wider. Im Vergleich dazu hat das Atom mit der höchsten Polarisierbarkeit, Natrium, nur eine Polarisierbarkeit von  $140 a_0^3$ .

Seit ihrer Entdeckung durch Kroto *et al.* (1985) sind Fullerene Gegenstand zahlreicher Untersuchungen auch bezüglich Ladungstransfer, Ionisation und Fragmentation in Stößen mit anderen Fullerenen oder atomaren und molekularen Ionen. Einen Überblick hierüber geben Campbell und Rohmund (2000). Im folgenden sollen deshalb im wesentlichen nur die am Ion-Ion-Stoßexperiment in Giessen durchgeführten weltweit ersten Experimente zum Ladungstransfer in Stößen zwischen zwei Fulleren-Ionen (Bräuning *et al.*, 2003c) bzw. zwischen Fulleren-Ionen und  $He^{2+}$ -Ionen (Bräuning *et al.*, 2004c) vorgestellt werden. Im letzten Abschnitt werden abschließend noch Stöße von hochgeladenen schweren Ionen mit neutralen Fullerenen im Bereich einiger 10 MeV/u Stoßenergie diskutiert, wie sie derzeit nur bei der Gesellschaft für Schwerionenforschung (GSI) in Darmstadt möglich sind.

## 5.1 Stöße zwischen Fulleren-Ionen

Der Ladungstransfer in Stößen von Fulleren-Ionen mit neutralen Fullerenen als Funktion der Stoßenergie im keV Energiebereich wurde bereits extensiv von Rohmund und Campbell für einfach (Rohmund und Campbell, 1997b), zweifach (Rohmund und Campbell, 1995) und dreifach (Rohmund und Campbell, 1997a) geladene Projektile untersucht. Die Ergebnisse zeigen einen Wirkungsquerschnitt von der gleichen Größenordnung wie der geometrische Querschnitt von  $1.53 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$  und eine sehr geringe Abhängigkeit von der Relativgeschwindigkeit für die Reaktionen  $C_{60}^{q+} + C_{60}$  mit  $q = 1, 2, 3$ . Abbildung 5.2 zeigt den von Rohmund und Campbell (1997b) gemessenen Wirkungsquerschnitt für den resonanten Ladungstransfer im Stoßsystem  $C_{60}^+ + C_{60}$ . Mit zunehmendem Ladungszustand des Projektils steigt auch der Wirkungsquerschnitt leicht an. Der mittlere Wirkungsquerschnitt ist auch in guter Übereinstimmung mit dem modifizierten Bohr-Lindhard Modell (Borve und Hansen, 1993; Bransden und McDowell, 1992), in dem der Elektronentransfer durch

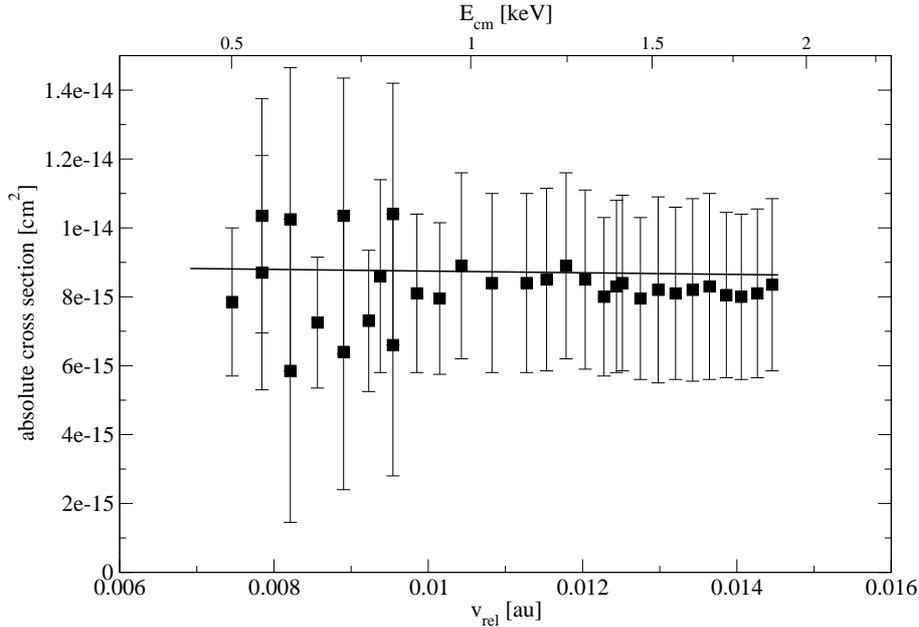


Abbildung 5.2: Absoluter Wirkungsquerschnitt für die Reaktion  $C_{60}^+ + C_{60} \rightarrow C_{60} + C_{60}^+$  als Funktion der Relativgeschwindigkeit: Quadrate - Daten von Rohmund und Campbell (1997b), durchgezogene Linie - Rechnungen von Presnyakov und Narits (Bräuning et al., 2003c).

die Coulomb-Barriere zwischen den beiden Endzuständen bestimmt wird.

Die Reaktion  $C_{60}^{2+} + C_{60}^+ \rightarrow C_{60}^+ + C_{60}^{2+}$  ist ebenfalls eine resonante Reaktion. Abbildung 5.3 zeigt den gemessenen Wirkungsquerschnitt (Bräuning *et al.*, 2003c) als Funktion der Relativgeschwindigkeit. Wie bei resonanten Systemen üblich, ist keine signifikante Abhängigkeit von der Relativgeschwindigkeit erkennbar. Der absolute Wert ist zudem in sehr guter Übereinstimmung mit den Daten von Rohmund und Campbell für die Reaktion  $C_{60}^+ + C_{60}$  (Rohmund und Campbell, 1997b) (Abbildung 5.2) bei deutlich niedrigeren Stoßgeschwindigkeiten. Offensichtlich spielen bei den hier betrachteten Geschwindigkeiten im Ion-Ion-Stoß die Bahneffekte aufgrund der Coulomb-Abstoßung keine wesentliche Rolle.

Der Wirkungsquerschnitt der Reaktion  $C_{60}^{2+} + C_{60}^+$  ist auch in der gleichen Größenordnung wie der von Shen *et al.* (1995) gemessene Wirkungsquerschnitt für den Zweielektronentransfer in  $C_{70}^{3+} + C_{60}$  Stößen von  $(6.3 \pm 1.8) \times 10^{-15} \text{ cm}^2$  bei 45.2 keV Schwerpunktsenergie (entsprechend 0.068 au Relativgeschwindigkeit). Um diesen Zweielektroneneinfang zu beschreiben, betrachten Shen *et al.* den Prozess als einen Zwei-Stufen-Prozess. Im ersten Schritt wird zunächst ein Elektron transferiert. Der Wirkungsquerschnitt hierfür wurde ebenfalls von Shen *et al.* zu  $(2.1 \pm 0.6) \times 10^{-14} \text{ cm}^2$  bestimmt. Die zweite Stufe entspricht dann einem Stoß zwischen einem  $C_{70}^{2+}$  und einem  $C_{60}^+$  Ion. Abgesehen von der Verwendung eines  $C_{70}$  Fulleren entspricht dies der im Giessener Ion-Ion-Stoßexperiment betrachteten Reaktion  $C_{60}^{2+} + C_{60}^+ \rightarrow C_{60}^+ + C_{60}^{2+}$ . Zur Beschreibung der zweiten Stufe betrachten Shen *et al.* statt der Elektronen die positiven Löcher unter der Annahme, daß diese sich frei

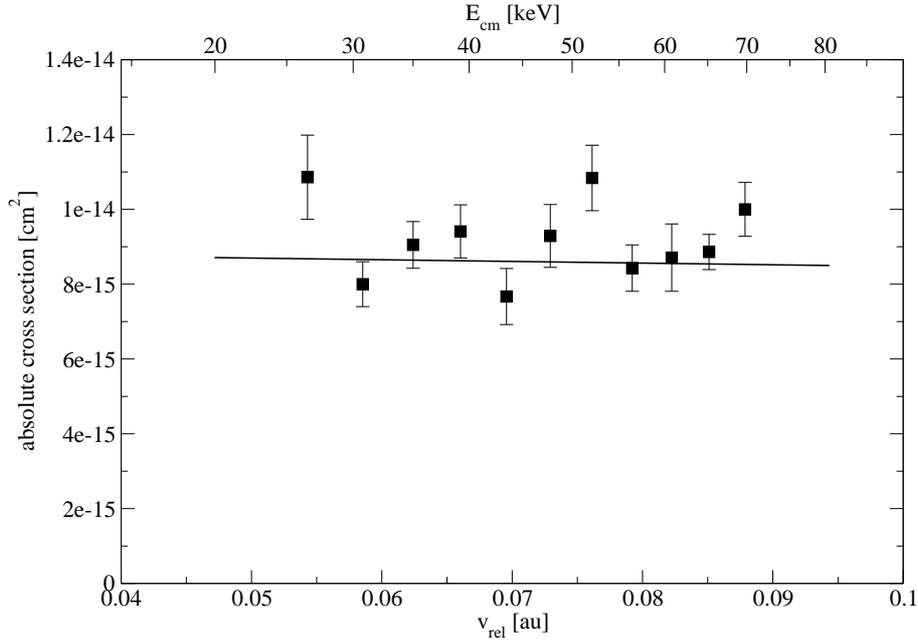


Abbildung 5.3: Absoluter Wirkungsquerschnitt für die Reaktion  $C_{60}^{2+} + C_{60}^+ \rightarrow C_{60}^+ + C_{60}^{2+}$  als Funktion der Relativgeschwindigkeit (Bräuning et al., 2003c). Durchgezogene Linie: Rechnungen von Presnyakov und Narits.

über die Oberfläche des Fullerenes bewegen können. Eine derartige Betrachtung der positiven Lochteilchen anstatt der realen Elektronen ist in der Theorie von Vielteilchensystemen ein weit verbreitetes Hilfsmittel, z.B. in der Theorie atomarer Spektren komplexer Atome (Condon und Shortley, 1951) oder in der Festkörperphysik (Kittel, 1995; Mott und Jones, 1936). Die somit durchgeführte Reduktion eines Vielteilchensystems auf ein System mit einigen wenigen Teilchen führt zu einer signifikanten Vereinfachung der Rechnungen, insbesondere im Hinblick auf die Permutationseigenschaften von Vielteilchensystemen. Unter diesen Voraussetzungen kann nun der zu betrachtende zweite Schritt im Ladungstransfer in zwei Stoßparameterbereiche unterteilt werden. Bei großen Stoßparametern bewirkt die gegenseitige Abstoßung der positiven Löcher zusammen mit ihrer Beweglichkeit, daß die Löcher sich auf die einander abgewandten Seiten der Fullerene bewegen wie in Abbildung 5.4a dargestellt. In diesem Fall findet kein weiterer Elektronentransfer statt. Bei kleinen Stoßparametern hingegen ist die in Abbildung 5.4b dargestellte Anordnung der positiven Löcher stabil. Hier sind die Löcher entlang einer Achse angeordnet, wobei sich ein Loch des zweifach geladenen Fullerenes auf der dem anderen Fulleren zugewandten Seite befindet. Die Stabilität dieser Anordnung ergibt sich aus der hohen Polarisierbarkeit der Fullerene. Bei kleinen Stoßparametern kommt es zu einer Polarisierung des einfach geladenen Fullerenes. Mit dessen positiver Ladung auf der abgewandten Seite bewirkt dies eine Anziehung eines der Löcher des zweifach geladenen Fullerenes. Aufgrund der Anordnung eines Loches zwischen den beiden Fullerenen ist nun ein Ladungstransfer leicht möglich.

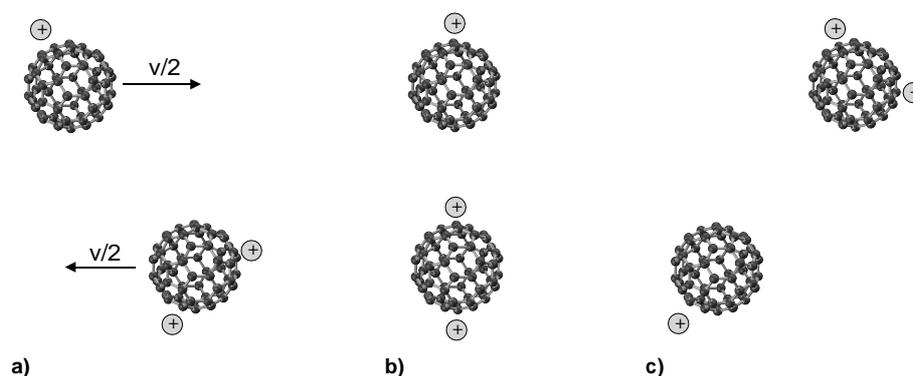


Abbildung 5.4: Modell der Anordnung der positiven Ladungsträger im Stoß  $C_{60}^{2+} + C_{60}^+$  nach Shen *et al.* (1995). Bei großen Abständen dominiert die Coulomb-Abstoßung der Ladungen (Bild a) und c), bei kleinen Abständen die Polarisierbarkeit des Fullerenes (Bild b)).

Eine einfache Abschätzung von Shen *et al.* der Größenverhältnisse dieser Anziehung durch die Polarisierung des Fullerenes und die Coulomb-Abstoßung der positiven Ladungen (ohne Ladungsabschirmung (Scheier und Märk, 1994)) führt zu einer kritischen Distanz  $R_{c2}$  von etwa 7 au gemessen von Oberfläche zu Oberfläche der Fullerene. Bei diesem Abstand ist die klassische Overbarrier-Bedingung für den Transfer des ersten Elektrons bereits erfüllt. Der Wirkungsquerschnitt für den Zweielektronentransfer wird also alleine durch den Wirkungsquerschnitt für den Transfer eines Elektrons im intermediären  $C_{70}^{2+} + C_{60}^+$  Zustand bestimmt und ergibt sich geometrisch zu

$$\sigma_{c2} = \frac{1}{2}\pi \left[ (2a + R_{c2})^2 - (2a)^2 \right] \quad (5.1)$$

Mit einem Fulleren-Radius von  $a = 6.7$  au ergibt sich somit ein Wirkungsquerschnitt von  $\sigma_{c2} = 10^{-14}$  cm<sup>2</sup>. Dieser Wert stimmt sehr gut mit dem gemessenen Wirkungsquerschnitt für  $C_{60}^{2+} + C_{60}^+$  überein.

Unter Anwendung dieses Modells frei beweglicher Löcher entwickelten Presnyakov *et al.* (persönliche Mitteilung; Bräuning *et al.*, 2003c) eine quantenmechanische Behandlung dieses Stoßsystems. Dabei ist die Frage nach der Symmetriegruppe eines Stoßes zwischen zwei Fullerenen von Bedeutung. Ein isoliertes C<sub>60</sub> Molekül, unabhängig ob neutral oder geladen, besitzt eine ikosaedrische Symmetrie (Ludwig und Falter, 1988; Landau und Lifshitz, 1995). Im Gegensatz hierzu kann die Symmetrie zweier Fullerene in einem langsamen Stoß nicht höher als zylindrisch (uniaxial-isotrop) sein. Dies ist die gleiche Symmetrie wie z.B. in den klassischen Ion-Atom-Stößen und das obige Modell entspricht dieser niedrigeren Symmetrie. Damit können die bereits etablierten Methoden für Ion-Atom-Stöße (Janev *et al.*, 1986) auch auf dieses Stoßsystem mit seinen sehr komplexen Stoßpartnern angewandt werden.

Im folgenden wird der Elektronentransfer somit betrachtet als der Transfer eines positiven Lochteilchens über bzw. durch (Tunneln) die statische Potentialbarriere zwischen zwei

isolierten Kugeln mit unendlich hoher Leitfähigkeit. Ferner wird die Fragmentation von Fullerenen vernachlässigt. Wie weiter unten gezeigt wird, ist dies bei den hier betrachteten geringen Relativgeschwindigkeiten gerechtfertigt. Es werden also genaugenommen nur periphere Stöße betrachtet, die auch den Hauptbeitrag zum Wirkungsquerschnitt liefern.

Das Problem der Form der Potentialbarriere zwischen zwei leitenden Kugeln ist für viele Anwendungen von Bedeutung. Eine kürzlich gefundene Lösung besteht in einer relativ komplizierten unendlichen Reihe (Zettergren *et al.*, 2002). Entsprechend dem obigen Modell ist allerdings nur die Form der Barriere nahe der Achse zwischen den Zentren der beiden Fullerene von Bedeutung. In diesem Fall können einfache, analytische Modelle (Landau und Lifshitz, 1992) basierend auf identischen Kugeln mit sehr großen Radien im Vergleich zum Abstand verwendet werden. In beiden Fällen erhält man eine symmetrische Potentialbarriere für den resonanten Elektronentransfer in symmetrischen Stoßsystemen. Ferner ergeben beide Methoden, unendliche Reihe (Zettergren *et al.*, 2002) und analytische Modelle (Landau und Lifshitz, 1992), im für den Transfer relevanten Bereich identische Ausdrücke.

Nahe der Achse zwischen den Zentren beider Fullerene reduziert sich die Form der Potentialbarriere auf eine Dimension. Der Ladungstransfer wird somit durch die ein-dimensionale Schrödingergleichung

$$\left\{ \frac{d^2}{dx^2} + \frac{2m_e}{\hbar^2} (E(R) - U(R|x)) \right\} \psi(R|x) = 0 \quad (5.2)$$

beschrieben. Hierbei ist  $\hbar$  das Plancksche Wirkungsquantum,  $m_e$  die Elektronenmasse und  $x$  die Koordinate des Elektrons auf der Achse. Die Bindungsenergie  $E(R)$  beinhaltet die statische Stark-Verschiebung und ist eine Funktion des Abstandes  $R$  zwischen den Zentren beider Fullerene. Entsprechend der Dynamik des Stoßes ist der Abstand eine Funktion der Zeit und des Stoßparameters:  $R = R(b, t)$ . Das Potential  $U(R|x)$  der Barriere am Ort  $x$  des Elektrons ist ebenfalls eine Funktion des Abstandes zwischen den Fullerenen. Es hat die Form (Presnyakov, private Mitteilung):

$$\begin{aligned} U(R|x) = & -\frac{4qe^2R}{R^2 - 4x^2} \\ & + ae^2 \left( -\frac{0.5}{\frac{1}{4}(R-2x)^2 - a^2} + \frac{2}{(R-2x)^2} + \frac{2}{(R+2x)^2} - \frac{0.5}{\frac{1}{4}(R+2x)^2 - a^2} \right) \\ & + 2qae^2 \left( -\frac{1}{R(R+2x)} - \frac{1}{R(R-2x)} + \frac{1}{R^2 - 2a^2 - 2Rx} + \frac{1}{R^2 - 2a^2 + 2Rx} \right) \end{aligned} \quad (5.3)$$

wobei  $a$  der Fullerenradius und  $q$  die Ladung bedeuten. Für die Reaktion  $C_{60}^+ + C_{60}$  gilt  $q = 1$  und für  $C_{60}^{2+} + C_{60}^+$  gilt  $q = 2$ . Im Falle  $E - U > 0$  ergibt sich der klassische Overbarrier-Übergang. Allerdings sind auch für  $E - U < 0$  Übergänge durch Tunneln möglich.

An der Stelle, wo die Achse zwischen den Zentren die Oberfläche der Kugeln durchstößt, treten Coulomb-ähnliche Pole auf (Zettergren *et al.*, 2002; Landau und Lifshitz, 1992).

Dies führt zu zusätzlichen Eigenzuständen ohne physikalischen Sinn in Gleichung 5.2. Diese Zustände manifestieren sich in sogenannten *phase-shift* Sprüngen, die aus dem Levinson Theorem folgen (siehe z.B. Presnyakov (1991, 1995)). Dieser nicht-physikalische Effekt kann dadurch eliminiert werden, daß das Potential nahe der Kugeloberflächen beschränkt wird. Man erhält somit zwei identische Potentialtöpfe endlicher Tiefe, welche durch die Barriere getrennt sind. Die Tiefe wird derart gewählt, daß die nicht-physikalischen Eigenzustände gerade verschwinden. Im Falle des hier betrachteten Stoßes zweier Fullerene liegt sie bei  $U_0=15.2$  eV relativ zum Einelektronen-Kontinuum. Dieser Wert ergibt sich aus einer numerischen Lösung (Presnyakov, 1991, 1995) der unten diskutierten Phasengleichungen 5.13 und 5.14. Es erweist sich jedoch als günstiger, die Energiewerte in Gleichung 5.2 relativ zum Minimum des Potentialtopfes zu nehmen. Mit

$$k^2(R) = \frac{2m_e}{\hbar} (E(R) + U_0) \quad (5.4)$$

und

$$2V(R|x) = \frac{2m_e}{\hbar} (U(R|x) + U_0) \quad (5.5)$$

kann Gleichung 5.2 nach folgender Substitution

$$\frac{2m_e}{\hbar^2} (E(R) - U(R|x)) = k^2(R) - 2V(R|x) \quad (5.6)$$

gelöst werden. Sowohl  $k^2$  als auch  $2V$  sind positiv und ihre Differenz ist positiv für Overbarrier-Übergänge und negativ für Übergänge durch die Barriere. Für eine symmetrische Barriere erhält man folgende Bestimmungsgleichungen für die geraden ( $\psi_e$ ) und ungeraden ( $\psi_o$ ) Lösungen:

$$\psi_o(x) = k^{-1/2} A(x) \sin[kx + \delta(x)] \quad (5.7)$$

$$\frac{d\psi_o(x)}{dx} = k^{1/2} A(x) \cos[kx + \delta(x)] \quad (5.8)$$

$$\psi_e(x) = k^{-1/2} B(x) \cos[kx + \gamma(x)] \quad (5.9)$$

$$\frac{d\psi_e(x)}{dx} = -k^{1/2} B(x) \sin[kx + \gamma(x)] \quad (5.10)$$

Die Amplituden  $A$  und  $B$  sind gerade Funktionen von  $x$  und die Phasen  $\delta$  und  $\gamma$  sind ungerade Funktionen. Im jedem symmetrischen Intervall  $-x_0 \leq x \leq x_0$  können die Transmissionskoeffizienten  $T(x_0)$  und Reflektionskoeffizienten  $Q(x_0)$  allein durch die Phasen ausgedrückt werden:

$$T(x_0) = \{\exp[i\delta(x_0) + i\gamma(x_0)]\} \cos[\delta(x_0) - \gamma(x_0)] \quad (5.11)$$

$$Q(x_0) = \{-i(\exp[i\delta(x_0) + i\gamma(x_0)])\} \sin[\delta(x_0) - \gamma(x_0)] \quad (5.12)$$

Für das hier betrachtete Stoßsystem gilt  $x_0 = R/2 - a$ . Die zwei unabhängigen Phasengleichungen haben dabei die Form:

$$\frac{d\delta}{dx} = -\frac{2V}{k} \sin^2(kx + \delta), \quad \delta(0) = 0 \quad (5.13)$$

$$\frac{d\gamma}{dx} = -\frac{2V}{k} \cos^2(kx + \gamma), \quad \gamma(0) = 0 \quad (5.14)$$

wobei  $k = k(R)$  die Stark-Verschiebung beinhaltet und  $V = V(R|x)$  gilt. Die Gleichungen 5.13 und 5.14 werden numerisch gelöst. Dabei zeigt es sich, daß Übergänge durch die Barriere nicht vernachlässigt werden können und den totalen Wirkungsquerschnitt um 10% anheben.

Die Integration über die Zeit  $t$  kann mit Hilfe des sogenannten Decay-Modells (Jannev *et al.*, 1986) erfolgen. In diesem Modell ergibt sich die Transferwahrscheinlichkeit als Funktion des Stoßparameters zu:

$$P(b) = 1 - \exp \left\{ - \int_{-\infty}^{\infty} dt \left| T \left( \frac{R(b,t)}{2} - a \right) \right|^2 \right\} \quad (5.15)$$

Für das Stoßsystem  $C_{60}^+ + C_{60}$  kann eine geradlinige Trajektorie verwendet werden, während für das Stoßsystem  $C_{60}^{2+} + C_{60}^+$  aufgrund der ständigen Coulomb-Abstoßung im Prinzip eine hyperbolische Coulomb-Trajektorie verwendet werden sollte. Bei den hier betrachteten peripheren Stößen jedoch ist der Unterschied zwischen einer geradlinigen und einer hyperbolischen Trajektorie vernachlässigbar gering.

Dem Stoßparameter  $b$  kann eine Drehimpulsquantenzahl  $l$  mittels des Korrespondenzprinzips für große  $l$  durch

$$\mu v_{rel} b = \hbar l \quad (5.16)$$

zugeordnet werden. Hierbei ist  $\mu$  die reduzierte Masse der beiden Stoßpartner und  $v_{rel}$  die Relativgeschwindigkeit. Die Transferwahrscheinlichkeit (5.15) entspricht einem Streumatrixelement für den Elektronentransfer bei einem gegebenen Drehimpuls  $l$ :

$$P(b) = |S_{if}(l)|^2 \quad (5.17)$$

Selbst bei sehr geringen Geschwindigkeiten im Bereich von 0.01 au liegen dabei die charakteristischen Werte für die Drehimpulsquantenzahl bei  $l \approx 10^4$ . Der totale Wirkungsquerschnitt ergibt sich dann durch Summation über alle Drehimpulse zu

$$\sigma = \pi a_0^2 \left( \frac{m_e v_e}{\mu v_{rel}} \right)^2 \sum_l (2l + 1) |S_{if}(l)|^2 \quad (5.18)$$

wobei  $v_e$  die klassische Elektronengeschwindigkeit ist. Zur Betrachtung winkeldifferentieller Wirkungsquerschnitte ist diese Form geeigneter als die semi-klassische Form.

Die mit diesem hier vorgestellten Formalismus berechneten Wirkungsquerschnitte sind ebenfalls in den Abbildungen 5.2 und 5.3 dargestellt. Dabei wurde für  $C_{60}$ ,  $C_{60}^+$  und  $C_{60}^{2+}$

Peakmitte		$\sigma$	Fläche	Anteil
Kanäle	# C-Atome	Kanäle		
77.7	60.0 (def)	15.0	702.2	90.1%
109.7	58.0	17.9	41.2	5.3%
138.6	56.4	17.9	35.6	4.6%

Tabelle 5.1: Parameter der in Abbildung 5.5 gezeigten Gauss-Fits.

der gleiche Fullerenradius von  $a = 8.2$  au (Cederquist *et al.*, 2000) und für das Ionisationspotential von  $C_{60}$  der Wert 7.2 eV (Hertel *et al.*, 1992) verwendet. Durch die Abschirmung der äußeren positiven Ladungen in dem hier verwendeten Modell (siehe Abbildung 5.4) reduziert sich der Ladungstransfer zwischen zwei Fulleren-Ionen auf den Ladungstransfer zwischen einem neutralen und einem einfach geladenen Fulleren. Die berechneten Wirkungsquerschnitte stimmen sehr gut mit den gemessenen überein, sowohl für den Stoß mit einem neutralen Fulleren als auch für den Stoß zwischen zwei Fulleren-Ionen. Rechnungen für das Stoßsystem  $C_{60}^{2+} + C_{60}^+$  ohne diese Abschirmung führen zu einem um den Faktor 2 kleineren Wirkungsquerschnitt. Dies bestätigt, daß das hier vorgestellte Modell eine realistische Beschreibung bei kleinen Relativgeschwindigkeiten liefert. Dies ist nicht der Fall bei Stößen mit atomaren Ionen oder kleinen Molekülen, wo signifikante Unterschiede zwischen Ion-Atom- und Ion-Ion-Stößen beobachtet werden. Die Möglichkeit einer Beschreibung der Fullerene als unendlich leitende Kugeln zeigt damit auch deutlich ihre Stelle als Verbindungsglied zwischen Atomen und kleinen Molekülen auf der einen Seite und Festkörpern auf der anderen Seite.

Wie oben angedeutet, wurde bei der theoretischen Behandlung des Stoßes zweier Fulleren-Ionen die Fragmentation vernachlässigt. Die *crossed-beams* Kinematik in Kombination mit einem ortsempfindlichen Detektor im Giessener Ion-Ion-Experiment (siehe auch Kapitel 2.1) erlaubt es, neben dem  $C_{60}^+$  Produktion der Reaktion  $C_{60}^{2+} + C_{60}^+ \rightarrow C_{60}^+ + C_{60}^{2+}$  gleichzeitig auch die möglichen Produktionen  $C_{58}^+$  bis  $C_{52}^+$  zu messen (Bräuning *et al.*, 2004b). Derartige Fragmente entstehen durch Abdampfen von neutralen  $C_2$  Molekülen. Abbildung 5.5 zeigt die Ortsverteilung der einfach geladenen Produktionen. Eventuelle Fragmente sind rechts von dem dominanten  $C_{60}^+$  zu erwarten. In der Tat erkennt man in der ein-dimensionalen Projektion auch eine signifikante Anzahl von Ereignissen an dieser Stelle. Aufgrund der offensichtlich großen Strahlbreite ist nicht zu erwarten, daß für die Fragmente einzelne, wohldefinierte Peaks zu sehen sind. Ebenfalls in Abbildung 5.5 gezeigt ist ein Fit von drei Gauss-Peaks an die experimentellen Daten. Um zu einem vernünftigen Fit zu kommen, wurde dabei die Breite der Peaks entsprechend dem Hauptpeak auf  $12 \leq \sigma \leq 18$  Kanäle beschränkt. Da die Fragmente das gleiche Strahlprofil zeigen sollten wie die  $C_{60}^+$  Produktionen ist dies gerechtfertigt. Die Fitparameter sind in Tabelle 5.1 angegeben. Dabei wurde auch die Strahlposition anhand von ionenoptischen Rechnungen für den Experimentaufbau umgerechnet in die Anzahl der Kohlenstoffatome im Fragment. Diese stimmen mit den Erwartungen überein.

Trotz der in sich relativ konsistenten Fits sind diese durchaus mit einer gewissen Skep-

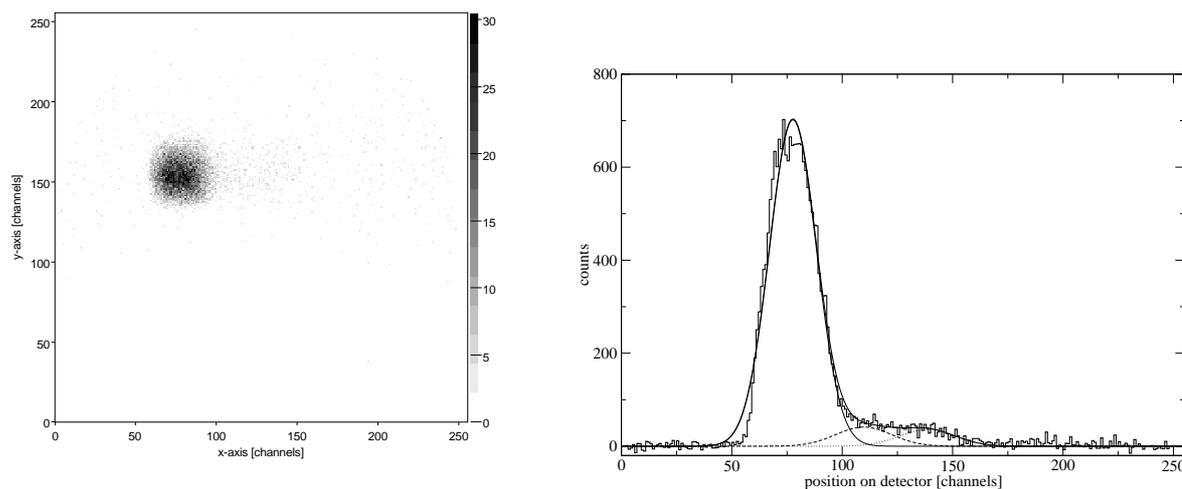


Abbildung 5.5: Ortsverteilung der  $C_{60}^+$  Produktionen der Reaktion  $C_{60}^{2+} + C_{60}^+ \rightarrow C_{60}^+ + C_{60}^{2+}$  auf dem Detektor. Links: Zwei-dimensionale Ortsverteilung. Rechts: Ein-dimensionale Ortsverteilung entlang der x-Achse. Die Linien sind Gauss-Fits an die experimentelle Kurve.

sis zu betrachten. So wurde implizit davon ausgegangen, daß die Events rechts vom  $C_{60}^+$  Peak aus einer Fragmentation kommen. Dies ist nicht notwendigerweise der Fall. Es kann sich durchaus auch um einen ionenoptischen Effekt handeln, d.h. das Strahlprofil an sich hätte einen solchen Ausläufer. In Stößen atomarer Ionen ist es möglich, das Strahlprofil aus der Wechselwirkung der Ionen mit dem Restgas zu erhalten (Krüdenner *et al.*, 1997). Restgasstöße werden durch Stöße mit vergleichsweise kleinem Streuwinkel dominiert, da die Coulomb-Abstoßung aufgrund des neutralen Stoßpartners stark reduziert ist. Abbildung 5.6(rechts) zeigt exemplarisch die Ortsverteilung von  $Li^{2+}$  Produktionen, die durch Elektroneneinfang in Stößen von  $Li^{3+}$  mit dem Restgas in der Wechselwirkungszone entstehen. Der sichtbare Ausläufer nach rechts entsteht durch Elektroneneinfang in den Analysatoren und damit einer stärkeren Ablenkung. Die koinzidente Ortsverteilung zeigt diesen Ausläufer nicht. Abbildung 5.6(links) zeigt die entsprechende Ortsverteilung der  $C_{60}^+$  Produktionen. Hier ist keinerlei Strahlfleck zu erkennen. Die Ortsverteilung zeigt nur den normalen Untergrund auf dem Detektor. Der Grund hierfür liegt wahrscheinlich darin, daß der Wirkungsquerschnitt für den Elektroneneinfang vom Restgas verschwindend gering

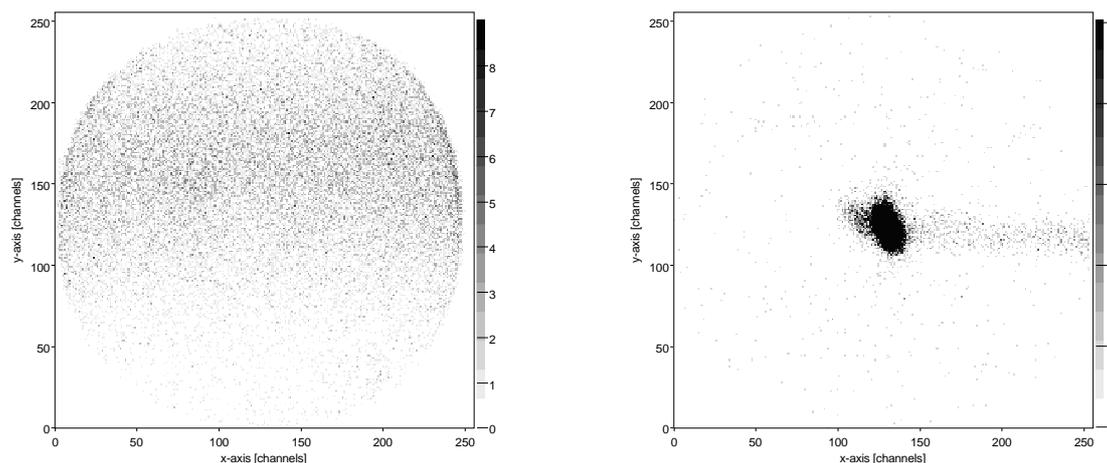


Abbildung 5.6: Ortsverteilung der  $C_{60}^+$  Produktionen aus der Wechselwirkung mit dem Restgas (links) im Vergleich zur Ortsverteilung von  $Li^{2+}$  Produktionen aus der Wechselwirkung von  $Li^{3+}$  mit dem Restgas.

ist. Dieser Elektroneneinfang ist ein nicht-resonanter Prozess und der Wirkungsquerschnitt verschwindet sowohl bei sehr hohen als auch bei sehr niedrigen Relativgeschwindigkeiten. Aufgrund der großen Masse der Fullerene sind deren Geschwindigkeiten bei gleicher Energie um eine Größenordnung niedriger als z.B. die von Li-Ionen. Dies kann zu einem sehr niedrigen Einfangquerschnitt führen. Für die oben diskutierte Möglichkeit der Fragmentation läßt sich zur Zeit somit ein ionenoptischer Effekt nicht ausschließen.

Weiterhin ist der abrupte Abbruch der Fragmentverteilung, sofern diese real sein sollte, bei  $C_{56}^+$  unerwartet. Wie weiter unten im Abschnitt 5.3 gezeigt wird, nimmt zwar die Wahrscheinlichkeit für eine Fragmentsorte ab, je mehr  $C_2$ -Moleküle entfernt werden, doch lassen sich durchaus auch noch Fragmente bis  $C_{50}^+$  und niedriger beobachten. Da die Detektorfläche ausreicht auch noch  $C_{54}^+$  und  $C_{52}^+$  Produktionen nachzuweisen, könnte man erwarten, immerhin noch Andeutungen von  $C_{54}^+$  zu sehen. Dies ist nicht der Fall.

Trotz dieser Kritikpunkte kann man jedoch die Aussage treffen, daß die Vernachlässigung von Fragmentation in der Theorie gerechtfertigt ist. Die hier diskutierte Messung liefert zumindest eine Obergrenze für den möglichen Anteil an Fragmentation. Damit kann man sagen, daß mindestens 90% aller  $C_{60}^{2+} + C_{60}^+ \rightarrow C_{60}^+ + C_{60}^{2+}$  Reaktionen nicht zur Fragmenta-

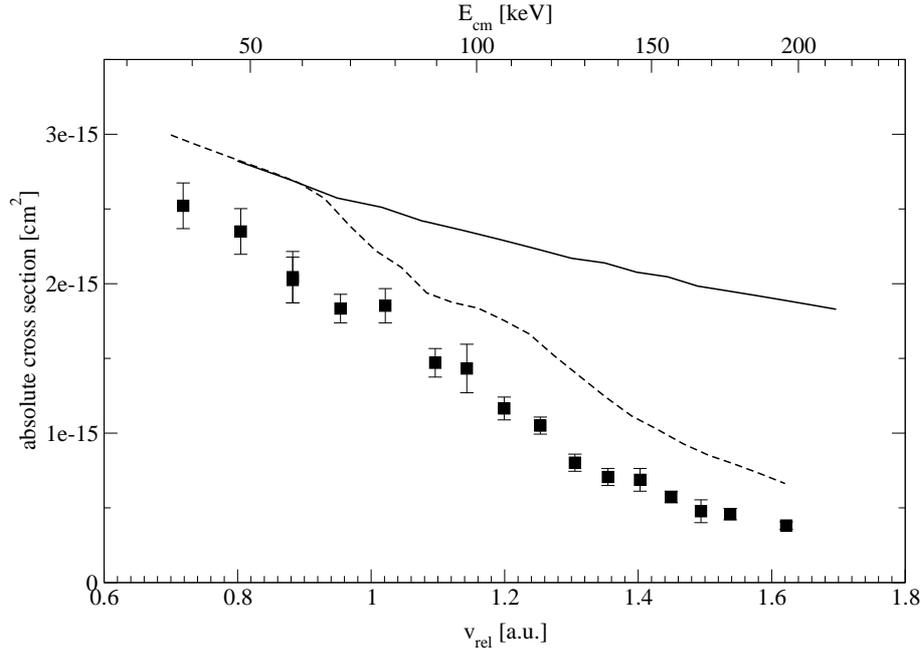


Abbildung 5.7: Absoluter Wirkungsquerschnitt für die Reaktion  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{C}_{60}^+ \rightarrow {}^3\text{He}^+ + \text{C}_{60}^{2+}$  als Funktion der Relativgeschwindigkeit (Bräuning et al., 2004c). Der systematische Fehler beträgt 25%. Durchgezogene Linie - Rechnungen von Presnyakov und Narits für statische Barriere, gestrichelte Linie - Rechnungen von Presnyakov und Narits für geschwindigkeitsabhängige Barriere.

tion führen. Eine kleine Einschränkung gibt es aber auch hier. Die Fragmentation in viele kleine Bruchstücke konnte nicht untersucht werden. Eine derartige Fragmentation erhält man aber auch nur bei harten Stößen mit sehr kleinem Stoßparameter und diese sind bei den hier betrachteten Relativgeschwindigkeiten vernachlässigbar.

## 5.2 Stöße mit $\text{He}^{2+}$

Stöße zwischen Fullerenen und  $\text{He}^{2+}$  Ionen sind nicht-resonante Stöße. Im Gegensatz zu den oben behandelten Stößen zwischen zwei Fullerenen ist also eine starke Abhängigkeit des Wirkungsquerschnittes von der Relativgeschwindigkeit zu erwarten. Auch der Absolutwert des Wirkungsquerschnittes ist bei nicht-resonanten System in der Regel geringer. Beides zeigt sich deutlich bei der Reaktion  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{C}_{60}^+ \rightarrow {}^3\text{He}^+ + \text{C}_{60}^{2+}$ , deren Wirkungsquerschnitt als Funktion der Relativgeschwindigkeit in Abbildung 5.7 dargestellt ist (Bräuning et al., 2004c,b). Die Verwendung des Isotops  ${}^3\text{He}$  hat dabei rein experimentelle Gründe<sup>1</sup>. Ebenfalls gezeigt in Abbildung 5.7 sind Rechnungen von Presnyakov und

<sup>1</sup> ${}^{14}\text{He}^{2+}$  hat das gleiche Verhältnis von Masse zu Ladung wie das ebenfalls in der EZR-Quelle in signifikanter Menge erzeugte  $\text{H}_2^+$ . Beide Ionensorten können im Experiment somit nicht getrennt werden.

Narits (private Mitteilung). Im Prinzip können die Wirkungsquerschnitte für die Stöße mit He<sup>2+</sup> mit dem gleichen Formalismus wie oben diskutiert berechnet werden. Lediglich die Potentialbarriere  $U(R|x)$  hat eine andere Form entsprechend dem Stoßpartner He<sup>2+</sup> statt einem ausgedehnten Fulleren gleicher Ladung. Das Potential dieser Barriere ist nur vom Abstand  $R$  zwischen den Zentren der Stoßpartnern und der Elektronenkoordinate  $x$  abhängig. Die Barriere ist nicht abhängig von der Relativgeschwindigkeit. Die mit dieser statischen Barriere berechneten Wirkungsquerschnitte sind als durchgezogene Linie in Abbildung 5.7 dargestellt. Die Übereinstimmung mit den experimentellen Werten ist sehr schlecht. Nicht nur wird der Absolutwert überschätzt, auch der steile Abfall des Wirkungsquerschnittes mit zunehmender Relativgeschwindigkeit wird von der Theorie nicht wiedergegeben. Es zeigt sich, daß dieser Ansatz nur adäquat ist, wenn die Relativgeschwindigkeit deutlich kleiner ist, als die klassische Geschwindigkeit des aktiven Elektrons:  $v_{rel}/v_e \ll 1$ . Presnyakov *et al.* (private Mitteilung) entwickelten einen anderen Ansatz, der ebenfalls die Form einer Potentialbarriere besitzt, die aber nun stark von der Relativgeschwindigkeit abhängt. Allerdings wird das S-Matrixelement nun durch den Reflektionskoeffizienten bestimmt,  $S_l(v_{rel}) = Q(b, v_{rel})$ , wobei  $l$  und  $b$  wieder durch Gleichung 5.16 miteinander verknüpft sind. Ferner verschwindet diese Barriere für sehr große Geschwindigkeiten. Wie Abbildung 5.7 zeigt, sind die mit dieser geschwindigkeitsabhängigen Barriere berechneten Wirkungsquerschnitte in deutlich besserer Übereinstimmung mit den experimentellen Werten. Der steile Anfall mit der Geschwindigkeit wird korrekt wiedergegeben. Zwar wird der Absolutwert immer noch leicht überschätzt, aber wenn man den systematischen Fehler der Messung von 25% berücksichtigt, liegt die Rechnung gerade noch im Fehlerbereich des Experiments. Auch zeigt sich deutlich, daß beide theoretischen Modelle bei kleinen Geschwindigkeiten die gleichen Wirkungsquerschnitte ergeben. Dies zeigt die Möglichkeit, beide Modelle in Zukunft zu vereinen (Presnyakov, private Mitteilung).

Ein weiterer nicht-resonanter Prozess ist die Transfer-Ionisation in der Reaktion  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{C}_{60}^{2+} \rightarrow {}^3\text{He}^+ + \text{C}_{60}^{4+} + e^-$ , deren Wirkungsquerschnitt in Abbildung 5.8 dargestellt ist. Experimentell wurde nur der Endzustand beider Produktionen gemessen. Über das Elektron und damit über den möglichen Verlauf des Prozesses kann somit keine Aussage gemacht werden. Einelektronentransfer in das He<sup>2+</sup> Ion mit gleichzeitiger Ionisation eines Elektrons des Fulleren-Ions ist nur eine Möglichkeit. Eine andere Möglichkeit ist der Zweielektroneneinfang in autoionisierende Zustände vom Helium, welche zur Emission eines Elektrons durch Autoionisation führen. Erstaunlicherweise ist der Absolutwert des Wirkungsquerschnitts jedoch in der gleichen Größenordnung wie für den Einelektronentransfer in der Reaktion  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{C}_{60}^+ \rightarrow {}^3\text{He}^+ + \text{C}_{60}^{2+}$ . Weiterhin ist die Abhängigkeit von der Relativgeschwindigkeit deutlich flacher. So ist bei den kleinen Relativgeschwindigkeiten der Wirkungsquerschnitt für die Transfer-Ionisation etwa einen Faktor 2 kleiner als für den reinen Elektronentransfer, bei größeren Relativgeschwindigkeiten jedoch ist er deutlich größer. Leider gibt es zur Zeit noch keine theoretischen Rechnungen zu diesem System.

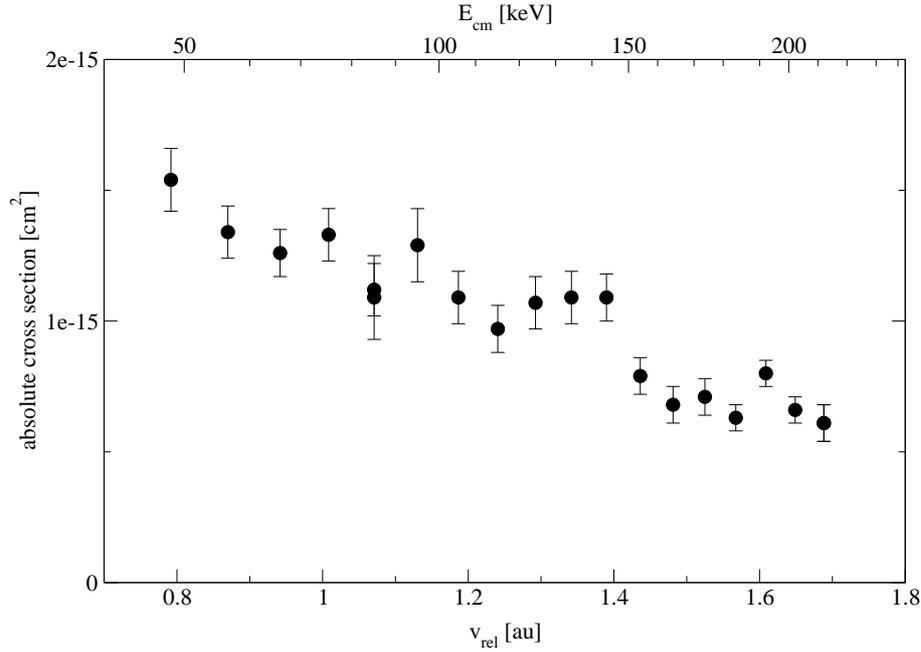


Abbildung 5.8: Absoluter Wirkungsquerschnitt für die Reaktion  ${}^3\text{He}^{2+} + \text{C}_{60}^+ \rightarrow {}^3\text{He}^+ + \text{C}_{60}^+ + e^-$  als Funktion der Relativgeschwindigkeit. Der systematische Fehler beträgt 25%.

### 5.3 Stöße hochgeladener Ionen mit neutralem $\text{C}_{60}$

Nach der Diskussion der weltweit ersten und einzigsten Experimente zu Ion-Ion-Stößen mit Fulleren-Ionen ist es lohnenswert zu Stößen hochgeladener atomarer Ionen mit neutralen Fullerenen zurückzukommen. In diesem Bereich gibt es bereits vielfältige und sehr detaillierte Untersuchungen. Die ersten Experimente wurden von Walch *et al.* (1994) mit 80 keV  $\text{Ar}^{8+}$  Ionen durchgeführt, wobei die Produktion mehrfach geladener Fullerene bis  $\text{C}_{60}^{6+}$  sowie die Fragmentation in kleinere Cluster beobachtet wurde. Weitere Experimente mit  $\text{Ar}^{8+}$  Ionen folgten (Selberg *et al.*, 1996; Bernard *et al.*, 1997) bis hin zur Bestimmung der Elektronenmultiplizität in diesen Stößen durch Martin *et al.* (1998). Fast alle diese Experimente wie auch viele andere sowohl mit neutralen als auch mit geladenen Fullerenen wurden jedoch im keV Energiebereich durchgeführt.

Die einzigen Experimente mit hochgeladenen Ionen im MeV/u Energiebereich wurden von LeBrun *et al.* (1994) und Cheng *et al.* (1996) am ATLAS Beschleuniger des Argonne National Laboratory durchgeführt. In Stößen von  ${}^{136}\text{Xe}^{35+}$  und  ${}^{136}\text{Xe}^{18+}$  bei Energien im Bereich 420–625 MeV (entsprechend 3.1–4.6 MeV/u) mit neutralem  $\text{C}_{60}$  wurden alle erzeugten positiv geladenen Fulleren-Ionen und Fragmente nachgewiesen. Das gemessene Flugzeitspektrum ist in Abbildung 5.9 dargestellt. Neben mehrfach geladenen Fulleren-Ionen und Fragmenten wie z.B.  $\text{C}_{58}^{2+}$ , die durch Abdampfen neutraler  $\text{C}_2$  Moleküle entstehen, sind vor allem auch viele kleine Cluster  $\text{C}_n^+$  mit  $n$  im Bereich 1 bis 19 zu erkennen, die nur bei hochenergetischen Stößen auftreten. Cheng *et al.* (1996) diskutieren diese Ergebnisse im

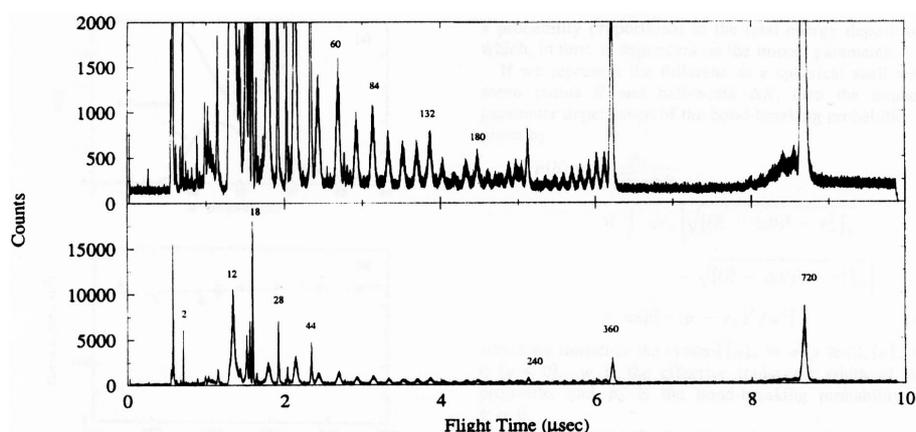


Abbildung 5.9: Flugzeitspektrum für positive Fragmente aus Stößen von 625 MeV  $^{136}\text{Xe}^{35+}$  Ionen mit  $\text{C}_{60}$  von LeBrun et al. (1994). Bei einigen Peaks ist das Masse-zu-Ladungs-Verhältnis angegeben.

Rahmen der Plasmon-Anregung für die schweren Fragmente und des Energieverlusts mit Parallelen zur Kernfragmentation für die leichten Fragmente. Dabei wird das  $\text{C}_{60}$  Molekül im Rahmen des *shellium* Modells (Wästberg und Wendin, 1994) beschrieben. In diesem Modell beschreibt man das  $\text{C}_{60}$  als einen positiv geladenen Kern von 60  $\text{C}^{4+}$  Ionen, deren Ladung und Masse über eine Kugelschale mit 0.355 nm Radius und 0.02 nm Dicke verteilt sind. Die Dicke spiegelt dabei den Radius der K-Schale wider. Die 180  $\sigma$  Elektronen mit ihrer stärkeren Bindung liegen nahe an der positiv geladenen Kugelschale, während die locker gebundenen  $\pi$  Elektronen sich von 0.2 nm Molekülradius bis hinaus zu 0.5 nm erstrecken.

Die Kombination des Schwerionensynchrotrons (SIS) mit dem Experimentierspeicherring (ESR) der Gesellschaft für Schwerionenforschung (GSI) ermöglicht es, diese bisher einzigen Experimente weiter auszudehnen zu noch höheren Ladungszuständen bis hin zu  $\text{U}^{92+}$  über einen weiten Energiebereich von ca. 12 MeV/u bis zu 1000 MeV/u. Mit der Accel-Decel-Technik (Prinz et al., 1997) ist es dabei auch möglich, höchste Ladungszustände wie z.B. wasserstoff-ähnliches Uran mit Strahlintensitäten im Bereich  $10^5 \text{ s}^{-1}$  bei derart niedrigen Energien zu erhalten, wo *stripping* in einer Folie allein nicht möglich wäre. Unter Verwendung des Magnetspektrometers am Experimentierplatz Cave A wurden so z.B. mehrere Experimente zum Vielelektroneneinfang in 46 MeV/u  $\text{Pb}^{81+}$  bzw.  $\text{U}^{91+}$  beim Durchgang durch dünne Kohlenstoff-Folien durchgeführt (Bräuning et al., 2001b,a, 2003a).

In einem ersten Test-Experiment zur Fragmentation von  $\text{C}_{60}$  bei Beschuss mit sehr hoch geladenen schweren Ionen wurde im Stoßsystem 20 MeV/u  $^{124}\text{Xe}^{53+} + \text{C}_{60}$  die Flugzeit der positiv geladenen Fulleren-Ionen und Fragmente in Koinzidenz mit dem Endladungszustand des Projektils gemessen. Abbildung 5.10 zeigt schematisch den experimentellen Aufbau. Hierbei ist anzumerken, daß aus der Flugzeit lediglich das Masse-zu-Ladungs-Verhältnis ( $m/q$ ) bestimmt werden kann. Es ist somit nicht möglich, z.B.  $\text{C}_{60}^{3+}$  von  $\text{C}_{20}^{+}$  zu

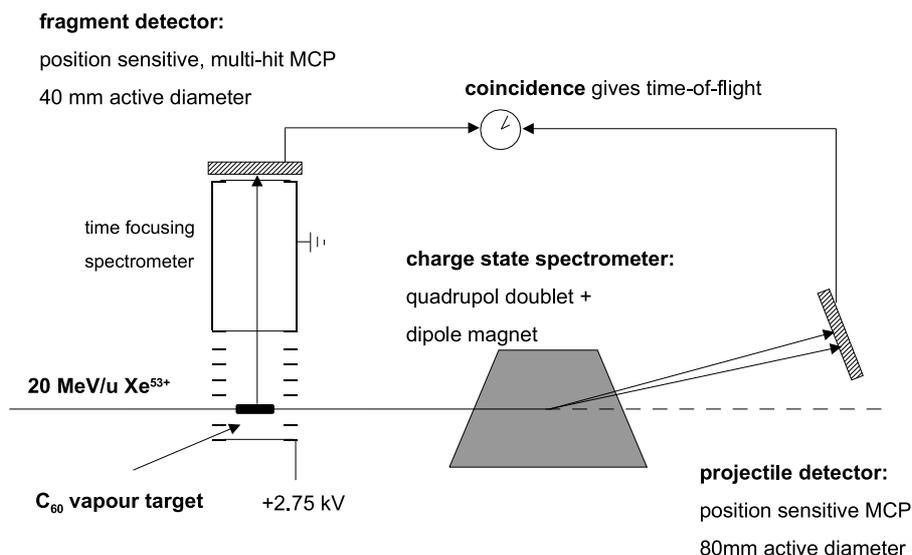


Abbildung 5.10: Experimenteller Aufbau am Experimentierplatz Cave A der GSI zur Untersuchung von Stößen von  $20 \text{ MeV/u Xe}^{53+}$  mit  $\text{C}_{60}$ .

unterscheiden.

Der Elektronentransfer im Ion-Atom-Stoß nimmt bei hohen Energien mit etwa  $v_{rel}^{-11}$  ab. Entsprechend ist zu erwarten, daß bei der hier betrachteten hohen Energie der Transfer nur eine untergeordnete Rolle spielt. Dies wird deutlich in Abbildung 5.11, welche den Ladungszustand aller Projektile zeigt, die zu einem geladenen Fragment oder Fulleren führten. Der Hauptbeitrag kommt von  $\text{Xe}^{53+}$  Ionen, d.h. Projektile mit der ursprünglichen Ladung. Dies bedeutet eine Ionisation mit eventueller Fragmentation des Fulleren. Im Gegensatz hierzu ist der Anteil der  $\text{Xe}^{52+}$  Projektile nach einem Ladungstransfer (rechter, kleiner Peak) vernachlässigbar.

Abbildung 5.12 zeigt die gemessene Verteilung der positiv geladenen Fullerene und Fragmente. Ein Vergleich mit Abbildung 5.9 zeigt deutlich die große Ähnlichkeit in der Fragmentverteilung. Beide Häufigkeitsverteilungen haben eine U-Form mit sehr vielen kleinen Fragmenten auf der einen Seite und sehr schweren Fragmenten auf der anderen Seite. Fragmente mittlerer Größe fehlen; an deren Stelle sind nur die mehrfach geladenen schweren Fulleren-Ionen zu sehen. Neben  $\text{C}_{60}^+$ ,  $\text{C}_{60}^{2+}$  und  $\text{C}_{60}^{3+}$  kann man auch die zwei- bzw. dreifach geladenen  $\text{C}_{58}^{q+}$ ,  $\text{C}_{56}^{q+}$ ,  $\text{C}_{54}^{q+}$ ,  $\text{C}_{52}^{q+}$ ,  $\text{C}_{50}^{q+}$  und sogar  $\text{C}_{48}^{q+}$  ( $q = 2, 3$ ) Fragmente sehen, die durch Abdampfen neutraler  $\text{C}_2$  Moleküle entstehen. Abbildung 5.13 zeigt die Fragmentverteilung für alle Prozesse, in denen genau zwei geladene Fragmente nachgewiesen wurden. Da die neutralen  $\text{C}_2$  Moleküle nicht nachgewiesen werden, sind die entsprechenden Peaks stark unterdrückt. Der sehr kleine noch vorhandene Anteil an  $\text{C}_{60}^+$  und  $\text{C}_{60}^{2+}$  kann auf zufällige Koinzidenzen zurückgeführt werden. Die Häufigkeit der schweren  $\text{C}_n^{q+}$  ( $n = 48 - 58$ ,  $q = 2, 3$ ) nimmt mit abnehmendem  $n$  ebenfalls ab (siehe Abbildung 5.14), entsprechend der höheren notwendigen Anregungsenergie. Die Bindungsenergie eines  $\text{C}_2$  Moleküls an ein  $\text{C}_{60}$  Fullere-

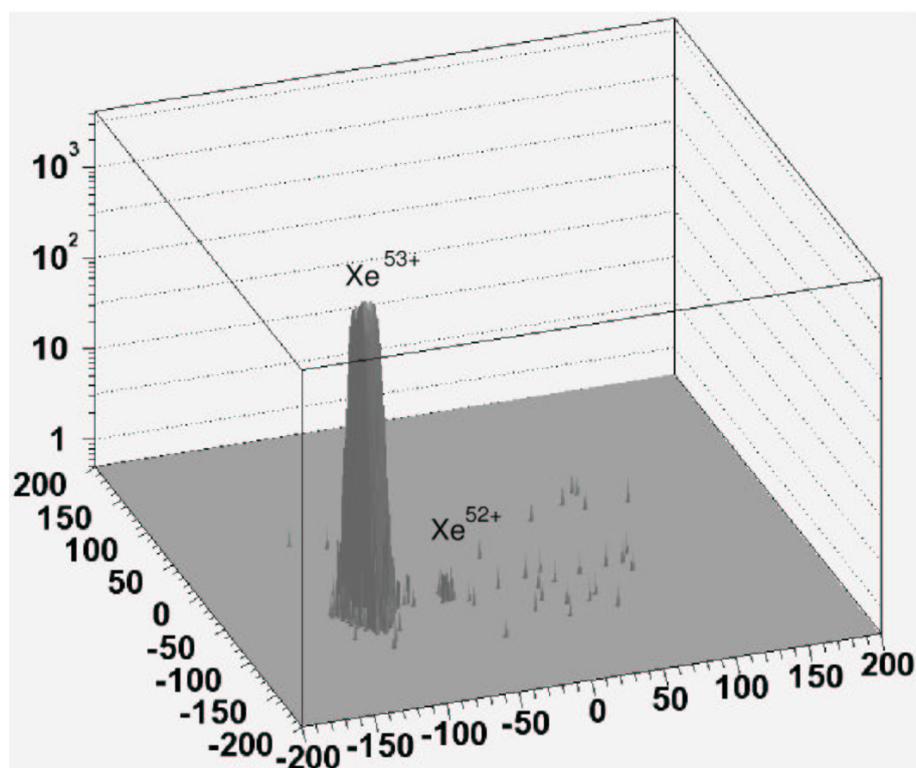


Abbildung 5.11: Ortsverteilung der mit einem Fragment koinzidenten Projektile auf dem Detektor. Der Hauptbeitrag kommt von  $Xe^{53+}$  Ionen (linker Peak) mit einem kleinen Beitrag an  $Xe^{52+}$  Ionen (kleiner rechter Peak).

ren beträgt zwar nur 11 eV (Laskin *et al.*, 1998; Boese und Scuseria, 1998; Matt *et al.*, 1999), jedoch ist zur Evaporation innerhalb von  $\mu s$  eine Anregungsenergie von mindestens 35 eV erforderlich (Lezius *et al.*, 1993). Die Differenz wird auch als *kinetic shift* bezeichnet. Dabei ist die Häufigkeit der schweren  $C_n^{q+}$  relativ zur entsprechenden  $C_{60}^{q+}$  Ausbeute bei dreifach geladenen Fragmenten deutlich größer als bei zweifach geladenen Fragmenten, wie Abbildung 5.14 deutlich zeigt. Von LeBrun *et al.* (1994) und Cheng *et al.* (1996) wurde die Anregung von Plasmonen und insbesondere die Giant-Dipole-Plasmon-Resonanz bei 20 eV Anregungsenergie ausführlich diskutiert. Diese Plasmon-Anregungen erfolgen vor allem bei großen Stoßparametern, d.h. bei Stoßparametern größer als der Fulleren-Radius. Sie sind ein sehr effektiver Weg, Energie im Fulleren zu deponieren (Hertel *et al.*, 1992; Bertsch *et al.*, 1991). Als dominanter Zerfallskanal für die Plasmon-Anregung wird dabei die Emission von Elektronen angenommen (Hertel *et al.*, 1992; Drewello *et al.*, 1993). Entsprechend der höheren notwendigen Plasmon-Anregungsenergie für die Erzeugung höher geladener Fullerene ist entsprechend auch ein höherer Anteil an Abdampfen von C<sub>2</sub> Molekülen zu erwarten. Obwohl dies mit den Beobachtungen von LeBrun *et al.* übereinstimmt, gibt es doch eine Diskrepanz zwischen den hier gezeigten Messungen mit 20 MeV/u  $Xe^{53+}$  und

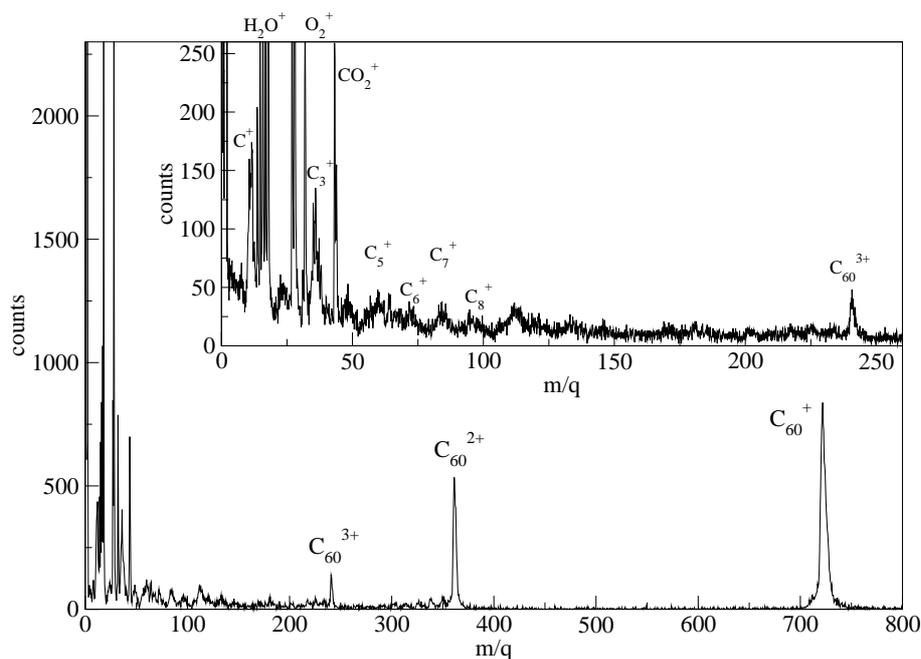


Abbildung 5.12: Gesamte Fragmentverteilung für  $20 \text{ MeV/u Xe}^{53+} + \text{C}_{60}$  Stöße.

den von LeBrun *et al.*. In Abbildung 5.12 sind keine einfach geladenen schweren Fragmente wie z.B.  $\text{C}_{58}^+$  zu erkennen. LeBrun *et al.* hingegen beobachten einen deutlichen, wenn auch geringen Anteil an  $\text{C}_n^+$  mit  $n = 50 - 58$ . Beachtet man aber die deutlich bessere Statistik ihrer Messung so ist es noch ungewiss, ob es sich hier um einen physikalischen Effekt oder fehlende Statistik handelt.

Neben den mehrfach geladenen Fullerenen und schweren Fragmenten sind auch die von LeBrun *et al.* beobachteten Fragmente mit einer relativ kleinen Anzahl an Kohlenstoffatomen in Abbildung 5.12 deutlich zu erkennen. Einige wurden zur besseren Orientierung gekennzeichnet. Unter der Annahme, daß alle diese Fragmente einfach geladen sind, kann man Fragmente  $\text{C}_n^+$  mit  $n = 1$  bis etwa  $n = 12$  beobachten. Die obere Grenze wird in dieser Messung im wesentlichen durch die Statistik und die Peakbreite bestimmt. LeBrun *et al.* konnten Fragmente bis  $n = 19$  beobachten. Bei größeren  $n$  hingegen wird die Zuordnung aufgrund des Überlapps mit mehrfach geladenen schweren Fragmenten schwierig. Die Häufigkeit der Fragmente nimmt dabei mit zunehmender Anzahl  $n$  der Kohlenstoffatome ab, wie Abbildung 5.15 deutlich zeigt. Diese Abnahme ist aber nicht stetig. Wie ebenfalls aus Abbildung 5.15 ersichtlich und in Übereinstimmung mit LeBrun *et al.* ist die Fragmenthäufigkeit für ungerade  $n$  systematisch höher als für gerade  $n$ . Dies ist eine direkte Folge der Bindungsenergie kleiner Kohlenstoff-Cluster. Rechnungen von Tomanek und Schluter (1991) zeigen, daß die Bindungsenergie pro Kohlenstoffatom in  $\text{C}_2$  etwa  $3.1 \text{ eV}$  beträgt, während sie im  $\text{C}_3$  mit etwa  $5.5 \text{ eV}$  deutlich höher ist. Im allgemeinen zeigen Rechnungen (Dörnenburg und Hintenberger, 1959; von Helden *et al.*, 1993), daß die Bindung

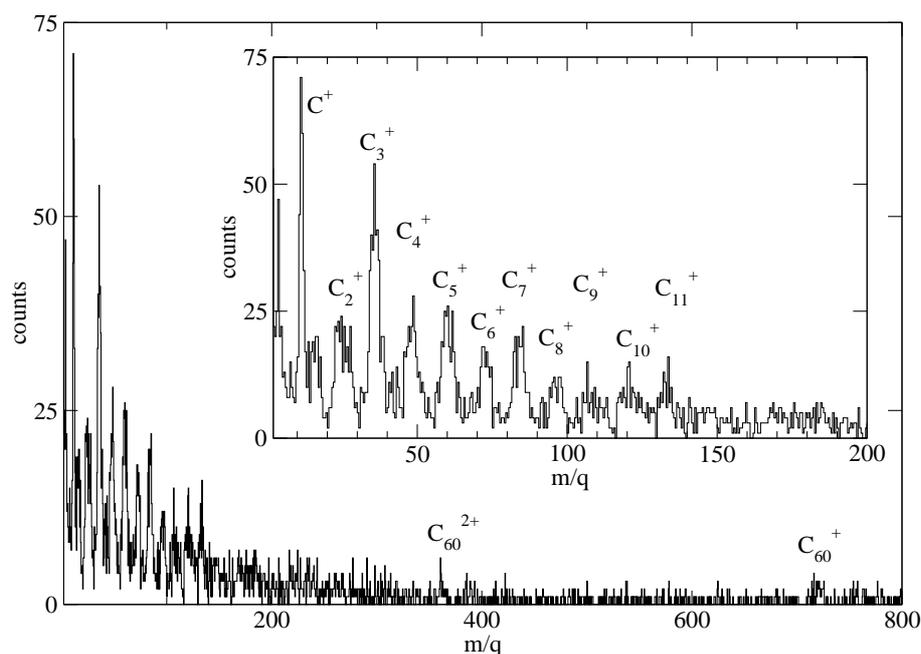


Abbildung 5.13: *Fragmentverteilung für 20 MeV/u Xe<sup>53+</sup> + C<sub>60</sub> unter der Bedingung des koinzidenten Nachweises von genau zwei geladenen Fragmenten.*

kleiner linearer Ketten mit einer geraden Anzahl von Atomen geringer ist als bei einer ungeraden Anzahl. Andererseits geht die Bindungsenergie  $E_B(n)$  eines Fragments über den Faktor  $\exp(-[E^* - E_B]/kT)$  in die Endzustandsverteilung ein. Dabei ist  $E^*$  die mittlere, pro Atom im Fulleren deponierte Anregungsenergie und  $T$  die Temperatur des Fulleren zur Zeit der Emission. Dieser Faktor wird klein für niedrige Bindungsenergien, also Fragmente mit einer geraden Anzahl von Atomen. Damit erklärt sich zumindest qualitativ der beobachtete gerade/ungerade Effekt. Ähnliches findet man auch in der Kernfragmentation, wo die Bindungsenergie der Fragmente ähnlichen Einfluss auf die Fragmentverteilung hat (Fields *et al.*, 1987).

Wie Abbildung 5.13 zeigt, werden beim koinzidenten Nachweis zweier geladener Fragmente hauptsächlich relativ leichte Fragmente nachgewiesen. Es handelt sich hierbei also um die komplette Zerstörung des Fulleren in viele kleine Bruchstücke im Gegensatz zum oben diskutierten Abdampfen neutraler C<sub>2</sub> Moleküle. Während Abbildung 5.13 allerdings nur die totale Fragmentverteilung für den koinzidenten Nachweis zweier geladener Fragmente zeigt, ist in Abbildung 5.16 links die Korrelation zwischen diesen beiden Fragmenten dargestellt. Dabei zeigt es sich, daß leichte Fragmente bevorzugt in Koinzidenz mit anderen leichten Fragmenten auftreten. Die höchste Intensität hat die Kombination C<sup>+</sup>/C<sub>3</sub><sup>+</sup>. Alle anderen Kombinationen C<sup>+</sup>/C<sub>*n*</sub><sup>+</sup> habe eine geringere Ausbeute und werden mit zunehmendem *n* schnell sehr unwahrscheinlich. Gleiches gilt auch für die Messungen von LeBrun *et al.*, wie Abbildung 5.16 rechts zeigt. Dort ist jedoch die Kombination mit der größten Ausbeute C<sup>+</sup>/C<sup>+</sup>. Alle Kombinationen C<sub>*n*</sub><sup>+</sup>/C<sub>*n*</sub><sup>+</sup> mit gleicher Anzahl von Atomen haben je-

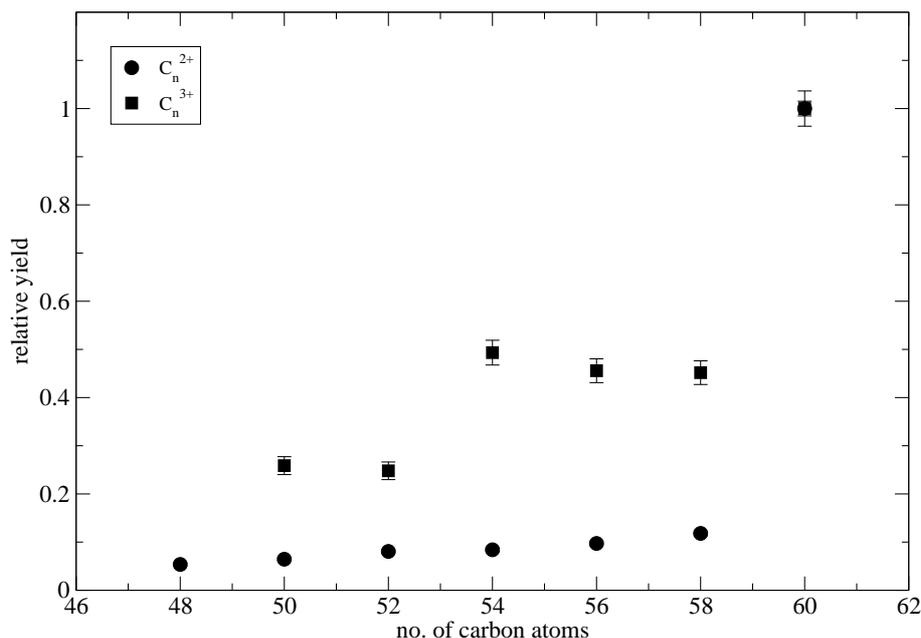


Abbildung 5.14: Relative Ausbeute an  $C_n^{2+}$  und  $C_n^{3+}$  Fragmenten mit  $n = 48$  bis  $n = 58$  für  $20 \text{ MeV/u Xe}^{53+} + C_{60}$ . Die Ausbeute wurde auf die entsprechende  $C_{60}^{2+}$  bzw.  $C_{60}^{3+}$  Ausbeute normiert.

doch annähernd die gleiche Flugzeit. In dem GSI Experiment bei  $20 \text{ MeV/u Xe}^{53+}$  können diese nicht aufgelöst werden und sind somit in der Abbildung nicht enthalten. Von diesem Unterschied abgesehen, sind sich jedoch beide Verteilungen sehr ähnlich.

Die Tatsache, daß beim koinzidenten Nachweis zweier Fragmente deren Summe an Atomen deutlich kleiner ist als beim  $C_{60}$  Fulleren, kann auf zwei mögliche Ursachen zurückgeführt werden. Prinzipiell können die Fragmente mehrfach geladen sein. Da nur das Verhältnis von Masse zu Ladung gemessen wird, ist dies nicht auszuschließen. Bei höherer Ladung hätten die Fragmente dann auch eine größere Masse und die Summe käme näher an das  $C_{60}$  Fulleren heran. Dies ist jedoch nicht bei allen beobachteten Kombinationen möglich. Es müssen also noch andere Fragmente gebildet werden, die nicht nachgewiesen wurden. Dies können z.B. neutrale Fragmente sein. Es ist aber keine notwendige Bedingung. Die Detektoreffizienz für den Nachweis eines Fragments beträgt im besten Falle 60% entsprechend der aktiven Fläche des Micro-Channel-Plate-Detektors. Gerade bei schweren Molekülen, die im elektrischen Feld des Spektrometers nur eine geringe Geschwindigkeit erhalten, kann diese jedoch signifikant kleiner sein. Die Wahrscheinlichkeit des koinzidenten Nachweises mehrerer Fragmente nimmt also stark mit ihrer Anzahl ab. Es können somit durchaus mehr geladene Fragmente erzeugt worden sein, als nachgewiesen wurden. Dies wird dadurch unterstützt, daß auch mehrere, bis hin zu fünf, geladene Fragmente koinzident nachgewiesen wurden, jedoch mit sehr geringer Ausbeute.

Zur Beschreibung der Fragmentation in viele leichte Fragmente entwickelten Cheng

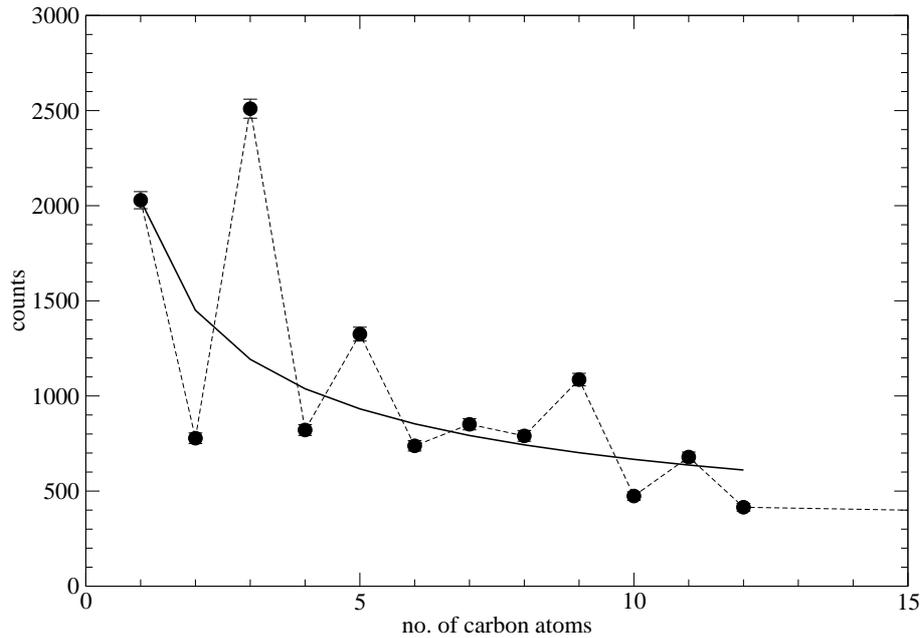


Abbildung 5.15: Ausbeute an  $C_n^+$  Fragmenten mit  $n = 1$  bis  $n = 12$  für  $20 \text{ MeV/u Xe}^{53+} + C_{60}$ . Die durchgezogene Linie entspricht einem Fit nach dem Potenzgesetz  $\sigma(C_n) \propto n^{-\lambda}$  mit  $\lambda = 0.48$  (siehe Text).

*et al.* (1996) ein *bond-percolation* Modell. Dabei deponiert ein Xenon-Ion stoßparameter-abhängig einen wohldefinierten Energiebetrag im Molekül. Es wird angenommen, daß sich diese Anregungsenergie schnell und gleichmäßig über alle Bindungen verteilt. Die Wahrscheinlichkeit des Aufbrechens einer Bindung ist direkt proportional zur gesamten Energie-deposition. Ein Erkennungsalgorithmus berechnet dann alle entstandenen Cluster. Unter Verwendung dieses Modells in einer Monte-Carlo Simulation gelang es Cheng *et al.*, die U-Form der Fragmenthäufigkeiten zu reproduzieren. Während das Modell die von ihnen beobachtete Ausbeute der leichten Fragmente gut wiedergibt, unterschätzt es die Häufigkeit der schweren Fragmente, da es nicht die oben diskutierten Plasmon-Anregungen enthält, die zum Abdampfen neutraler  $C_2$  Moleküle führen. Das Modell ist, abgesehen von unterschiedlichen Geometrien, ähnlich einem Modell zur mehrfachen Fragmentation von Kernen (Bauer *et al.*, 1985, 1986; Bauer, 1988). Ein Charakteristikum dieses Modell ist ein Abfall des Wirkungsquerschnittes für die Produktion von leichten Fragmenten  $C_n$  mit  $n \leq 20$  entsprechend dem Potenzgesetz  $\sigma(C_n) \propto n^{-\lambda}$ . Cheng *et al.* (1996) erhalten aus ihren Messungen  $\lambda = 1.3$ . Bei der in Abbildung 5.12 gezeigten Fragmentverteilung für Stöße mit  $20 \text{ MeV/u Xe}^{53+}$  hingegen ist der Abfall deutlich flacher mit  $\lambda = 0.48$ .

Im Hinblick auf die Fragmentation von Fullerenen im Stoß mit schweren Ionen bei hoher Energie gibt es derzeit nur zwei Experimente: mit  $4.6 \text{ MeV/u } ^{136}\text{Xe}^{35+}$  von LeBrun *et al.* (1994) und Cheng *et al.* (1996) und mit  $20 \text{ MeV/u } ^{124}\text{Xe}^{53+}$  von Bräuning *et al.* (2004a). Beide Experimente zeigen ähnliche Fragmentationsmuster, weisen jedoch im Detail auch

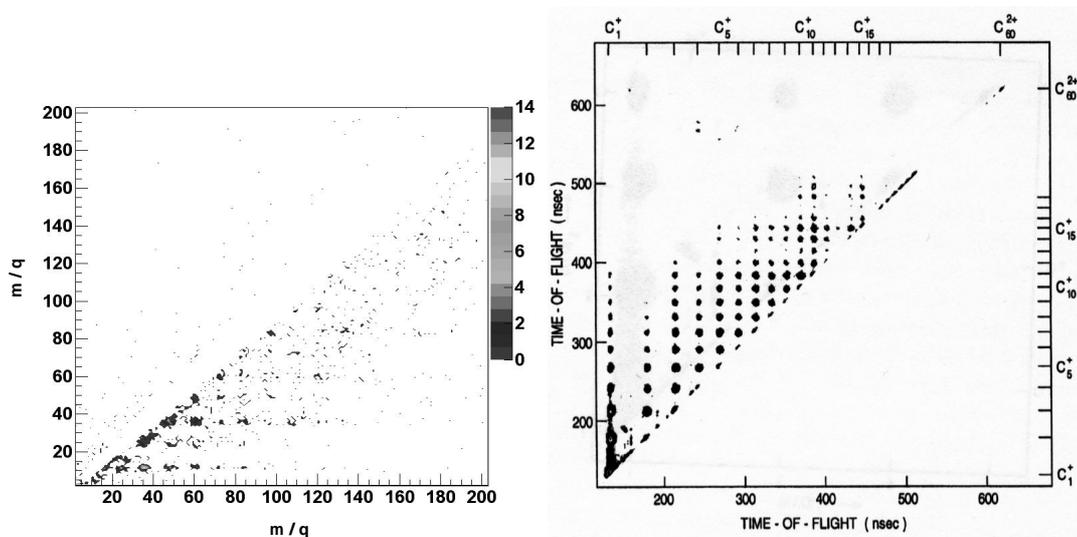


Abbildung 5.16: *Koinzidentes Flugzeitspektrum beim Nachweis zweier geladener Fragmente. Links - 20 MeV/u  $Xe^{53+}$  +  $C_{60}$ . Rechts - 4.6 MeV/u  $Xe^{53+}$  +  $C_{60}$  (Cheng et al., 1996). Die Intensitätsverteilung entspricht einer logarithmischen Skala.*

einige Unterschiede auf. Die Natur dieser Unterschiede muss in zukünftigen Experimenten geklärt werden.

# Kapitel 6

## Homonukleare Stöße schwerer Ionen

Die bisher diskutierten Stoßsysteme boten sich aufgrund der geringen Anzahl ihrer Elektronen als ideale Tests für die Theorie an. Einelektronensysteme kann man dabei als Prüfsteine für das Verständnis der Dynamik im veränderlichen Zwei-Zentren-Potential des Stoßsystems ansehen. Zweielektronensysteme, insbesondere bei der Photoionisation, erlauben das Studium der Elektron-Elektron-Wechselwirkung. Selbst das C<sub>60</sub> Fulleren mit seinen 360 Elektronen konnte theoretisch behandelt werden.

Im Gegensatz hierzu stellt die Beschreibung von Mehrelektronensystemen eine Herausforderung für die Theorie dar. Nur bei speziellen Stoßsystemen ist es möglich, unter stark vereinfachenden Annahmen verlässliche Wirkungsquerschnitte zu berechnen. Ein Beispiel hierfür sind z.B. die in Kapitel 3.3 erwähnten Quasi-Einelektronensysteme. Auch im Bereich hoher Energien ist es möglich, mit störungstheoretischen Ansätzen im *single particle* Modell verlässliche Aussagen zu erhalten.

Bei niedrigen Energien jedoch, wenn sich die Elektronen auf das veränderliche Zwei-Zentren-Potential einstellen können und sich molekulare Orbitale ausbilden, wird die theoretische Beschreibung durch die vielen Zustände sehr komplex. Dies gilt insbesondere für Systeme, in denen sich mehr als ein Elektron in der äußeren Schale befindet. Hinzu kommt die Möglichkeit von Zweistufen-Prozessen wie z.B. resonanter Elektroneneinfang mit gleichzeitiger Anregung (RTE, *resonant transfer and excitation*) oder Innerschalenionisation mit nachfolgender Autoionisation, um nur zwei Möglichkeiten zu nennen.

Dennoch sind gerade für eine Reihe von Anwendungen Wirkungsquerschnitte von ladungsändernden Stößen zwischen zwei Ionen bei vergleichsweise niedrigen Energien von großer Bedeutung. Ein Beispiel hierfür ist die Tokamak-Fusionsforschung. Verunreinigungen im Plasma durch schwere Ionen, z.B. aus den Wänden, können durch Neutralisation der Wasserstoffionen im Plasma zum Teilchenverlust oder über Stoßanregung und nachfolgender Emission elektromagnetischer Strahlung zum Energieverlust beitragen. Ein Überblick über Stöße von Protonen mit komplexen Ionen findet sich in Melchert (1997). Ein weiteres Beispiel sind homonukleare Stöße zweier Ionen, d.h. Stöße zwischen Ionen, deren Atomkerne identische Isotope sind. In modernen Beschleunigeranlagen werden nun immer intensivere Ionenstrahlen erzeugt, beschleunigt und auch gespeichert. Hierbei kommt es bei Strahlenergien im GeV-Bereich zu Stößen der Ionen im Strahl untereinander mit Schwer-

punktenergien im keV-Bereich. Elektronentransfer oder Ionisation können dabei je nach Wirkungsquerschnitt zu einem signifikanten Verlust an Strahlintensität führen. Da es sich hierbei um nicht-resonante Systeme handelt, ist mit einer starken Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts von der Schwerpunktsenergie zu rechnen. Dies wird am Schluss dieses Kapitels noch ausführlicher diskutiert werden.

Während es von Seiten der Theorie derzeit nur wenige Versuche gibt, Stöße zwischen komplexen atomaren Ionen bei relativ niedrigen Energien zu untersuchen, gibt es aus experimenteller Sicht deutliche Fortschritte in den letzten Jahren, insbesondere bei den homonuklearen Stoßsystemen. Erste experimentelle Untersuchungen in dieser Hinsicht wurden von Angel *et al.* (1980) am Stoßsystem  $\text{Xe}^+ + \text{Xe}^+$  sowie von Dunn *et al.* (1979) und Peart *et al.* (1981a,d) für  $\text{Cs}^+ + \text{Cs}^+$  durchgeführt. Allerdings wurde hierbei nur der Wirkungsquerschnitt für den Elektronenverlust



also für die Erzeugung zweifach geladener Ionen gemessen. Die ersten Messungen an mehrfach geladenen schweren Ionen gelangen Kim und Janev (1987) für die Stoßsysteme  $\text{Ar}^{3+} + \text{Ar}^{3+}$  und  $\text{Kr}^{3+} + \text{Kr}^{3+}$  bei 60 keV Schwerpunktsenergie. Allerdings wurde auch hier nur der Wirkungsquerschnitt für den Elektronenverlust gemessen. Die getrennte Messung von Elektronentransfer



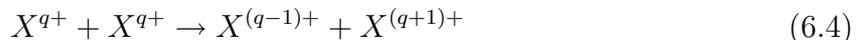
und Ionisation



gelang schließlich erstmals Melchert *et al.* (Melchert, 1987; Melchert *et al.*, 1989) für die Stoßsysteme  $\text{Xe}^+ + \text{Xe}^+$  und  $\text{Bi}^+ + \text{Bi}^+$ . Dies ist insbesondere für Abschätzungen der oben erwähnten Intensitätsverluste in Beschleunigern und Speicherringen von Bedeutung, da Elektronentransfer und Ionisation hierbei mit unterschiedlicher Gewichtung beitragen.

## 6.1 Elektronentransfer

Wir wollen uns zunächst der Elektronentransferreaktion



zuwenden. Nach den ersten Messungen von Melchert *et al.* wurden die Experimente zum Elektronentransfer systematisch auf andere Elemente und Ladungszustände ausgeweitet. Tabelle 6.1 gibt einen Überblick über die derzeit untersuchten Stoßsysteme in Bezug auf den Elektronentransfer. Bis auf eine Messung am Stoßsystem  $\text{Cs}^+ + \text{Cs}^+$  von Peart *et al.* (1981a) wurden alle Wirkungsquerschnitte für den Elektronentransfer am Giessener Ion-Ion-Experiment gemessen. Wie aus der Tabelle ersichtlich ist, wurden die meisten Messungen bisher an den Edelgasen Argon, Krypton und Xenon durchgeführt. Dies ist im wesentlichen nur durch ihre einfache Handhabbarkeit im Vergleich zu den Metallen bedingt.

	1+	2+	3+	4+
Ar		11.8 – 93.7 keV [1] 0.15 – 0.43 au	13.3 – 63.1 keV [2] 0.16 – 0.36 au	10.0 – 61.6 keV [3] 0.14 – 0.35 au
Kr		11.8 – 93.7 keV [1] 0.11 – 0.30 au	21.8 – 64.2 keV [2] 0.14 – 0.25 au	10.0 – 61.6 keV [3] 0.10 – 0.24 au
Xe	10.2 – 54.7 keV [4] 0.08 – 0.18 au	7.0 – 93.7 keV [1] 0.06 – 0.24 au		5.6 – 44.7 keV [5] 0.06 – 0.17 au
Cs	8.1 – 66.4 keV [6,7] 0.07 – 0.20 au			
Ta	1.1 – 44.8 keV [8] 0.02 – 0.14 au			
Hg	1.3 – 20.0 keV [9] 0.02 – 0.09 au			
Pb				2.2 – 50.1 keV [10] 0.03 – 0.14 au
Bi	10.0 – 54.6 keV [11] 0.06 – 0.14 au			2.5 – 62.9 keV [5] 0.03 – 0.16 au

Tabelle 6.1: Übersicht über vorhandene Messungen zum Elektronentransfer in homonuklearen Stößen schwerer Ionen. Für jedes Element gibt die erste Zeile den Bereich der Schwerpunktsenergie an, in dem Messungen vorliegen und die zweite Zeile den entsprechenden Bereich der Relativgeschwindigkeiten. Referenzen: 1: Diehl et al. (2004), 2: Bräuning et al. (2003b), 3: Diehl et al. (2001), 4: Melchert (1987), 5: Trassl et al. (2001), 6: Peart et al. (1981a), 7: Krüdenener (1992), 8: Wohlfahrt (1997), 9: Bajajova (1997), 10: Trassl et al. (2000), 11: Melchert et al. (1989).

### 6.1.1 Mehrfach geladene Ionen

Abbildung 6.1 zeigt die gemessenen absoluten Wirkungsquerschnitte für die Stoßsysteme  $\text{Ar}^{q+} + \text{Ar}^{q+}$  mit  $q = 2, 3, 4$  als Funktion der Schwerpunktsenergie bzw. der Relativgeschwindigkeit. Die Relativgeschwindigkeiten sind deutlich kleiner als die klassische Geschwindigkeit von  $v_e = 1.73$  au eines 3p Elektrons im  $\text{Ar}^{2+}$  (entsprechend einer Bindungsenergie von  $I = 40.74$  eV (Moore, 1970)). Dies gilt dann selbstverständlich auch für  $\text{Ar}^{3+}$  und  $\text{Ar}^{4+}$ . Aus kinematischen Betrachtungen kann man im Falle eines nicht-resonanten Stoßsystems bei Relativgeschwindigkeiten in der Nähe der klassischen Elektronengeschwindigkeit  $v_e$  den maximalen Wirkungsquerschnitt erwarten (Bransden und McDowell, 1992). Dem entspricht auch der beobachtete Anstieg des Wirkungsquerschnittes mit zunehmender Relativgeschwindigkeit. Den größten Wirkungsquerschnitt erhält man für zweifach geladene Argon-Ionen. Im Gegensatz hierzu ist der Wirkungsquerschnitt für dreifach geladene Ionen am niedrigsten, während derjenige für vierfach geladene Argon-Ionen dazwischen liegt. Dieses Verhalten läßt sich qualitativ bereits durch Betrachtung der Q-Werte für die einzelnen Reaktionen verstehen, die in Tabelle 6.2 angegeben sind. Im Vergleich zu den an-

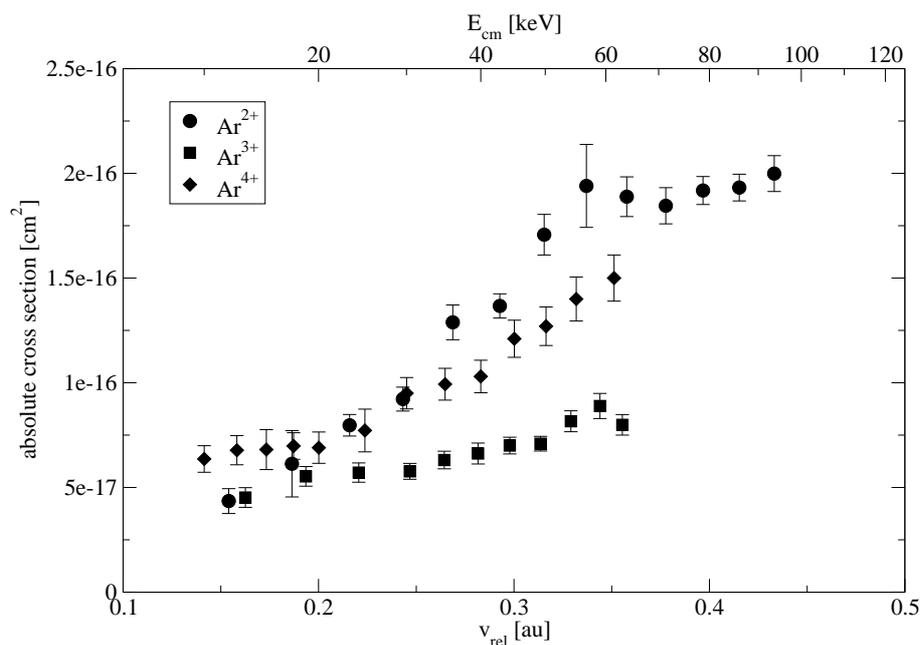


Abbildung 6.1: Absolute Wirkungsquerschnitte für die Elektronentransferreaktionen  $Ar^{q+} + Ar^{q+} \rightarrow Ar^{(q-1)+} + Ar^{(q+1)+}$  mit  $q=2$  (Kreise) (Diehl et al., 2004),  $q=3$  (Quadrat) (Bräuning et al., 2003b) und  $q=4$  (Rauten) (Diehl et al., 2001). Der systematische Fehler beträgt 15%.

deren Ladungszuständen besitzt der Elektronentransfer im Stoß dreifach geladener Argon-Ionen den höchsten negativen  $Q$ -Wert. Dies liegt an den drei  $3p$ -Elektronen. Diese koppeln entsprechend den Hundschen Regeln zum maximal möglichen Gesamtspin von  $S=3/2$

	1+		2+		3+		4+	
	GRASP	Moore	GRASP	Moore	GRASP	Moore	GRASP	Moore
Ar	-11.7 eV	-11.9 eV	-12.9 eV	-13.1 eV	-19.2 eV	-19.1 eV	-15.5 eV	-15.2 eV
Kr	-10.2 eV	-10.4 eV	-11.2 eV	-12.6 eV	-15.7 eV	-15.6 eV	-13.5 eV	-12.2 eV
Xe	-8.6 eV	-9.1 eV	-9.7 eV	-10.9 eV	-12.1 eV		-12.2 eV	
Pb	-7.4 eV	-7.6 eV	-15.6 eV	-16.9 eV	-10.7 eV	-10.4 eV	-27.1 eV	-26.5 eV
Bi	-9.1 eV	-9.4 eV	-9.2 eV	-8.9 eV	-17.5 eV	-19.7 eV	-11.8 eV	-10.7 eV

Tabelle 6.2:  $Q$ -Werte für die Ladungstransferreaktionen  $X^{q+} + X^{q+} \rightarrow X^{(q-1)+} + X^{(q+1)+} + Q$ . Die Spalten mit der Überschrift 'GRASP' zeigen die mit dem Computerprogramm GRASP (Dyall et al., 1989) berechneten  $Q$ -Werte. Hierbei wurde immer vom Grundzustand ausgegangen. Die  $Q$ -Werte in den Spalten mit der Überschrift 'Moore' wurden aus den von Moore (1970) tabellierten Ionisationsenergien berechnet.

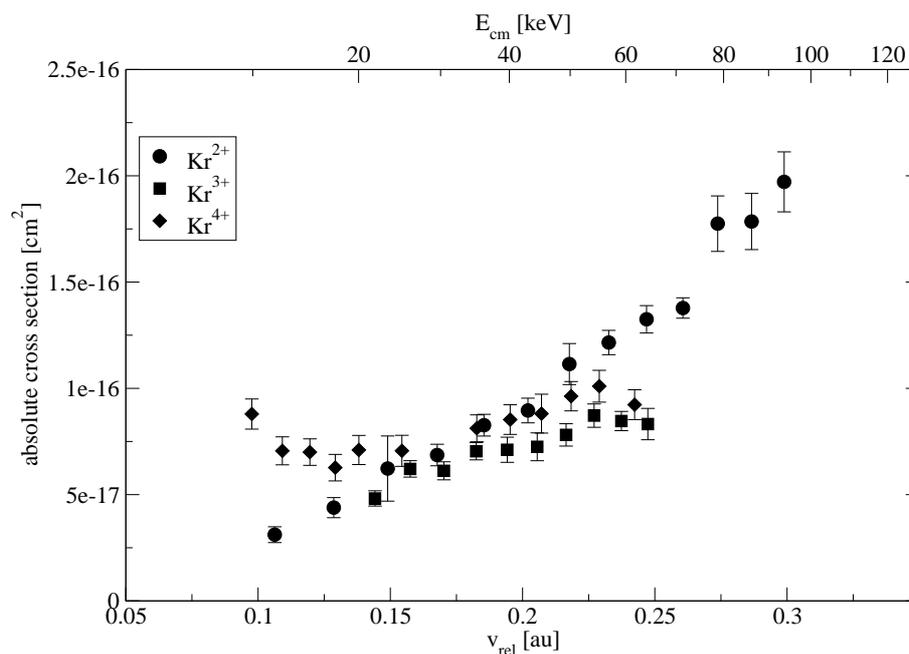


Abbildung 6.2: Absolute Wirkungsquerschnitte für die Elektronentransferreaktionen  $Kr^{q+} + Kr^{q+} \rightarrow Kr^{(q-1)+} + Kr^{(q+1)+}$  mit  $q=2$  (Kreise) (Diehl et al., 2004),  $q=3$  (Quadrate) (Bräuning et al., 2003b) und  $q=4$  (Rauten) (Diehl et al., 2001). Der systematische Fehler beträgt 15%.

und besitzen damit eine besonders feste Bindung. Im Vergleich hierzu scheint der Einfluss der höheren Coulombabstoßung durch den höheren Ladungszustand bei den untersuchten Schwerpunktsenergien vernachlässigbar zu sein.

Die in Tabelle 6.2 angegebenen Q-Werte wurden sowohl mit dem Computerprogramm GRASP (*General-Purpose Relativistic Atomic Structure Program*) (Dyall et al., 1989) als auch mit den von Moore (1970) tabellierten Werten der Ionisationsenergien berechnet. Die tabellierten Werte basieren auf optischen Spektren verschiedener Gruppen. Für den Anfangs- und Endzustand wurde dabei jeweils der Grundzustand angenommen. Im Vergleich ergeben sich bei Argon Abweichungen von maximal 0.3 eV. Bei den, hier nicht aufgeführten, Ionisationsenergien selbst ist die Abweichung deutlich größer. Auch bei schwereren Elementen werden die Abweichungen stellenweise größer. Trotz dieser Differenzen zeigen jedoch die Q-Werte die gleichen Tendenzen bezüglich des Ladungszustandes, entsprechend obiger Diskussion. Für die Xenon-Ionen  $Xe^{4+}$  und  $Xe^{5+}$  sind in Moore (1970) keine Ionisationsenergien angegeben, so daß hier die Q-Werte für die Reaktionen  $Xe^{3+} + Xe^{3+}$  und  $Xe^{4+} + Xe^{4+}$  nur mit dem Computerprogramm GRASP bestimmt werden konnten.

Auch für die Stoßsysteme  $Kr^{q+} + Kr^{q+}$  mit  $q = 2, 3, 4$  kann ein ähnliches Verhalten wie für  $Ar^{q+} + Ar^{q+}$  beobachtet werden, wie Abbildung 6.2 zeigt. Sieht man zunächst einmal von dem Verhalten des Wirkungsquerschnittes von  $Kr^{4+} + Kr^{4+}$  bei niedrigen

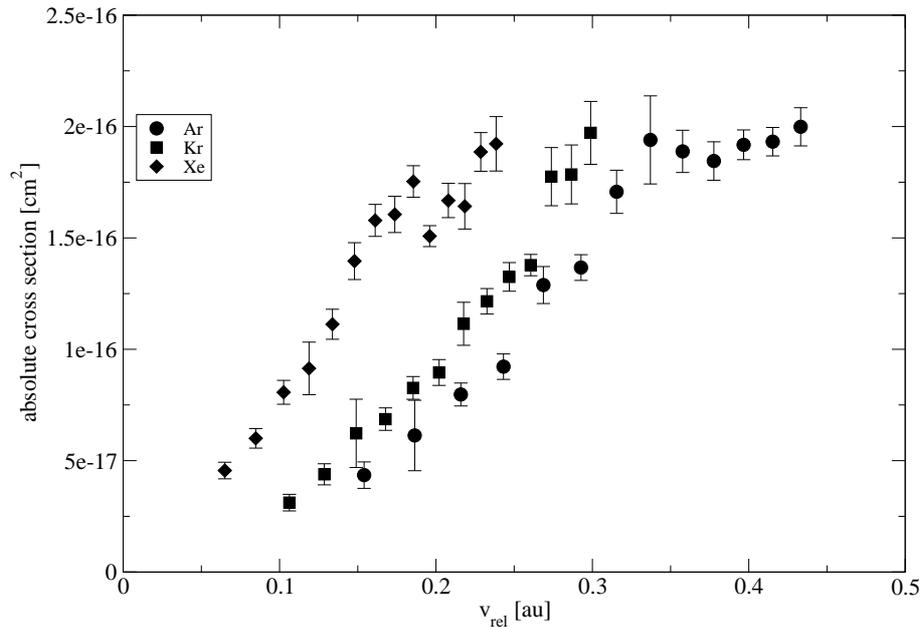


Abbildung 6.3: Absolute Wirkungsquerschnitte für die Elektronentransferreaktionen  $X^{2+} + X^{2+} \rightarrow X^+ + X^{3+}$  mit  $X = \text{Ar}$  (Kreise),  $\text{Kr}$  (Quadrat) und  $\text{Xe}$  (Rauten) (Diehl et al., 2004). Der systematische Fehler beträgt 15%.

Relativgeschwindigkeiten ab, so erhält man wieder die größten Wirkungsquerschnitte für  $\text{Kr}^{2+} + \text{Kr}^{2+}$  und die niedrigsten für  $\text{Kr}^{3+} + \text{Kr}^{3+}$ . Die Unterschiede sind jedoch nicht so stark ausgeprägt wie bei Argon. Dies spiegelt sich auch in den geringeren Unterschieden bei den  $Q$ -Werten wider.

Abbildung 6.3 vergleicht die Wirkungsquerschnitte für die homonuklearen Stöße von zweifach geladenen Argon-, Krypton- und Xenon-Ionen. Auch hier zeigt sich eine klare Abhängigkeit des Wirkungsquerschnittes vom  $Q$ -Wert der Reaktion. Die höchsten Wirkungsquerschnitte wurden für Xenon gemessen, welches den kleinsten  $Q$ -Wert aufweist. Entsprechend wurden für Argon die niedrigsten Wirkungsquerschnitte gemessen. Die absoluten Differenzen spiegeln sich auch in den Differenzen der aus spektroskopischen Daten gewonnenen  $Q$ -Werte wider. So ist die Differenz der  $Q$ -Werte von Ar und Krypton mit 0.5 eV deutlich kleiner als zwischen Krypton und Xenon mit 1.7 eV. Dies zeigt sich in Abbildung 6.3 durch den deutlich geringeren Unterschied im Wirkungsquerschnitt zwischen Argon und Krypton im Vergleich zum Xenon. Für die mit GRASP berechneten  $Q$ -Werte gilt dies nicht. Hier sind die Unterschiede mit 1.7 eV bzw. 1.5 eV nahezu gleich.

Ein ganz anderes Verhalten als das soeben diskutierte zeigt jedoch Abbildung 6.4 für die Stoßsysteme  $\text{Xe}^{q+} + \text{Xe}^{q+}$  mit  $q = 1, 2, 4$ . Zum einen ist der Wirkungsquerschnitt für die Reaktion  $\text{Xe}^{2+} + \text{Xe}^{2+}$  deutlich geringer als für die anderen Reaktionen, obwohl aufgrund des geringen  $Q$ -Wertes ein hoher Wirkungsquerschnitt erwartet werden könnte. Dies zeigt, daß selbst bei Systemen mit gleicher Elektronenkonfiguration der äußeren Schale,

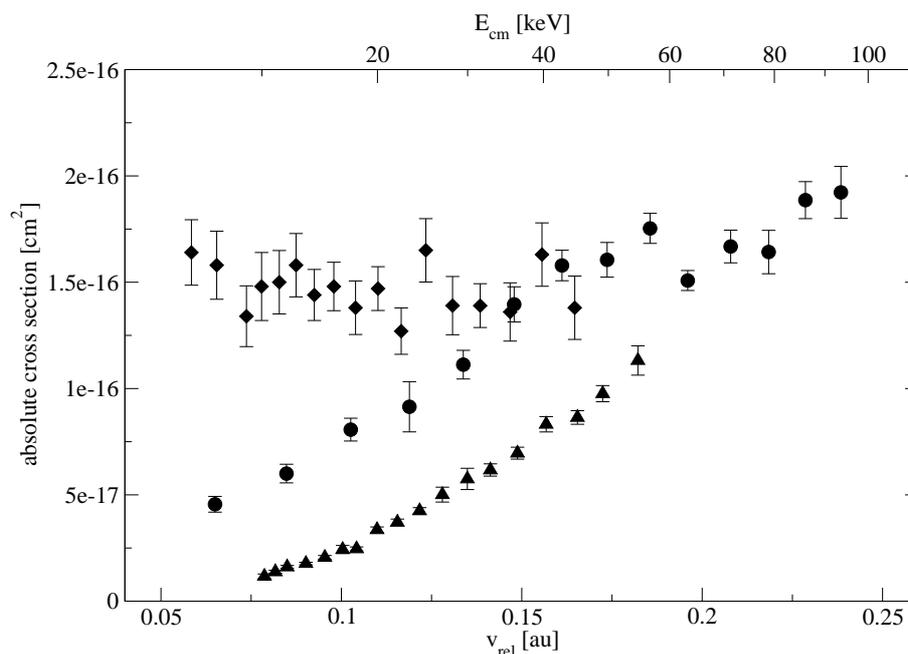


Abbildung 6.4: Absolute Wirkungsquerschnitte für die Elektronentransferreaktionen  $Xe^{q+} + Xe^{q+} \rightarrow Xe^{(q-1)+} + Xe^{(q+1)+}$  mit  $q=1$  (Dreiecke) (Melchert, 1987),  $q=2$  (Kreise) (Diehl et al., 2004) und  $q=4$  (Rauten) (Trassl et al., 2001). Der systematische Fehler beträgt 15%.

wie bei den hier betrachteten Edelgasen, eine Q-Wert Betrachtung alleine nicht ausreicht, um wirklich verlässliche Aussagen über den Wirkungsquerschnitt zu erhalten. Der Q-Wert kann lediglich als Anhaltspunkt dienen. Zum anderen läßt sich in Abbildung 6.4 für das Stoßsystem  $Xe^{4+} + Xe^{4+}$  keinerlei Abhängigkeit von der Relativgeschwindigkeit erkennen, obwohl wie bei allen anderen Systemen diese viel kleiner ist als die klassische Geschwindigkeit des aktiven Elektrons. Dies deutete sich bereits beim Stoßsystem  $Kr^{4+} + Kr^{4+}$  in Abbildung 6.2 an. Auch für die Stoßsysteme  $Bi^{4+} + Bi^{4+}$  (Trassl et al., 2001) und  $Pb^{4+} + Pb^{4+}$  (Trassl et al., 2000) findet man keine Abhängigkeit des Wirkungsquerschnittes von der Relativgeschwindigkeit, wie Abbildung 6.5 zeigt.

### 6.1.2 Einfluss metastabiler Ionen

Der Grund für das oben diskutierte Fehlen der Energieabhängigkeit des Wirkungsquerschnittes liegt in einem nicht zu vernachlässigenden Anteil an angeregten Ionen in metastabilen Zuständen. Dies reduziert den Q-Wert und führt somit zu einer Überhöhung des Wirkungsquerschnittes bei niedrigen Relativgeschwindigkeiten. Ein weiteres Indiz für metastabile Ionen im Strahl sind unerwartet kleine Streuwinkel bei geringen Schwerpunktsenergien, wie sie z.B. für das Stoßsystem  $Bi^{4+} + Bi^{4+}$  gemessen wurden (Trassl, 1999). Die Wellenfunktionen angeregter Zustände reichen weiter in den Raum hinaus, als die des Grundzustandes. Damit kann ein Ladungstransfer bereits bei größeren Stoßparametern

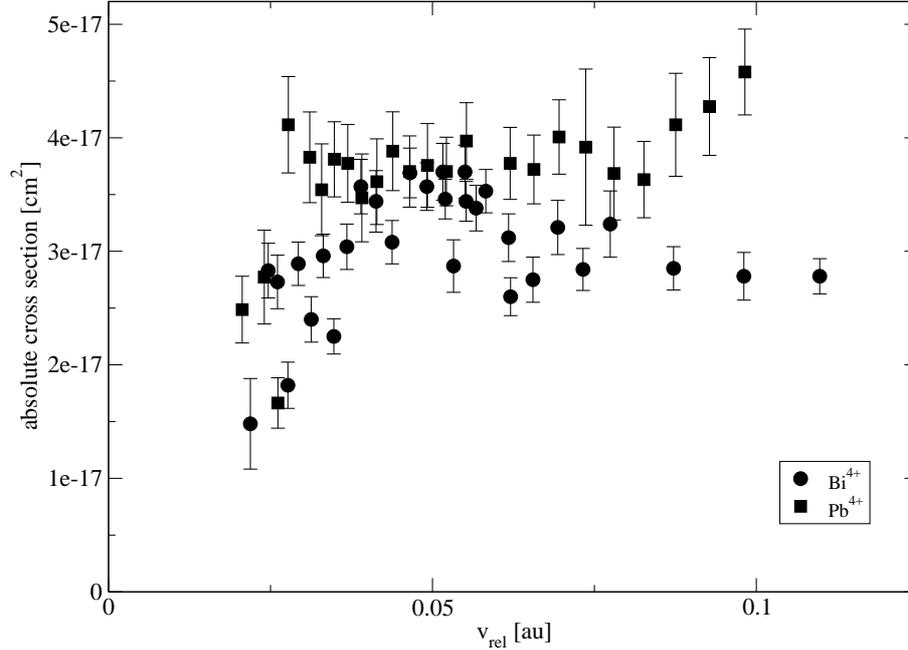


Abbildung 6.5: Absolute Wirkungsquerschnitte für die Elektronentransferreaktionen  $Bi^{4+} + Bi^{4+} \rightarrow Bi^{3+} + Bi^{5+}$  (Kreise) (Trassl et al., 2001) und  $Pb^{4+} + Pb^{4+} \rightarrow Pb^{3+} + Pb^{5+}$  (Quadrate) (Trassl et al., 2000).

erfolgen und damit zu kleinen Streuwinkel führen.

Es ist seit langem bekannt, daß Ionen, die wie im Giessener Ion-Ion-Experiment aus einer EZR-Quelle extrahiert werden, einen signifikanten Anteil an metastabilen Ionen besitzen können (siehe z.B. Gregory *et al.* (1990)). Dies liegt daran, daß die Ionen im Plasma durch hochenergetische Elektronenstöße ionisiert werden. Dabei kommt es neben der Ionisation auch zur Anregung durch Elektronenstoß, wobei Zustände populiert werden können, die nicht durch einen elektrischen Dipolübergang unter Emission eines Photons zerfallen können und somit relativ langlebig sind. Diese metastabilen Ionen können durch die üblichen Analysatoren auf Basis der Ablenkung in magnetischen oder elektrischen Feldern nicht von den Ionen im Grundzustand getrennt werden.

Der im Ion-Ion-Experiment gemessene Querschnitt setzt sich somit immer zusammen aus dem Wirkungsquerschnitt  $\sigma_g$  für Ionen im Grundzustand und  $\sigma_m$  für Ionen im metastabilen Zustand. Zwar werden in beiden Strahlen metastabile Ionen erzeugt, für den Wirkungsquerschnitt ist aber nur der Ausgangszustand (Grundzustand oder metastabiler Zustand) des transferierten Elektrons sowie dessen Endzustand von Bedeutung. Ob das Ion, welches das Elektron empfängt, bereits in einem angeregten Zustand ist, spielt eine untergeordnete Rolle. Bei einem Anteil  $f$  metastabiler Ionen im Strahl ergibt sich der gemessene Wirkungsquerschnitt zu

$$\sigma = f \cdot \sigma_m + (1 - f) \cdot \sigma_g \quad (6.5)$$

Eine Methode zur Bestimmung des Anteils an metastabilen Ionen in einem Ionenstrahl wurde von Vujovic *et al.* (1971, 1972) vorgeschlagen. Die Schwächung eines Ionenstrahls der Intensität  $I_0$  mit einem Anteil  $f$  an metastabilen Ionen in einem Gastarget der Dicke  $\mu = nL$  mit der Teilchendichte  $n$  und der Länge  $L$  sowie einer anschließenden Ladungsanalyse ist gegeben durch

$$I(\mu) = I_0(1 - f) \exp(-\sigma_A \mu) + I_0 f \exp(-\sigma_A^* \mu) \quad (6.6)$$

wobei  $\sigma_A$  der Wirkungsquerschnitt für ladungsändernde Stöße von Ionen im Grundzustand mit dem Targetgas darstellt und  $\sigma_A^*$  den entsprechenden Wirkungsquerschnitt für metastabile Ionen. Hierbei wurden folgende Annahmen gemacht: (1) Der Strahl besteht aus nur zwei Komponenten (Grundzustand und ein metastabiler Zustand). (2) Die Wahrscheinlichkeit für die Ionen, nach einem ladungsändernden Stoß durch einen zweiten Prozess wieder den ursprünglichen Ladungszustand zu erhalten, ist Null. (3) Die Schwächung der Komponenten ist unabhängig voneinander. Dies bedeutet insbesondere, daß Übergänge zwischen dem Grundzustand und dem metastabilen Zustand, z.B. durch Stoßanregung oder -abregung, vernachlässigt werden können.

Ist der Wirkungsquerschnitt für die Schwächung der metastabilen Ionen größer als jener für Ionen im Grundzustand (z.B. durch geeignete Wahl des Targetgases), so nimmt der Anteil der metastabilen Ionen mit zunehmender Targetdicke schneller ab. Es gibt dann eine Targetdicke, ab welcher der Anteil  $f$  der metastabilen Ionen nach Durchgang durch das Targetgas verschwindet, d.h.  $f = 0$ . In diesem Fall ist der gemessene Wirkungsquerschnitt für einen Ion-Ion-Stoß nach Gl. 6.5 identisch mit dem gesuchten Wirkungsquerschnitt  $\sigma_g$  für Ionen im Grundzustand. Wie oben erwähnt, kann man für metastabile Ionen im Ion-Ion-Stoß einen größeren Wirkungsquerschnitt  $\sigma_m$  erwarten. Der gemessene Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  sollte also entsprechend dem mit zunehmender Targetdicke geringer werdenden Anteil der metastabilen Ionen ebenfalls abnehmen und für  $f = 0$  eine Sättigung erreichen. Abbildung 6.6 zeigt exemplarisch dieses Verhalten am Stoßsystem  $\text{Bi}^{4+} + \text{Bi}^{4+} \rightarrow \text{Bi}^{3+} + \text{Bi}^{5+}$  (Trassl, 1999). Allerdings wird nicht nur der Anteil der metastabilen Ionen im Strahl geschwächt, sondern auch die gesamte Strahlintensität wird mit zunehmendem Gasdruck geringer. Dies bedeutet, daß z.B. für die in Abb. 6.6 gezeigte Messung beim höchsten Gasdruck die gut 7-fache Messzeit benötigt wurde im Vergleich zur Messung ohne Gastarget.

Eine systematische Untersuchung mehrerer Stoßsysteme in Abhängigkeit von der Relativgeschwindigkeit bei gleichzeitiger Unterdrückung metastabiler Ionen mittels Umladung in einem Gastarget ist somit nicht praktikabel. Gleiches gilt auch für andere denkbare Methoden, den Anteil metastabiler Ionen im Strahl zu unterdrücken, wie z.B. Speicherung der Ionen in einem Speicherring. Nach einer Speicherzeit von einer Sekunde oder mehr, kann man davon ausgehen, daß der Großteil der Ionen im metastabilen Zustand zerfallen ist und ein Ionenstrahl im Grundzustand vorliegt. Neben dem technischen Aufwand, ein *crossed-beams* Experiment in einen Speicherring zu integrieren, ist auch hier eine systematische Untersuchung mehrerer Stoßsysteme aufgrund der derzeit niedrigen Strahlintensitäten in einem Speicherring nicht praktikabel. Als Beispiel sei hier der elektrostatische Speicherring ELISA der Universität Aarhus erwähnt (Moller, 1997; Moller und Pedersen, 1999) (siehe

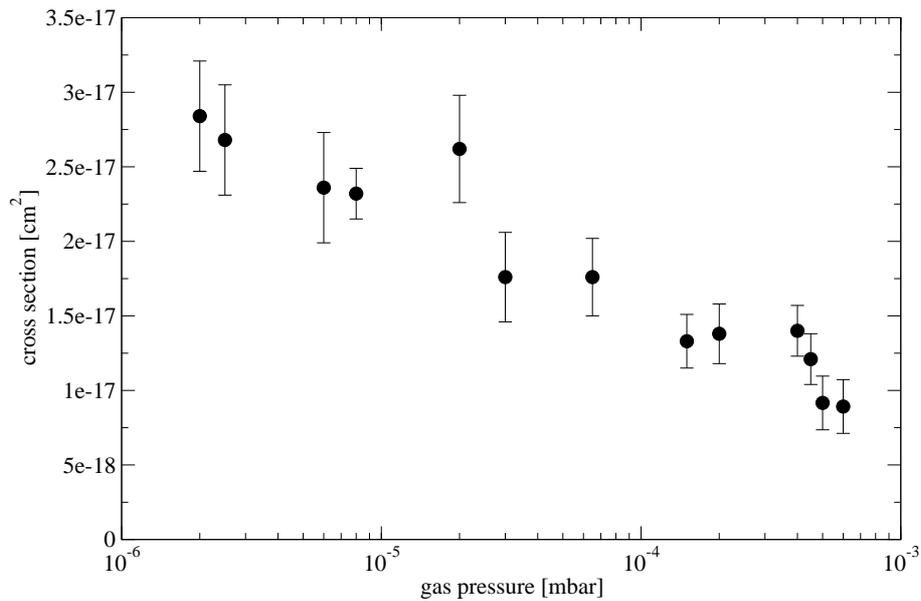


Abbildung 6.6: Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts für die Reaktion  $Bi^{4+} + Bi^{4+} \rightarrow Bi^{3+} + Bi^{5+}$  bei einer Schwerpunktsenergie von  $E_{cm} = 7.06 \text{ keV}$  vom Druck des Gastargets zur Schwächung der metastabilen Ionen (Trassl, 1999).

Abbildung 6.7), ein mit 7.62 m Umfang sehr kleiner und kompakter Speicherring. Dieser ist ausgelegt für sowohl positive als auch negative atomare und molekulare Ionen mit Massen bis 840 amu. Die möglichen Energien im Bereich einiger 10 keV entsprechen genau jenen im Giessener Ion-Ion-Experiment verwendeten Energien. Das Problem in Bezug auf ein *crossed-beams* Experiment liegt aber in der relativ kurzen Lebensdauer des gespeicherten Strahls. Diese Lebensdauer wird im wesentlichen durch ladungsändernde Stöße mit dem

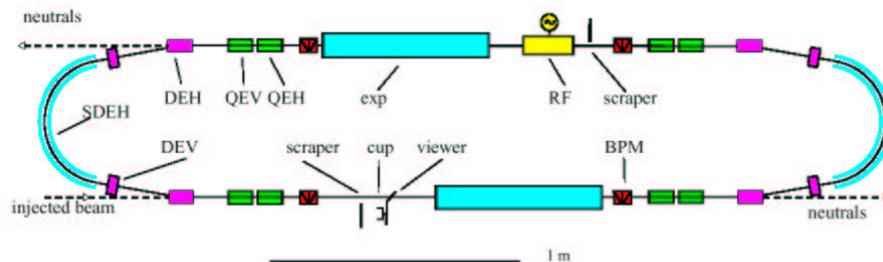


Abbildung 6.7: Schematische Darstellung des elektrostatischen Speicherrings ELISA der Universität Aarhus (Moller und Pedersen, 1999). Es bedeuten: SDEH -  $160^\circ$  sphärische elektrostatische Ablenker, DEH -  $10^\circ$  elektrostatische Ablenkplatten, QEV/V - elektrostatische Quadrupol-Doublets.

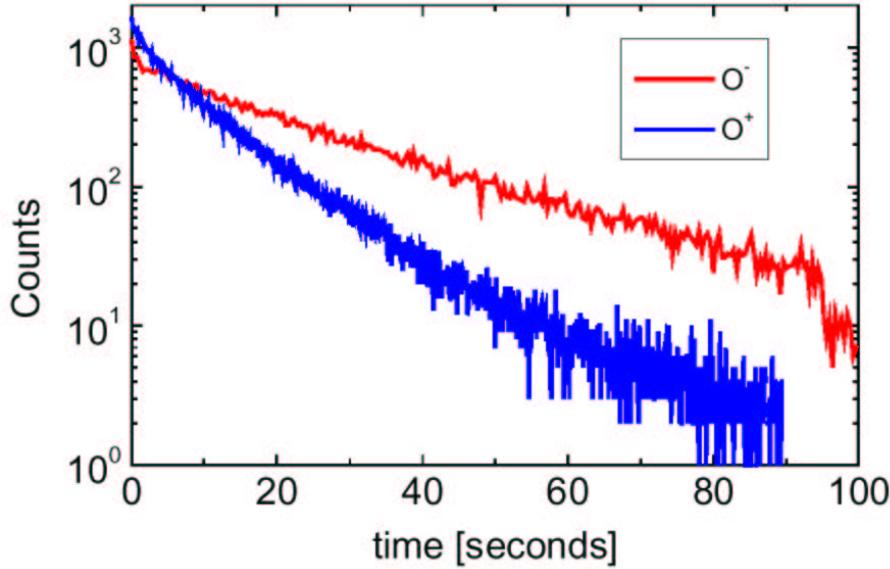


Abbildung 6.8: Abnahme der Strahlintensität im Speicherring ELISA als Funktion der Zeit für  $O^+$  und  $O^-$  Ionen bei 22 keV Energie (Moller und Pedersen, 1999).

Restgas bestimmt, deren Wirkungsquerschnitte gerade bei diesen niedrigen Energien recht hoch sind. Abbildung 6.8 zeigt die Abnahme der Strahlintensität mit der Zeit für 22 keV  $O^+$  bei einem Vakuum im Speicherring von einigen  $10^{-11}$  mbar. Die Lebensdauer beträgt nur etwa 11 s (Moller und Pedersen, 1999). Bei höher geladenen Ionen ist mit noch kürzeren Lebensdauern zu rechnen. Geht man von anfangs  $10^8$  gespeicherten Ionen aus (Moller, 1998), so entspricht dies bei 20 keV  $Xe^{2+}$  einem Ionenstrom von etwa  $I_0 = 360$  nA. Dies ist mit den ERZ-Quellen im Giessener Ion-Ion-Experiment ebenfalls erreichbar. Bei einer Speicherzeit von  $t = 60$  s jedoch entspricht dies mit einer Lebensdauer von  $\tau = 11$  s nach

$$\bar{I} = I_0 \frac{\tau}{t} \left( 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \right) \quad (6.7)$$

nur einem durchschnittlichen Strom von  $\bar{I} = 65$  nA. Dabei ist durchaus von einer noch kürzeren Lebensdauer bei höher geladenen Ionen auszugehen. Zudem treten bei der Speicherung solcher intensiver Ionenstrahlen im Speicherring ELISA auch zusätzliche intensitätsabhängige Verluste auf (Moller und Pedersen, 1999; Moller *et al.*, 2000), die momentan die maximale Strahlintensität auf etwa  $10^7$  Ionen limitieren. Es gibt somit zur Zeit keine Möglichkeit, den Anteil an metastabilen Ionen derart zu reduzieren, daß mit ausreichender Strahlintensität systematische Untersuchungen an mehreren Stoßsystemen über einen weiten Bereich an Relativgeschwindigkeiten durchgeführt werden können.

Detailliertere Informationen über metastabile Zustände erhält man mittels der Elektronenstoßionisation (siehe z.B. Gregory *et al.* (1990)):



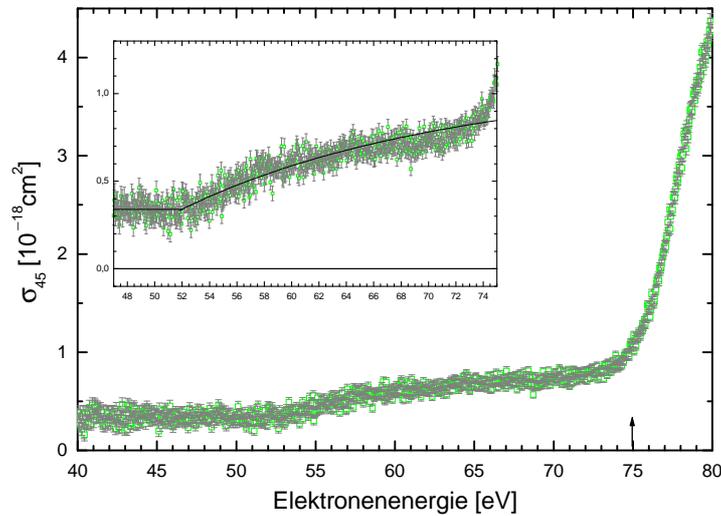


Abbildung 6.9: Totaler Wirkungsquerschnitt der Reaktion  $Ar^{4+} + e^{-} \rightarrow Ar^{5+} + 2 e^{-}$  in Abhängigkeit von der Elektronenenergie im Bereich der Einsatzschwelle für den Grundzustand (Pfeil) (Diehl, 2001). Die Fehlerbalken geben den statistischen Fehler des 95% Konfidenzintervalls wieder. Die eingezeichnete Kurve ist ein Fit der Lotzformel an den Anteil der metastabilen Ionen.

Diese ist nur möglich, wenn die Elektronenenergie größer ist als die Ionisationsenergie des Zustandes. Misst man nun den Ionisationsquerschnitt als Funktion der Elektronenenergie, so ist dieser Null für alle Elektronenenergien unterhalb der Ionisationsenergie. Dann steigt er steil an. Durch Messung dieses Schwellenverhaltens erhält man somit die Ionisationsenergie des angeregten Zustandes. Abbildung 6.9 zeigt exemplarisch eine solche Messung für  $Ar^{4+}$  (Diehl, 2001) an der Giessener 14 GHz EZR-Quelle (Schlapp, 1995; Brötz, 2000). Die Einsatzschwelle für Ionisation aus dem  $Ar^{4+}$  Grundzustand bei 75 eV ist durch einen Pfeil gekennzeichnet. Man sieht deutlich, daß der Wirkungsquerschnitt unterhalb dieser Schwelle nicht auf Null zurückgeht. Vielmehr ist eine weitere Einsatzschwelle bei etwa 52 eV erkennbar, die zur Ionisation aus einem angeregten metastabilen Zustand gehören muss.

Mit dem oben erwähnten Atomstrukturprogramm GRASP (Dyall *et al.*, 1989) kann man dieser Einsatzschwelle den angeregten Zustand  $3s^23p3d$  mit Gesamtdrehimpuls  $L = 3$  und einer Anregungsenergie von 23.4 eV zuweisen (siehe Tabelle 6.3). Mit GRASP ist es ferner möglich, auch Lebensdauern zu berechnen. Hierbei zeigt sich, daß der  ${}^3F_4$  Zustand ( $J = 4$ ) mit einer berechneten Lebensdauer von 0.13 s am langsamsten zerfällt.

Genauere Untersuchungen über Anregungsenergien, Übergangswahrscheinlichkeiten und Lebensdauern silizium-ähnlicher Ionen wie z.B.  $Ar^{4+}$  wurden von Kohstall *et al.* (1998) durch Erweiterung (Fritzsche und Froese Fischer, 1997; Fritzsche und Grant, 1997) des

	Grundzustand	angeregter Zustand			
	Ionisationsenergie	Konfiguration	Ionisationsenergie	Lebensdauer	Anteil
Ar <sup>4+</sup>	75 eV	3s <sup>2</sup> 3p3d	51.6 eV	0.13 s	12%
Kr <sup>4+</sup>	75 eV		41 eV		18%
Xe <sup>4+</sup>	54 eV	5s <sup>2</sup> 5p5d	33.3 eV	0.07 s	29%

Tabelle 6.3: Mittels Elektronenstoßionisation untersuchte metastabile Zustände vierfach geladener Ionen (Diehl, 2001). Die Lebensdauer für den angeregten Ar<sup>4+</sup>-Zustand wurde Kohstall et al. (1998) entnommen. Alle anderen Lebensdauern wurden mit dem Atomstrukturprogramm GRASP (Dyall et al., 1989) berechnet.

Atomstrukturprogrammes GRASP92 (Parpia *et al.*, 1996), einem Ableger des oben verwendeten GRASP Programms (Dyall *et al.*, 1989), berechnet. Dabei wurden der 3s<sup>2</sup>3p<sup>2</sup> Grundzustand und die angeregten Zustände 3s3p<sup>3</sup> und 3s<sup>2</sup>3p3d berücksichtigt. Entsprechend der Feinstrukturaufspaltung wurden somit 27 Zustände berechnet. Die Rechnungen zeigen, daß bis auf den angeregten <sup>3</sup>F<sub>4</sub> Zustand (3s<sup>2</sup>3p3d J = 4) alle angeregten Zustände mittels E1 Übergängen, zum Teil verbunden mit Änderung des Spins, in den Grundzustand 3s<sup>2</sup>3p<sup>2</sup> übergehen. Der angeregte <sup>3</sup>F<sub>4</sub> Zustand hingegen zerfällt entweder über verbotene M2 Übergänge in das 3s<sup>2</sup>3p<sup>2</sup> J = 2 Niveau des Grundzustandes oder über schwache M1 und E2 Übergänge in niedrigere Niveaus gleicher Parität. Die Lebensdauer des angeregten Zustandes wird von Kohstall et al. zu 0.134 s in der Längeneichung und 0.107 s in der Geschwindigkeitseichung angegeben. Diese Differenz zwischen den beiden verwendeten Eichungen kann man als ein Maß für den Fehler der Rechnung ansehen. Bei den hohen Lebensdauern von über 0.1 s erreicht der metastabile Anteil des Ionenstrahls praktisch ungeschwächt die Wechselwirkungszone.

Kennt man die Wirkungsquerschnitte für Elektronenstoßionisation aus dem Grundzustand und aus dem angeregten metastabilen Zustand, so kann man den Anteil der metastabilen Ionen berechnen. Obwohl in den letzten Jahren auf dem Gebiet der theoretischen Berechnung von Wirkungsquerschnitten für die Elektronenstoßionisation große Fortschritte erzielt wurden, liegen nicht für alle interessierenden Stoßsysteme verlässliche Rechnungen vor. Wie schon in 3.1 erwähnt, ist insbesondere die Behandlung mehrerer Elektronen im Kontinuum aufgrund der sehr langreichweitigen Coulombkraft schwierig. Einfache Skalierungsgesetze und semiempirische Formeln sind deshalb oft die einzige Möglichkeit, näherungsweise Vorhersagen und Abschätzungen von Ionisationsquerschnitten zu erhalten. Ein Überblick ist in Younger (1985) zu finden.

Der am meisten verbreitete Ansatz zur Abschätzung von Wirkungsquerschnitten für die direkte Einfachionisation durch Elektronen der Energie  $E$  ist die semiempirische Formel von Lotz (Lotz, 1967, 1968, 1969, 1970):

$$\sigma(E) = \sum_i a_i n_i \frac{\ln(E/E_i)}{E \cdot E_i} \{1 - b_i \exp[-c_i(E/E_i - 1)]\} \quad (6.9)$$

für  $E \geq E_i$ . Die Summation erfolgt hierbei über alle beteiligten Unterschalen  $i$  mit  $n_i$

Elektronen der Bindungsenergie  $E_i$ . Die Konstanten  $a_i$ ,  $b_i$  und  $c_i$  werden empirisch so ermittelt, daß vorhandene experimentelle Daten möglichst gut wiedergegeben werden. Sie sind für Atome und Ionen in niedrigen Ladungszuständen tabelliert (Lotz, 1970). Der Fehler der semiempirischen Formel wird von Lotz selbst zu  $+40/-30\%$  angegeben.

Liegen für Ionen keine Werte der Konstanten vor, wie z.B. im Falle von  $\text{Ar}^{4+}$ , so kann  $a_i = 4.5 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2$  und  $b_i = c_i = 0$  gesetzt werden. Der Wirkungsquerschnitt für die direkte Ionisation aus dem metastabilen Zustand  $3s^23p3d J = 4$  läßt sich nach der Lotz-Formel also beschreiben als:

$$\sigma_m(E) = s + 4.5 \cdot 10^{-14} f \frac{\ln(E/E_a)}{E \cdot E_a} \quad (6.10)$$

wobei  $E_a = 51.6 \text{ eV}$  die Bindungsenergie des angeregten  $3d$  Elektrons ist. Die additive Konstante  $s$  berücksichtigt, daß auch unterhalb der Ionisationsschwelle für den angeregten Zustand der Wirkungsquerschnitt nicht Null wird. Der absolute Wirkungsquerschnitt nach der Lotz-Formel wird schließlich mit dem Anteil  $f$  der metastabilen Ionen skaliert. Durch Anpassung an die Messwerte (siehe Abb. 6.9) kann dieser Anteil bestimmt werden. Für  $\text{Ar}^{4+}$  ergibt sich somit ein Anteil metastabiler Ionen von 12%.

Ähnliche Messungen wurden auch für  $\text{Kr}^{4+}$  und  $\text{Xe}^{4+}$  durchgeführt (Diehl, 2001). Auch für Xenon kann mittels GRASP der metastabile Zustand analog zu  $\text{Ar}^{4+}$  als ein  $5s^25p5d J = 4$  Niveau identifiziert werden (siehe Tabelle 6.3). Die Anteile an metastabilen Ionen wurden zu 18% für  $\text{Kr}^{4+}$  und 29% für  $\text{Xe}^{4+}$  bestimmt.

Selbstverständlich lassen sich die mittels Elektronenstoßionisation ermittelten Anteile an metastabilen Ionen nicht direkt auf die oben diskutierten Ergebnisse für den Elektronentransfer im Ion-Ion-Stoß übertragen, die mit einem völlig anderen experimentellen Aufbau und insbesondere anderen EZR-Ionenquellen gemessen wurden. Man kann jedoch davon ausgehen, daß für die Stoßsysteme  $\text{Ar}^{4+} + \text{Ar}^{4+}$ ,  $\text{Kr}^{4+} + \text{Kr}^{4+}$  und  $\text{Xe}^{4+} + \text{Xe}^{4+}$  die metastabilen Ionen ebenfalls im  $ns^2npnd J = 4$  Zustand mit  $n=3,4,5$  und Lebensdauern im Bereich um 0.1 s vorliegen. Auch der durch Elektronenstoßionisation festgestellte Trend, daß schwerere Ionen einen höheren Anteil an metastabilen Ionen besitzen, spiegelt sich in den gemessenen Wirkungsquerschnitten zum Elektronentransfer wider. Das Stoßsystem  $\text{Ar}^{4+} + \text{Ar}^{4+}$  zeigt noch eine ausgeprägte Abhängigkeit des Wirkungsquerschnittes von der Relativgeschwindigkeit, während bei  $\text{Xe}^{4+} + \text{Xe}^{4+}$  keine Abhängigkeit beobachtet werden kann. Dies läßt ebenfalls auf einen deutlich höheren Anteil metastabiler Ionen im  $\text{Xe}^{4+}$ -Strahl im Vergleich zum  $\text{Ar}^{4+}$ -Strahl schließen.

### 6.1.3 Vergleich mit der Theorie

Da es sich bei den hier diskutierten Systemen um Vielelektronensysteme handelt, gestalten sich theoretische Berechnungen der Wirkungsquerschnitte als äußerst schwierig. Der oben diskutierte Einfluss des Q-Wertes bei gleicher Elektronenkonfiguration kann nur als Anhaltspunkt dienen, aber nicht mehr. Hinzu kommt, daß bei den sehr niedrigen Relativgeschwindigkeiten deutlich unterhalb der klassischen Bahngeschwindigkeit des aktiven Elektrons sich die Elektronen adiabatisch auf das veränderliche Zweizentrenpotential einstellen können. In diesem Fall wäre die schwierigere Entwicklung der Wellenfunktion nach

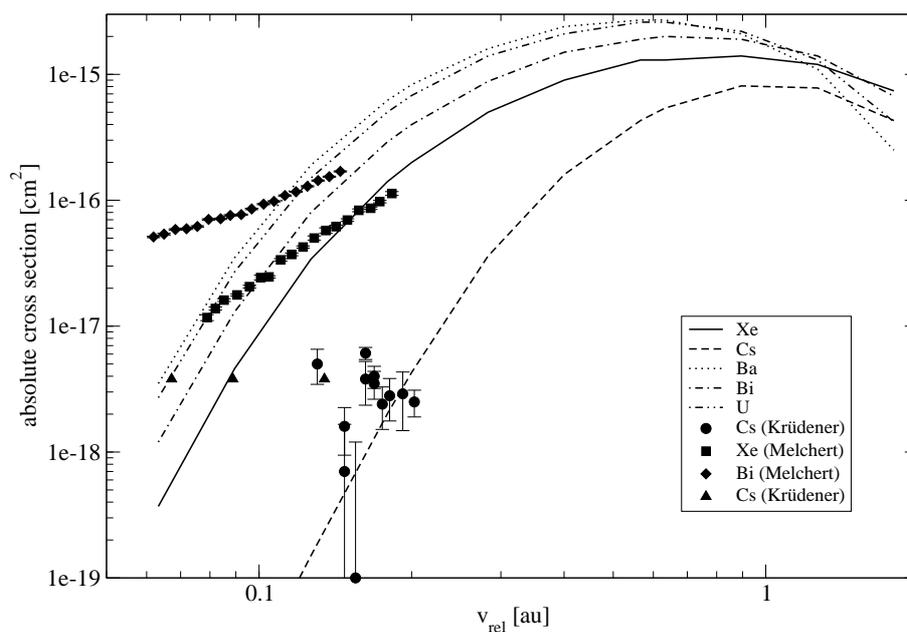


Abbildung 6.10: Gerechnete Wirkungsquerschnitte von Shevelko (2000) für die Stoßsysteme  $X^+ + X^+ \rightarrow X^{0+} + X^{2+}$  im Vergleich zu experimentellen Ergebnissen. Theorie: durchgezogene Linie - Xe, gestrichelte Linie - Cs, punktierte Linie - Ba, strich-punktierte Linie - Bi und strich-doppelt-punktierte Linie - U. Experimente: Kreise - Cs (Peart et al., 1981a), Dreiecke - Cs (Krüdener, 1992), Quadrate - Xe (Melchert, 1987) und Rauten - Bi (Melchert et al., 1989).

molekularen Orbitalen die bevorzugte Methode im Gegensatz zur Entwicklung nach atomaren Orbitalen, welche bei größeren Relativgeschwindigkeiten gute Ergebnisse liefert.

Systematische Rechnungen für viele Stoßsysteme einfach und vierfach geladener Ionen wurden von Shevelko (2000) durchgeführt. Abbildung 6.10 zeigt die gerechneten Wirkungsquerschnitte im Vergleich zu den vorhandenen experimentellen Daten. Die Rechnungen wurden mit dem Computerprogramm CAPTURE (Shevelko, 2000; Tolstikhina und Shevelko, 2000) in der Stoßparameter-Darstellung mit atomaren Wellenfunktionen durchgeführt. Experimentelle Daten existieren nur für die Stoßsysteme  $Xe^+$  (Melchert, 1987),  $Cs^+$  (Peart et al., 1981a; Krüdener, 1992) und  $Bi^+$  (Melchert et al., 1989) bei vergleichsweise niedrigen Relativgeschwindigkeiten. Qualitativ spiegelt sich das von der Theorie vorhergesagte ansteigende Verhalten des Wirkungsquerschnittes in den experimentellen Daten für  $Xe^+$  und  $Bi^+$  wider, auch wenn der experimentell gefundene Anstieg nicht so steil verläuft. So sind bei sehr niedrigen Relativgeschwindigkeiten die gemessenen Wirkungsquerschnitte deutlich höher als die gerechneten. Bei höheren Geschwindigkeiten nähern sich die experimentellen Werte den theoretischen Vorhersagen an. Entsprechend der obigen Diskussion über metastabile Ionen wäre eine mögliche Erklärung für diese Diskrepanz ein nicht zu vernachlässigender Anteil metastabiler Ionen im Strahl. Die Erzeugung von  $Cs^+$  durch eine

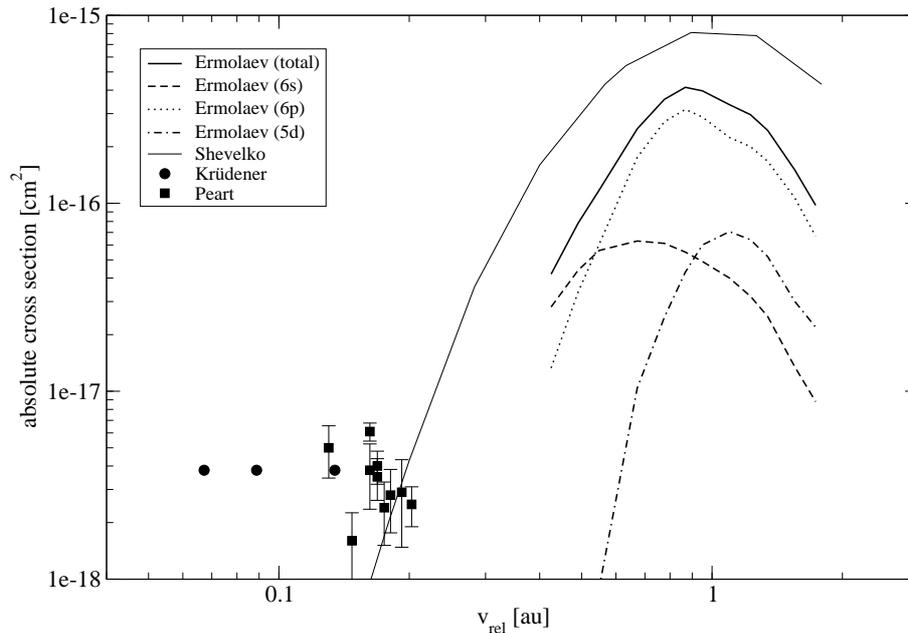


Abbildung 6.11: Gerechnete Wirkungsquerschnitte von Shevelko (2000) (dünne Linie) und experimentelle Daten von Peart et al. (1981a) (Quadrate) und Krüdener (1992) (Kreise) für das Stoßsystem  $\text{Cs}^+ + \text{Cs}^+ \rightarrow \text{Cs}^{0+} + \text{Cs}^{2+}$  im Vergleich zu Rechnungen von Ermolaev et al. (1982) (durchgezogene Linie - totaler Wirkungsquerschnitt, gestrichelte Linie - Einfang in 6s, gepunktete Linie - Einfang in 6p und strich-punktierte Linie - Einfang in 5d).

Oberflächen-Ionisations-Quelle, wie von Krüdener (1992) verwendet, führt jedoch nicht zur Erzeugung metastabiler Ionen. Andererseits ist auch zu bedenken, daß gerade bei den sehr niedrigen Relativgeschwindigkeiten die mit atomaren Wellenfunktionen berechneten Wirkungsquerschnitte mit unter Umständen großen Fehlern behaftet sein können. So liegt der gemessene Wirkungsquerschnitt für  $\text{Xe}^+$  bei den drei höchsten Relativgeschwindigkeiten unterhalb dem berechneten Wert. Dies kann mit metastabilen Ionen nicht erklärt werden. Das gleiche Verhalten ist ansatzweise auch bei  $\text{Xe}^{4+}$  und deutlich ausgeprägt bei  $\text{Bi}^{4+}$  zu beobachten (siehe Abbildung 6.12).

Der im Vergleich zu  $\text{Xe}^+$  und  $\text{Bi}^+$  sehr niedrige Wirkungsquerschnitt von  $\text{Cs}^+$  wird qualitativ ebenfalls von den theoretischen Rechnungen wiedergegeben. Dieser niedrige Querschnitt ist eine direkte Folge der Edelgaskonfiguration des  $\text{Cs}^+$ -Ions. Für dieses Stoßsystem existieren auch Rechnungen von Ermolaev et al. (1982). Auch hier handelt es sich um eine Zwei-Zustands-Näherung in der Stoßparameter-Darstellung. Dabei werden atomare Basisfunktionen mit ebenen Wellen als Translationsfaktoren verwendet. Abbildung 6.11 zeigt diese Rechnungen im Vergleich zu den Rechnungen von Shevelko (2000) und den experimentellen Daten von Peart et al. (1981a) und Krüdener (1992). Beide Rechnungen ergeben die gleiche Lage des Maximums bei  $v_{\text{rel}} \approx 1$ , unterscheiden sich aber signifikant in der

Höhe. Im Maximum ergeben die Rechnungen von Shevelko einen um den Faktor 2 höheren Wirkungsquerschnitt als die Rechnungen von Ermolaev *et al.*. Zu niedrigeren und höheren Relativgeschwindigkeiten nimmt die Diskrepanz eher zu. Ein anderes Stoßsystem, für welches es außer von Shevelko auch noch andere Rechnungen gibt, ist der Elektronentransfer in  $\text{Ba}^+ + \text{Ba}^+$  Stößen. Hierfür wurden von Sramek *et al.* (1980) für Stoßenergien zwischen 25 und 500 keV semi-klassische Rechnungen durchgeführt. Die Bewegung der Kerne wurde durch eine geradlinige, klassische Trajektorie beschrieben. Als Basiszustände wurden jedoch molekulare Eigenzustände verwendet, die mit einer *multiconfiguration valance-bond* (MCVB) Methode (Gallup, 1972a,b) berechnet wurden. Auch hier sind im Vergleich die von Shevelko berechneten Wirkungsquerschnitte größer als die von Sramek *et al.* berechneten. Allerdings ist der Unterschied sehr gering. Die maximale Abweichung im überlappenden Energiebereich beträgt knapp einen Faktor 2 und liegt im allgemeinen signifikant niedriger.

Ermolaev *et al.* (1982) haben neben den totalen Wirkungsquerschnitten auch die Abhängigkeit vom Endzustand untersucht, in den das Elektron eingefangen wird. Als Ausgangszustand wurde immer ein 5p Zustand betrachtet. Die Ergebnisse sind ebenfalls in Abbildung 6.11 dargestellt. Dabei zeigt sich, daß der Einfang in den angeregten 6p Zustand des neutralen Cs der dominante Prozess ist. Nur bei sehr niedrigen Relativgeschwindigkeiten dominiert der Einfang in den 6s Grundzustand. Der Einfang in den ferner betrachteten angeregten 5d Zustand trägt hingegen nur unwesentlich zum totalen Wirkungsquerschnitt bei.

Abbildung 6.12 zeigt die von Shevelko (2000) berechneten Wirkungsquerschnitte für die Stoßsysteme  $\text{X}^{4+} + \text{X}^{4+}$  mit  $\text{X} = \text{Xe}, \text{Pb}, \text{Bi}$  und  $\text{U}$ . Die experimentellen Daten für die Stoßsysteme  $\text{Xe}^{4+}$ ,  $\text{Pb}^{4+}$  und  $\text{Bi}^{4+}$  (Trassl *et al.*, 2000, 2001) sind ebenfalls eingezeichnet. Keines dieser drei experimentell untersuchten Stoßsysteme gibt die erwartete Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts von der Relativgeschwindigkeit auch nur ansatzweise wieder. Diese Unabhängigkeit der Messungen von der Relativgeschwindigkeit wurde oben bereits im Zusammenhang mit metastabilen Zuständen in den Ionenstrahlen diskutiert. Sie erschwert einen Vergleich mit der Theorie natürlich erheblich. Wie aber bereits bei der Diskussion der Stoßsysteme einfach geladener Ionen weiter oben erwähnt, würde man bei metastabilen Ionen einen höheren Wirkungsquerschnitt erwarten als von der Theorie für den Grundzustand berechnet. Die Tatsache, daß insbesondere für  $\text{Bi}^{4+}$  über einen großen Bereich der Relativgeschwindigkeit ein signifikant niedrigerer Wirkungsquerschnitt gemessen wurden, als die Theorie vorhersagt, läßt sich somit von experimenteller Seite nicht wegdiskutieren. Dies und die geringe Anzahl zur Verfügung stehender theoretischer Betrachtungen zeigen deutlich die Problematik der Behandlung solcher schweren Vielelektronensysteme, sowohl von theoretischer als auch von experimenteller Seite.

## 6.2 Ionisation

Bis vor kurzem gab es nur sehr wenige experimentelle Messungen von Ionisationsquerschnitten in homonuklearen Stößen schwerer Ionen. Lediglich Krüdener (1992), Melchert (1987) und Melchert *et al.* (1989) bestimmten absolute Ionisationsquerschnitte für die Stoßsysteme

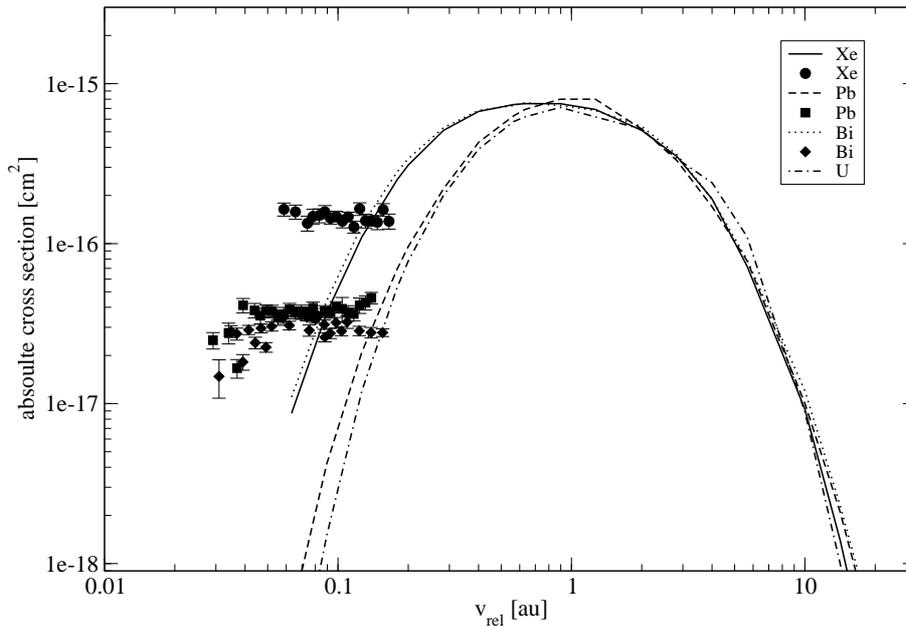


Abbildung 6.12: Gerechnete Wirkungsquerschnitte von Shevelko (2000) für die Stoßsysteme  $X^{4+} + X^{4+} \rightarrow X^{3+} + X^{5+}$  im Vergleich zu experimentellen Ergebnissen. Theorie: durchgezogene Linie - Xe, gestrichelte Linie - Pb, punktierte Linie - Bi, und strich-punktierte Linie - U. Experimente (Trassl et al., 2000, 2001): Kreise - Xe, Quadrate - Pb und Dreiecke - Bi.

$Cs^+ + Cs^+$ ,  $Xe^+ + Xe^+$  und  $Bi^+ + Bi^+$ . Die Ergebnisse sind in Abbildung 6.13 dargestellt. Bemerkenswert ist vor allem der im Vergleich zum Ladungstransfer sehr hohe Wirkungsquerschnitt für die Ionisation im Stoßsystem  $Cs^+ + Cs^+$ . Dies ist in Übereinstimmung mit theoretischen Untersuchungen von Olson und Liu (1981). Diese berechneten die Wechselwirkungsenergien des  $X^1\Sigma_g^+$  Grundzustandes von  $Cs^+ + Cs^+$  und des doppelt angeregten  $^1\Sigma_g^+$  Zustandes von  $Cs^{+*} + Cs^{+*}$  mittels einer *self-consistent-field* Methode. Sie fanden, daß bei niedrigen Energien die Ionisation der dominante Prozess ist gegenüber dem Ladungstransfer und berechneten einen Wirkungsquerschnitt von  $3 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$  bei einer Stoßenergie von 50 keV ( $v_{rel} = 0.17 \text{ au}$ ). Dieser Wert ist im Einklang mit den Messungen von Krüdener.

Deutlich mehr Messungen gibt es für den totalen Verlustquerschnitt, d.h. die Summe aus Ladungstransfer- und Ionisationsquerschnitt. Allerdings wurden auch hier fast ausschließlich einfach geladene Ionen untersucht. Tabelle 6.4 gibt einen Überblick, über die untersuchten Stoßsysteme mit einfach geladenen Ionen. Eine ausführliche Diskussion findet sich in Melchert (1997).

Die ersten Messungen an mehrfach geladenen Ionen wurden von Kim und Janev (1987) an den Stoßsystemen  $Ar^{3+} + Ar^{3+}$  und  $Kr^{3+} + Kr^{3+}$  durchgeführt. Auch hier wurde nur der totale Verlustquerschnitt gemessen. Das Experiment selbst unterscheidet sich signifikant

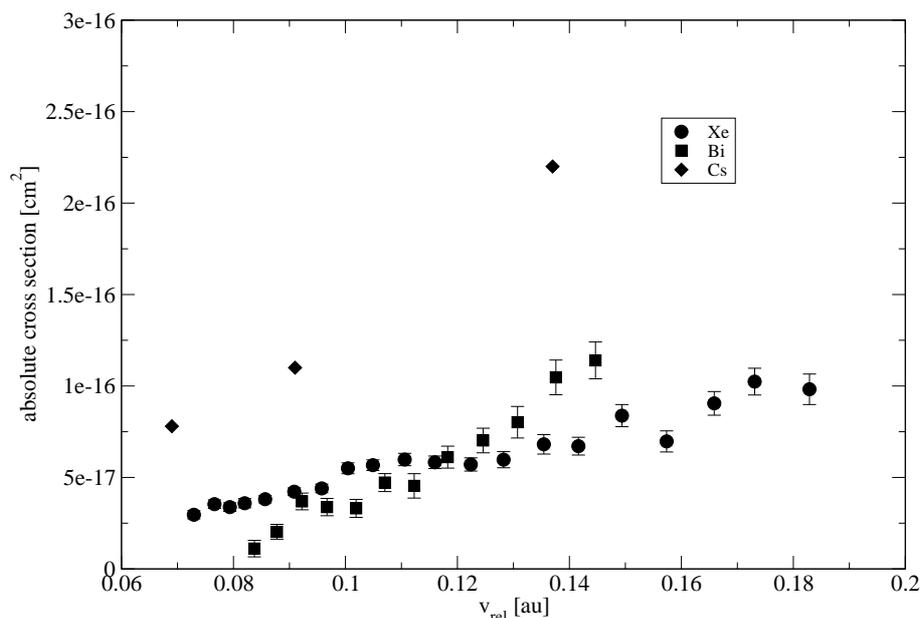


Abbildung 6.13: Absolute Wirkungsquerschnitte für die Ionisationsreaktionen  $X^+ + X^+ \rightarrow X^+ + X^{2+} + e^-$  mit  $X = Xe$  (Kreise) (Melchert, 1987),  $Bi$  (Quadrat) (Melchert et al., 1989) und  $Cs$  (Rauten) (Krüdener, 1992).

von den sonst üblichen *crossed-beams* bzw. *merged-beams* Experimenten, die zur Untersuchung von Ion-Ion-Stößen zum Einsatz kommen. Im Experiment von Kim und Janev wird der einlaufende Ionenstrahl zunächst in einem Dipolmagneten abgelenkt und nach Impuls und Ladung analysiert. Der Strahl durchläuft dann unter UHV-Bedingungen die Wechsel-

Ion	$v_{rel}$	Referenzen
$Li^+$	0.46–1.60 au	Watts <i>et al.</i> (1984); Peart <i>et al.</i> (1981b)
$Na^+$	0.18–0.39 au	Peart <i>et al.</i> (1981d)
$K^+$	0.14–0.30 au	Peart <i>et al.</i> (1981d)
$Rb^+$	0.10–0.20 au	Peart <i>et al.</i> (1981d)
$Xe^+$	0.08–0.45 au	Angel <i>et al.</i> (1980); Melchert (1987)
$Cs^+$	0.05–0.46 au	Krüdener (1992); Peart <i>et al.</i> (1981c)
$Tl^+$	0.11–0.18 au	Dunn <i>et al.</i> (1979); Neill <i>et al.</i> (1982)
$Bi^+$	0.05–0.14 au	Melchert <i>et al.</i> (1989)

Tabelle 6.4: Überblick über die homonuklearen Stoßsysteme einfach geladener Ionen, für die absolute Verlustquerschnitte gemessen wurden, mit Angabe des untersuchten Bereichs der Relativgeschwindigkeiten.

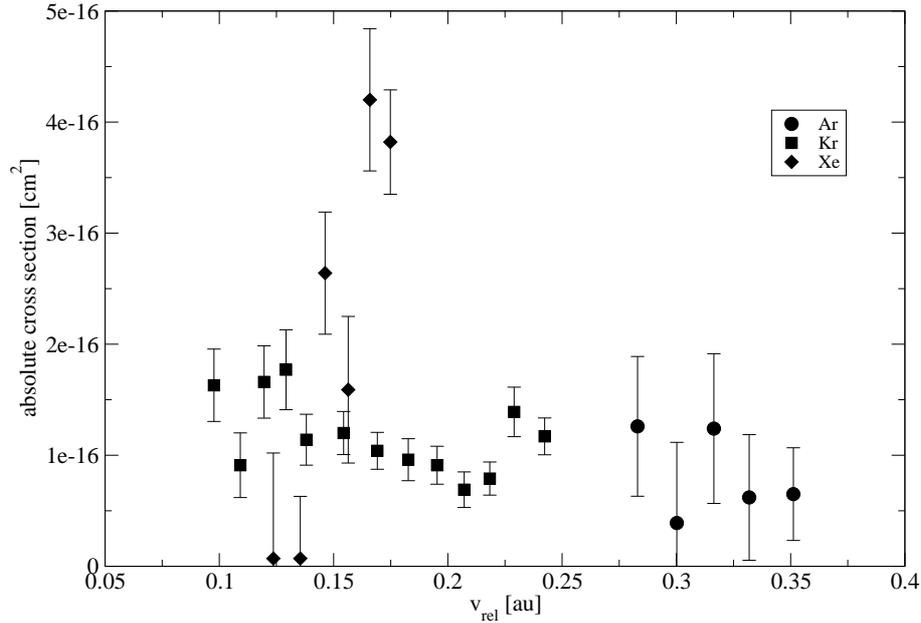


Abbildung 6.14: Absolute Wirkungsquerschnitte für die Ionisationsreaktionen  $X^{4+} + X^{4+} \rightarrow X^{4+} + X^{5+} + e^{-}$  mit  $X = \text{Ar}$  (Kreise),  $\text{Kr}$  (Quadrate) und  $\text{Xe}$  (Rauten) (Diehl et al., 2001).

wirkungszone und trifft schließlich auf einen elektrostatischen Spiegel. Dieser reflektiert den Ionenstrahl in sich selber, so daß der zurücklaufende Strahl in der Wechselwirkungszone den hinlaufenden Strahl überlagert. Der schon erwähnte Dipolmagnet trennt im Wechselwirkungsbereich umgeladene Reaktionsprodukte vom direkten Strahl. Man kann somit von einem *folded-beam* Experiment sprechen.

Von Kim und Janev wurden nur die beiden Verlustquerschnitte  $\sigma = (6.1 \pm 1.7) \times 10^{-16} \text{ cm}^2$  für  $\text{Ar}^{3+} + \text{Ar}^{3+}$  und  $\sigma = (2.9 \pm 0.8) \times 10^{-16} \text{ cm}^2$  für  $\text{Kr}^{3+} + \text{Kr}^{3+}$  bei jeweils 60 keV Schwerpunktsenergie ( $v_{\text{rel}} = 0.35 \text{ au}$  bzw.  $v_{\text{rel}} = 0.24 \text{ au}$ ) gemessen. Diese Werte sind größer als fast alle Verlustquerschnitte für homonukleare Stöße einfach geladener Ionen. Allerdings ist die Zuverlässigkeit dieser Ergebnisse nicht unumstritten. Der prinzipielle Vorteil, nur einen Ionenstrahl zu benötigen, ist gleichzeitig der gravierendste Nachteil. Die in der Wechselwirkungszone überlagerten Strahlen können nicht unabhängig von einander beeinflusst werden. Somit muss das Experiment sehr kritisch auf die Ionenoptik reagieren. Auch die Bestimmung des Strahlüberlapps bzw. dessen Variation während der Messung sind deutlich schwieriger zu bestimmen, als z.B. bei dem Giessener *crossed-beams* Experiment (siehe auch Abschnitt 2.1).

Erst Diehl *et al.* (2001) gelang die Messung von Ionisationsquerschnitten für vierfach geladene Ar-, Kr- und Xe-Ionen. Die Ergebnisse sind in Abbildung 6.14 dargestellt. Die Abbildung zeigt auch deutlich die Problematik solcher Messungen. Im Vergleich zu einfach geladenen Ionen erfordern die deutlich geringeren Ionenströme bei vierfach geladenen

Ionen eine entsprechend längere Messzeit. Allerdings kann diese auch nicht unbegrenzt verlängert werden, da es mit zunehmender Messzeit schwieriger wird, die Konstanz der Strahlparameter und des Überlapps zu garantieren. Weiterhin ändert bei der Ionisation nur ein Ion seine Ladung. Damit kann die beim Ladungstransfer angewandte Koinzidenzmethode zur effektiven Unterdrückung des Untergrundes nicht eingesetzt werden. Der um Größenordnungen höhere Untergrund bei Messungen des Ionisationsquerschnittes ist die wesentliche Ursache des großen statistischen Fehlers, der in Abbildung 6.14 zu erkennen ist. Da die eigentliche Messgröße der totale Verlustquerschnitt ist, von dem der Wirkungsquerschnitt für den Elektronentransfer abgezogen werden muss, geht natürlich auch noch der Fehler des letzteren ein. Der Fehler für den Transferquerschnitt ist jedoch gegenüber dem des Verlustquerschnittes vernachlässigbar.

Neben dem hohen statistischen Fehler zeigen aber auch die Wirkungsquerschnitte der drei Ionensorten im Vergleich untereinander ein sehr inkonsistentes Bild. Für das Stoßsystem  $\text{Xe}^{4+} + \text{Xe}^{4+}$  beobachtet man den erwarteten Anstieg des Wirkungsquerschnittes mit der Relativgeschwindigkeit. Im Vergleich zu einfach geladenen Ionen (Abb. 6.13) ist der Anstieg jedoch deutlich steiler. Zudem läßt sich eine Schwelle bei  $v_{rel} \approx 0.14$  au (entsprechend 32 keV Schwerpunktsenergie) erkennen. Im Vergleich zur Ionisationsenergie von ca. 54 eV aus dem Grundzustand von  $\text{Xe}^{4+}$  erscheint diese Schwelle sehr hoch. Im Gegensatz hierzu zeigen die Wirkungsquerschnitte für die anderen Stoßsysteme,  $\text{Ar}^{4+} + \text{Ar}^{4+}$  und  $\text{Kr}^{4+} + \text{Kr}^{4+}$ , überhaupt keine signifikante Abhängigkeit von der Relativgeschwindigkeit. Entsprechend obiger Diskussion beim Elektronentransfer wäre ein signifikanter Anteil metastabiler Ionen im Strahl eine mögliche Erklärung für dieses Verhalten. Bemerkenswert ist dabei jedoch, daß im Falle des Ladungstrfers gerade für Xenon der höchste Anteil an metastabilen Ionen festgestellt wurde.

Wie bei der Diskussion des Elektronentransferquerschnitts bereits deutlich wurde, wird dort die Abhängigkeit von der Relativgeschwindigkeit immer ausgeprägter, je niedriger der Ladungszustand ist (siehe Abbildungen 6.1, 6.2 und 6.4). Dies läßt sich auch beim Ionisationsquerschnitt beobachten. Abbildung 6.15 zeigt die kürzlich von Diehl *et al.* (2004) gemessenen Ionisationsquerschnitte für  $\text{Ar}^{2+}$ ,  $\text{Kr}^{2+}$  und  $\text{Xe}^{2+}$ . Sowohl für Ar als auch für Xe läßt sich hier ein deutlicher Anstieg des Wirkungsquerschnitts mit der Relativgeschwindigkeit beobachten. Dieser Anstieg verläuft für Xe steiler als für Ar. Eine klare Einsatzschwelle kann für Xe nicht beobachtet werden, deutet sich aber durch Extrapolation an. Für Ar hingegen ist wieder ein Schwellenverhalten erkennbar. Der Wert bei der niedrigsten Geschwindigkeit mit dem, physikalisch nicht sinnvollen, negativen Wirkungsquerschnitt fällt dabei auf. Der angegebene Fehlerbalken zeigt jedoch nur die Standardabweichung, so daß der Messwert nicht in einem Widerspruch zu einem Wirkungsquerschnitt von Null steht. Für Kr ist die Lage nicht ganz so deutlich. Auf den ersten Blick ist keine signifikante Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts von der Relativgeschwindigkeit erkennbar. Berücksichtigt man jedoch wieder, daß der dargestellte Fehler nur die Standardabweichung wiedergibt, so wäre auch ein leichter Anstieg des Wirkungsquerschnitts mit den gemessenen Daten vereinbar. Dies zeigt deutlich einen Bedarf nach weiteren Messungen mit besserer Statistik, die jedoch sehr schwer durchzuführen sind.

Abbildung 6.16 schließlich zeigt die gemessenen Wirkungsquerschnitte für die dreifach

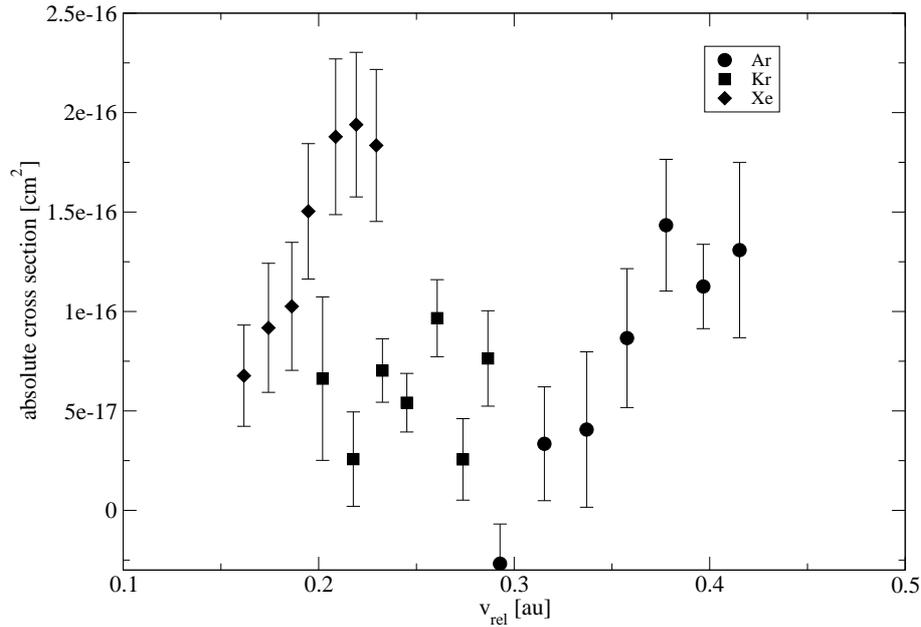


Abbildung 6.15: Absolute Wirkungsquerschnitte für die Ionisationsreaktionen  $X^{2+} + X^{2+} \rightarrow X^{2+} + X^{3+} + e^-$  mit  $X = \text{Ar}$  (Kreise),  $\text{Kr}$  (Quadrat) und  $\text{Xe}$  (Rauten) (Diehl et al., 2004).

geladenen Ionen  $\text{Ar}^{3+}$  und  $\text{Kr}^{3+}$  (Bräuning *et al.*, 2003b). Eine signifikante Abhängigkeit von der Relativgeschwindigkeit ist nicht zu beobachten. Ebenfalls dargestellt sind die aus den Messungen von Kim und Janev (1987) durch Abzug des Elektronentransferquerschnitts (Bräuning *et al.*, 2003b) abgeleiteten Ionisationsquerschnitte bei 60 keV Schwerpunktsenergie. Sie liegen konsistent über den anderen Messungen. Neben den oben erwähnten Problemen des *folded-beam* Experiments von Kim und Janev ist auch ein Einfluss metastabiler Ionen nicht ausgeschlossen. Die fehlende Abhängigkeit der Wirkungsquerschnitte von der Relativgeschwindigkeit legt diese Annahme nahe.

Die hier diskutierten Daten zeigen deutlich, daß die Bestimmung von Ionisationsquerschnitten in homonuklearen Stößen schwerer Ionen insbesondere für höhere Ladungszustände sehr schwierig ist und große Fehlerquellen aufweist. Auch liegen noch keine theoretischen Untersuchungen vor, mit denen die Messungen verglichen werden könnten. Hier ist von theoretischer als auch von experimenteller Seite ein deutlicher Bedarf vorhanden. Dies gilt insbesondere für das Problem der metastabilen Ionen von dem die Messungen des Ionisationsquerschnitts genauso betroffen sind wie die des Elektronentransferquerschnitts. Da, wie oben diskutiert, die Anteile metastabiler Ionen nur schwer zu unterdrücken sind, sind vor allem theoretische Untersuchungen nötig, welche die möglichen metastabilen Zustände identifizieren und bei der Berechnung der Querschnitte berücksichtigen.

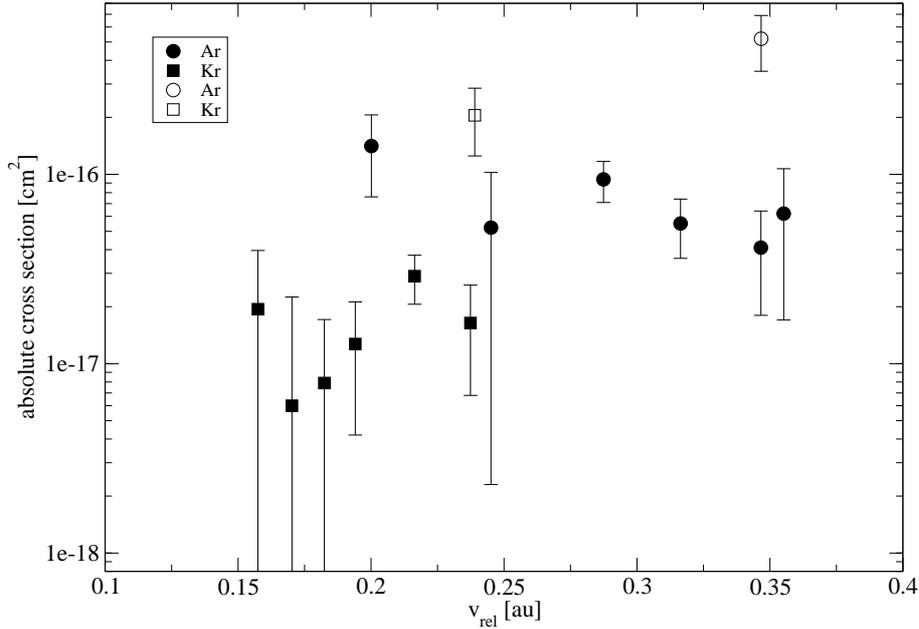


Abbildung 6.16: Absolute Wirkungsquerschnitte für die Ionisationsreaktionen  $X^{3+} + X^{3+} \rightarrow X^{3+} + X^{4+} + e^-$  mit  $X = \text{Ar}$  (Kreise) und  $\text{Kr}$  (Quadrate). Geschlossene Symbole repräsentieren Messungen von Bräuning et al. (2003b), offene Symbole die Messungen von Kim und Janev (1987) nach Abzug des Wirkungsquerschnittes für Elektronentransfer (Bräuning et al., 2003b).

### 6.3 Intensitätsverluste in Beschleunigern und Speicherringen

Unter Kenntnis der oben diskutierten Wirkungsquerschnitte für Elektronentransfer und Ionisation ist es möglich, Verluste in Speicherringen und Beschleunigern aufgrund von *intra-beam* Stößen abzuschätzen. Hierbei ist zu beachten, daß unter dem Begriff "*intra-beam* Stöße" im folgenden grundsätzlich ladungsändernde Stöße zu verstehen sind im Gegensatz zum geläufigen Ausdruck "*intra-beam scattering*", unter dem man im Allgemeinen die elastische Streuung der Ionen im Strahl untereinander versteht. Erste Abschätzungen wurden von Melchert *et al.* (Melchert und Salzborn, 1988; Melchert *et al.*, 1989) für das HIBALL II Szenario (HIBALL II) auf Grundlage der Daten für das Stoßsystem  $\text{Bi}^+ + \text{Bi}^+$  durchgeführt. Danach können Verluste von bis zu 1.7% erwartet werden.

Zur Bestimmung der Verluste durch *intra-beam* Stöße ist es notwendig, den Wirkungsquerschnitt  $\sigma_C$  für Elektronentransfer (Gleichung 6.2) und  $\sigma_I$  für Ionisation (Gleichung 6.3) getrennt als Funktion der Relativgeschwindigkeit zu kennen. Der Verlustquerschnitt  $\sigma$  durch *intra-beam* Stöße ergibt sich dann zu

$$\sigma = 2(2\sigma_C + \sigma_I) \quad (6.11)$$

Der Wirkungsquerschnitt  $\sigma_C$  ist mit dem Faktor 2 zu wichten, da hierbei beide am Stoß beteiligten Ionen ihre Ladung ändern und somit für die Strahlführung verloren gehen. Bei der Ionisation,  $\sigma_I$ , geht nur ein Ion durch Ladungsänderung verloren. Die Wichtung der Summe mit dem Faktor 2 schließlich berücksichtigt, daß in *intra-beam* Stößen die Ionen ununterscheidbar sind, d.h. jedes der beiden Ionen kann prinzipiell das Elektron verlieren oder im Falle des Transfers gewinnen. In den *crossed-beams* Experimenten hingegen ist immer festgelegt, welcher Strahl den Elektronenverlust erleidet. Damit ist auch sofort erkennbar, daß die Kenntnis des früher meist gemessenen Elektronenverlustquerschnittes (siehe Tabelle 6.4) als Summe von  $\sigma_C$  und  $\sigma_I$  nicht ausreichend ist, um Abschätzungen über Verluste in Speicherringen zu erhalten.

Die Reaktionsrate  $R(t)$  ergibt sich dann durch Integration über das Strahlvolumen und die Teilchendichte zu

$$R(t) = \frac{1}{2} \int_V n^2(\vec{r}, t) \langle \sigma v_{rel} \rangle dV \quad (6.12)$$

wobei  $n(\vec{r}, t)$  die orts- und zeitabhängige Teilchendichte des Strahls ist. Der Ratenkoeffizient  $\langle \sigma v_{rel} \rangle$  ergibt sich aus dem Verlustquerschnitt  $\sigma$  durch Faltung mit der Verteilung  $f(v_{rel})$  der Relativgeschwindigkeiten der Ionen zu

$$\langle \sigma v_{rel} \rangle = \int_0^\infty \sigma(v_{rel}) v_{rel} f(v_{rel}) dv_{rel} \quad (6.13)$$

wobei hier nochmal die explizite Abhängigkeit des Verlustquerschnittes  $\sigma$  von der Relativgeschwindigkeit  $v_{rel}$  angegeben wurde.

Neben den oben diskutierten Problemen bei der Bestimmung des Wirkungsquerschnitts liegt die Problematik bei der Lösung dieser Gleichungen insbesondere in der notwendigen Kenntnis der Teilchendichte und der Geschwindigkeitsverteilung. Die mittlere longitudinale Relativenergie der Ionen im Strahl ist bestimmt durch die Impulsunschärfe  $\delta p$  zu

$$\delta E_{long} = \frac{1}{2} M c^2 \beta^2 \left( \frac{\delta p}{p} \right)^2 \quad (6.14)$$

wobei  $M$  die Ionenmasse und  $\beta = v/c$  die Ionengeschwindigkeit sind. Diese Impulsunschärfe kann in modernen Speicherringen, gegebenenfalls durch Einsatz eines Elektronenkühlers, stark minimiert werden. Mit den in Tabelle 6.5 angegebenen Werten für einen hypothetischen Speicherring für die Kernfusion ergibt sich eine mittlere longitudinale Relativenergie von  $E_{kin} = 32$  eV.

Die mittlere transversale Relativenergie hingegen ist durch die Anzahl der Betatron-Oszillationen  $Q$  bestimmt, welche die Ionen um die Sollbahn ausführen, und die mittlere Emittanz  $\epsilon_{rms}$ . Sie ergibt sich zu:

$$E_{tr} = E_{kin} \beta \gamma \epsilon_{rms} \frac{Q}{R} \quad (6.15)$$

wobei  $R$  der Ringradius und  $\gamma = 1/\sqrt{1-\beta^2}$  der relativistische Faktor ist. Mit den in Tabelle 6.5 angegebenen Werten ergibt sich damit eine mittlere Relativenergie von  $E_{tr} =$

Ion	Bi <sup>+</sup>
kinetische Energie $E_{kin}$	10 GeV
Anzahl der Ionen $N_0$	$3.12 \times 10^{15}$
gespeicherte Energie	5 MJ
Geschwindigkeit $\beta = v/c$	0.309
mittlere Emittanz $\epsilon_{rms}$	$2\pi \times 10^{-6}$ m rad
Betatron-Oszillationen $Q$	13.46
Ringradius $R$	110 m
Impulsunschärfe $\delta p/p$	$5.7 \times 10^{-5}$

Tabelle 6.5: *Parameter für einen Speicherring in einem typischen Fusionsszenario (Budicin et al., 1993)*

2.5 keV. Die longitudinale Relativbewegung im Ionenstrahl kann also im Vergleich zur transversalen Bewegung vernachlässigt werden.

Ein Möglichkeit, die transversale Geschwindigkeitsverteilung zu beschreiben, besteht in der Annahme, die transversale Bewegung der Ionen entsprechend einem zwei-dimensionalen Gas mit der Temperatur

$$kT = E_{kin}\beta\gamma\epsilon_{rms}\frac{Q_H}{R} \quad (6.16)$$

durch eine Maxwell-Verteilung

$$f(v_{rel}) = 4\pi \left(\frac{m}{2\pi kT}\right)^{1.5} v_{rel}^2 e^{-mv_{rel}^2/2kT} \quad (6.17)$$

zu beschreiben (Melchert *et al.*, 1989; Budicin *et al.*, 1993). Allerdings sind nach der Maxwell-Verteilung beliebig hohe Geschwindigkeiten möglich, auch wenn deren Wahrscheinlichkeit immer geringer wird. Die physikalische Begrenzung der maximalen Strahlausdehnung durch die Wände der Strahlrohre setzt aber auch eine physikalisch sinnvolle obere Grenze für die maximale transversale Relativgeschwindigkeit im Strahl. Dem kann dadurch Rechnung getragen werden, daß in Gleichung 6.13 das Integral nicht bis Unendlich ausgeführt wird, sondern nur bis zu einer maximalen Geschwindigkeit  $v_{max}$ . Die Normierung der Verteilungsfunktion  $f(v_{rel})$  über diesen reduzierten Integrationsbereich ist dabei sicherzustellen. Abbildung 6.17 (Melchert *et al.*, 1989) zeigt die Abhängigkeit des Verlustes von der oberen Integrationsgrenze für den ersten Speicherring des HIBALL II Szenarios mit  $E_{kin} = 10$  GeV,  $\epsilon_{rms} = 7.5 \times 10^{-6}$  m rad,  $Q_H = 9.85$ ,  $R = 118$  m und  $N_0 = 1.56 \times 10^{14}$  Bi<sup>+</sup> Ionen (HIBALL II). Wie weiter unten diskutiert wird, wurde eine homogene Strahldichte mit einem Strahlradius von 1.5 cm angenommen. Die erwarteten Verluste sind zunächst sehr stark abhängig von der Wahl der oberen Integrationsgrenze. Erst ab etwa  $E_{max} \approx 5kT$  geht der erwartete Verlust in eine Sättigung. Der Anteil derart hoher Geschwindigkeiten an der Maxwell-Verteilung wird vernachlässigbar gering.

Eine weitere Vereinfachung ergibt sich durch die Annahme einer homogenen Dichte im

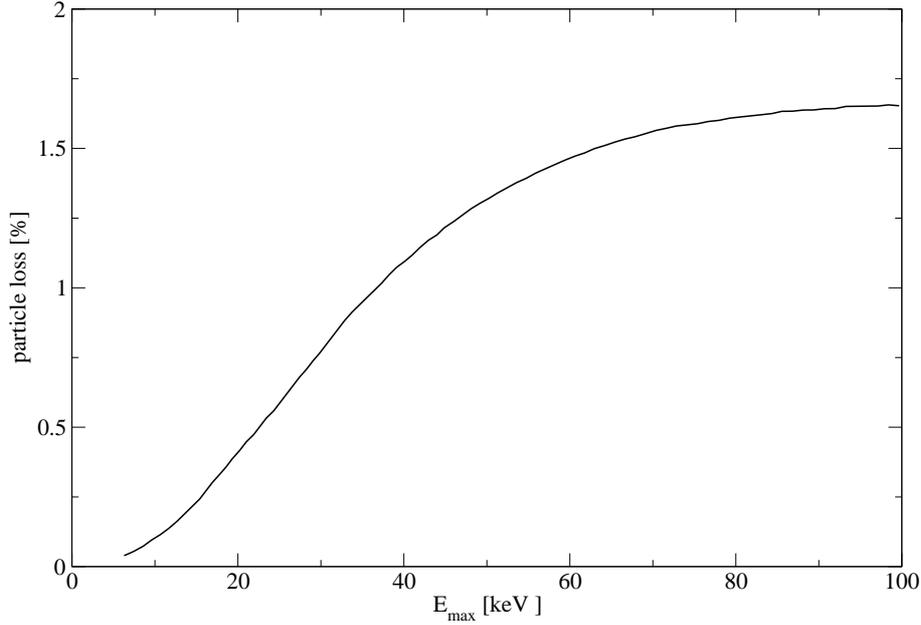


Abbildung 6.17: Erwarteter Strahlintensitätsverlust im ersten Speicherring des HIBALL II Szenarios für  $Bi^+$ -Ionen als Funktion der maximalen transversalen Relativenergie für eine Strahltemperatur von  $kT = 12.5 \text{ keV}$  und einer homogenen Strahldichte von  $1.2 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$  (Melchert et al., 1989).

Strahl:

$$n(\vec{r}, t) = n(t) = \frac{N(t)}{V} \quad (6.18)$$

Das Strahlvolumen wird bestimmt durch die Länge des Strahls  $l_b$  (d.h. bei gebunchten Strahlen die Summe aller Bunchlängen) und die mittlere Ausdehnung  $\langle x \rangle$  und  $\langle y \rangle$  des Strahles senkrecht zur Bewegungsrichtung. Die mittlere Ausdehnung ist gegeben durch die Emittanz und die Betatron-Funktionen  $\beta_{H,V}$  zu:

$$\langle x \rangle = \frac{1}{2} \sqrt{\epsilon_{rms} \hat{\beta}_H}, \quad \langle y \rangle = \frac{1}{2} \sqrt{\epsilon_{rms} \hat{\beta}_V} \quad (6.19)$$

Hierbei wurde die gleiche Emittanz in horizontaler und vertikaler Richtung angenommen. Streng genommen sind die Betatron-Funktionen aufgrund der diversen ionenoptischen Elemente abhängig vom Ort im Speicherring und damit für die Ionen aufgrund ihrer Bewegung abhängig von der Zeit. Zur Fokussierung in Speicherringen werden jedoch Quadrupol-Magnete benutzt. Diese haben die Eigenschaft, daß eine Fokussierung in der horizontalen Achse zu einer Defokussierung in der vertikalen Achse führt und umgekehrt. Die in Abbildung 6.18 dargestellten und von Budicin *et al.* (1993) berechneten horizontalen und vertikalen Betatron-Funktionen zeigen dies deutlich. Die Fläche des Strahles senkrecht zur Strahlachse kann also im Allgemeinen als konstant angesehen werden und durch die mittlere Betatron-Funktion  $\hat{\beta} = R/Q$  und die Emittanz  $\epsilon_{rms}$  bestimmt werden. Damit ergibt

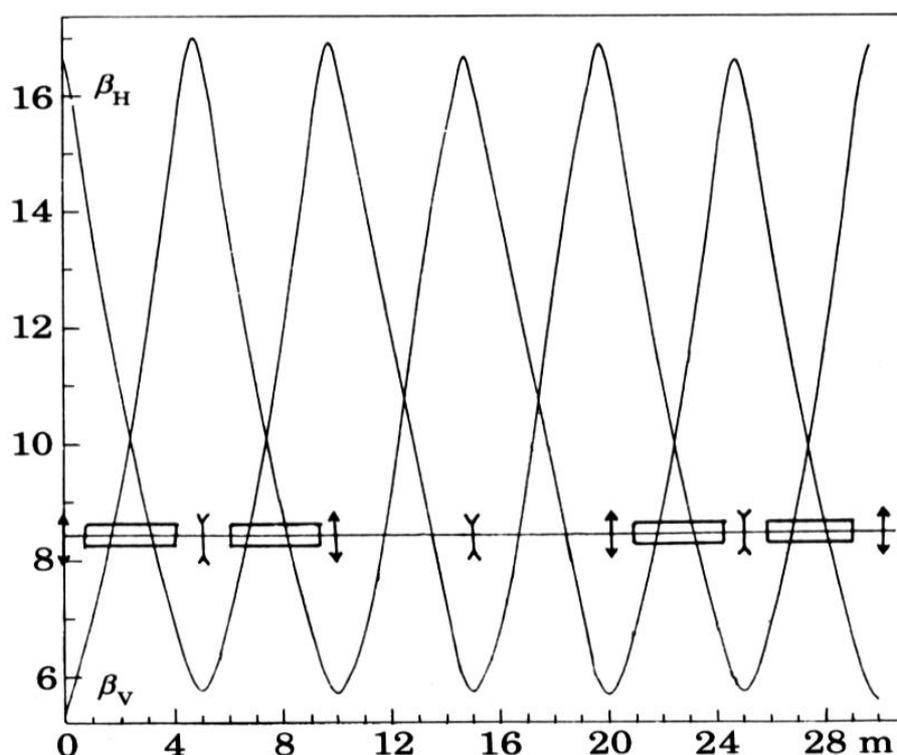


Abbildung 6.18: Von Budicin *et al.* (1993) berechnete horizontale und vertikale Betatron-Funktionen für ein Speicherringsegment mit folgender Abfolge ionenoptischer Elemente: QF, V1, D, V1, QD, V1, D, V1, QF, V2, Qd, V2, QF, V1, D, V1, QD, V1, D, V1, QF. Es bedeuten: V1 - drift (0.5 m), V2 - drift (4 m), D - Dipolmagnet (3 m,  $3.2^\circ$ ), QF - Quadrupol (1 m, 45.7 T/m) und QD - Quadrupol (1 m, -45.7 T/m).

sich das Strahlvolumen zu

$$V = \pi \epsilon_{rms} \frac{R}{Q} l_b \quad (6.20)$$

Die Abweichungen von der so bestimmten mittleren Strahldichte zur tatsächlichen Strahldichte liegen dabei typischerweise innerhalb von 20% (Trassl *et al.*, 2000, 2001). Budicin *et al.* konnten ferner zeigen, daß die Berücksichtigung von zeitabhängigen Betatron-Funktionen systematisch zu niedrigeren Verlustabschätzungen führt als eine mittlere Betatron-Funktion. Da die Verwendung zeitabhängiger Betatron-Funktionen sehr aufwendig ist und von der tatsächlichen Struktur der ionenoptischen Elemente im Ring abhängt, rechtfertigt sich die Verwendung einer mittleren Betatron-Funktion zur Berechnung eines oberen Grenzwertes von Strahlverlusten.

Abbildung 6.19 zeigt die von Budicin *et al.* berechneten Verluste für den in Tabelle 6.5 aufgeführten Speicherring für  $\text{Bi}^+$  und  $\text{Au}^-$  Ionen als Funktion der Emittanz. Beide Ionen zeigen gegensätzliche Tendenzen aufgrund der Abhängigkeit ihrer Wirkungsquerschnitte von der Relativgeschwindigkeit. Bei  $\text{Bi}^+$  steigen sowohl Ionisations- (Abbildung 6.13) als

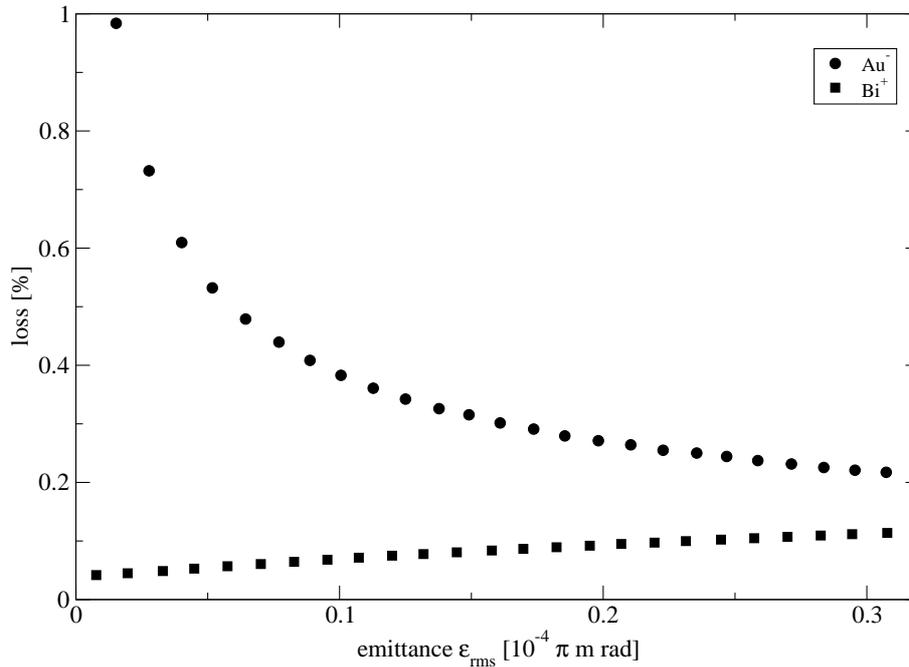


Abbildung 6.19: Erwartete Strahlintensitätsverluste als Funktion der Emittanz bei 1 ms Speicherzeit und den in Tabelle 6.5 aufgeführten Parametern für  $\text{Bi}^+$  (Quadrate) und  $\text{Au}^-$  (Kreise) (Budicin et al., 1993). Als maximale transversale Relativenergie wurde  $E_{\text{max}} = 4kT$  angenommen.

auch Transferquerschnitt (Abbildung 6.10) mit der Relativgeschwindigkeit an. Da die Relativgeschwindigkeit entsprechend den Gleichungen 6.16 und 6.17 mit der Emittanz zunimmt, führt dies bei hohen Emittanzen zu höheren Verlusten. Zwar nimmt nach Gleichung 6.20 auch das Strahlvolumen zu und damit die Teilchendichte im Strahl ab, doch kann dies offenbar für  $\text{Bi}^+$ -Ionen die Verluste durch den zunehmenden Verlustquerschnitt nicht kompensieren.

Ein anderes Verhalten zeigen die  $\text{Au}^-$ -Ionen. Hier ist der Verlustquerschnitt nahezu unabhängig von der Relativgeschwindigkeit (Schulze, 1993). Entsprechend nehmen die Strahlverluste mit steigender Emittanz ab, da hier die Strahldichte der dominierende Faktor ist. Allein vom Standpunkt der Intensitätsverluste durch *intra-beam* Stöße betrachtet, hängt die Frage nach der optimalen Strahlemittanz stark vom Verhalten der Wirkungsquerschnitte für Ionisation und Elektronentransfer mit der Relativgeschwindigkeit ab.

Für vierfach geladene Ionen wurden entsprechende Verlustabschätzungen von Trassl et al. (2000, 2001) für Xe, Pb sowie Bi und Diehl et al. (2001) für Ar, Kr sowie Xe durchgeführt. Da für  $\text{Pb}^{4+}$  und  $\text{Bi}^{4+}$  Daten zum Ionisationsquerschnitt nicht vorliegen, wurde von Trassl et al. analog zu den Verhältnissen bei  $\text{Bi}^+$ , wo dieser immer kleiner ist als der Elektronentransferquerschnitt, als ungünstigster Fall angenommen, daß beide Wirkungsquerschnitte identisch sind. Wie insbesondere die Messungen des Ionisationsquerschnittes

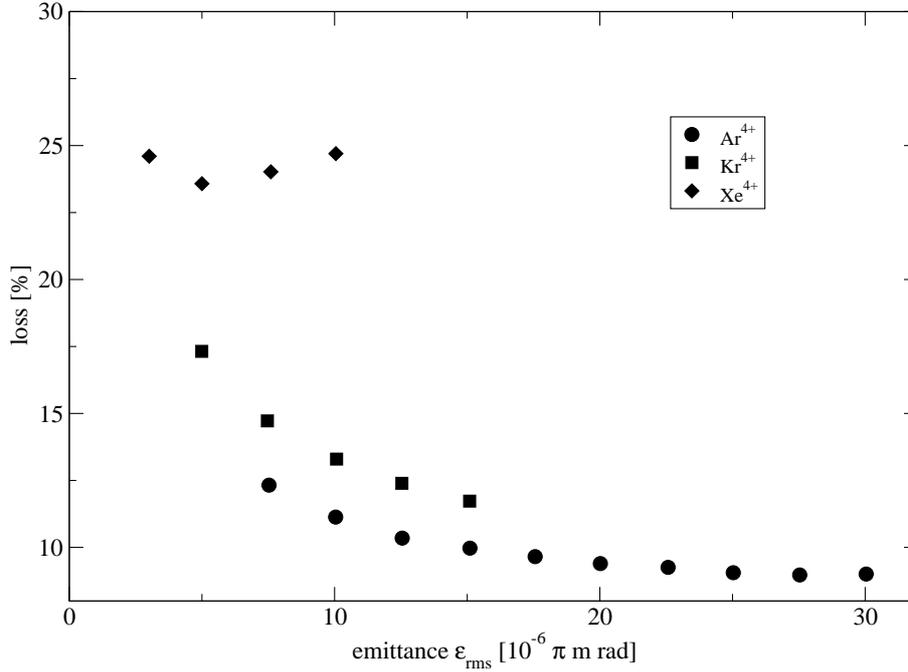


Abbildung 6.20: Erwartete Strahlintensitätsverluste als Funktion der Emittanz bei 1 s Speicherzeit und den in Tabelle 6.6 aufgeführten Parametern für  $Ar^{4+}$  (Quadrate),  $Kr^{4+}$  (Quadrate) und  $Xe^{4+}$  (Rauten) (Diehl et al., 2001). Als maximale transversale Relativenergie wurde  $E_{max} = 5kT$  angenommen.

von  $Xe^{4+}$  zeigen, ist diese Annahme nicht notwendigerweise gerechtfertigt. Insbesondere zeigen sich, wie oben diskutiert, auch starke Unterschiede in der Abhängigkeit von der Relativgeschwindigkeit zwischen den Wirkungsquerschnitten für Ionisation und Elektronentransfer.

Die von Diehl *et al.* berechneten Verluste für  $Ar^{4+}$ ,  $Kr^{4+}$  und  $Xe^{4+}$  als Funktion der Emittanz sind in Abbildung 6.20 dargestellt. Als Berechnungsgrundlage wurde dabei ein hypothetischer 100 Tm Speicherring mit einem Radius von 127 m angenommen. Die relevanten Parameter sind in Tabelle 6.6 angegeben. Für  $Ar^{4+}$  und  $Kr^{4+}$  nimmt der zu erwartende Verlust mit der Emittanz ab. Dies ist auf die Energieunabhängigkeit des gemessenen Ionisationsquerschnittes und die relativ schwache Energieabhängigkeit des Elektronentransferquerschnitts zurückzuführen. Bei  $Xe^{4+}$  kann ein leichter Anstieg des Verlustes mit der Emittanz erwartet werden, der vom starken Anstieg des Ionisationsquerschnittes mit der Relativgeschwindigkeit kommt.

Neuere Untersuchungen von I. Hofmann (persönliche Mitteilung) mittels Monte-Carlo Simulationen führten zu einer Näherung des Ratenkoeffizienten, welche neben dem Verlustquerschnitt nur die mittlere Relativgeschwindigkeit enthält. Dazu wird der experimentelle Verlustquerschnitt nach Gleichung 6.11 durch ein Polynom 2. Ordnung angenähert:

$$\sigma = \sigma_0 + \sigma_1 v_{rel} + \sigma_2 v_{rel}^2 \quad (6.21)$$

Ion	Bi <sup>+</sup>
kinetische Energie $E_{kin}$	127 MeV/u
Anzahl der Ionen $N_0$	$8 \times 10^{12}$
mittlere Emittanz $\epsilon_{rms}$	$12\pi \times 10^{-6}$ m rad
Betatron-Oszillationen $Q$	12
Ringradius $R$	127 m
Speicherzeit	1 s
Bunching Faktor	0.5

Tabelle 6.6: *Parameter für einen hypothetischen 100 Tm Speicherring.*

Mit einer mittleren Relativgeschwindigkeit  $v_{rms}$  von

$$v_{rms} = \frac{1}{2}\beta\gamma c \sqrt{\epsilon_{rms} \frac{Q}{R}} \quad (6.22)$$

erhält man dann als Näherung für den Ratenkoeffizienten

$$\langle \sigma v_{rel} \rangle = (1.8\sigma_0 + 4\sigma_1 v_{rms} + 11\sigma_2 v_{rms}^2) v_{rms} \quad (6.23)$$

Die sich in dieser Näherung ergebenden Verluste für den hypothetischen 100 Tm Speicherring sind in Abbildung 6.21 (Bräuning *et al.*, 2002) als Funktion der Strahlenergie dargestellt. Für die Rechnungen mit Pb<sup>4+</sup> und Bi<sup>4+</sup> wurden nur die Elektronentransferschnitte berücksichtigt. Vergleicht man mit den entsprechenden Rechnungen von Diehl *et al.* in Abbildung 6.20, so erkennt man, daß die zu erwartenden Verluste systematisch geringer sind. Ferner ergibt sich in dieser Näherung ein geringerer Verlust von Kr<sup>4+</sup> im Vergleich zu Ar<sup>4+</sup>. Im Falle der Näherung auf Basis einer Strahltemperatur hingegen sind die Verhältnisse bei diesen beiden Ionen genau umgekehrt. Der Grund liegt in der unterschiedlichen Wichtung der Relativgeschwindigkeiten. Bei der Näherung auf Basis einer Strahltemperatur werden durch die Maxwell-Verteilung auch niedrige Relativgeschwindigkeiten mit berücksichtigt, bei denen der Verlustquerschnitt von Ar<sup>4+</sup> aufgrund der starken Geschwindigkeitsabhängigkeit geringer ist als der von Kr<sup>4+</sup>. Dies ist nicht der Fall bei der obigen Näherung, wo nur der Wirkungsquerschnitt bei der mittleren Relativgeschwindigkeit von Bedeutung ist.

Eine exakte Berechnung von Verlusten in Speicherringen (und Beschleunigern) würde, bei genauer Kenntnis der relevanten Wirkungsquerschnitte, eine genaue Kenntnis der ortsabhängigen Dichte- und Geschwindigkeitsverteilung im Strahl entlang des gesamten Ringes unter Berücksichtigung aller ionenoptischer Elemente notwendig machen. Prinzipiell mag dies z.B. durch Monte-Carlo Simulation realisierbar sein, doch ist der nötige Rechenaufwand noch zu hoch. Dennoch erlauben die hier vorgestellten Näherungen zumindest eine Abschätzung der Größenordnung der zu erwartenden Verluste. Viel entscheidender ist die Kenntnis der Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts von der Relativgeschwindigkeit. Wie gezeigt, hat diese einen entscheidenden Einfluss z.B. auf die Frage, welche Emittanz im Hinblick auf Verluste am günstigsten ist. Sollten in Zukunft Beschleuniger mit noch höheren

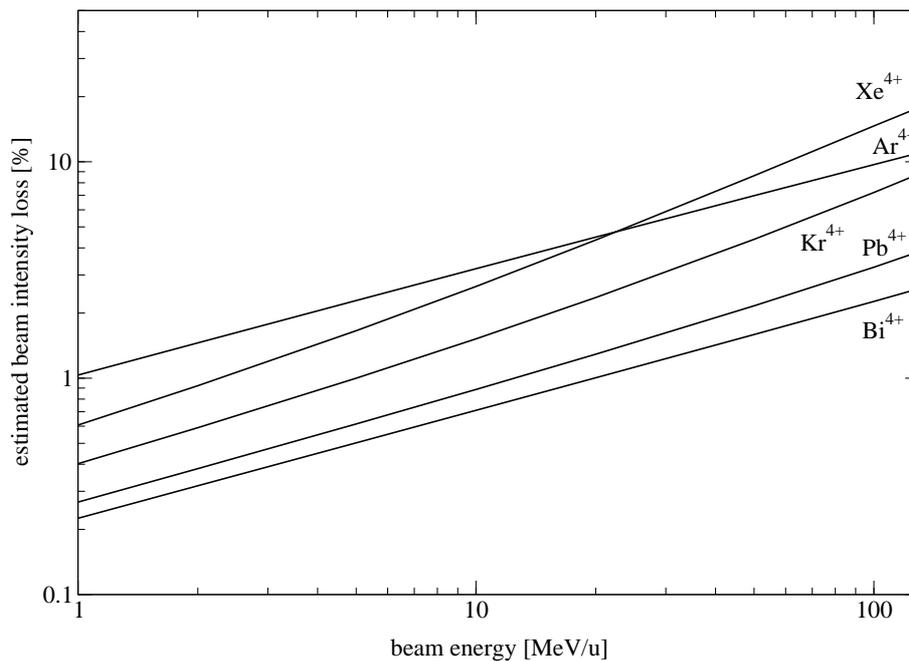


Abbildung 6.21: Erwartete Strahlintensitätsverluste als Funktion der Strahlenergie bei 1 s Speicherzeit und den in Tabelle 6.6 aufgeführten Parametern (Bräuning et al., 2002).

Strahlintensitäten für, aufgrund der Raumladung, niedrig geladene Ionen geplant werden, so kann dies einen entscheidenden Einfluss auf die Planung haben.

Es bleibt noch die Frage nach dem oben intensiv diskutierten Einfluss metastabiler Ionen offen. Immer mehr Beschleuniger werden durch EZR-Quellen gespeist, wie z.B. der Hochladungsinjektor (HLI) bei der GSI, Darmstadt. Damit treten auch hier metastabile Ionen auf, die bei Lebensdauern im Bereich von Millisekunden zumindest in der Anfangsphase der Beschleunigung eine Rolle spielen werden. Bei Speicherzeiten im Bereich von einer Sekunde und mehr hingegen, werden alle metastabilen Ionen bereits zerfallen sein. Da aber metastabile Ionen zu einer Erhöhung der Wirkungsquerschnitte gerade bei niedrigen Relativgeschwindigkeiten führen, können die oben vorgestellten gemessenen Daten zumindest zur Abschätzung einer oberen Grenze für Intensitätsverluste verwendet werden.



# Kapitel 7

## Ausblick

*Wenn ein Forscher eine Formel entwickelt hat, die innerhalb eines bestimmten Bereiches ein vollständige Beschreibung der Phänomene gibt, so mag er voll Genugtuung sein. Wäre es da nicht richtiger, wenn er sagen würde: "So ein Pech, auf diese Weise kann ich über die Natur nichts mehr herausfinden."*

Sir Arthur Eddington<sup>1</sup>

Obwohl die hier vorgestellten Experimente sicherlich einige wichtige Fragen und Probleme der atomaren, und molekularen, Stoßphysik lösen konnten, warten noch viele weitere Probleme auf ihre Lösung. Einige lassen sich vielleicht mit geringfügigen Verbesserungen gegenwärtig vorhandener experimenteller Anlagen lösen. Andere wiederum werden völlig neue experimentelle Methoden oder auch Beschleunigeranlagen verlangen, wie z.B. das noch weitgehend unerforschte Gebiet der atomaren Stoßphysik mit Antiprotonen. So gibt es derzeit ein starkes Interesse am Bau eines Antiprotonen-Speicherings im Rahmen des geplanten Ausbaus der Gesellschaft für Schwerionenforschung zur Untersuchung atomphysikalischer Prozesse im Stoß mit Antiprotonen.

Aber auch die Möglichkeiten der in den vorangegangenen Kapiteln vorgestellten Methoden sind bei weitem noch nicht ausgeschöpft. Wie der Vergleich von Rechnungen auf Grundlage der Basis Generator Methode mit experimentellen Messungen zum Ladungstransfer in Quasi-Einelektronensystemen (Kapitel 3.3) gezeigt hat, kann es, auch wenn viele Stoßsysteme gut beschrieben werden, bei einzelnen Fällen zu Abweichungen kommen, deren Verständnis zur vollständigen Beschreibung von Stoßprozessen durchaus beitragen wird. Die Untersuchung von Ion-Ion-Stößen mit ihrer Möglichkeit, entsprechend den theoretischen Annahmen gezielte präparierte Stoßsysteme zur Verfügung zu stellen, ist dabei von großem Wert. Wie in Kapitel 3.2 diskutiert, sind  $H^+ + H$  und  $He^{2+} + He^+$  die bisher einzigen untersuchten resonanten Einelektronensysteme. Rechnungen existieren jedoch auch für das System  $Li^{3+} + Li^{2+}$ . Deren experimentelle Überprüfung z.B. wird eines der nächsten Experimente am Giessener Ion-Ion-Experiment sein (A. Theiß, private Mitteilung). Neben den totalen Wirkungsquerschnitten werden zukünftige Experimente sich

---

<sup>1</sup>zitiert in *Astrophysical Journal* **101**, 133 (1945), deutscher Text aus: R.L. Weber und E.Mendoza, 1981, *Kabinett physikalischer Raritäten* (Vieweg Verlag) p. 104.

verstärkt auch auf differentielle Wirkungsquerschnitte konzentrieren, da diese eine wesentlich strengere Überprüfung der Theorien ergeben. Erste winkeldifferentielle Untersuchungen konnten dabei schon am Giessener Ion-Ion-Experiment durchgeführt werden (Krüdener, 1992; Pfeiffer *et al.*, 1995; Krüdener *et al.*, 1997; von Diemar, 1998). Neben winkeldifferentiellen Wirkungsquerschnitten sind dabei auch zustandsselektive Wirkungsquerschnitte beim Ladungstransfer in nicht-resonanten Stoßsystemen von großer Bedeutung. Wie die Diskussion in Kapitel 3.3 gezeigt hat, gibt es hier deutliche Unterschiede in den einzelnen theoretischen Beschreibungen bezüglich der Häufigkeit bestimmter Endzustände, obwohl die absoluten Wirkungsquerschnitte zum Teil übereinstimmen. Die Realisierbarkeit, den Endzustand beim Ladungstransfer in einem Ion-Ion-Stoßexperiment zu bestimmen, konnte bereits von Pfeiffer *et al.* (1999) gezeigt werden.

Auch bei schweren Ionen mit vielen Elektronen besteht ein Bedarf, die Untersuchung von ladungsändernden Ion-Ion-Stößen auszudehnen. Da gerade bei den hier betrachteten niedrigen Energien die theoretische Beschreibung schwierig ist, ist man bei der Anwendung in verwandten Gebieten wie der Plasmaphysik bei vielen Rechnungen auf experimentelle Daten angewiesen, wenn Ion-Ion-Stöße berücksichtigt werden müssen. Hierbei stellen sich vor allem drei Probleme. Erstens ist die Frage zu beantworten, bis zu welchem Ladungszustand in Plasmen oder den in Kapitel 6 diskutierten Beschleunigern und Speicherringen überhaupt ladungsändernde Ion-Ion-Stöße von Bedeutung sind. Dies erfordert eine systematische Ausdehnung der Messungen auf höhere Ladungszustände. Mit modernen EZR-Quellen sollten Experimente mit Ladungszuständen bis  $q = 7-8$  durchaus realisierbar sein. Zweitens zeigen die ersten Untersuchungen, daß auch bei mehrfach geladenen Ionen die Ionisation im Stoß nicht unbedingt vernachlässigbar ist. Die bisher vorhandenen Daten sind aber noch mit großen Unsicherheiten behaftet aufgrund der experimentellen Probleme. Hier sind systematische und detailliertere Untersuchungen nötig. Drittens ist das Problem der metastabilen Ionen zu lösen. Zwar kann man auch heute schon in Fallen und Speicherringen Ionen im Grundzustand erhalten (siehe auch die Diskussion in den Kapiteln 2.1 und 6.1.2), jedoch sind die Strahlintensitäten derzeit nicht ausreichend für ein *crossed-beams* Experiment. Schließlich ist auch die Ausweitung der Experimente zu höheren Stoßenergien wünschenswert, um den Überlapp mit dem Gültigkeitsbereich von Rechnungen auf Basis der Störungstheorie zu verbessern.

Untersuchungen zu Ion-Ion-Stößen mit molekularen Ionen stehen erst am Anfang. Wie die Diskussion des Stoßsystems  $\text{He}^{2+} + \text{H}_2^+ / \text{D}_2^+$  in Kapitel 4.2 deutlich zeigte, ist selbst die Beschreibung eines so einfachen Systems mit nur einem Elektron und drei Kernen nicht einfach. Hier sind sowohl auf experimenteller als auch auf theoretischer Seite weitere Anstrengungen nötig, um zu einer konsistenten Beschreibung des Stoßprozesses zu kommen.

Deutlich mehr Experimente mit Molekülen wurden bereits mit der *Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy* (COLTRIMS) durchgeführt. Wie am Beispiel des  $\text{HeH}^+$  Molekülions demonstriert wurde, erlaubt sie einen Zugang zur elektronischen und geometrischen Struktur des Moleküls. Die erreichbare hohe Auflösung dieser Methode wird es auch ermöglichen, die Frage nach der Kopplung zwischen der Elektronenbewegung und der Kernbewegung im Molekül zu untersuchen. Mit modernen Multihit-Detektoren ist auch das Studium der Fragmentation komplexer Moleküle wie  $\text{C}_{60}$  oder biologisch relevanter

Moleküle möglich. Hierbei erhält man nicht nur Informationen über Masse und Ladung der Fragmente wie bei einem reinen Flugzeitspektrometer, sondern auch Daten über die kinetische Energie der einzelnen Fragmente und ihre Winkelverteilung. Dies erlaubt ein detailliertes Studium des Fragmentationsprozesses.

Die Photoionisation von Atomen und Molekülen mittels Synchrotronstrahlung ist ein schnell wachsendes Gebiet wissenschaftlicher Untersuchungen (Schmidt, 1997), zu dem die Anwendung von COLTRIMS wesentliche Beiträge liefert. Von diesen konnten im Rahmen dieser Arbeit lediglich zwei Beispiele diskutiert werden. Die Photodoppelionisation von  $D_2$  hat deutlich den Einfluss der molekularen Achse auf die Emission der Photoelektronen gezeigt. Dies ist nicht nur bei der Photodoppelionisation sondern auch bei der Einfachionisation der Fall, bei der sich eine Diffraktion der Welle des Photoelektrons an dem Vielzentren-Potential zeigt. Abbildung 7.1 zeigt dies am Beispiel von Ethylen ( $C_2H_4$ ) bei der Photoionisation der K-Schale eines der beiden Kohlenstoffatome (Osipov *et al.*, 2003). Diese Diffraktion ist eine sensitive Sonde für die molekulare Struktur und das Vielzentren-Potential (Landers *et al.*, 2001). Die Orientierung des Moleküls bei diesen Messungen ergibt sich durch Nachweis der Fragmente nach erfolgtem Auger-Zerfall. Insgesamt handelt es sich somit um einen Dreistufen-Prozess: Emission des Photoelektrons, Auger-Zerfall und Fragmentation. Bedingung ist dabei die Unabhängigkeit dieser Prozesse und die Gültigkeit der *axial recoil approximation* (Zare, 1972). Vollständige Experimente mittels COLTRIMS mit dem zeitaufgelösten Nachweis aller Teilchen im Endzustand, d.h. z.B. auch dem sehr kurzen Zeitunterschied zwischen Emission des Photoelektrons und dem Auger-Zerfall, könnten zum ersten Mal Einblicke in die innermolekulare Dynamik geben und zwar nicht nur bezüglich der Kernbewegung, sondern auch des viel schnelleren Rearrangements der Elektronen (Weber *et al.*, 2001a).

Neben den hier vorgestellten Untersuchungen zur Photodoppelionisation mit linear polarisiertem Licht, sind auch Experimente mit zirkular polarisierten Photonen von großem Interesse. Da der Helium-Grundzustand sphärisch symmetrisch ist, stellt sich die Frage, wie sich die Helizität des Photons auf den Drei-Teilchen-Endzustand auswirkt. Für die Photoabsorption von magnetischen Substanzen oder chiralen Molekülen zum Beispiel ist bekannt, daß die Wirkungsquerschnitte stark von der Helizität abhängen (Schönhense und Holmes, 1996). Diese Abhängigkeit wird auch als zirkularer Dichroismus bezeichnet. Berakdar *et al.* (Berakdar und Klar, 1992; Berakdar *et al.*, 1993) sagten als erste auch einen zirkularen Dichroismus für die Photodoppelionisation von Helium voraus. Ihre theoretischen Vorhersagen wurden zuerst bestätigt durch Viefhaus *et al.* (1996b) und, unter Verwendung der COLTRIMS Methode, von Mergel *et al.* (1998) und Achler *et al.* (2001). Diese Untersuchungen stehen jedoch erst in ihren Anfängen. Das Studium der photoneninduzierten Fragmentation gerade chiraler Moleküle unter vollständigem Nachweis der Impulse aller Elektronen und Fragmente im Kontinuum wird hier neue Einblicke in die molekulare Struktur und Dynamik geben.

Die Entwicklung leistungsstarker Laser mit Femto-Sekunden Pulslänge in den letzten 10–15 Jahren erlaubt heute das Studium der Doppelionisation durch viele Photonen mit der gleichen Präzision. Wie Abbildung 7.2 darstellt, zeigt die Impulsverteilung der  $He^{2+}$  Rückstoßionen durchaus große Ähnlichkeiten zwischen der Doppelionisation im Laserfeld

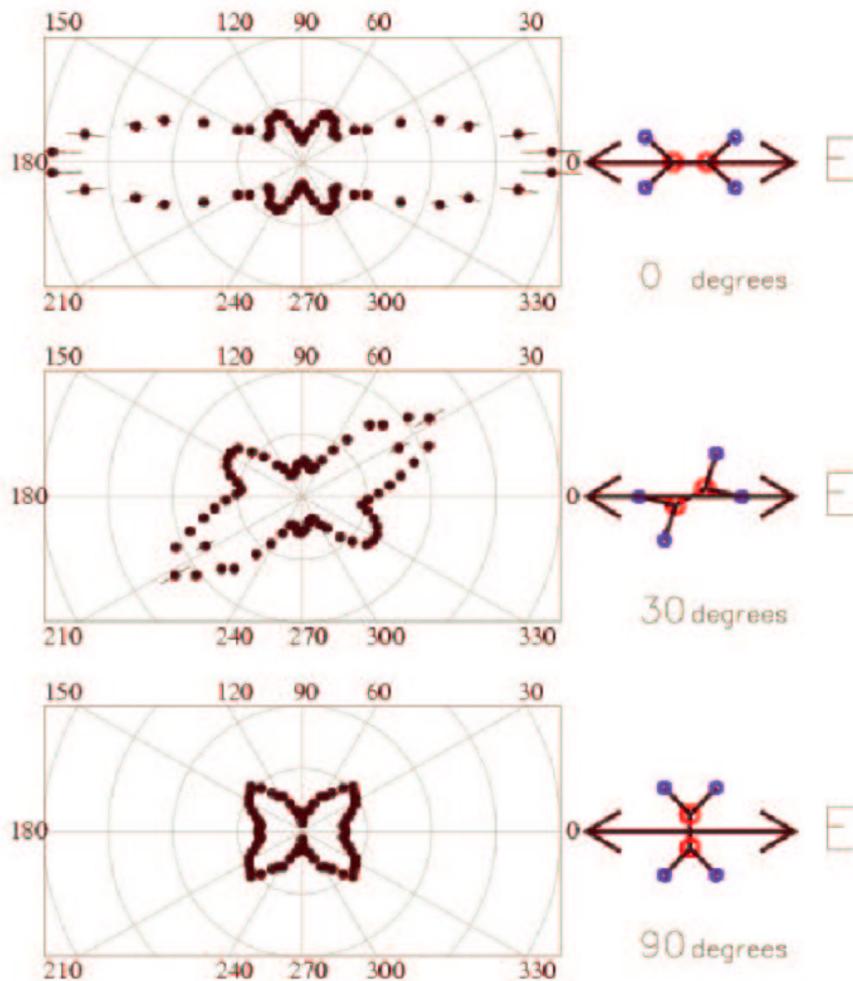


Abbildung 7.1: Winkelverteilung des Photoelektrons bei K-Schalen Ionisation von  $C_2H_4$  durch linear polarisiertes Licht von 302 eV Energie. Die Orientierung des Moleküls bezüglich der Polarisationsachse ist rechts gezeigt. Bild aus Osipov et al. (2003).

und der Doppelionisation durch ein einzelnes Photon. Allerdings sind die Mechanismen etwas anders. Wie in Kapitel 3.1 diskutiert wurde, reflektiert bei der Photodoppelionisation durch ein einzelnes Photon die Impulsverteilung der Rückstoßionen die Dipolcharakteristik des Absorptionsprozesses. Im Falle der Doppelionisation durch viele Photonen hingegen ergibt sich die Impulsverteilung durch Beschleunigung des Ions im starken elektrischen Feld, welches vom Laserpuls erzeugt wird. Dies legt es nahe, den Ionisationsprozess weniger als Wechselwirkung mit diskreten Photonen zu betrachten, als vielmehr mit einem klassischen elektrischen Feld bei Feldstärken im Bereich  $3 \times 10^{11}$  V/m. Die Feldstärke, welche das Elektron im Wasserstoffatom aufgrund des Kernpotentials spürt, liegt mit etwa  $5 \times 10^{11}$  V/m in der gleichen Größenordnung. Eine der wesentlichsten Fragen, die sich dabei stellt, ist,

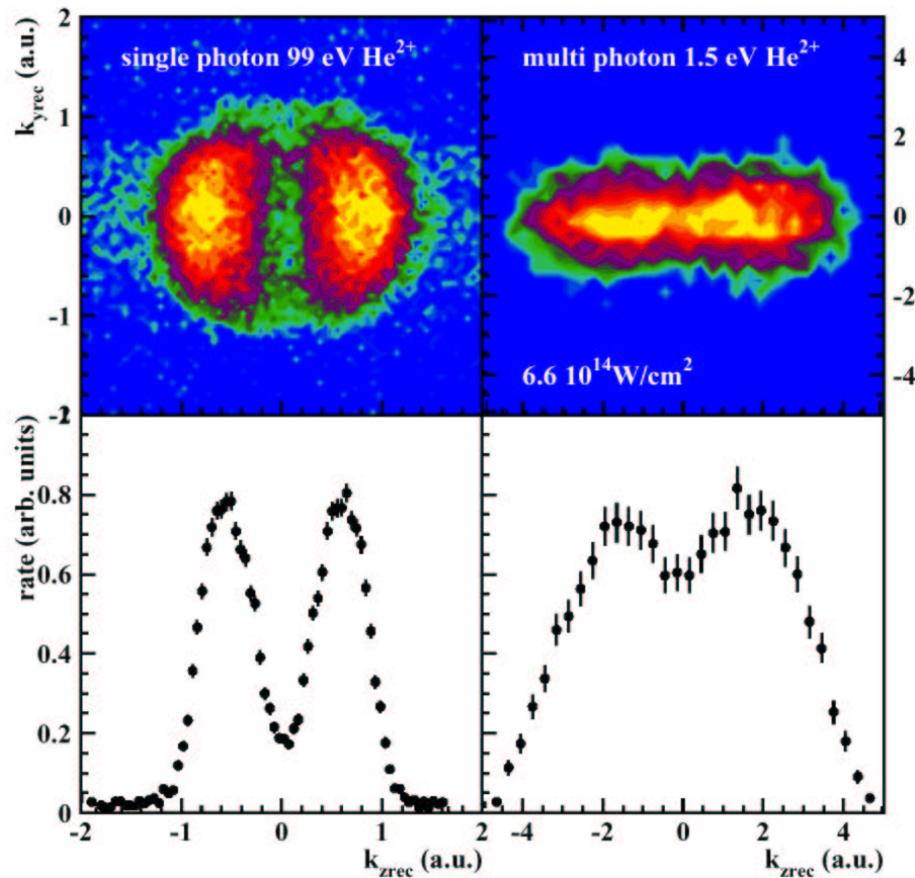


Abbildung 7.2: Impulsverteilung der  $\text{He}^{2+}$  Ionen für Doppelionisation durch ein Photon (links) bei 99 eV Photonenenergie und im Laserfeld (rechts) eines  $6.6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  Laserpulses mit 220 fs Dauer und 800 nm Wellenlänge (1.5 eV Photonenenergie). Bild aus Weber et al. (2001b).

ob der Doppelionisationsprozess sequentiell oder nicht-sequentiell verläuft (Dörner *et al.*, 2002). Experimente zur Ionisation und Fragmentation von Atomen und Molekülen in starken Laserfeldern haben in den letzten zwei bis drei Jahren stark zugenommen. Im Vergleich zu Untersuchungen mit einzelnen Photonen sind sie jedoch noch im Anfangsstadium. So gibt es bis jetzt noch keine vollständigen Daten, wo die kompletten Impulse beider Elektronen im Kontinuum mit  $4\pi$  Raumwinkel bestimmt wurden. Auch sehr genaue Messungen der Summenenergie beider Elektronen stehen noch aus, die es erlauben, die Anzahl der absorbierten Photonen genau zu bestimmen. Und nicht zuletzt sind die hier diskutierten Prozesse der Doppelionisation durch ein bzw. viele Photonen nur die Grenzfälle. Das weite Gebiet der Doppelionisation durch zwei oder wenige Photonen ist noch völlig unerforscht. Derartige Experimente werden durch die Entwicklung des Freien-Elektronen-Lasers in Zukunft möglich werden.

Die atomare Stoßphysik ist sicherlich ein Teilgebiet der Physik mit langer Tradition.

Zu sagen, sie sei in die Jahre gekommen ist jedoch sicherlich falsch. Getragen durch die stete Weiterentwicklung der experimentellen Methoden erlaubt sie immer detailliertere Studien der fundamentalsten Prozesse in der Wechselwirkung von Atomen, Molekülen und Photonen. So ist sie auch heute noch ein Gebiet lebhafter Forschung und wird es noch über Jahre hinweg sein.

# Anhang A

## Atomare Einheiten

Im Rahmen dieser Arbeit werden im Allgemeinen atomare Einheiten verwendet. Ausnahmen stellen lediglich Energie und Wirkungsquerschnitt dar. Für die Energie wird die üblichere Einheit des Elektronenvolts (eV) verwendet und der Wirkungsquerschnitt wird in  $\text{cm}^2$  angegeben. Im System atomarer Einheiten gilt insbesondere

Planck'sches Wirkungsquantum	$h = 2\pi$ ( $\hbar = 1$ )
Elektronenmasse	$m_e = 1$
Elektronenladung	$e = 1$
Lichtgeschwindigkeit	$c = \alpha^{-1}$ a.u. = 137.036 a.u.
	$\epsilon_0 = 1 / 4\pi$ a.u.
	$\mu_0 = 4\pi / c^2 = 4\pi\alpha^2$ a.u.

Damit ergeben sich folgende Umrechnungsfaktoren von atomaren Einheiten in SI Einheiten:

Länge	$5.2918 \times 10^{-11}$ m <i>Bohr-Radius des <math>e^-</math> im <math>n=1</math> Zustand des H-Atoms</i>
Geschwindigkeit	$2.1872 \times 10^6$ m/s <i>Bohr-Geschwindigkeit des <math>e^-</math> im <math>n=1</math> Zustand des H-Atoms</i>
Zeit	$2.419 \times 10^{-17}$ s <i>Quotient aus Bohr-Radius und Bohr-Geschwindigkeit</i>
Masse	$9.1095 \times 10^{-31}$ kg <i>Elektronenmasse</i>
Ladung	$1.6022 \times 10^{-19}$ C <i>Betrag der Elektronenladung</i>
Energie	$4.3577 \times 10^{-18}$ J 27.2 eV <i>Doppeltes Ionisationspotential vom Wasserstoffgrundzustand</i>
Impuls	$1.9929 \times 10^{-24}$ kg m s <sup>-1</sup> <i>Impuls des Elektrons im <math>n=1</math> Zustand des H-Atoms</i>
Drehimpuls	$1.0546 \times 10^{-34}$ J s <i>Plancksches Wirkungsquantum (geteilt durch <math>2\pi</math>)</i>



# Literaturverzeichnis

- Achler, M., V. Mergel, L. Spielberger, R. Dörner, Y. Azuma, und H. Schmidt-Böcking, 2001, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **34**, 965.
- Aller, L., 1971, *Atoms, Stars and Nebula* (Harvard University Press, Cambridge).
- Andersson, L., und J. Burgdörfer, 1993, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 50.
- Angel, G., K. Dunn, und H. Gilbody, 1980, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **13**, L391.
- Angel, G., E. Sewell, K. Dunn, und H. Gilbody, 1978, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **11**, L297.
- Bajajova, K., 1997, *Untersuchung von ladungsändernden Stößen zwischen zwei Hg<sup>+</sup>-Ionen im keV-Energiebereich*, Diplomarbeit, Justus-Liebig Universität Gießen.
- Bardsley, J., P. Gangopadhyay, und B. Penetrante, 1989, *Phys. Rev. A* **40**, 2742.
- Bates, D., und G. Griffing, 1953, *Proc. Phys. Soc. A* **66**, 961.
- Bauer, W., 1988, *Phys. Rev. C* **38**, 1297.
- Bauer, W., D. Dean, U. Mosel, und U. Post, 1985, *Phys. Lett. B* **150**, 53.
- Bauer, W., U. Post, D. Dean, und U. Mosel, 1986, *Nucl. Phys. A* **452**, 699.
- Belkic, D., 1980, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **13**, L589.
- Belkic, D., R. Gayet, und A. Salin, 1979, *Phys. Rep.* **56**, 279.
- Berakdar, J., und H. Klar, 1992, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1175.
- Berakdar, J., H. Klar, A. Huetz, und P. Selles, 1993, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **26**, 1463.
- Bernard, J., L. Chen, A. Denis, J. Desquelles, und S. Martin, 1997, *Physica Scripta T* **73**, 286.
- Bertsch, G., A. Bulgac, D. Tomanek, und Y. Wang, 1991, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2690.

- Bloch, S., 1912, Ann. d. Phys. **38**, 559.
- Boese, A., und G. Scuseria, 1998, Chem. Phys. Lett. **294**, 233.
- Borve, K., und J. Hansen, 1993, Z. Phys. D **25**, 247.
- Bransden, B., und C. Joachain, 1992, *Physics of Atoms and Molecules* (Longman Scientific & Technical, New York).
- Bransden, B., und M. McDowell, 1992, *Charge Exchange and the Theory of Ion-Atom Collisions* (Clarendon Press, Oxford).
- Bransden, B., C. Noble, und J. Chandler, 1983, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **16**, 4191.
- Bräuning, H., A. Bräuning-Demian, G. Bednarz, F. Bosch, X. Cai, C. Cohen, D. Dauvergne, A. Gumberidze, R. Kirsch, C. Kozhuharov, D. Liesen, P. Mokler, J.-P. Rozet, Z. Stachura, T. Stöhlker, M. Terasawa, S. Toleikis, und A. Warczak, 2003a, Nucl. Instr. Meth. B **205**, 826.
- Bräuning, H., A. Bräuning-Demian, F. Bosch, A. Gumberidze, C. Kozhuharov, P. Mokler, S. Tachenov, P. Verma, M. Schöffler, D. Dumitriu, Z. Stachura, und X. Ma, 2004a, *Ionisation and Fragmentation of C<sub>60</sub> by 20 MeV/u Xe<sup>53+</sup>*, to be published.
- Bräuning, H., A. Diehl, K. Diemar, A. Theiß, R. Trassl, E. Salzborn, und I. Hofmann, 2002, Laser and Particle Beams **20**, 493.
- Bräuning, H., A. Diehl, A. Theiß, R. Trassl, und E. Salzborn, 2003b, Nucl. Instr. Meth. B **205**, 555.
- Bräuning, H., A. Diehl, R. Trassl, A. Theiß, E. Salzborn, A. Narits, und L. Presnyakov, 2004b, Fullerenes, Nanotubes and Carbon Nanostructures **12**, 499.
- Bräuning, H., R. Dörner, C. Cocke, M. Prior, B. Krässig, A. Bräuning-Demian, K. Carnes, S. Dreuil, V. Mergel, P. Richard, J. Ullrich, und H. Schmidt-Böcking, 1997, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **30**, L649.
- Bräuning, H., R. Dörner, C. Cocke, M. Prior, B. Krässig, A. Kheifets, I. Bray, A. Bräuning-Demian, K. Carnes, S. Dreuil, V. Mergel, P. Richard, J. Ullrich, und H. Schmidt-Böcking, 1998, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **31**, 5149.
- Bräuning, H., P. Mokler, D. Liesen, F. Bosch, B. Franzke, A. Krämer, C. Kozhuharov, T. Ludziejewski, X. Ma, F. Nolden, M. Steck, T. Stöhlker, R. Dunford, E. Kanter, G. Bednarz, A. Warczak, Z. Stachura, L. Tribedi, T. Kambara, D. Dauvergne, R. Kirsch, und C. Cohen, 2001a, Physica Scripta **92**, 43.

- Bräuning, H., P. Mokler, D. Liesen, F. Bosch, B. Franzke, A. Krämer, C. Kozhuharov, T. Ludziejewski, X. Ma, F. Nolden, M. Steck, T. Stöhlker, R. Dunford, E. Kanter, G. Bednarz, A. Warczak, Z. Stachura, L. Tribedi, T. Kambara, D. Dauvergne, R. Kirsch, und C. Cohen, 2001b, Phys. Rev. Lett. **86**, 991.
- Bräuning, H., und M. Prior, 1998, unpublished.
- Bräuning, H., I. Reiser, A. Diehl, A. Theiß, E. Sidky, C. Cocke, und E. Salzborn, 2001c, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **34**, L321.
- Bräuning, H., R. Trassl, A. Diehl, A. Theiß, E. Salzborn, A. Narits, und L. Presnyakov, 2003c, Phys. Rev. Lett. **91**, 168301.
- Bräuning, H., R. Trassl, A. Diehl, A. Theiß, E. Salzborn, A. Narits, und L. Presnyakov, 2004c, *Charge Transfer in Ion-Ion Collisions Involving Fullerene Ions*, proceedings of the XXII Int. Conf. on Photonic, Electronic and Atomic Collisions, to be published in Physica Scripta.
- Bray, I., und D. Fursa, 1996, Phys. Rev. A **54**, 2991.
- Bray, I., I. McCarthy, J. Wigley, und A. Stelbovics, 1993, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **26**, L831.
- Bray, I., und A. Stelbovics, 1992, Phys. Rev. A **46**, 6995.
- Bray, I., und A. Stelbovics, 1993, Phys. Rev. Lett. **70**, 746.
- Briggs, J., und V. Schmidt, 2000, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **33**, R1.
- Brötz, F., 2000, *Weiterentwicklungen und Untersuchungen an einer "herkömmlichen" 14 GHz und verschiedenen "vollpermanenten" 9–10.5 GHz Elektron-Zyklotron-Resonanz (EZR) Ionenquellen*, Dissertation, Justus-Liebig Universität Gießen.
- Brückner, K., 1955, Phys. Rev. **100**, 36.
- Brusdeylins, G., J. Toennies, und R. Vollmer, 1989, in *Abstracts of the XII International Symposium on Molecular Beams*, herausgegeben von V. Aquilanti (Perugia, Italy), p. 98.
- Budicin, D., I. Hofmann, M. Conte, R. Schulze, F. Melchert, und E. Salzborn, 1993, Il Nuovo Cimento **106 A**, 1621.
- Busnego, H., S. Corchs, und R. Rivarola, 1998, Phys. Rev. A **57**, 2701.
- Campbell, E., und F. Rohmund, 2000, Rep. Prog. Phys. **63**, 1061.
- Carlson, T., 1967, Phys. Rev. **156**, 142.

- Cederquist, H., A. Fardi, K. Haghghat, A. Langereis, H. Schmidt, S. Schwartz, J. Levin, I. Sellin, H. Lebius, B. Huber, M. Larsson, und P. Hvelplund, 2000, Phys. Rev. A **61**, 022712.
- Chen, C., C. Cocke, J. Giese, F. Melchert, I. Reiser, M. Stöckli, E. Sidky, und C. Lin, 2001, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **34**, 469.
- Cheng, S., H. Berry, R. Dunford, H. Esbensen, D. Gemmell, E. Kanter, T. LeBrun, und W. Bauer, 1996, Phys. Rev. A **54**, 3182.
- Cheng, S., C. Cocke, V. Frohne, E. Kamber, J. McGuire, und Y. Wang, 1992, Phys. Rev. A **47**, 3923.
- Condon, E., und G. Shortley, 1951, *The Theory of Atomic Spectra* (Cambridge University Press, Cambridge).
- Dawber, G., L. Avaldi, A. McConkey, H. Rojas, M. MacDonald, und G. King, 1995, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **28**, L271.
- Deb, N., A. Jain, und J. McGuire, 1988, Phys. Rev. A **38**, 3769.
- Dickinson, A., und D. Hardie, 1979, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **12**, 4147.
- Diehl, A., 2001, *Umladung und Ionisation in Stößen zwischen vierfach geladenen Edelgasen*, Diplomarbeit, Justus-Liebig Universität Gießen.
- Diehl, A., H. Bräuning, A. Theiß, R. Trassl, und E. Salzborn, 2004, to be published.
- Diehl, A., H. Bräuning, R. Trassl, D. Hathiramani, A. Theiß, H. Kern, E. Salzborn, und I. Hofmann, 2001, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **34**, 4073.
- von Diemar, K., 1998, *Untersuchungen des Elektroneneinfangs in Stößen zwischen mehrfach geladenen Ionen*, Dissertation, Justus-Liebig Universität Gießen.
- von Diemar, K., F. Melchert, A. Pfeiffer, K. Bajajova, K. Huber, E. Salzborn, L. Opradolce, und R. Piacentini, 1999, Physica Scripta **T80**, 262.
- Dörnenburg, E., und H. Hintenberger, 1959, Z. Naturforsch. **14A**, 765.
- Dörner, R., H. Bräuning, J. Feagin, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, T. Vogt, H. Khemliche, M. Prior, J. Ullrich, C. Cocke, und H. Schmidt-Böcking, 1998a, Phys. Rev. A **57**, 1074.
- Dörner, R., H. Bräuning, O. Jagutzki, V. Mergel, M. Achler, R. Moshhammer, J. Feagin, T. Osipov, A. Bräuning-Demian, L. Spielberger, J. McGuire, M. Prior, N. Berrah, J. Bozek, C. Cocke, und H. Schmidt-Böcking, 1998b, Phys. Rev. Lett. **81**, 5776.

- Dörner, R., J. Feagin, C. Cocke, H. Bräuning, O. Jagutzki, M. Jung, E. Kanter, H. Khemliche, S. Kravis, V. Mergel, M. Prior, H. Schmidt-Böcking, L. Spielberger, J. Ullrich, M. Unverzagt, und T. Vogt, 1996a, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1024.
- Dörner, R., V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich, R. Moshhammer, und H. Schmidt-Böcking, 2000, *Physics Reports* **330**, 95.
- Dörner, R., T. Vogt, V. Mergel, H. Khemliche, S. Kravis, C. Cocke, J. Ullrich, M. Unverzagt, L. Spielberger, M. Damrau, O. Jagutzki, I. Ali, B. Weaver, K. Ullmann, C. Hsu, M. Jung, E. Kanter, B. Sonntag, M. Prior, E. Rotenberg, J. Denlinger, T. Warwick, S. Manson, , und H. Schmidt-Böcking, 1996b, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2654.
- Dörner, R., T. Weber, M. Weckenbrock, A. Staudte, M. Hattass, R. Moshhammer, J. Ullrich, und H. Schmidt-Böcking, 2002, *Advances in Atomic and Molecular Physics* **48**, 1.
- Drewello, T., W. Krätschmer, M. Fieber-Erdmann, und A. Ding, 1993, *Int. J. Mass Spectrom. Ion Process* **124**, R1.
- Dujardin, G., M. Besnard, L. Hellner, und Y. Malinovitch, 1987, *Phys. Rev. A* **35**, 5012.
- Dunn, K., G. Angel, und H. Gilbody, 1979, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **12**, L623.
- Dyall, K., I. Grant, C. Johnson, F.A.Parpia, und E. Plummer, 1989, *Comp. Phys. Comm.* **55**, 425.
- Elder, F., A. Gurewitsch, R. Langmuir, und H. Pollock, 1947a, *J. Appl. Phys.* **18**, 810.
- Elder, F., A. Gurewitsch, R. Langmuir, und H. Pollock, 1947b, *Phys. Rev.* **71**, 829.
- Elder, F., R. Langmuir, und H. Pollock, 1948, *Phys. Rev.* **74**, 52.
- Ermolaev, A., und M. McDowell, 1987, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **20**, L379.
- Ermolaev, A., C. Noble, und B. Bransden, 1982, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **15**, 457.
- Feagin, J., 1995, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **28**, 1495.
- Feagin, J., 1996, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **29**, 1551.
- Feagin, J., 1998, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **31**, L729.
- Feagin, J., und J. Briggs, 1986, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 984.
- Fields, D., C. Gelbke, W. Lynch, und J. Pochodzalla, 1987, *Phys. Lett. B* **187**, 257.
- Ford, A., J. Reading, und R. Becker, 1982, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **15**, 3257.
- Forrest, R., B. Peart, und K. Dolder, 1982, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **15**, L45.

- Forster, C., R. Shingal, D. Flower, B. Bransden, und A. Dickinson, 1988, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **21**, 3941.
- Fritsch, W., und C. Lin, 1982, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **15**, 1255.
- Fritsch, W., und C. Lin, 1983, in *Proc. 13th Int. Conf. on Physics of Electronic and Atomic Collisions*, herausgegeben von J. Eichler (North-Holland, Berlin), p. Abstracts p 502.
- Fritzsche, S., und C. Froese Fischer, 1997, Comp. Phys. Commun. **99**, 323.
- Fritzsche, S., und I. Grant, 1997, Comp. Phys. Commun. **103**, 277.
- Gallup, G., 1972a, Int. J. Quantum Chem. **6**, 761.
- Gallup, G., 1972b, Int. J. Quantum Chem. **6**, 899.
- Gargaud, M., J. Hanssen, R. McCarroll, und P. Valiron, 1981, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **14**, 2259.
- Garibotti, C., und J. Miraglia, 1980, Phys. Rev. A **21**, 572.
- Garibotti, C., und J. Miraglia, 1982, Phys. Rev. A **25**, 1440.
- Goldstone, J., 1957, Proc. Royal Soc. **A239**, 237.
- Green, T., H. Michels, J. Browne, und M. Madsen, 1974, J. Chem. Phys **61**, 5186.
- Gregory, D., M. Huq, F. Meyer, D. Swenson, M. Sataka, und S. Chantrenne, 1990, Phys. Rev. A **41**, 106.
- Hart, J., und G. Herzberg, 1957, Phys. Rev. **106**, 79.
- Hatton, G., N. Lane, und T. Winter, 1979, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **12**, L571.
- von Helden, G., M.-T. Hsu, N. Gotts, und M. Bowers, 1993, J. Phys. Chem. **97**, 8182.
- Henderson, G., 1922, Proc. Roy. Soc. **A169**, 496.
- Hertel, I., H. Steger, J. de Vries, B. Weisser, C. Menzel, B. Kamke, und W. Kamke, 1992, Phys. Rev. Lett. **68**, 784.
- HIBALL II, 1985, *HIBALL II: An Improved Conceptual Heavy-Ion-Driven Fusion Reactor Study*, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Report KfK 3840 (July 1985).
- Huetz, A., P. Lablanquie, L. Andric, P. Selles, und J. Mazeau, 1994, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **27**, L13.
- Huetz, A., P. Selles, D. Waymel, und J. Mazeau, 1991, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **24**, 1917.

- Jagutzki, O., 1994, *Entwicklung eines Rückstoßionenimpulsspektrometers zur Untersuchung der Dynamik im Heliumatom*, Dissertation, Universität Frankfurt.
- Jagutzki, O., A. Cerezo, A. Czasch, R. Dörner, M. Hattaß, M. Huang, V. Mergel, U. Spillmann, K. Ullmann-Pfleger, T. Weber, H. Schmidt-Böcking, und G. Smith, 2002a, *IEEE Transact. on Nucl. Science* **49**, 2477.
- Jagutzki, O., J. Lapington, L. Worth, U. Spillmann, V. Mergel, und H. Schmidt-Böcking, 2002b, *Nucl. Instr. Meth. A* **477**, 256.
- Jagutzki, O., V. Mergel, K. Ullmann-Pfleger, L. Spielberger, U. Spillmann, R. Dörner, und H. Schmidt-Böcking, 2002c, *Nucl. Instr. Meth. A* **477**, 244.
- Janev, R., L. Presnyakov, und V. Shevelko, 1986, *Physics of Highly Charged Ions* (Springer Verlag, Berlin-Heidelberg-New York-Tokyo).
- Jognaux, A., F. Brouillard, und S. Szucs, 1978, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **11**, L669.
- Joy, H., und R. Parr, 1958, *J. Comp. Phys.* **28**, 448.
- Kabachnik, N., V. Kondratyev, Z. Roller-Lutz, und H. Lutz, 1998, *Phys. Rev. A* **57**, 990.
- Kazansky, A., und V. Ostrovsky, 1993, *Phys. Rev. A* **48**, R871.
- Keim, M., 1999, *Streuung vollständig ionisierter Projektile an lithiumähnlichen Ionen*, Diplomarbeit, Universität Frankfurt am Main.
- Keller, S., 2000, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **33**, L513.
- Kheifets, A., und I. Bray, 1996, *Phys. Rev. A* **54**, R995.
- Kheifets, A., und I. Bray, 1998a, *Phys. Rev. A* **57**, 2590.
- Kheifets, A., und I. Bray, 1998b, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **31**, L447.
- Kim, H., und R. Janev, 1987, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 1837.
- Kimura, M., 1985, *Phys. Rev. A* **32**, 802.
- Kimura, M., S. Chapman, und N. Lane, 1986, *Phys. Rev. A* **33**, 1619.
- Kimura, M., J. Gu, G. Hirsch, R. Buenker, und P. Stancil, 2000, *Phys. Rev. A* **61**, 032708.
- Kimura, M., Y. LI, G. Hirsch, und R. Buenker, 1995, *Phys. Rev. A* **52**, 1196.
- Kimura, M., Y. LI, G. Hirsch, und R. Buenker, 1996, *Phys. Rev. A* **54**, 5019.
- Kimura, M., und W. Thorson, 1981, *Phys. Rev. A* **24**, 3019.

- Kirchner, T., M. Keim, A. Achenbach, H. Lüdde, O. Kroneisen, und R. Dreizler, 1999, *Physica Scripta* **T80**, 270.
- Kittel, C., 1995, *Introduction to Solid State Physics* (J. Wiley), 7 Edition.
- Knapp, A., A. Kheifets, I. Bray, T. Weber, A. Landers, S. Schössler, T. Jahnke, J. Nickles, S. Kammer, O. Jagutzki, L. Schmidt, T. Osipov, J. Rösch, M. Prior, H. Schmidt-Böcking, C. Cocke, und R. Dörner, 2002a, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 033004.
- Knapp, A., M. Walter, T. Weber, A. Landers, S. Schössler, T. Jahnke, M. Schöffler, J. Nickles, S. Kammer, O. Jagutzki, L. Schmidt, T. Osipov, J. Rösch, M. Prior, H. Schmidt-Böcking, C. Cocke, J. Feagin, und R. Dörner, 2002b, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **35**, L521.
- Kohstall, C., S. Fritzsche, B. Fricke, und W.-D. Sepp, 1998, *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **70**, 63.
- Kollmus, H., W. Schmitt, R. Moshhammer, M. Unverzagt, und J. Ullrich, 1997, *Nucl. Instr. Meth. B* **124**, 377.
- Kossmann, H., O. Schwarzkopf, B. Kämmerling, und V. Schmidt, 1989, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 2040.
- Kroneisen, O., H. Lüdde, T. Kirchner, und R. Dreizler, 1999, *J. Phys. A: Math. Gen.* **32**, 2141.
- Kroto, H., J. Heath, S. O'Brien, R. Curl, und R. Smalley, 1985, *Nature* **318**, 162.
- Krüdener, S., 1992, *Winkeldifferentielle Messungen in Cs<sup>+</sup>-Cs<sup>+</sup> Stößen*, Dissertation, Justus-Liebig Universität Gießen.
- Krüdener, S., F. Melchert, K. von Diemar, A. Pfeiffer, K. Huber, E. Salzborn, D. Uskov, und L. Presnyakov, 1997, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 1002.
- Lablanquie, P., J. Mazeau, L. Andric, P. Selles, und A. Huetz, 1995, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 2192.
- Landau, L., und E. Lifshitz, 1992, *Electrodynamics of Condensed Media* (Mauka, Moscow).
- Landau, L., und E. Lifshitz, 1995, *Quantum Mechanics* (Pergamon, Oxford).
- Landers, A., T. Weber, I. Ali, A. Cassimi, M. Hattass, O. Jagutzki, A. Nauert, T. Osipov, A. Staudte, M. Prior, H. Schmidt-Böcking, C. Cocke, und R. Dörner, 2001, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 013002.
- Laskin, J., B. Hadas, T. Märk, und C. Lifshitz, 1998, *Int. J. Mass Spectrom.* **177**, L9.

- LeBrun, T., H. Berry, S. Cheng, R. Dunford, H. Esbensen, D. Gemmell, E. Kanter, und W. Bauer, 1994, Phys. Rev. Lett. **72**, 3965.
- Lenard, P., 1894, Wied. Ann. **51**, 225.
- Lenard, P., 1904, Ann. d. Phys. **15**, 485.
- Lezius, M., P. Scheier, M. Foltin, B. Dünser, T. Rauth, V. Akimov, W. Krätschmer, und T. Märk, 1993, Int. J. Mass Spectrom. Ion Process **129**, 49.
- Los, J., und T. Grovers, 1978, in *Collision Spectroscopy*, herausgegeben von R. Cooks (Plenum Press, New York), p. 323 ff.
- Lotz, W., 1967, Zeitschrift für Physik **206**, 205.
- Lotz, W., 1968, Zeitschrift für Physik **216**, 241.
- Lotz, W., 1969, Zeitschrift für Physik **220**, 466.
- Lotz, W., 1970, Zeitschrift für Physik **232**, 101.
- Lucey, S., J. Rasch, C. T. Whelan, und H. Walters, 1998, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **31**, 1237.
- Ludwig, W., und C. Falter, 1988, *Symmetries in Physics: Group Theory Applied to Physical Problems* (Springer Verlag, Berlin-Heidelberg-New York-Tokyo).
- Malegat, L., P. Selles, und A. Huetz, 1997a, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **30**, 251.
- Malegat, L., P. Selles, P. Lablanquie, J. Mazeau, und A. Huetz, 1997b, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **30**, 263.
- Martin, J., 1996, Chem. Phys. Lett. **255**, 1.
- Martin, S., J. Bernard, L. Chen, A. Denis, und J. Desquelles, 1998, Eur. Phys. J. D **4**, 1.
- Matt, S., O. Echt, M. Sonderegger, R. David, P. Scheier, J. Laskin, C. Lifshitz, und T. Märk, 1999, Chem. Phys. Lett. **303**, 379.
- Maulbetsch, F., und J. Briggs, 1993a, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **26**, L647.
- Maulbetsch, F., und J. Briggs, 1993b, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **26**, 1679.
- Maulbetsch, F., und J. Briggs, 1994, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **27**, 4095.
- Maulbetsch, F., und J. Briggs, 1995, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **28**, 551.
- Maulbetsch, F., M. Pont, J. Briggs, und R. Shakeshaft, 1995, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **28**, L341.

- McGuire, J., 1997, *Electron Correlation Dynamics in Atomic Collisions* (Cambridge University Press).
- McGuire, J., N. Berrah, R. Bartlett, J. Samson, J. Tanis, C. Cocke, und A. Schlachter, 1995, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **28**, 913.
- Melchert, F., 1987, *Ladungsaustausch und Ionisation in Ion-Ion Stößen: experimentelle Untersuchungen an den Stoßsystemen  $He^+ + He^+$ ,  $Xe^+ + Xe^+$  und  $Bi^+ + Bi^+$* , Dissertation, Justus-Liebig Universität Gießen.
- Melchert, F., 1997, *Ladungsändernde Ion-Ion Stöße im keV Energiebereich*, Habilitationsschrift, Justus-Liebig Universität Gießen.
- Melchert, F., S. Krüdener, R. Schulze, S. Petri, S. Pfaff, und E. Salzborn, 1995, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **28**, L355.
- Melchert, F., S. Meuser, S. Krüdener, A. Pfeiffer, K. von Diemar, E. Salzborn, E. Sidky, und C. Lin, 1997, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **30**, L697.
- Melchert, F., und E. Salzborn, 1988, *Journal de Physique* **49**, C7.
- Melchert, F., E. Salzborn, I. Hofmann, R. Müller, und V. Shevelko, 1989, *Nucl. Instr. Meth. A* **278**, 65.
- Mergel, V., 1996, *Dynamische Elektronenkorrelationen in Helium* (Shaker Verlag, Aachen), Dissertation, Univ. Frankfurt.
- Mergel, V., M. Achler, R. Dörner, K. Khayyat, T. Kambara, Y. Awaya, V. Zoran, B. Nyström, L. Spielberger, J. McGuire, J. Feagin, J. Berakdar, Y. Azuma, und H. Schmidt-Böcking, 1998, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 5301.
- Mergel, V., R. Dörner, J. Ullrich, O. Jagutzki, S. Lencinas, S. Nüttgens, L. Spielberger, M. Unverzagt, C. Cocke, R. Olson, M. Schulz, U. Buck, E. Zanger, W. Theissinger, M. Isser, S. Geis, und H. Schmidt-Böcking, 1995, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 2200.
- Mergel, V., O. Jagutzki, L. Spielberger, K. Ullmann-Pfleger, R. Dörner, und H. Schmidt-Böcking, 1997, *Mat. Res. Soc. (MRS) Symp. Proc.* **502**, 171.
- Meuser, S., F. Melchert, S. Krüdener, A. Pfeiffer, K. von Diemar, und E. Salzborn, 1996, *Rev. Sci. Instr.* **67**, 2752.
- Michels, H., und F. Harris, 1963, *J. Chem. Phys.* **39**, 1464.
- Miller, D., 1988, in *Atomic and Molecular Beam Methods*, herausgegeben von G. Scoles, D. Bassi, U. Buck, und D. Laine (Oxford University Press, New York), p. 14.
- Miller, W., und H. Schaefer, 1970, *J. Chem. Phys.* **53**, 1421.

- Miraglia, J., 1983, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **16**, 1029.
- Moller, S., 1997, *Nucl. Instr. Meth. A* **394**, 281.
- Moller, S., 1998, in *Proceedings of the 6th European Particle Accelerator Conference*, pp. 73–77.
- Moller, S., P. Bowe, J. Nielsen, und U. Pedersen, 2000, in *Proceedings of the 2000 European Particle Accelerator Conference*, pp. 2295–790.
- Moller, S., und U. Pedersen, 1999, in *Proceedings of the 1999 Particle Accelerator Conference*, pp. 2295–2297.
- Moore, C., 1970, *Ionization Potentials and Ionization Limits Derived from the Analysis of Optical Spectra*, Technical Report 34, Nat. Stand. Ref. Data Ser. - Nat. Bur. Stand. (U.S.).
- Moorhead, J., R. Lowe, J.-P. Maillard, W. Wehlau, und P. Bernath, 1988, *Astrophys. J.* **326**, 899.
- Moshhammer, R., M. Unverzagt, W. Schmitt, J. Ullrich, und H. Schmidt-Böcking, 1996, *Nucl. Instr. Meth. B* **108**, 425.
- Mott, N., und H. Jones, 1936, *The Theory of the Properties of Metals and Alloys* (Oxford).
- Müller, A., K. Huber, K. Tinschert, R. Becker, und E. Salzborn, 1985, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **18**, 2993.
- Neill, P., G. Angel, K. Dunn, und H. Gilbody, 1982, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **15**, 4219.
- Olson, R., und B. Liu, 1981, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **14**, L279.
- Opradolce, L., R. McCarroll, und R. Piacentini, 1997, *Nucl. Instr. Meth. B* **132**, 302.
- Orel, A., K. Kulander, und T. Rescigno, 1995, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4807.
- Osipov, T., C. Cocke, R. Dörner, A. Landers, T. Weber, O. Jagutzki, A. Bräuning-Demian, H. Bräuning, M. Prior, H. Schmidt-Böcking, und A. Cassimi, 2003, in *23. International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions, Book of Abstracts*.
- Park, J., 1978, in *Collision Spectroscopy*, herausgegeben von R. Cook (Plenum Press, New York), p. 19.
- Parpia, F., C. Froese Fischer, und I. Grant, 1996, *Comp. Phys. Commun.* **94**, 249.
- Paul, W., H. Reinhardt, und U. v.Zahn, 1958, *Zeitschr. f. Physik* **152**, 143.
- Paul, W., und H. Steinwedel, 1953, *Zeitschr. f. Naturf.* **140**, 2621.

- Peart, B., und K. Dolder, 1979, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **12**, 4155.
- Peart, B., R. Forrest, und K. Dolder, 1981a, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **14**, L383.
- Peart, B., R. Forrest, und K. Dolder, 1981b, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **14**, 3457.
- Peart, B., R. Forrest, und K. Dolder, 1981c, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **14**, 1655.
- Peart, B., R. Forrest, und K. Dolder, 1981d, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **14**, L603.
- Peart, B., K. Rinn, und K. Dolder, 1983, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **16**, 1461.
- Pedemonte, L., G. Bracco, und R. Tatarek, 1999, Phys. Rev. A **59**, 3084.
- Penning, F., 1937, Physica **4**, 71.
- Petsalakis, I., G. Theodorakopoulos, und R. Buenker, 1988, Phys. Rev. A **38**, 4004.
- Pfaff, S., 1992, *Untersuchung des resonanten Elektronentransfers im Stoßsystem  ${}^3\text{He}^{2+} + {}^4\text{He}^+$* , Diplomarbeit, Justus-Liebig Universität Gießen.
- Pfeiffer, A., S. Krüdener, F. Melchert, L. Presnyakov, R. Schulze, S. Meuser, T. Bartsch, C. Brandau, K. von Diemar, K. Huber, und E. Salzborn, 1995, Nucl. Instr. Meth. B **98**, 240.
- Pfeiffer, A., F. Melchert, K. von Diemar, K. Huber, und E. Salzborn, 1999, Physica Scripta **T80**, 95.
- Pont, M., und R. Shakeshaft, 1995, Phys. Rev. A **51**, R2676.
- Pont, M., und R. Shakeshaft, 1996, Phys. Rev. A **54**, 1448.
- Pont, M., R. Shakeshaft, F. Maulbetsch, und J. Briggs, 1996, Phys. Rev. A **53**, 3671.
- Presnyakov, L., 1991, Phys. Rev. A **44**, 5636.
- Presnyakov, L., 1995, in *Progress in Optics*, herausgegeben von E. Wolf (Elsevier, Amsterdam-Lausanne-NewYork-Oxford-Shannon-Tokyo), Band 34, pp. 159–181.
- Prinz, H.-T., D. Dauvergne, S. Andriamonje, K. Beckert, M. Chevallier, C. Cohen, J. Dural, H. Eickhoff, B. Franzke, H. Geissel, R. Kirsch, A. L'Hoir, P. Mokler, R. Moshhammer, F. Nickel, F. Nolden, J. Poizat, H. Reich, J. Remillieux, F. Sanuy, C. Scheidenberger, D. Schmaus, M. Steck, T. Stöhlker, und M. Toulemonde, 1997, Hyperfine Interactions **108**, 325.
- Proulx, D., und R. Shakeshaft, 1993, Phys. Rev. A **48**, R875.
- Reddish, T., und J. Feagin, 1999, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **32**, 2473.

- Reddish, T., J. Wightman, M. MacDonald, und S. Cvejanovic, 1997, Phys. Rev. Lett. **79**, 2438.
- Reiser, I., 2002, *Alignment Effects in Electron Capture from  $D_2^+$  Molecular Ions by Doubly Charged Projectiles*, Dissertation, Kansas State University, Manhattan, Kansas, USA.
- Reiser, I., und C. Cocke, 2003, Nucl. Instr. Meth. B **205**, 614.
- Reiser, I., C. Cocke, und H. Bräuning, 2003, Phys. Rev. A **67**, 062718.
- Rinn, K., F. Melchert, K. Rink, und E. Salzborn, 1986, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **19**, 3717.
- Rinn, K., F. Melchert, und E. Salzborn, 1985, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **18**, 3783.
- Roberge, W., und A. Dalgarno, 1982, Astrophys. J. **255**, 489.
- Rohmund, F., und E. Campbell, 1995, Chem. Phys. Lett. **245**, 237.
- Rohmund, F., und E. Campbell, 1997a, Z. Phys. D **40**, 399.
- Rohmund, F., und E. Campbell, 1997b, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **30**, 5293.
- Ryufuku, H., und T. Watanabe, 1978, Phys. Rev. A **18**, 2005.
- Saha, M., 1921, Proc. Roy. Soc. **A99**, 135.
- Salin, A., 1969, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **2**, 631.
- Sant'Anna, M., W. Melo, A. Santos, M. Shah, G. Sigaud, E. Montenegro, H. Busnego, S. Corchs, R. Rivarola, und L. Gulyas, 2000, Phys. Rev. A **61**, 052717.
- Scheffler, H., und H. Elsässer, 1974, *Physik der Sterne und der Sonne* (Bibliographisches Institut Mannheim/Wien/Zürich).
- Scheidemann, A., V. Kresin, und W. Knight, 1994, Phys. Rev. A **49**, R4293.
- Scheier, P., und T. Märk, 1994, Phys. Rev. Lett. **73**, 54.
- Schlapp, M., 1995, *Entwicklung einer 14 GHz und einer "vollpermanenten" 10 GHz Elektron-Zyklotron-Resonanz (EZR) Ionenquelle zur Erzeugung hochgeladener Ionen*, Dissertation, Justus-Liebig Universität Gießen.
- Schmidt, A., M. Horbatsch, und R. Dreizler, 1990, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **23**, 2327.
- Schmidt, V., 1992, Rep. Prog. Phys. **55**, 1483.

- Schmidt, V., 1997, *Electron Spectrometry of Atoms Using Synchrotron Radiation*, Band 6 von *Cambridge Monographs on Atomic, Molecular and Chemical Physics* (Cambridge University Press, Cambridge).
- Schönhense, G., und J. Holmes, 1996, in *VUV and Soft X-Ray Photoionization*, herausgegeben von U. Becker und D. Shirley (Plenum Press, New York), p. 607.
- Schuch, R., H. Schöne, P. Miller, H. Krause, P. Dittner, S. Datz, und R. Olson, 1988, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 925.
- Schulze, R., 1993, *Stöße zweier negativer Ionen: Elektronenverlust und gegenseitige Ionisation*, Dissertation, Justus-Liebig Universität Gießen.
- Schwarzkopf, O., B. Krässig, J. Elmiger, und V. Schmidt, 1993, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3008.
- Schwarzkopf, O., B. Krässig, V. Schmidt, F. Maulbetsch, und J. Briggs, 1994, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **27**, L347.
- Schwarzkopf, O., und V. Schmidt, 1995, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **28**, 2847.
- Selberg, N., A. Barany, C. Biedermann, C. Setterlind, H. Cederquist, A. Langereis, M. Larsson, A. Wännström, und P. Hvelplund, 1996, *Phys. Rev. A* **53**, 874.
- Shah, M., und H. Gilbody, 1978, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **11**, 121.
- Shen, H., P. Hvelplund, D. Mathur, A. Barany, H. Cederquist, N. Selberg, und D. Lorents, 1995, *Phys. Rev. A* **52**, 3847.
- Shevelko, V., 2000, *GSI Rep.* **2000-1**, 115.
- Shingal, R., und C. Lin, 1989, *Phys. Rev. A* **40**, 1302.
- Siegmann, B., U. Werner, Z. Kaliman, N. Kabachnik, und H. Lutz, 2001, *Phys. Rev. A* **65**, 010704(R).
- Sinha, C., und N. Sil, 1976, *Phys. Lett. A* **71**, 201.
- Skiera, D., R. Trassl, K. Huber, H. Bräuning, E. Salzborn, M. Keim, A. Achenbach, T. Kirchner, H. Lüdde, und R. Dreizler, 2001, *Physica Scripta* **T92**, 423.
- Sobottka, S., und M. Williams, 1988, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **35**, 348.
- Spielberger, L., 1996, *Erforschung von Korrelationseffekten in atomaren Mehrteilchensystemen: Doppel- und Einfachionisation von Helium induziert durch hochenergetische Photonen* (Shaker Verlag, Aachen), Dissertation, Univ. Frankfurt.
- Spielberger, L., H. Bräuning, A. Muthig, J. Tang, J. Wang, Y. Qui, R. Dörner, O. Jagutzki, T. Tschentscher, V. Honkimäki, V. Mergel, M. Achler, T. Weber, K. Khayyat, J. Burgdörfer, J. McGuire, und H. Schmidt-Böcking, 1999, *Phys. Rev. A* **59**, 371.

- Spielberger, L., O. Jagutzki, R. Dörner, J. Ullrich, U. Meyer, V. Mergel, M. Unverzagt, M. Damrau, T. Vogt, I. Ali, K. Khayyat, D. Bahr, H. Schmidt, R. Frahm, und H. Schmidt-Böcking, 1995, Phys. Rev. Lett. **74**, 4615.
- Spielberger, L., O. Jagutzki, B. Krässig, U. Meyer, K. Khayyat, V. Mergel, T. Tschentscher, T. Buslaps, H. Bräuning, R. Dörner, T. Vogt, M. Achler, J. Ullrich, D. Gemmel, und H. Schmidt-Böcking, 1996, Phys. Rev. Lett. **76**, 4685.
- Sramek, S., J. Macek, und G. Gallup, 1980, Phys. Rev. A **22**, 1467.
- Strömholm, C., J. Semaniak, S. Rosen, H. Danared, S. Datz, W. van der Zande, und M. Larsson, 1996, Phys. Rev. A **54**, 3086.
- Sundström, G., S. Datz, J. Mowat, S. Mannervik, L. Broström, M. Carlson, H. Danared, und M. Larsson, 1994, Phys. Rev. A **50**, R2806.
- Tanabe, T., I. Katayama, N. Inoue, K. Chida, Y. Arakaki, T. Watanabe, M. Yoshizawa, S. Ohtani, und K. Noda, 1993, Phys. Rev. Lett. **50**, 422.
- Tanabe, T., I. Katayama, N. Inoue, K. Chida, Y. Arakaki, T. Watanabe, M. Yoshizawa, M. Saito, Y. Haruyama, K. Hosono, T. Honma, K. Noda, S. Ohtani, und H. Takagi, 1994, Phys. Rev. A **49**, R1531.
- Tharamel, J., V. Kharchenko, und A. Delgarno, 1994, Phys. Rev. A **50**, 496.
- Theiss, A., H. Bräuning, A. Diehl, R. Trassl, H. Kern, E. Salzborn, und M. Keim, 2004, *Total Charge Transfer Cross Sections in  $Li^{2+} + ^3He^{2+}$  Collisions*, to be published.
- Theodorakopoulos, G., S. Farantos, R. Buenker, und S. Peyerimhoff, 1984, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **17**, 1453.
- Thomson, J., 1912, Phil. Mag. **23**, 449.
- Tolstikhina, Y., und V. Shevelko, 2000, Short Comm. Phys. (Moscow) **5**, 46.
- Tomanek, D., und M. Schluter, 1991, Phys. Rev. Lett. **67**, 2331.
- Trassl, R., 1999, *Entwicklung "vollpermanenter" EZR Ionenquellen und Untersuchung des Ladungsaustausches in Stößen zwischen 4-fach geladenen Wismut-Ionen*, Dissertation, Justus-Liebig Universität Gießen.
- Trassl, R., H. Bräuning, K. von Diemar, F. Melchert, E. Salzborn, und I. Hofmann, 2000, in *Atomic Processes in Plasmas: Twelfth Topical Conf.*, herausgegeben von R. Mancini und R. Phaneuf (American Institute of Physics), pp. 157–166.
- Trassl, R., H. Bräuning, K. von Diemar, F. Melchert, E. Salzborn, und I. Hofmann, 2001, Nucl. Instr. Meth. A **464**, 80.

- Tschentscher, T., 1993, *Bestimmung der Elektronenimpulsdichten in Festkörpern mit koinzidenter Elektronenspektroskopie*, Dissertation, Universität Hamburg.
- Tuan, T., und E. Gerjuoy, 1960, Phys. Rev. **117**, 756.
- Ullrich, J., und H. Schmidt-Böcking, 1987, Phys. Lett. A **125**, 193.
- Viefhaus, J., L. Avaldi, F. Heiser, R. Hentges, O. Gessner, A. Rüdell, M. Wiedenhöft, K. Wielczek, und U. Becker, 1996a, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **29**, L729.
- Viefhaus, J., L. Avaldi, G. Snell, M. Wiedenhöft, R. Hentges, A. Rüdell, F. Schäfer, D. Menke, U. Heinzmann, A. Engelns, J. Berakdar, H. Klar, und U. Becker, 1996b, Phys. Rev. Lett. **77**, 3975.
- Vujovic, M., M. Matic, B. Cobic, und Y. Gordeev, 1971, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **4**, L18.
- Vujovic, M., M. Matic, B. Cobic, und Y. Gordeev, 1972, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **5**, 2085.
- Walch, B., C. Cocke, R. Voelpel, und E. Salzborn, 1994, Phys. Rev. Lett. **72**, 1439.
- Walter, M., und J. Briggs, 2000, Phys. Rev. Lett. **85**, 1630.
- Wang, Y., und J. McGuire, 1991, Phys. Rev. A **44**, 367.
- Wang, Y., J. McGuire, und R. Rivarola, 1989, Phys. Rev. A **40**, 3673.
- Wannier, G., 1953, Phys. Rev. **90**, 817.
- Wästberg, W., und G. Wendin, 1994, Nucl. Instr. Meth. B **87**, 162.
- Watts, M., G. Angel, K. Dunn, und H. Gilbody, 1984, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **17**, 1631.
- Watts, M., K. Dunn, und H. Gilbody, 1986, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **19**, L355.
- Weber, T., A. Czasch, O. Jagutzki, A. Müller, V. Mergel, A. Kheifets, J. Feagin, E. Rothenberg, G. Meigs, M. Prior, S. Daveau, A. Landers, C. Cocke, T. Osipov, H. Schmidt-Böcking, und R. Dörner, 2004, *Fully Differential Cross Sections for Photo Double Ionization of Fixed-in-Space D<sub>2</sub>*, Phys. Rev. Lett., accepted for publication.
- Weber, T., O. Jagutzki, M. Hattass, A. Staudte, A. Nauert, L. Schmidt, M. Prior, A. Landers, A. Bräuning-Demian, H. Bräuning, C. Cocke, T. Osipov, I. Ali, R. D. Muino, D. Rolles, F. G. de Abajo, C. Fadley, M. V. Hove, A. Cassimi, H. Schmidt-Böcking, und R. Dörner, 2001a, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **34**, 3669.

- Weber, T., M. Weckenbrock, A. Staudte, M. Hattass, L. Spielberger, O. Jagutzki, V. Mergel, H. Schmidt-Böcking, G. Urbasch, H. Giessen, H. Bräuning, C. Cocke, M. Prior, und R. Dörner, 2001b, *Optics Express* **8**, 368.
- Wehlitz, R., F. Heiser, O. Hemmers, B. Langer, A. Menzel, und U. Becker, 1991, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 3764.
- Werner, U., N. Kabachnik, V. Kondratyev, und H. Lutz, 1997, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 1662.
- Wiley, W., und I. McLaren, 1955, *Rev. Sci. Instr.* **26**, 1150.
- Winter, T., 1982, *Phys. Rev. A* **25**, 697.
- Winter, T., 1987, *Phys. Rev. A* **35**, 3799.
- Winter, T., und G. Hatton, 1980, *Phys. Rev. A* **21**, 793.
- Wohlfahrt, C., 1997, *Ladungsaustausch in Schwerionenstößen im Hinblick auf die Berechnung von Teilchenverlusten in Speicherringen für die schwerioneninduzierte Trägheitsfusion*, Diplomarbeit, Justus-Liebig Universität Gießen.
- Wu, W., S. Datz, N. Jones, H. Krause, B. Rosner, K. Sorge, und C. Vane, 1996, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4324.
- Wu, W., M. Prior, und H. Bräuning, 1998, *Phys. Rev. A* **57**, R5.
- Younger, S., 1985, in *Electron Impact Ionization*, herausgegeben von T. Märk und G. Dunn (Springer Verlag, Wien), p. 1.
- van der Zande, W., W. Koot, D. de Bruijn, und C. Kubach, 1986, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1219.
- Zare, R., 1972, *Mol. Photochem.* **4**, 1.
- Zettergren, H., H. Schmidt, H. Cederquist, J. Jensen, S. Tomita, P. Hvelplund, H. Lebius, und B. Huber, 2002, *Phys. Rev. A* **66**, 032710.



# Index

- Überschallgasjet, 23
- 2SC-Wellenfunktion, 40
- 3C-Wellenfunktion, 39
  
- Accel-Decel-Technik, 93
- Adiabatengleichung, 24
- Antiprotonen, 133
- AO<sup>+</sup>-Rechnungen, 52
- AO-Rechnungen, 51
- Asymmetrieparameter, 32
- ATLAS Beschleuniger, 92
- Auswahlregeln, 36, 58
- axial recoil approximation, 9, 135
  
- Basis-Generator-Methode, 45
- Betatron-Funktion, 126
- Betatron-Oszillation, 124
- Bindungsenergie
  - C<sub>2</sub>, 96
  - C<sub>3</sub>, 96
- bond-percolation Modell, 99
  
- CAPTURE, 115
- CCC-Rechnung, 41
- Channeltron, 21
- cold-ion Grenzfall, 35
- COLTRIMS, 3
- Compton-Streuung, 4, 22
- Coulomb-Wellenfunktion, 39
- crossed-beams Experiment, 15
  
- Decay-Modell, 86
- Delayline Anoden, 30
- Dipolnäherung, 3
  
- Elektronenspektroskopie, 32
- Elektronenstoßionisation, 111
  
- ELISA, 109
- Emittanz, 124
- ESR, 93
- EZR-Quellen, 19
  
- folded-beam Experiment, 119
- Formfaktor, 17
- Fullerene, 12, 79
  - Fragmentation, 87, 94
    - Xe<sup>35+</sup>+C<sub>60</sub>, 92
    - Xe<sup>53+</sup>+C<sub>60</sub>, 93
  - Hybridisierung, 80
  - Polarisierbarkeit, 80
- Fusionsforschung, 101
  
- GRASP, 105
- Greensfunktion, 6
- GSC, 6
  
- HeH<sup>+</sup>, 10
- HIBALL II, 123
- HIBALL-Szenario, 125
- HLI, 131
- homonukleare Stöße, 101
  
- intra-beam
  - scattering, 123
  - Stöße, 123
- Ionenfallen, 14
  - Paulfalle, 14
  - Penningfalle, 14
- Ionisation
  - Ar<sup>q+</sup>+Ar<sup>q+</sup>, 120–122
  - Bi<sup>+</sup>+Bi<sup>+</sup>, 118
  - Cs<sup>+</sup>+Cs<sup>+</sup>, 118
  - H<sup>+</sup>+He<sup>+</sup>, 46
  - im Laserfeld, 135

- $\text{Kr}^{q+} + \text{Kr}^{q+}$ , 120–122  
 $\text{Xe}^+ + \text{Xe}^+$ , 118  
 $\text{Xe}^{q+} + \text{Xe}^{q+}$ , 120, 121  
 Ionisationsgrad, 14  
 isolated pentagon Regel, 80  
 Jacobi-Koordinaten, 33  
 Kernfragmentation, 97, 99  
 kinetic shift, 95  
 Koinzidenz, 21  
 Korrelationsdiagramm, 51  
 Ladungstransfer  
 $^3\text{He}^{2+} + \text{B}^{2+}$ , 7, 49, 51  
 $^3\text{He}^{2+} + \text{C}^{3+}$ , 7, 49  
 $^3\text{He}^{2+} + \text{C}_{60}^+$ , 90  
 $^3\text{He}^{2+} + \text{D}_2^+$ , 68  
 $^3\text{He}^{2+} + \text{H}_2^+$ , 63  
 $^3\text{He}^{2+} + \text{He}^+$ , 48  
 $^3\text{He}^{2+} + \text{Li}^{2+}$ , 44  
 $^3\text{He}^{2+} + \text{N}^{4+}$ , 7, 49  
 $^3\text{He}^{2+} + \text{O}^{5+}$ , 7, 49  
 $\text{Ar}^{2+} + \text{D}_2^+$ , 68  
 $\text{Ar}^{2+} + \text{H}_2^+$ , 63  
 $\text{Ar}^{q+} + \text{Ar}^{q+}$ , 103  
 $\text{Bi}^{4+} + \text{Bi}^{4+}$ , 107  
 $\text{C}_{60}^+ + \text{C}_{60}$ , 80  
 $\text{C}_{60}^{2+} + \text{C}_{60}^+$ , 81  
 $\text{C}_{70}^{3+} + \text{C}_{60}$ , 81  
 $\text{H}^+ + \text{He}^+$ , 44  
 $\text{He}^{2+} + \text{H}$ , 64  
 $\text{He}^{2+} + \text{H}_2$ , 64  
 $\text{HeH}^+ + \text{He}$ , 73  
 $\text{Kr}^{q+} + \text{Kr}^{q+}$ , 105  
 $\text{N}^{2+} + \text{D}_2^+$ , 68  
 $\text{Pb}^{4+} + \text{Pb}^{4+}$ , 107  
 $\text{Xe}^{q+} + \text{Xe}^{q+}$ , 106  
 LCAO, 64  
 Lotzformel, 113  
 Maxwell-Verteilung, 125  
 MCP-Detektor, 21, 26, 28  
     Chevron, 28  
     Effizienz, 28  
     Pulshöhe, 28  
     z-Stack, 28  
 merged-beams Experiment, 14  
 metastabile Ionen, 107  
 MO-Rechnungen, 51  
 multiconfiguration valance-bond Methode,  
     117  
 Ortsfokussierung, 27  
 Parametrisierung nach Huetz, 37  
 Photoabsorption, 3  
 Photodoppelionisation, 3  
      $\text{D}_2$ , 56  
     Helium, 31  
 Photoionisation, 22  
 planetarische Nebel, 11  
 Plasmon-Anregung, 95  
 Potential  
     Barriere zwischen leitenden Kugeln, 84  
      $\text{H}_2$ , 55  
     regularisiertes, 46  
 Prädissoziation, 74  
 Q-Wert, 23, 105  
 Rückstoßion, 22  
 Ratenkoeffizient, 124  
 Reaktionsrate, 16, 124  
 reduzierte Masse, 16  
 Relativgeschwindigkeit, 16  
 RTE, 101  
 Saha-Gleichung, 14  
 Schrödinger-Operator, 45  
 Schwerpunktsenergie, 16  
 self-consistent-field Methode, 118  
 shake-off, 4, 6  
 shellium Modell, 93  
 SIS, 93  
 SO, *siehe* shake-off  
 Sonnenspektrum, 1  
 Speedratio, 25

- 
- Stokesparameter, 32  
Strahlpulsung, 22  
Strahltemperatur, 125  
Strahlverluste, 7, 101  
Stromdichte, 17
- Transferionisation  
     ${}^3\text{He}^{2+} + \text{C}_{60}^{2+}$ , 91  
Translationsfaktor, 65  
Transversalimpuls, 23  
TS1, 5
- Vielteilchen-Störungstheorie, 5  
vollständiges Experiment, 32
- Wannier-Theorie, 35, 58  
Wegde&Strip Andoden, 28
- Zeitfokussierung, 27  
zone of silence, 24



# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich explizit allen danken, die mich tatkräftig bei meinen Forschungen unterstützt haben.

Prof. Dr. E. Salzborn danke ich für die Aufnahme als wissenschaftlicher Assistent in seine Arbeitsgruppe. Er führte mich nicht nur in die interessante Thematik der Ion-Ion-Stöße ein, sondern ermöglichte mir auch, meine anderen Interessen an der Gesellschaft für Schwerionenforschung, Darmstadt und an der Advanced Lightsource, Berkeley, USA wahrzunehmen. Dr. R. Trassl danke ich für seine unschätzbare Hilfe beim Betrieb der Ionenquellen, ohne die manches Experiment nicht gelungen wäre. Dipl. Phys. A. Theiß, Dipl. Phys. A. Diehl und Dipl. Ing. H. Kern danke ich für die tatkräftige Unterstützung bei der Durchführung der Experimente und der Lösung zahlreicher technischer Probleme am Ion-Ion-Experiment.

Prof. Dr. R. Dörner und meinem Doktorvater Prof. Dr. H. Schmidt-Böcking danke ich für die fruchtbare und vertrauensvolle Zusammenarbeit auf dem Gebiet der Photodoppelionisation. Dr. M.H. Prior vom Lawrence Berkeley National Lab. danke ich nicht nur für seine unschätzbare Hilfe und die vielen anregenden Diskussionen bei der Arbeit sondern insbesondere auch für seine Unterstützung bei den vielen kleinen privaten Problemen, die ein Umzug von Deutschland nach USA für zwei Jahre verursacht.

Prof. Dr. L. Cocke danke ich für seine unschätzbare Mithilfe und die tiefgreifenden Diskussionen sowohl bei den Experimenten zur Photodoppelionisation in Berkeley als auch bei einem späteren ein-monatigen Aufenthalt an der Kansas State University für Experimente zum Ion-Ion-Stoß mit molekularen Ionen.

All jenen Mitgliedern beider Arbeitsgruppen, die an den Experimenten teilgenommen haben, danke ich für ihre tatkräftige Unterstützung. Ein besonderer Dank gebührt dabei Dr. O. Jagutzki für seine unbezahlbare und unbezahlte Hilfe beim Einsatz von Multi-Hit-Detektoren im COLTRIMS-System.

Für die Durchführung gemeinsamer Experimente an der Gesellschaft für Schwerionenforschung danke ich insbesondere Prof. Dr. P. Mokler und Dr. Ch. Kozhuharov sowie allen anderen beteiligten Mitgliedern der Atomphysikgruppe. Einen besonderen Dank schulde ich auch der ESR-Mannschaft, insbesondere Dr. B. Franzke, Dr. M. Steck und Dr. K. Beckert, ohne deren Unterstützung die Experimente mit abgebremsten Ionen nicht durchführbar gewesen wären.

Der Alexander von Humboldt Stiftung danke ich für die Gewährung eines Feodor-Lynen Stipendiums, welches mir den zwei-jährigen Aufenthalt am Lawrence Berkeley National Lab. sowie einen späteren ein-monatigen Forschungsaufenthalt an der Kansas State University ermöglichte.

Nicht zuletzt danke ich meiner Ehefrau, Dr. A. Bräuning-Demian, für ihre vorbehaltlose Unterstützung auf allen Gebieten.