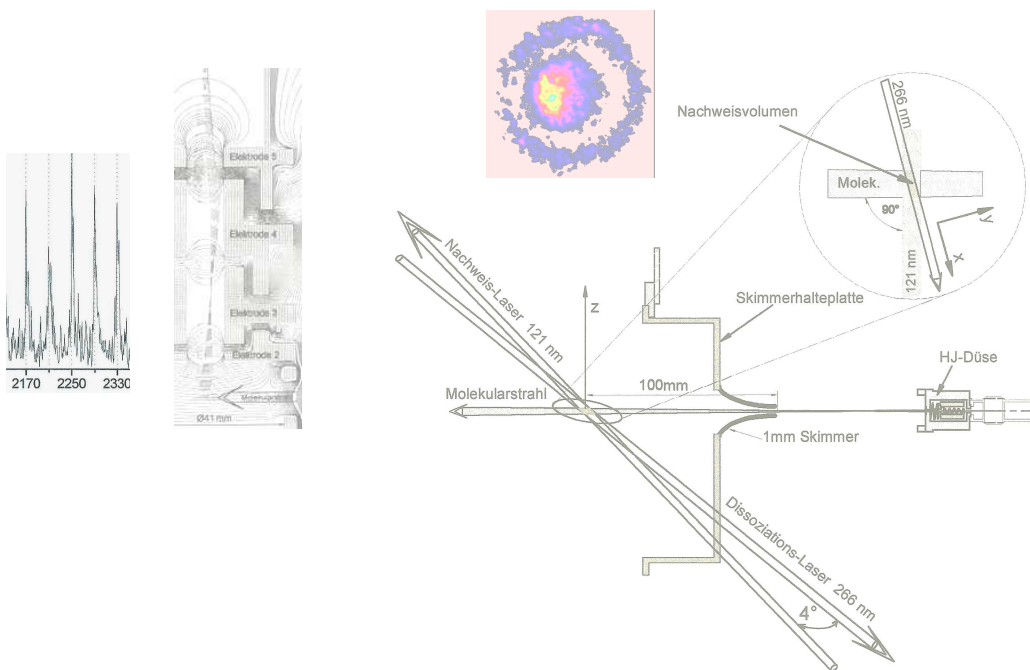


Entwicklung zweier Flugzeitmassenspektrometer für die Untersuchung von Photodissoziationsprozessen

Diplomarbeit
von
Alexander Ross



Fakultät für Physik der Universität Bielefeld

Juli 1997

Erstgutachter : Prof. Dr. P. Andresen
Zweitgutachter : Dr. habil. L. Schnieder

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	3
1 Grundlagen eines Flugzeitmassenspektrometers	5
1.1 Ableitung der analytischen Flugzeitfunktion	5
1.2 Raumfokussierung (Minimalisierung der Flugzeitabhängigkeit vom Ionenstartpunkt)	8
1.3 Minimalisierung der Umkehrzeit	10
1.3.1 Optimierung der Geschwindigkeitsauflösung	12
1.4 Abschätzung der Massenauflösung	13
2 Gitterloses Flugzeitmassenspektrometer	17
2.1 Motivation	17
2.2 Grundlagen zur Elektronenoptik	17
2.3 Entwicklung des Massenspektrometers	18
2.4 Elektrische Beschaltung und Funktionsweise des Flugzeitmassenspektrometers	21
2.5 Kompensation der Molekularstrahlgeschwindigkeit	23
3 Experimenteller Aufbau	24
3.1 Überblick über das Experiment	24
3.2 Datenaufnahme und zeitliche Steuerung	27
3.2.1 Eichung	28
4 Ergebnisse	28
4.1 Clusterspektren	28
5 Methode zur 3dimensionalen Erfassung von Fragmentgeschwindigkeiten	33
5.1 Überblick	33
5.2 Prinzip der entwickelten Methode	34
6 Experimenteller Teil	36
6.1 Übersicht über das Experiment	36
6.2 Aufbau des bildgebenden Flugzeitmassenspektrometers	37
6.2.1 Vakuumkammer	41
6.3 Durchführung des Experimentes	42
6.3.1 Lasersystem	44
6.3.2 Zeitliche Steuerung des Experimentes und Datenaufnahme	46
6.3.3 Abschätzung des Molekularstrahldurchmessers	47

Inhaltsverzeichnis

7	Eigenschaften des bildgebenden Flugzeitmassenspektrometers	49
7.1	Fehlerrechnung	49
7.2	Kriterien für die Wahl der Feldstärken	52
7.2.1	Potentialwahl für die Abbildung schwerer Fragmente	53
8	Erste Ergebnisse	54
8.1	H ⁺ - Flugzeitspektren	54
8.2	Optimierung der experimentellen Parameter	56
8.3	Aufbereitung der Bilder (Zeitscheiben)	56
9	Theorie zur Auswertung der Bilder	61
9.1	Differentielle Winkelverteilung und Koordinatentransformation	61
9.2	Transformation der Wahrscheinlichkeitsdichten	64
9.3	Unterschiede in der Darstellung zwischen der experimentellen- und theoretischen Wahrscheinlichkeitsdichte.	67
9.4	Berechnung der idealen Bilder	68
10	Methode der Bildauswertung	71
10.1	Normierung	71
10.2	Bildvergleich	73
11	Ergebnisse	75
11.1	Ergebnisse aus dem Bildvergleich	75
11.2	Ermittelte experimentelle Nachweiswahrscheinlichkeit für die Teilchen	78
11.3	Abklingzeiten beim Szintillator und Phosphor	80
12	Zusammenfassung und Ausblick	82
12.1	Bilder	83
Anhang		95
A	Montage des gitterlosen Massenspektrometers	95
B	Winkelverteilung der H-Atome aus der HJ-Dissoziation	95
C	Kleben und Bedampfen des Szintillators	97
D	Bildverstärker und CCD-Kamera	99
E	Umbau: Gitterloses Massenspektrometer als Reflektron	103
Literaturverzeichnis		109
Konstruktionszeichnungen:		
	Flugzeitmassenspektrometer	112
	Bildgebendes Flugzeitmassenspektrometer	117

Einleitung

Ziel dieser Arbeit war die Konstruktion und der Funktionstest zweier unterschiedlicher Flugzeitmassenspektrometer in einem Molekularstrahlexperiment zur Untersuchung der Photodissoziationsdynamik.

Es wurde ein gitterloses Flugzeitmassenspektrometer (FMS) mit einer speziellen Elektrodenkonfiguration entwickelt, um wahlweise Flugzeitmessungen mit Ionen oder mit Wasserstoffatomen in einem hochangeregten metastabilen Zustand (Rydbergatom) [1], die beim Flug durch ein Gitter zum größten Teil ionisieren würden, zu ermöglichen. Darüber hinaus sollte es eine hohe Auflösung und einen geringen Signalverlust für zukünftige Photodissoziationsexperimente an Clusterverbindungen aufweisen.

Im zweiten Teil der Arbeit wurde, unter Einbeziehung der im ersten Teil vorgestellten Theorie zum FMS, ein spezielles für eine ausgewählte Masse geschwindigkeitsauflösendes und bildgebendes FMS (b-FMS) konstruiert.

In beiden Experimenten war die Flugstrecke senkrecht zu der Laser- und Molekularstrahlachse orientiert, um die Auswirkung der Geschwindigkeitsbreite in Molekularstrahlrichtung auf die Auflösung der Spektren zu minimieren. Bei dem Einsatz des gitterlosen Massenspektrometers mußte hierfür die Driftgeschwindigkeit senkrecht zu der Detektorachse mittels eines elektrostatischen Querfeldes in Abhängigkeit von der Ionenmasse kompensiert werden. Dies hatte den Nachteil, daß die Detektionswahrscheinlichkeit innerhalb eines Massenspektrums variierte.

Im Rahmen der Dissertation von Peter Löffler [2] wurde die Photodissoziationsdynamik von molekularen Rydbergzuständen des Acetylenmoleküls untersucht. Hierzu wurde das Massenspektrometer für einen massenselektiven Nachweis in Abhängigkeit von der Dissoziationswellenlänge eingesetzt. Mit diesen sogenannten "Aktionsspektren" konnte dann die relative Änderung des totalen Wasserstoffsignals als Funktion der Dissoziationswellenlänge ermittelt werden. Für die Wellenlängenbereiche mit maximalem Signal wurden in Abhängigkeit von der Wellenlänge, die bei der Dissoziation des Acetylenmoleküls auftretenden Fragmentmassen bestimmt.

Zur Ermittlung des Auflösungsvermögens dieses FMS wurden Massenspektren von verschiedenartigen Clusterverbindungen aufgenommen (z. B. $[\text{HCl}]_n[\text{H}]$, $\text{J}_2[\text{Ar}]_n$). Ein Vergleich zwischen der theoretisch zu erwartenden Auflösung und der im Experiment ermittelten zeigte, daß sich das konstruierte Massenspektrometer nahezu ideal verhielt.

Mit dem b-FMS sollte eine Methode zur Erfassung der 3dimensionalen Geschwindigkeitsverteilung von Fragmenten, die z. B. in einer Photodissoziation oder (reaktiven) Streuprozessen von Atomen oder Molekülen entstehen, entwickelt und erprobt werden. Durch die detaillierte Kenntnis der Winkel- und Energieverteilung einer oder mehrerer Reaktionsprodukte ist es möglich, die Mechanismen elementar physikalischer oder chemischer Umwandlungsprozesse auf molekularer Ebene näher zu verstehen.

Der Grundstein in der Technik zur simultanen 3dimensionalen Erfassung einer kompletten Geschwindigkeitsverteilung wurde 1987 von von Chandler [3] gelegt. Es wurden verschiedene Techniken zur Erfassung der 3dimensionalen Geschwindigkeitsverteilung entwickelt, bei der die Symmetrie der Verteilung prinzipiell keine Rolle spielt [4], [5].

Einleitung

Mit diesen Meßmethoden kann simultan jeweils ein Teil der 3dimensionalen Verteilung erfaßt werden. Bei der hier entwickelten Meßmethode wurden die Teilchen aus der zu detektierenden Fragmentverteilung innerhalb eines definierten Volumens zum Zeitpunkt t_0 ionisiert und mit dem b-FMS auf einen speziellen bildgebenden Detektor mit Zeitauflösung projiziert. Über einen Bildverstärker, der Öffnungszeiten bis hinunter in den Nanosekundenbereich zuließ, wurden jeweils nur die Fragmente, die den Detektor innerhalb eines festgelegten Flugzeitintervalls ab dem Bildverstärkeröffnungszeitpunkt erreichten, selektiv nachgewiesen. Das auf diese Weise erzeugte und jeweils einem bestimmten Flugzeitintervall zugeordnete 2dimensionale Signalmuster (Zeitscheibe), wurde mit einem CCD-Kamerasystem (s. Anhang D) aufgenommen. Die 3dimensionale Fragmentverteilung kann dann aus der charakteristischen Signalverteilung in den Zeitscheiben, die jeweils die Auftreffpunkte der Fragmente in der Detektorbildebene widerspiegeln in Kombination mit der, jeder Zeitscheibe zugeordneten, mittleren Teilchenflugzeit bis zu dem Detektor rekonstruiert werden.

Um die Brauchbarkeit der Methode zu testen, ist ein theoretisch und experimentell gut verstandener Fragmentations- oder Streuprozeß mit einer einfachen Winkel- und Geschwindigkeitsverteilung wünschenswert. Hierzu bot sich die experimentell vielfach untersuchte Photodissoziation von HJ mit einer theoretisch gut verstandenen Winkelverteilung an [6].

In dem Experiment wurde das HJ mit gepulster und linear polarisierter Laserstrahlung bei einer Wellenlänge von 266 nm photodissoziiert. Für die Winkelverteilung ergaben sich bei dieser Wellenlänge zwei Geschwindigkeitsgruppen mit einem gut bekannten Verzweigungsverhältnis. Die Wasserstoffatome wurden über einen resonanten Zweiphotonenprozeß über den H(2p)-Zustand mittels gepulster VUV- und UV-Laserstrahlung mit einer Wellenlänge von 121.6 nm und 266 nm ionisiert.

Zur Überprüfung des Abbildungsverhaltens wurden die Zeitscheibenaufnahmen unter verschiedenen Polarisationswinkeln (0° , 45° , 90°) des Dissoziationslasers aufgenommen, wobei sich die charakteristische Form der Zeitscheiben in Übereinstimmung mit der Theorie geändert hat. Für die Auswertung der Bilder (Zeitscheiben) wurde eine spezielle Methode entwickelt, bei der die Zeitscheiben mit simulierten Bildern bildpunktweise verglichen wurden.

Der Geschwindigkeitsbetrag für beide Geschwindigkeitsgruppen aus der HJ-Dissoziation konnte mit einer relativen Meßgenauigkeit von bis zu ca. 2% aufgelöst werden. Das Verzweigungsverhältnis für die HJ-Dissoziationskanäle konnte in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen aus anderen Messungen bestätigt werden [6] [7].

Die hier entwickelte Methode soll zu einem neuen Werkzeug für eine detaillierte Analyse elementarer, elastischer oder reaktiver Streuprozesse ausgebaut werden. Sie könnte beispielsweise für die 4π -Bestimmung der winkelabhängigen (zustandsspezifischen) Streuquerschnitte der in dieser Gruppe [8] [9] untersuchten Wasserstoffaustauschreaktion in gekreuzten Molekularstrahlen eingesetzt werden.

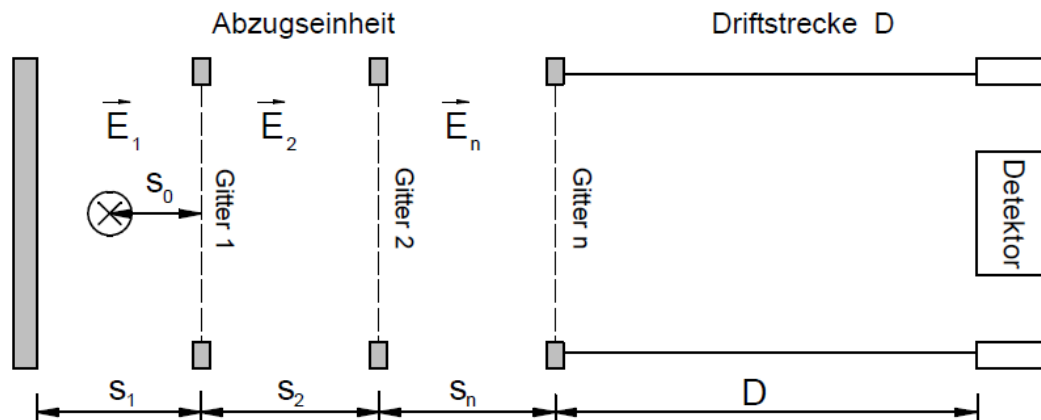
Kapitel 1 Grundlagen eines Flugzeitmassenspektrometers

1.1 Ableitung der analytischen Flugzeitfunktion

Mit einem Flugzeitmassenspektrometer (FMS) werden Teilchenmassen durch eine Flugzeitmessung über eine feste Driftstrecke der Länge D ermittelt. Hierzu werden die Teilchen zuvor auf eine einheitliche kinetische Energie beschleunigt. Die jeweilige Teilchenmasse ist dann umgekehrt proportional zum Quadrat der Teilchengeschwindigkeit, die sich aus dem Quotienten von D und der Flugzeit ergibt.

Allgemein werden hierzu die Atome (Moleküle) zum Zeitpunkt t_0 am Ort s_0 ionisiert (im Experiment durch VUV-Laserstrahlung) und anschließend in elektrostatischen Feldern auf die gleiche kinetische Energie (bei einheitlicher Ionenladung) beschleunigt. Nach einer feldfreien Flugstrecke D werden die Ionen mittels eines geeigneten Detektors nachgewiesen.

Abb. 1.1 Massenspektrometer (schematisch)



Im einfachsten Fall besteht ein solches Massenspektrometer aus einem homogenen Abzugsfeld und einer feldfreien Driftstrecke. Am häufigsten sind sog. Zwei-Stufen-Massenspektrometer, vom Wiley und McLaren-Typ [10] mit zwei aufeinanderfolgenden homogenen, durch Gitter getrennten, Abzugsfeldern und einer nachfolgenden feldfreien Driftstrecke (s. Abb. 1.1).

Allgemein ergibt sich für ein (n-Stufen-FMS) Modell die Gesamtflugzeit T_{Flug} aus der Summe der Flugzeiten T_i in den einzelnen Beschleunigungsabschnitten mit den Feldstärken E_i und der Flugzeit in der Driftstrecke T_{Drift} zu:

$$T_{\text{Flug}} = T_1 + T_2 + T_i \dots + T_n + T_{\text{Drift}} \quad (1.1)$$

Die Ionenflugzeit nimmt dabei mit wachsendem Verhältnis von Masse zu Ladung proportional mit $\sqrt{m/q}$ zu.

Das jeweilige Verhältnis von Masse und Ladung eines Ions kann jedoch nur bei einem punktförmigen Startvolumen und einer einheitlichen Anfangsenergie mit jeweils zueinander parallelen Geschwindigkeitsvektoren eindeutig aus der Flugzeit berechnet werden.

Im folgenden werden die wesentlichen Faktoren aufgeführt, die dazu führen, daß auch Ionen mit gleicher Masse und Ladung im allgemeinen in einem endlichen Flugzeitintervall ΔT abgebildet werden.

a) Startvolumen

Starten Ionen gleicher Masse und Ladung in dem elektrischen Abzugsfeld E_1 innerhalb eines Volumens dV , gewinnen diese aufgrund der Ausdehnung des Startvolumens Δs_z parallel zum elektrischen Abzugsfeld E_1 eine unterschiedliche kinetische Energie. Aus der Unschärfe der kinetischen Energie ΔU ($\Delta U = \Delta s_z E_1 q$) resultiert eine Unschärfe für die Ionenendgeschwindigkeiten. Des Weiteren ist für ein ausgedehntes Startvolumen die gesamte Flugstrecke um Δs_z unbestimmt. Hieraus resultieren im allgemeinen unterschiedliche Ionenflugzeiten mit einer Zeitunschärfe ΔT_{Ort} .

b) Umkehrzeit

Fliegt ein Ion zum Zeitpunkt t_1 seiner Erzeugung am Ort s_0 mit der Geschwindigkeit v antiparallel im Abzugsfeld E_1 , kehrt es erst nach Reflexion zum Zeitpunkt t_2 wieder an den Ausgangspunkt s_0 zurück. Die Umkehrzeit ΔT_{Turn} "turn-around-time" wird durch das Flugzeitintervall $t_2 - t_1$ definiert. Mit ΔT_{turn} kann die maximal mögliche Flugzeitdifferenz für Ionen einheitlicher Masse, derselben Startenergie, und demselben Ionisationsort aber einer unbestimmten Anfangsflugrichtung abgeschätzt werden.

c) Apparative Zeitunschärfe

Die apparative Zeitunschärfe ΔT_{Ap} ergibt sich aus dem endlichen Zeitintervall δT_I , innerhalb der die Ionisation erfolgen kann und der begrenzten zeitlichen Auflösung der Meßelektronik δT_M . Unter der Annahme gaußförmiger Verteilungen und voneinander unabhängiger Fehler kann ΔT_{Ap} über die Fehlerquadratsumme

$$\Delta T_{\text{Ap}} = \sqrt{(\delta T_I)^2 + (\delta T_M)^2} \quad (1.2)$$

abgeschätzt werden.

Im folgenden wird die exakte Flugzeitfunktion $T_{\text{Flug}}(s, v, m)$ allgemein für ein n-Stufen-FMS berechnet, um anschließend aus dieser allgemeine Maßnahmen zur Minimierung der Flugzeitverbreiterung ΔT abzuleiten (siehe Abb. 1.1).

Relativ zu einem kartesischen Koordinatensystem verlaufe ein homogenes elektrisches Feld E_1 parallel zu dessen Z-Achse. Für ein Ion mit der Ladung q der Masse m und der Startgeschwindigkeit \vec{v} , das in diesem Feld auf ein Gitter im Abstand s_0 beschleunigt wird, folgt für die Flugzeit T_1 bis zum ersten Gitter allgemein (s. Abb. 1.1):

mit $v_z = \vec{v} \cdot \hat{z}$ und \hat{z} : Einheitsvektor || zur Z-Achse

$a_1 = E_1 q / m$ a_1 : Beschleunigung im ersten Feld

$U_0 = \frac{1}{2} m v_z^2$ U_0 : kinetische Energie des Ions für die Translation || zur Z-Achse

und $s_0 = \frac{1}{2} a_1 T_1^2 + v_z T_1$

$$T_1 = -\frac{v_z}{a_1} + \sqrt{\left(\frac{v_z}{a_1}\right)^2 + \frac{2s_0}{a_1}} \quad (\text{für } a_1 > 0 \text{ und } v_z \text{ mit beliebigen Vorzeichen}).$$

Kapitel 1 Grundlagen

wird in dem Ausdruck für T_1 v_z durch $\sqrt{2U_0/m}$ substituiert ergibt sich für $a_1 > 0$ (Ion wird zum Gitter beschleunigt) unter Verwendung von $a_1 = E_1 q / m$:

$$T_1 = \frac{\sqrt{2m}}{qE_1} * \left(\sqrt{U_0 + s_0 E_1 q} \pm \sqrt{U_0} \right) \quad (\text{positives Vorzeichen steht bei } v_z < 0)$$

oder :

$$T_1 = \frac{\sqrt{2m}}{qE_1} * \left(\sqrt{U_0 + s_0 E_1 q} - \sqrt{\frac{m}{2} \cdot v_z} \right) \quad (1.3)$$

Ist $v_z < 0$ fliegt das Ion zu Beginn gegen das Abzugsfeld E_1 .

Die Flugzeiten T_2 bis T_n in den nachfolgenden homogenen elektrischen Feldern mit den Feldstärken E_2 bis E_n und den Gitterabständen s_2 bis s_n werden analog berechnet. Im Unterschied zur Beschleunigung im ersten Feld hat das Ion in den nachfolgenden Feldern jedoch immer einen positiven v_z -Startwert ($v_z > 0$).

Mit : V_i : anfallende Potentialdifferenz der zwischen den Elektroden im Abstand s_i
 E_i : V_i / s_i (s. Abb. 1.1)

und

$U_1 = U_0 + s_0 E_1 q$ U_1 : kinetische Energie des Ions für die Translation || zur Z-Achse hinter dem 1. Gitter

$U_i = U_{(i-1)} + s_i E_i q$ U_i : kinetische Energie des Ions für die Translation || zur Z-Achse hinter dem i. Gitter

(1.4)

folgt allgemein für die Flugzeiten T_i in den nachfolgenden Beschleunigungsstufen (für $E_i > 0$ wird das Ion zum Gitter beschleunigt, für $E_i < 0$ abgebremst)

mit $i = 2, 3, \dots, n$:

$$T_i = \frac{\sqrt{2m}}{qE_i} * \left(\sqrt{U_i} - \sqrt{U_{(i-1)}} \right) \quad \text{und für } E_i \Rightarrow 0 :$$

$$T_i = \sqrt{2m} * \frac{s_i}{2\sqrt{U_{(i-1)}}}$$

Mit $T_{Drift} = \sqrt{2m} * \frac{D}{2\sqrt{U_n}}$ (Flugzeit in der feldfreien Driftstrecke der Länge D)

$$T_{rest}(s_0, v_z, m) = \sum_{i=2}^n T_i(s, v_z, m) + T_{Drift} \quad (\text{verbleibende Flugzeit nach dem ersten Abzugsfeld})$$

und (1.3) ergibt sich die gesamte Flugzeit T_{Flug} aus:

$$T_{Flug}(s_0, v_z, m) = \frac{\sqrt{2m}}{qE_1} \cdot \sqrt{U_0 + s_0 E_1 q} - \frac{m}{qE_1} \cdot v_z + T_{rest}(s_0, m) \quad (1.5)$$

Kapitel 1 Grundlagen

Für beide Flugzeitmassenspektrometer kann die explizite v_z -Abhängigkeit in T_{rest} in guter Näherung vernachlässigt werden, da die Feldstärken E_i (mit $i > 1$) so hoch gewählt wurden, daß die in diesen Feldern gewonnene kinetische Ionenenergie U_i gegenüber U_0 vernachlässigt werden kann ($U_i \gg U_0$ für $i > 1$).

Nur wenn die Feldstärke E_1 so hoch gewählt wird, daß $U_0 \ll s_0 E_1 q$ ist, verläuft T_{Flug} (in guter Näherung) proportional zu $\sqrt{m/q}$.

(Für das gitterlose FMS (s. Kapitel 2) war U_0/qE_1s_0 kleiner 10^{-6})

Die maximale Flugzeitdifferenz ΔT_F (Δs , Δv) für Ionen der Masse m , die innerhalb des Abstandes Δs_z parallel zum Abzugsfeld mit der Geschwindigkeit $\pm \Delta v_z$ starten, läßt sich

$$\text{mit: } \Delta T_{\text{Ort}} = |T_{\text{Flug}}(s_0 + \Delta s/2, v_z) - T_{\text{Flug}}(s_0 - \Delta s/2, v_z)|$$

$$\text{und } \Delta T_{\text{turn}}(\Delta v_z) = |T_{\text{Flug}}(s_0, +\Delta v_z) - T_{\text{Flug}}(s_0, -\Delta v_z)| = \left| \frac{2m \cdot \Delta v_z}{qE_1} \right| = 2 \frac{\sqrt{2mU_0}}{qE_1} \quad (1.6)$$

wie folgt abschätzen:

$$\Delta T_F(\Delta s, \Delta v) \leq \text{Max} \left(\left| T_{\text{Flug}} \left(s_0 + \frac{\Delta s}{2}, \pm \Delta v_z \right) - T_{\text{Flug}} \left(s_0 - \frac{\Delta s}{2}, \mp \Delta v_z \right) \right| \right) = \Delta T_{\text{Ort}} + \Delta T_{\text{turn}}$$

Da sich bei einer gaußförmigen räumlichen Ionendichteverteilung innerhalb des Ionisationsvolumens (durch den Laserstrahldurchmesser begrenzt) auch für ΔT_{Ort} näherungsweise eine gaußförmige Flugzeitverteilung ergibt oder diese bei Raumfokussierung (s. Kapitel 1.2) gegenüber ΔT_{turn} und ΔT_{Ap} in guter Näherung vernachlässigt werden kann, kann unter der Annahme eines gaußförmigen Laserprofils in Richtung des Abzugsfeldes E_1 mit der Halbwertsbreite Δs_z und eines gaußförmigen Geschwindigkeitsprofils parallel zum Abzugsfeld mit der Halbwertsbreite Δv_z die gesamte Flugzeitverbreiterung ΔT_{Flug} über

$$\Delta T_{\text{Flug}} = \sqrt{(\Delta T_{\text{Ap}})^2 + (\Delta T_{\text{Ort}})^2 + (\Delta T_{\text{Turn}})^2} \quad (1.7)$$

abgeschätzt werden. Im folgenden werden Maßnahmen zur Minimierung dieser Terme vorgestellt.

1.2 Raumfokussierung (Minimalisierung von ΔT_{Ort})

Bei geeigneter Wahl der Feldstärken für eine vorgegebene Elektrodengeometrie und Flugstrecke ist es möglich, daß die um Δs näher zum Gitter startenden Ionen, von den um $\Delta U = \Delta s E_1 q$ energiereicheren und somit schnelleren Ionen gleicher Masse erst am Ende der Flugstrecke überholt werden, da die schnelleren Ionen im ersten Abzugsfeld eine um Δs größere Distanz zurücklegen müssen und somit erst später in das Nachbeschleunigungsfeld gelangen.

$$\text{Durch: } \frac{\delta T_{\text{ges}}(s_0, v_z)}{\delta s_0} = 0 \quad (1.8) \quad (s_0 = \text{Abstand zum ersten Abzugsgitter})$$

wird die Raumfokussierungsbedingung definiert ($v_z = 0$).

Die Minimierung von $\Delta T_{\text{Ort}} = |T_{\text{Flug}}(s_0 + \Delta s/2, v) - T_{\text{Flug}}(s_0 - \Delta s/2, v)|$ erfolgt über eine geeignete Wahl der Potentiale oder der Elektrodenabstände, so daß die Gleichung (1.8) erfüllt ist.

Wird (1.8) nach der Driftstrecke D aufgelöst, ergibt sich eine Bestimmungsgleichung für die optimale Driftstrecke in Abhängigkeit von den Elektrodenpotentialdifferenzen V_1 bis V_n und den Gitterabständen s_1 bis s_n .

Mit den Definitionen 1.4 ergibt sich für D :

$$D = \frac{2}{q} \cdot (U_n)^{\frac{3}{2}} \cdot \left[\frac{1}{E_1 \sqrt{U_1}} + \sum_{i=2}^n \frac{1}{E_i} \cdot \left(\frac{1}{\sqrt{U_i}} - \frac{1}{\sqrt{U_{i-1}}} \right) \right]$$

oder mit $U_0 = \frac{V_0}{q}$

$$U_1 = q \cdot (V_0 + V_1 \cdot \frac{s_0}{s_1})$$

$$U_i = q \cdot (V_0 + V_1 \cdot \frac{s_0}{s_1} + \sum_{i=2}^i V_i) \quad (\text{für } i > 1) \quad (1.8a)$$

$$D = 2 \cdot \left(V_0 + \frac{V_1 s_0}{s_1} + \sum_{i=2}^n V_i \right)^{\frac{3}{2}} \cdot \left[\frac{s_1}{V_1 \sqrt{V_0 + \frac{V_1 s_0}{s_1}}} + \sum_{i=2}^n \frac{s_i}{V_i} \cdot \left(\frac{1}{\sqrt{V_0 + \frac{V_1 s_0}{s_1} + \sum_{j=2}^i V_j}} - \frac{1}{\sqrt{V_0 + \frac{V_1 s_0}{s_1} + \sum_{j=2}^{i-1} V_j}} \right) \right] \quad (1.9)$$

Aus (1.9) folgt, daß die Raumfokussierungsbedingung bei einer einfachen Kombination aus Abzugs- und Driftstrecke unabhängig von der Feldstärke nach einer festen Driftstrecke D mit

$$D = 2 \left(V_0 + \frac{V_1 s_0}{s_1} \right) \cdot \frac{s_1}{V_1} \approx 2 \cdot s_0$$

erfüllt wird.

Mit einer Kombination von zwei hintereinander angeordneten Abzugsfeldern und anschließender Driftstrecke (zwei-Stufen-TOF) läßt sich (nach Wiley und McLaren [10]) die Raumfokussierungsbedingung mit einer beliebigen Driftstrecke je nach dem Verhältnis von E_1 zu E_2 realisieren. George Sanzone [11] hat verschiedene Kombinationen mit 3 homogenen statischen Feldern (drei-Stufen-TOF) untersucht und gezeigt, daß die Umkehrzeit für die Ionen bei beliebigen Driftlängen unter Erfüllung der "Raumfokussierungsbedingung" nicht kleiner als beim (zwei-Stufen-TOF) werden kann.

Entscheidend ist, daß die "Raumfokussierungsbedingung" in sehr guter Näherung von der jeweiligen Startenergie U_0 der Ionen unabhängig ist, wenn ein FMS in der Praxis so dimensioniert wird, daß $U_0 \ll s_0 E_1 q$ ist. Wird die oben abgeleitete analytische Funktion

$T_{\text{Flug}}(s_0, v_z)$ (1.5) in eine **Taylorreihe** um s_0 entwickelt, zeigt sich in einer Rechnung für die experimentellen Parameter (s. Kapitel 2.4) des konstruierten gitterlosen FMS, daß die Taylorreihenterme zweiter und höherer Ordnung, bei einer Variation um Δs (bis zu ca. 1 mm) relativ zur mittleren Flugzeit $T_{\text{Flug}}(0, 0)$ nur vernachlässigbare Flugzeitbeiträge liefern.

Nach Beschleunigung der Ionen unterschied sich infolge des endlichen Anregungsvolumens (Durchmesser bis zu 0.7 mm parallel zur Detektorachse) deren kinetische Energie für die experimentell gewählten Feldstärken um ca. 3-10 Elektronenvolt. Bei Raumfokussierung hatte dieser Unterschied (fast) keine Flugzeitdifferenz zur Folge. Dagegen resultiert über die "turn-around-time" für Ionen gleicher Masse mit einer kinetischen Startenergie in der Größenordnung von wenigen 100 meV eine erhebliche Flugzeitdifferenz, die mit einem FMS des vorgestellten Typs nicht kompensiert werden kann.

Eine gleichzeitige Minimierung des ersten und zweiten Reihenkoeffizienten von $T_{\text{Flug}}(s_0, v_z)$ ist bei festen Elektrodenabständen nur für eine feste Flugstrecke D realisierbar [12]. Mit der Bedingung (1.9) wird die Ortsauflösung minimalisiert.

1.3 Minimalisierung der Umkehrzeit

Variiert die Startgeschwindigkeit der Atome um Δv_z , so ist die maximale Zeitverschmierung durch die sog. "turn-around-time" ΔT_{turn} gegeben (s. 1.6). Für statische Felder ist eine Verringerung der "turn-around-time" nur mit einer Vergrößerung von E_1 oder einer Verkleinerung des Startgeschwindigkeitsintervalls Δv_z der der Ionen zu erzielen.

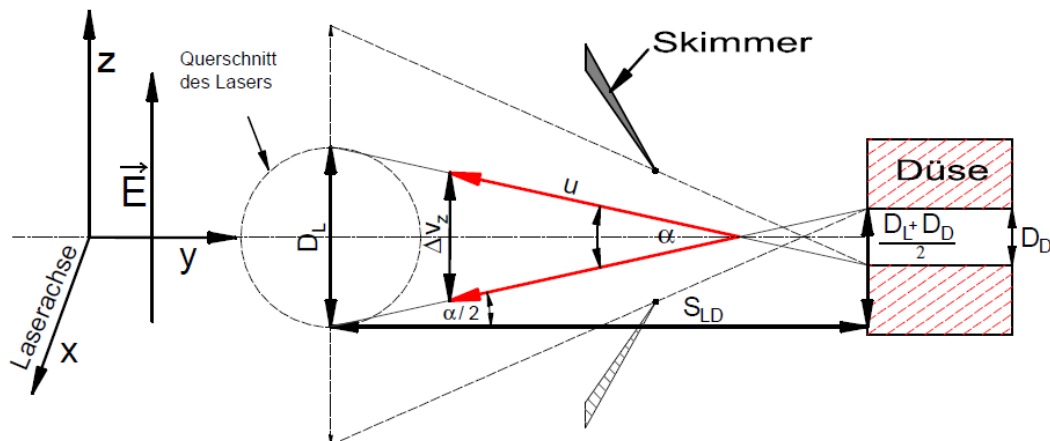
Da die Raumfokussierungsbedingung nach (1.9), mit $E_1 s_0 = \text{konstant}$, unverändert bleibt, kann bei unveränderter Geometrie des FMS E_1 proportional zu $1/s_0$ vergrößert werden. In der Praxis kann s_0 , wegen des ausgedehnten Laserstreulichtkegels und des Molekularstrahldurchmessers, nicht beliebig dicht an dem ersten Gitter liegen.

Eine weitere Möglichkeit zur Reduzierung der "turn-around-time" kann mit "impulse-field focusing (IFF)" erreicht werden [13] [14]. Hierbei wird zum Zeitpunkt der Ionisation ein hohes Abzugsfeld angelegt, welches wenige Nanosekunden später reduziert wird, so daß die Raumfokussierungsbedingung wieder erfüllt wird. Mit dieser Methode konnte die Massenauflösung bei einem FMS von 280 auf 450 Atomare Masseneinheiten amu (atomic-mass-units) gesteigert werden.

Durch Verringerung der Translationsgeschwindigkeitsbreite in einem durch Überschall-expansion gekühlten Molekularstrahl [15], kann die Umkehrzeit wirkungsvoll reduziert werden. (s. Abb. 1.2). Im Experiment wurden die Massenproben jeweils in einem Gasgemisch aufbereitet und in einem überschall-expansionsgekühlten Molekularstrahl senkrecht mit einem gepulsten Ionisationslaser gekreuzt [2] [16]. Dessen Strahlprofil konnte im Kreuzungspunkt näherungsweise durch ein gaußförmiges Profil mit einer Halbwertsbreite von ca. 0.5 mm bis 0.7 mm beschrieben werden. Hierdurch wurde die effektive Geschwindigkeitsbreite Δv_z für die im Ionisationsvolumen befindlichen Teilchen parallel zu dem elektrischen Abzugsfeld (s. Abb. 1.2) geometrisch stark eingeengt. Für den Betrag der gerichteten Geschwindigkeit im HJ-Molekularstrahl wurden ca. 500 m/sek ermittelt [8].

Mit Abb. 1.2 kann die vom Laser maximal erfaßte Geschwindigkeitsbreite Δv_z für die ionisierten Teilchen im Molekularstrahl parallel zum elektrischen Feld \vec{E}_1 abgeschätzt werden.

Abb. 1.2 Einengung der Geschwindigkeitsbreite parallel zum E- Feld



Mit α : vom Laser maximal erfaßte Winkeldivergenz der Teilchen.

u : mittlere Teilchengeschwindigkeit in der freien molekularen Strömung ergibt sich für Δv_z :

$$\Delta v_z = 2u \cdot \sin\left(\frac{\alpha}{2}\right) \approx u \cdot \left(\frac{D_L + D_D}{S_{LD}}\right).$$

Für die vorliegende experimentelle Geometrie konnte : $\frac{D_L + D_D}{2 \cdot S_{LD}} = \tan\left(\frac{\alpha}{2}\right)$

in sehr guter Näherung mit : $\sin\left(\frac{\alpha}{2}\right)$ approximiert werden.

Aus der Zeichnung 1.2 ergeben sich bei einem Düsendurchmesser $D_D = 0.502$ mm, Ionisationslaserdurchmesser $D_L = 0.7$ mm und einem Düsenabstand S_{LD} vom Ionisationsort maximal folgende Geschwindigkeitsbreiten Δv_z parallel zum Abzugsfeld E_1 :

$$\begin{aligned} \Delta v_z &= 8.6 \text{ m/sek} & \text{für } S_{LD} &= 70 \text{ mm} \\ \Delta v_z &= 3.0 \text{ m/sek} & S_{LD} &= 200 \text{ mm} \end{aligned}$$

Der Beitrag zur "turn-around-time" ΔT_{Turn} aus der Geschwindigkeitsverteilung im Molekularstrahl ist somit sehr klein (z. B. ist ΔT_{Turn} für die im Experiment durchgeführten Massenbestimmungen bei einer Atommasse von 1000 amu kleiner als 3 ns).

1.3.1 Optimierung der Geschwindigkeitsauflösung

Starten Ionen der Masse m am Ort $s_0 = (0, 0, s_z \pm \Delta s_z)$ mit den Laborgeschwindigkeitskomponenten $v_x^{lab}, v_y^{lab}, v_z^{lab}$ ($v_z^{lab} \parallel E_1$) in eine beliebige Raumrichtung (z. B. bei der im Rahmen dieser Diplomarbeit untersuchten HJ-Photodissoziation), kann die Flugzeitabhängigkeit von der v_z -Geschwindigkeitskomponente allgemein zur Bestimmung von v_z genutzt werden, solange die Raumfokussierungsbedingung (1.9) (in guter Näherung) nicht mit der Größe der Ionenstartgeschwindigkeiten parallel zu E_1 variiert (s. Kapitel 1.2).

Bei Raumfokussierung werden dann Ionen der Masse m mit Startgeschwindigkeitsbeträgen, die z. B. innerhalb des gegebenen Geschwindigkeitsintervalls $[+v_{max}, -v_{max}]$ liegen, eindeutig umkehrbar in das über die Umkehrzeit (1.6) definierte Flugzeitintervall $\Delta T_{turn}(v_{max})$ abgebildet. Formal kann deshalb eine Umkehrfunktion $V_z(t) = v_z^{lab}$ (im allgemeinen nicht analytisch) zur Berechnung von v_z^{lab} aus der Flugzeit t angegeben werden.

Im folgenden wird eine Abschätzung für die erzielbare Geschwindigkeitsauflösung abgeleitet. Das mit einem FMS auflösbare Flugzeitintervall ΔT_{min} ist infolge des ausgedehnten Nachweisvolumens und der begrenzten Zeitauflösung der Messelektronik auf ein Zeitintervall mit einer Halbwertsbreite von ca. $\sqrt{\Delta T_{Ort}^2 + \Delta T_{Ap}^2}$ begrenzt.

Hieraus ergibt sich eine Abschätzung für die absolute Geschwindigkeitsauflösung über die minimale Geschwindigkeitsdifferenz Δv_z^{lab} zweier Ionen, so daß diese in Analogie zur 50 % Talbedingung [15] noch eindeutig über die Flugzeitdifferenz $\Delta T_{Diff}(v_z, \Delta v_z)$ unterschieden werden können.

$$\Delta T_{Diff}(v_z, \Delta v_z^{lab}) = \left| T_{Flug}(v_z + \frac{\Delta v_z^{lab}}{2}) - T_{Flug}(v_z - \frac{\Delta v_z^{lab}}{2}) \right| \geq \sqrt{2} \cdot \Delta T_{min} \quad (1.10)$$

Die Geschwindigkeitsauflösung kann nur durch eine Vergrößerung der Umkehrzeit erhöht werden ($\Delta T_{turn}(\Delta v/2) = \Delta T_{Diff}(0, \Delta v_z)$). Deshalb muß die Abzugsfeldstärke E_1 möglichst klein gewählt werden (s. 1.6). In erster Näherung kann $T_{Flug}(s_0, v_z, m)$ zu

$$T_{Flug}(s_0, v_z, m) = \sqrt{\frac{2m \cdot s_0}{qE_1}} \cdot \left(1 + \frac{m \cdot v_z^2}{4s_0 E_1 q} \right) - \frac{m}{qE_1} \cdot v_z + T_{rest}(s_0, m) \quad (1.11)$$

vereinfacht werden ($T_{rest} \approx \sqrt{m}$, s. Seite 7).

(z. B. liegt für die Parameter des b-FMS (s. Kapitel 7.2.1) (für $U_0 < 1.6$ eV und $U_1 > 21$ Volt) der Näherungsfehler unter einem Prozent).

Mit 1.10 und 1.11 ergibt sich dann die absolute Auflösung aus dem gerade noch auflösbaren Geschwindigkeitsintervall Δv_z^{lab} mit

$$\left| \frac{\sqrt{2m \cdot m}}{4E_1 q \cdot \sqrt{qE_1 s_0}} \cdot (2v_z^{lab} \cdot \Delta v_z^{lab}) - \frac{m}{E_1 q} \cdot \Delta v_z^{lab} \right| = \sqrt{2} \cdot \Delta T_{min}$$

zu

$$|\Delta v_z^{lab}| = \frac{E_1 q \cdot \sqrt{2} \cdot \Delta T_{min}}{\left(\sqrt{\frac{m}{2qE_1 s_0}} \cdot v_z^{lab} - 1 \right) \cdot m} \quad (1.12)$$

Mit 1.12 wird die theoretisch mit einem n-Stufen-FMS zu erreichende Geschwindigkeitsauflösung parallel zum Abzugsfeld E_1 über Δv_z abgeschätzt. Es wird ersichtlich, daß diese innerhalb des Geschwindigkeitsintervalls $[v_{\max}, v_{\min}]$ mit zunehmender mittlerer Ionengeschwindigkeit v_z entgegen dem Abzugsfeld E_1 größer wird (Δv_z^{lab} wird kleiner). Die betrachtete Näherung gilt für v_z^{lab} -Werte mit “ $U_0/(q E_1 s_0) < 1$ “.

1.4 Abschätzung der Massenauflösung

Die maximal erzielbare Auflösung wird durch die resultierende Zeitunschärfe ΔT_{Flug} (1.7) begrenzt. Benachbarte Signale mit gleichem Intensitätsmaximum sind nach der 50 % Tal-Definition noch eindeutig unterscheidbar, wenn diese durch ein Minimum getrennt werden können, dessen Intensität mindestens um 50 % kleiner ist als das Intensitätsmaximum. Allgemein wird die Auflösung R über die 50 % Tal-Definition [15]

mit m_1, m_2 : Ionenmassen
 Δm : $m_2 - m_1$ wobei ($m_1 < m_2$) ist

über $R = \frac{m_2}{\Delta m}$ definiert.

Unter der Annahme, daß das Signal durch ein gaußverteiltes Intensitätsprofil mit einer Halbwertsbreite von ΔT_{Flug} beschrieben werden kann, ist die 50 % Tal-Bedingung für das Summensignal erfüllt, wenn die jeweiligen Signalmaxima um mindestens $\Delta T_{\text{ges}} \cdot \sqrt{2}$ voneinander getrennt sind. Die Flugzeitdifferenz ΔT_{diff} zwischen zwei Signalmaxima, die sich für ein Ionenpaar mit einer Massendifferenz von $\Delta m = 1$ ergibt, kann

mit $\Delta T_{\text{diff}} = T_{\text{Flug}}(s_0, 0, m_1 + \Delta m) - T_{\text{Flug}}(s_0, 0, m_1)$

und $\sqrt{m_1 + 1} \approx \sqrt{m_1} \cdot \left(1 + \frac{1}{2m_1}\right)$

durch $\Delta T_{\text{diff}} = \frac{T_{\text{Flug}}(s_0, 0, m_1)}{2m_1}$

abgeschätzt werden. Der relative Fehler dieser Näherung liegt für Teilchen, die schwerer als 14 Atommasseneinheiten sind, unter 2 % . Die Auflösung R ist dann betragsgleich zu derjenigen Masse m (in Atommasseneinheiten), für die die Gleichung

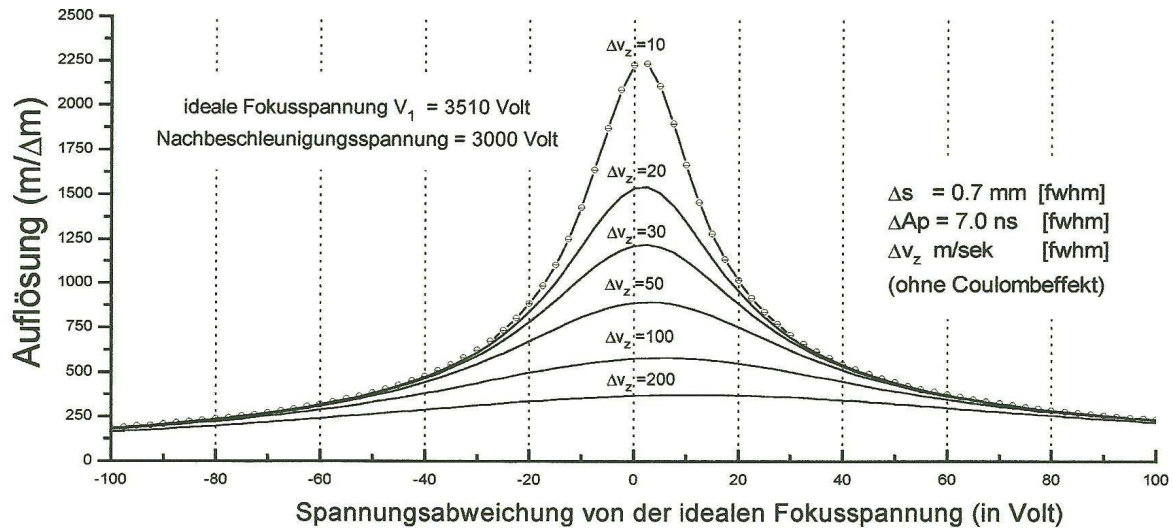
$$1 = \frac{\Delta T_{\text{diff}}}{\Delta T_{\text{Flug}} \cdot \sqrt{2}} = \frac{T_{\text{Flug}}(m)}{2\sqrt{2}m\sqrt{(\Delta T_{\text{Ort}}(m))^2 + (\Delta T_{\text{Turn}}(m))^2 + (\Delta T_{\text{Ap}})^2}} \quad (1.13) \quad \text{mit } R = m$$

erfüllt wird.

In Abb. 1.3 ist das theoretische Auflösungsverhalten eines n-Stufen-FMS in Abhängigkeit von der idealen Fokussierungsspannung V_1 für unterschiedliche Geschwindigkeitsbreiten Δv_z im Nachweisvolumen über 1.13 abgeschätzt worden (der Potentialverlauf des n-Stufen-FMS wurde dem Potentialverlauf des konstruierten gitterlosen FMS (s. Abb. 2.3) angenähert). Das Maximum der Auflösung verschiebt sich mit zunehmenden Δv_z zu einer höheren Abzugsspannung.

Abb. 1.3

Massenspektrometer (Flugstrecke = 0.97 m)



Bei der Abschätzung der Auflösung über 1.13 kann die Umkehrzeit in guter Näherung vernachlässigt werden (s.Kapitel 1.3). Anstelle der Umkehrzeit muß, wie im folgenden begründet wird, die Zeitverschmierung ΔT_{Col} infolge der gegenseitigen Coulombwechselwirkung zwischen den Ionen berücksichtigt werden.

Zur Abschätzung der Coulombwechselwirkung auf die Auflösung wird angenommen, daß jeweils N Ionen vergleichbarer Masse bei der Laserionisation gleichmäßig innerhalb einer Kugel mit dem Radius R_0 erzeugt werden. Die Ionen erfahren dann an der Kugeloberfläche die größten zusätzlichen Beschleunigungskräfte.

Die Größe des Flugzeitintervalls ΔT_{Col} wird dabei in Analogie zur Umkehrzeit von den resultierenden Geschwindigkeitskomponenten Δv_z in und entgegen der Flugachsenrichtung bestimmt. Im Unterschied zur Umkehrzeit haben die Ionen jedoch zum Ionisationszeitpunkt noch keine flugzeitrelevanten Geschwindigkeitskomponenten. Erst während der Beschleunigung in den Abzugsfeldern und auf der Driftstrecke D gewinnen diese infolge der sich über die gesamte Flugzeit erstreckenden Coulombbeschleunigung an Geschwindigkeit.

Bei den benutzten Abzugsfeldstärken des gitterlosen FMS von ca. 25000 (Volt/m) und der Ionenanzahl N ($N < 10^5$) in dem zugrunde liegenden Anregungsvolumen setzt sich die Coulomb-Flugzeitverbreiterung ΔT_{Col} im wesentlichen aus den im folgenden vorgestellten Anteilen ΔT_{1Col} und ΔT_{2Col} zusammen.

A) Bei der Beschleunigung im Abzugsfeld \vec{E}_1 erfahren die Ionen an der Oberfläche einer homogenen Ladungsverteilung die größte zusätzliche Beschleunigung infolge der Coulomb-Wechselwirkung des von der Ladungsverteilung erzeugten elektrischen Feldes

$$\vec{E}_{Col} = \frac{N \cdot q}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{1}{R_0^2}$$

Die Änderung ΔR des ursprünglichen Radius R_0 der kugelförmigen Ladungsverteilung kann während der Beschleunigung im Abzugsfeld \vec{E}_1 vernachlässigt werden (z. B. ist für Ionen mit einer Masse m größer als 50 a für $R_0 = 250\mu\text{m}$ $\Delta R < 1\mu\text{m}$). Die einzelnen Ionen erfahren über \vec{E}_{col} relativ zum FMS eine zusätzliche Beschleunigung in alle Raumrichtungen. Die aus diesem Effekt resultierende maximale Flugzeitverbreiterung ΔT_{1Col} ergibt sich aus den Beschleunigungen in oder entgegen der Flugachsenrichtung aus T_{Flug} (s. 1.5)

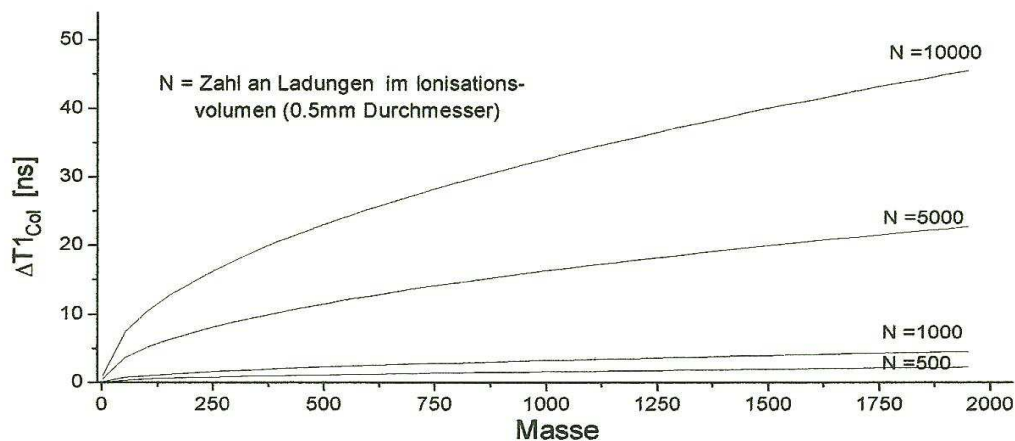
$$\text{zu: } \Delta T_{1Col} = | T_{Flug}(E_1 + E_{col}) - T_{Flug}(E_1 - E_{col}) |,$$

indem in T_{Flug} anstelle von der Feldstärke E_1 die effektive Feldstärke $E_1 \pm E_{col}$ eingesetzt wird. Bei den im Experiment vorliegenden Feldstärken ist $E_1 \gg E_{col}$, so daß in guter Näherung (s. 1.5) $\Delta T_{1Col} \approx N \cdot \sqrt{m}$ ist.

B) Die Ionen erhalten innerhalb der ursprünglichen Ladungsverteilung in den Beschleunigungsfeldern des FMS einen unterschiedlichen Geschwindigkeitszuwachs. Unmittelbar nach den Beschleunigungsfeldern hat die Ladungsverteilung noch nahezu ihre ursprünglichen räumlichen Ausmaße. Für die hier betrachteten Ladungsdichten kann ΔT_{2Col} in guter Näherung vernachlässigt werden. Dies ergibt sich aus einer Betrachtung für die Ionen am Rand der Ladungswolke, bei der die resultierenden Coulombkräfte am größten sind. Bei den verwandten Feldstärken im gitterlosen FMS, bewegen sich diese anfangs mit einer Energie von ca. 3 bis 12 Elektronenvolt (eV) aufeinander zu, so daß das abstoßende Coulombpotential erst bei Ionenabständen von wenigen μm eine Expansion der Ladungswolke bewirkt (z. B. kann ein 3 eV Ion die Oberfläche einer homogenen sphärischen Ladungsverteilung von 50000 Ionen mit einem Durchmesser von 50 μm erreichen). Da der mittlere Ladungsabstand parallel zur Detektorachse bei Raumfokussierung erst unmittelbar vor dem Detektor entsprechende Werte annimmt, verbleibt bei den hier betrachteten Ladungsdichten für eine flugzeitrelevante Expansion keine Zeit mehr.

In Abb. 1.4 wird die Flugzeitverbreiterung ΔT_{1Col} in Abhängigkeit von der Ionenmasse m und der Ionenanzahl N im betrachteten Volumen dargestellt.

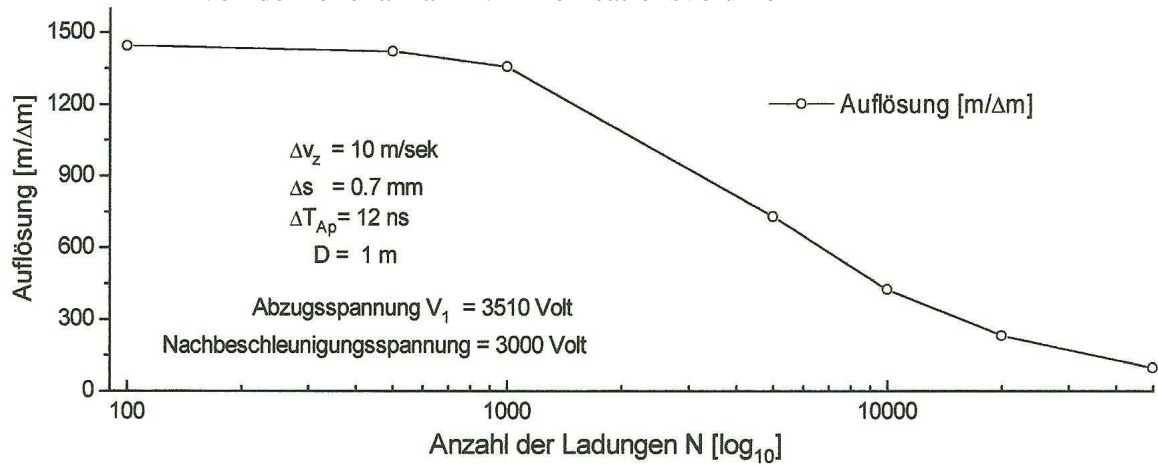
Abb. 1.4 Flugzeitverbreiterung im Abzugsfeld E_1 infolge einer unterschiedlichen effektiven Beschleunigung



In Abbildung 1.5 ist Auflösungsverhalten eines n-Stufen-FMS (der Potentialverlauf wurde dem des konstruierten gitterlosen FMS angepaßt (s. Abb. 2.3)) in Abhängigkeit von der Anzahl N der erzeugten Ionen mit 1.13 berechnet worden.

Abb. 1.5

Abschätzung für die Abhängigkeit der Auflösung von der Ionenanzahl N im Ionisationsvolumen



Kapitel 2 Das gitterlose Massenspektrometer

2.1 Motivation

Ein Massenspektrometer von dem in Kapitel 1 diskutierten n-Stufen-Typ muß durch Gitter in Bereiche mit homogenen Feldern unterteilt werden, um zum einen die Raumfokussierungsbedingung in der vorgestellten Form zu gewähren und zum anderen eine heftige Divergenz des Ionenstrahls auf der im Experiment erforderlichen 1 m bis 1.5 m langen Flugstrecke zu vermeiden.

Damit die Rydbergatome nicht durch die Wechselwirkung mit Gittern ionisieren, mußte ein gitterloses Massenspektrometer konstruiert werden. Um eine möglichst gute Signalausbeute zu erzielen, wurde eine spezielle Elektrodenkonfiguration gewählt, so daß der Ionenstrahl je nach der Flugstreckenlänge am Ort des Detektors fokussiert wurde.

Da sich aus experimentiertechnischen Gründen [2] in geringer Distanz vom Ionisationsort eine Skimmerhalteplatte auf Massepotential befand (s. Abb. 3.2), mußten die Elektroden das Innere des FMS wirkungsvoll gegenüber äußeren Störpotentialen abschirmen. Als Lösung bot sich eine rotationsymmetrische ineinander verschachtelte Elektrodenkonfiguration mit, in Analogie zur Optik, abbildenden Eigenschaften an.

2.2 Grundlagen zur Elektronenoptik

Die technischen Anwendungen in der Ionen- und Elektronenoptik (z. B. Elektronen-mikroskop und hochauflösende Massenspektrometer) wurden überwiegend in den Jahren 1930 bis 1960 entwickelt. Heutzutage ist die Elektronen- und Ionenoptik kein aktuelles Forschungsgebiet mehr.

Für die praktische Anwendung elektronenoptischer Linsen- und Linsensysteme wurden, neben der direkten numerischen Lösung der Bahngleichungen, die Abbildungseigenschaften für komplette Serien von Linsentypen und Linsensystemen experimentell bestimmt und katalogisiert. So können für die meisten Anwendungszwecke die passenden Linsendaten aus der Literatur entnommen werden [17][18].

Für die Suche einer geeigneten elektrostatischen Linse spielen die Ähnlichkeitsgesetze eine wichtige Rolle [20]. Allgemein wird die Bewegung eines Teilchen mit der Masse m_0 und der Ladung q unter dem Einfluß eines elektrischen und magnetischen Feldes \vec{E} bzw. \vec{B} durch folgende Bewegungsgleichung mit

\vec{v} : Geschwindigkeitsvektor des Ions und

$$m : m = m_0 / \sqrt{1 - (v/c)^2} \quad (\text{relativistische Masse})$$

$$\text{durch} \quad \frac{d}{dt}(m \cdot \vec{v}) = q \cdot (\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}) \quad (2.1)$$

beschrieben.

Die relativistische Massenabhängigkeit kann bei den hier vorliegenden Ionenenergien unter 5000 eV ($|v| < 10^6$ m/sek für Massen ≥ 1 a) in guter Näherung vernachlässigt werden (relativer Fehler $< 10^{-3}$). Die Drift Δs aufgrund des Erdmagnetfeldes senkrecht zur Detektorachse kann mit (2.1) über

$$\Delta s \leq \frac{1}{2} a \cdot t^2 \leq \frac{q \cdot |B| \cdot |v|}{2m} \cdot \left(\frac{D}{v} \right)^2 = \frac{q \cdot |B| \cdot D^2}{\sqrt{8mE_{kin}}} \quad \text{abgeschätzt werden.}$$

Für Wasserstoffatome mit Energien von 3000 eV bis 5000 eV beträgt Δs maximal ca. 0.7 mm nach einer Flugstrecke von 1.5 m. Der Einfluß des Erdmagnetfeldes \vec{B} (ca. $4 \cdot 10^{-5}$ Tesla) ist somit im Rahmen der durchgeführten Messungen vernachlässigbar.

Das elektrostatische Feld \vec{E} ist durch folgende Grundgleichungen charakterisiert:

$$\text{div } \vec{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0} \quad \text{rot } \vec{E} = 0$$

Mit $\text{rot } \vec{E} = 0$ kann \vec{E} allgemein aus einer Potentialfunktion ϕ über Gradientenbildung mit

$$\vec{E} = -\text{grad } \phi \quad (2.2)$$

rekonstruiert werden.

Im folgenden wird angenommen, daß die Dichte ρ der im FMS transportierten Ladung vernachlässigt werden kann ($\Rightarrow \text{div } \vec{E} = 0$). Das Potential ϕ im inneren des FMS muß in diesem Fall der Laplacegleichung in der Form

$$\Delta \phi = 0 \quad (2.3)$$

genügen, wobei die Randbedingungen für die Lösungsfunktion ϕ über die an den Elektrodenoberflächen angelegten Potentiale definiert werden.

Die Feldstärke in einem rotationssymmetrischen Feld hängt nur von der Position entlang der Symmetrieachse "optische Achse" (hier die z-Achse) und dem Abstand $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ von dieser Achse ab.

Wenn sich auf der optischen Achse keine Materie befindet und die Dichte ρ der im FMS transportierten Ladung vernachlässigbar ist, kann in erster Näherung mit alleiniger Kenntnis der Potentialfunktion $\phi(z)$ längs der optischen Achse [19] auch der Potentialverlauf für die benachbarten Raumbereiche berechnet werden. Die optischen Eigenschaften elektrostatischer Linsen werden von der anfänglichen Ionenenergie beeinflusst.

2.3 Entwicklung des Massenspektrometers

Das gitterlose FMS mußte so konzipiert werden, daß der Ionenstrahl nach einem frei wählbaren Abstand D auf einen Punkt P fokussiert werden konnte und simultan die Raumfokussierungsbedingung erfüllt wurde (Kapitel 1.2).

Um einen Ionenstrahl mit einer bestimmten Energie E im Abstand D räumlich fokussieren zu können, ist ein elektrostatisches Teleskoplinsenpaar erforderlich. Hierzu müssen die

Elektrodenpotentiale dieses Teleskops bestimmte Werte besitzen. Da die erforderlichen Elektroden Potentiale des Teleskops für die Erfüllung der Raumfokussierungsbedingung im allgemeinen andere Werte besitzen müssen, mußten diesem weitere Elektroden hinzugefügt werden.

Die erforderlichen Elektrodenpotentiale für die Erfüllung der Raumfokussierungsbedingung beim gitterlosen FMS wurden zunächst durch die Betrachtung des erforderlichen Potentialverlaufs längs der optischen Achse eines homogenen n-Stufen-FMS-Modells abgeschätzt. Hierbei stellte sich heraus, daß die Raumfokussierungsbedingung für eine feste Flugstrecke im wesentlichen nur durch das Verhältnis des angelegten Potentials im Abzugsbereich und dem über die verbleibenden Elektroden insgesamt abfallenden Potential bestimmt wurde, wobei das, dem Abzugsfeld unmittelbar folgende, Nachbeschleunigungsfeld im Vergleich zu dem Abzugsfeld eine möglichst hohe Feldstärke aufweisen sollte.

Aus diesem Grund wurde das gitterlose FMS für vier aufeinander folgende elektrostatische Feldbereiche (Abzugsfeld, Nachbeschleunigungsfeld und zwei Felder für das Teleskoplinsepaar) konzipiert. Die vier unabhängigen Feldbereiche wurden durch fünf Elektroden erzeugt.

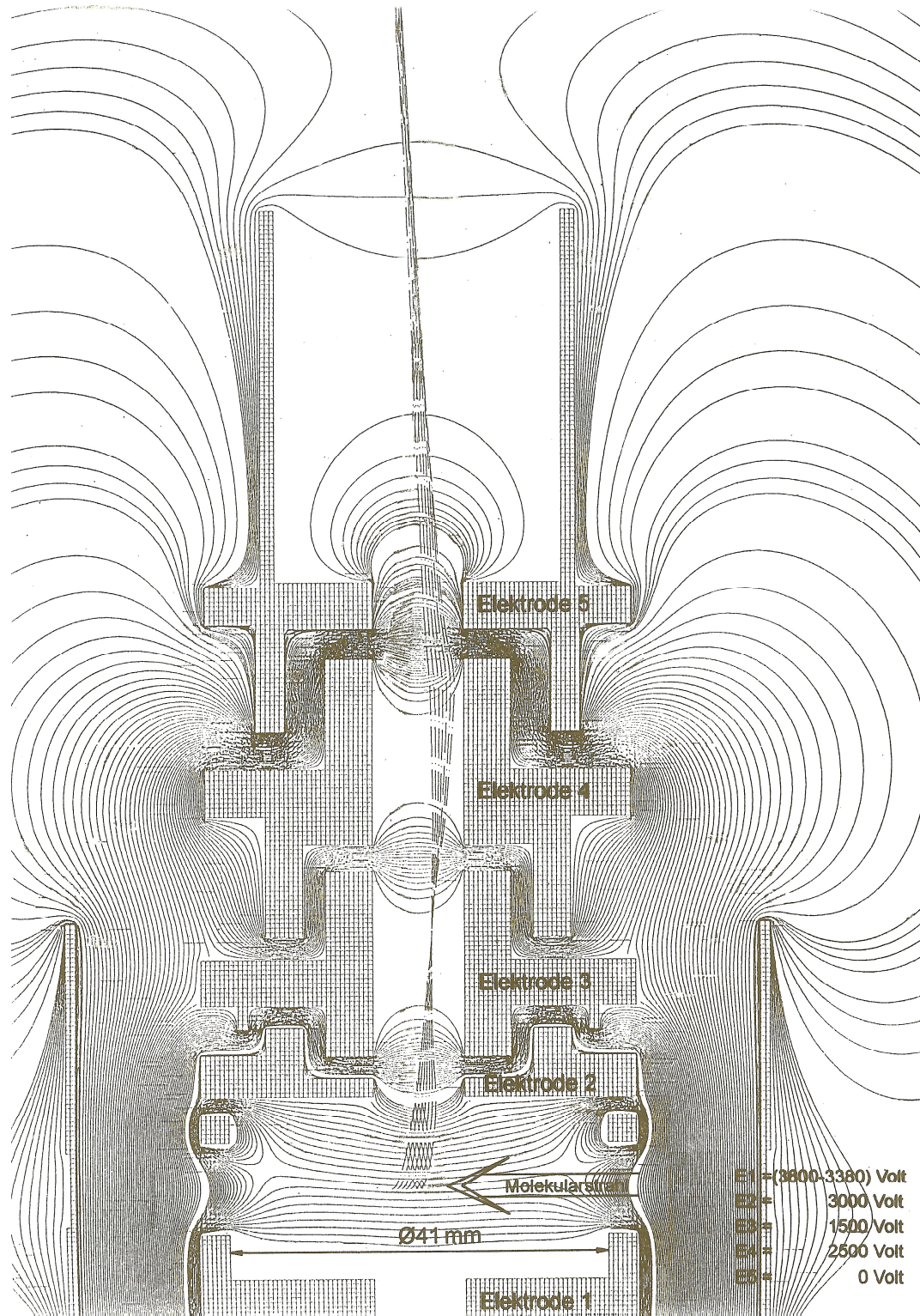
Der Potentialverlauf und die resultierenden Trajektorien im Inneren des gitterlosen FMS wurde für verschiedene Elektrodenformen und Elektrodenpotentiale numerisch mit einem vorhandenen Computerprogramm (Simion 3.0 unter UNIX) berechnet (s. Abb. 2.1), wobei für die Wahl der Elektrodenpotentiale die Ergebnisse aus dem 4-Stufen-FMS-Modell berücksichtigt wurden.

Für die Berechnung der Trajektorien wurde zunächst numerisch die Laplacegleichung mit der Randbedingung, die über die rotationssymmetrischen auf einem festen Potential liegenden Elektroden vorgegeben wurde, gelöst (2.3). Anschließend wurden die Trajektorien und Flugzeiten für Ionen mit 100 (1000) amu, die mit einer Startgeschwindigkeit von 500 m/sek senkrecht zur Z-Achse aus einem zylindrischen Volumen (entsprechend der Größe des Ionisationsvolumens im Experiment) mit einer Länge von 4 mm und einer Höhe von 1 mm (in Z-Richtung) starten, iterativ mit einer Schrittweite von ca. 0.1 mm berechnet.

Es zeigte sich, daß der zunächst stark divergente Ionenstrahl auf den Detektor fokussiert werden konnte, wenn die Ionen durch die erste Teleskoplinse (3. Feldabschnitt) in geeigneter Weise abgebremst wurden, bevor sie im vierten Feld auf die auf Massenpotential liegende fünfte Elektrode beschleunigt wurden. Aus der berechneten Flugzeit und kinetischen Energie eines jeden Ions konnte der Ort, an dem sich die Ionen unterschiedlicher Energie überholen (minimale Flugzeit-Divergenz), berechnet werden. Die Raumfokussierungsbedingung konnte nach einer Änderung der Bremsspannung um ca. 50 % (± 500 Volt) durch eine geringfügige Potentialänderung des Abzugsfeldes von ca. ± 10 % (± 40 Volt) wieder optimiert werden. Die theoretisch erreichbare Auflösung für ein n-Stufen-FMS, das dem numerisch bestimmten Potentialverlauf $V(s)$ (s. Abb. 2.3) entlang der Z-Achse angepaßt wurde, stimmte mit der des 4-Stufen-FMS-Modells (fast) überein.

Bei dem resultierenden Abzugsfeld ändert sich die Potentialfunktion $\phi(z)$ senkrecht zu der optischen Achse stetig. Der Elektrodendurchmesser konnte jedoch so groß gewählt werden, daß die Potentialänderung innerhalb des betrachteten zylindrischen Nachweisvolumens klein war. Die Raumfokussierungsbedingung konnte daher in guter Näherung für alle Ionen im Nachweisvolumen simultan erfüllt werden, so daß die Auflösung des konstruierten FMS unter Verwendung der numerisch bestimmten Potentialfunktion $\phi(z)$ (2.3) mit (1.13) (Kapitel 1.4) abgeschätzt werden konnte.

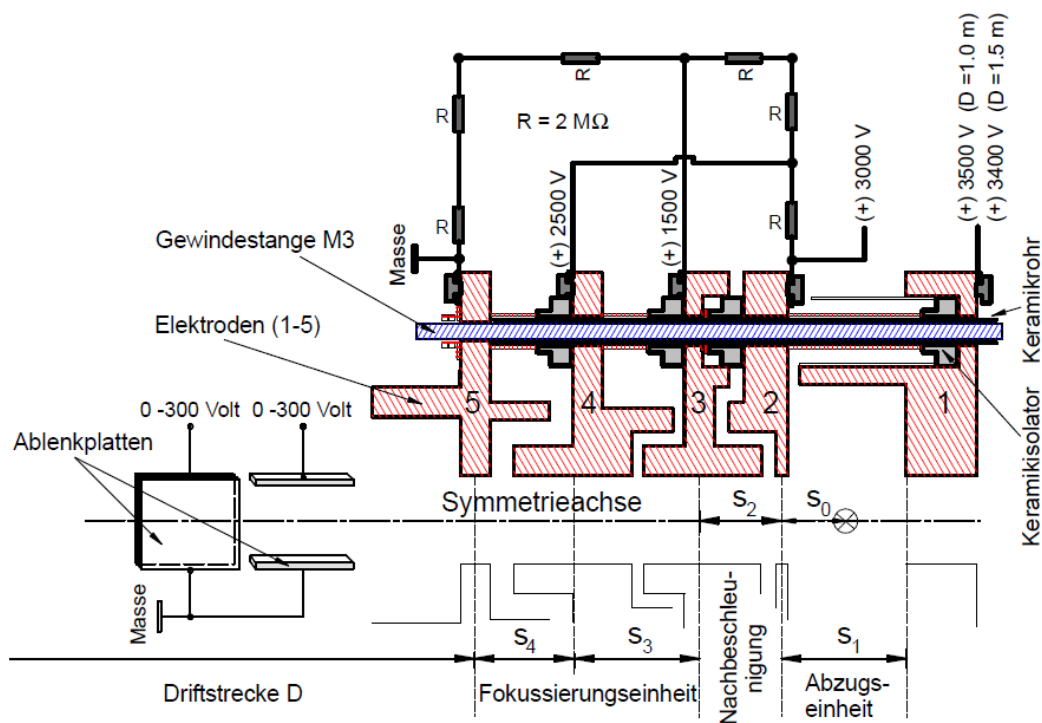
Abb. 2.1 gibt einen Überblick über den resultierenden Verlauf der Trajektorien für Ionen mit einer Translationsenergie von 0.5 eV parallel zum Molekularstrahl. Die Potential-liniendichte verdeutlicht den inhomogenen Verlauf der elektrostatischen Felder im Inneren des FMS. (Simion-Simulation)



2.4 Elektrische Beschaltung und Funktionsweise des Flugzeitmassenspektrometers

Die Elektroden der Nachbeschleunigungseinheit wurden über einen aus $2\text{M}\Omega$ Widerständen aufgebauten Spannungsteiler fest verdrahtet. Die Isolatoren sind über ineinander verzahnte Elektroden (s. Abb. 2.2) gegenüber dem Inneren des FMS elektrostatisch wirkungsvoll abgeschirmt.

Abb. 2.2 Isolatorenanordnung und elektrische Beschaltung des FMS



Das gitterlose Massenspektrometer besteht aus fünf rotations-symmetrischen Kupferelektroden (s. Abb. 2.1), die maßstabgetreu nach dem Simion-Simulations-Programm angefertigt wurden. Bei dem FMS wurden Ringelektroden mit 10 mm Innendurchmesser und einer Dicke zwischen 5 mm und 20 mm verwendet. Sie sind miteinander verzahnt, um äußere Felddurchgriffe von den möglicherweise statisch aufgeladenen Keramikisolatoren und der auf Masse liegenden Skimmerhalteplatte (siehe Abb. 3.2) auszuschließen. Die hiermit erzeugten elektrostatischen Linsenfelder fallen in die Kategorie sogenannter Rohrlinsen.

Mit den rotations-symmetrischen Elektroden des Massenspektrometers werden beim Anlegen der Elektrodenpotentiale im Inneren des FMS vier hintereinander angeordnete inhomogene, um die Z-Achse rotations-symmetrische statische Abzugsfelder (s. Potentiallinienbild 2.1) erzeugt.

Das Massenspektrometer kann in vier Abschnitte eingeteilt werden: Abzugsfeld, Nachbeschleunigungsfeld, Fokussierungseinheit und Driftstrecke.

Der Abstand vom Ionisationsort bis zur ersten Elektrode beträgt ca. 10 mm. Die Abzugseinheit erstreckt sich über den in Abb. 2.2 eingezeichneten Bereich s_1 . Die Nachbeschleunigung erfolgt innerhalb der Strecke s_2

Die elektrischen Felder der Fokussierungseinheit in den Bereichen s_3 und s_4 bilden zusammen ein **elektrostatisches Teleskoplinsenpaar**. Je nach der gewählten Potentialaufteilung können die Ionen durch dieses, unabhängig von ihrer Masse, auf einen bestimmten Abstand fokussiert werden.

Aus dem Verlauf der Trajektorien in Abb. 2.1 ist die resultierende Linsenwirkung der Elektrodenanordnung zu erkennen. Die mit einer Molekularstrahlgeschwindigkeit u_y (ca. 500 m/sek) senkrecht zur Detektorachse startenden Ionen werden während der Beschleunigung innerhalb der FMS-Felder einmal senkrecht zur Detektorachse reflektiert, so daß eine Kompensation der Geschwindigkeitskomponente- u_y mittels eines geeigneten Querfeldes in Abhängigkeit von der Ionenmasse erforderlich war.

Abb. 2.3 Kinetische Energie des Ions längst der optischen Achse (Modell-FMS)

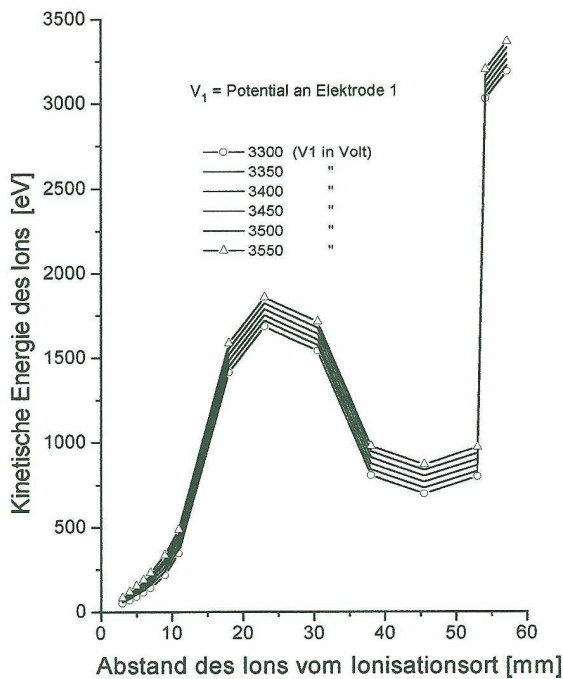
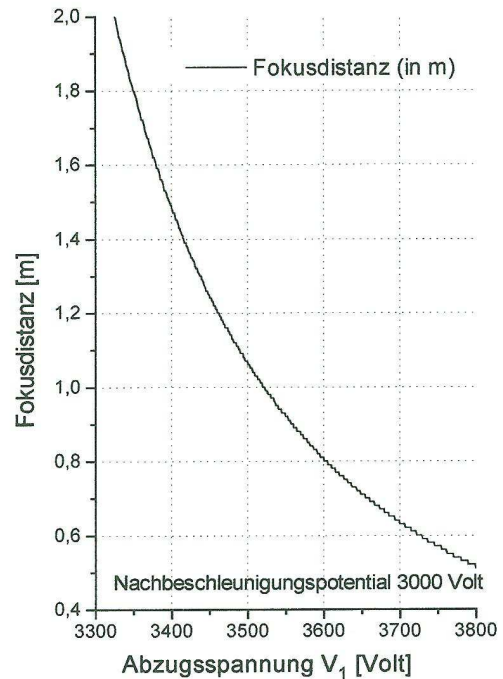
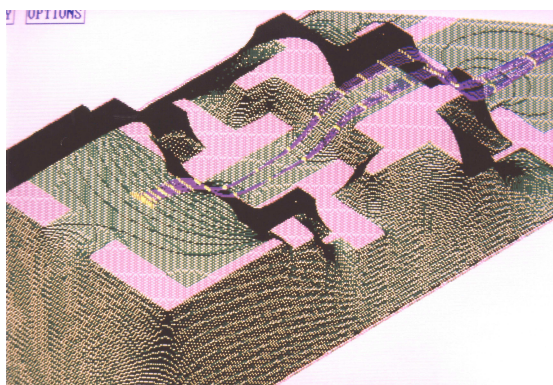


Abb. 2.4 Abhängigkeit der Fokussdistanz von der Abzugsspannung (V_1)



Fokussdistanz	:= Driftstrecke D
Flugstrecke	:= D + 0,06m

Simion: „3D- Darstellung“ des Potentialverlaufs zu **Abb. 2.3**



Ionen Translationsenergie: 0.5 eV parallel zum Molekularstrahl (von links+ rechts)
--

2.5 Kompensation der Molekularstrahlgeschwindigkeit

Die Ionen sind am Ort vor dem Kondensatorfeld um die Strecke $\Delta s = T_{SK} \cdot u_y$ (mit $T_{SK} :=$ Flugzeit bis zum Kondensatorfeld, u_y Molekularstrahlgeschwindigkeit) aus der Detektorflugachse gedriftet. Im Feld des Kondensators muß sich u_y um ein bestimmtes Δv_x ändern, so daß sich am Ende der Driftstrecke D die resultierende Querdrift zu Null summiert. Mit

- D_{KD} : Flugstrecke vom Kondensatorende bis zum Detektor
- l : Kondensatorlänge
- d : Plattenabstand
- T_{ges} : Flugzeit bis zum Detektor

ergibt sich für ein homogenes Ablenkkfeld mit dem für alle Ionen (nahezu) gleichermaßen durchlaufenden Potential V_{ges} und $T_{ges} \approx \sqrt{m/q}$ folgende Abhängigkeit für die gesuchte Ablenkspannung V_{quer} :

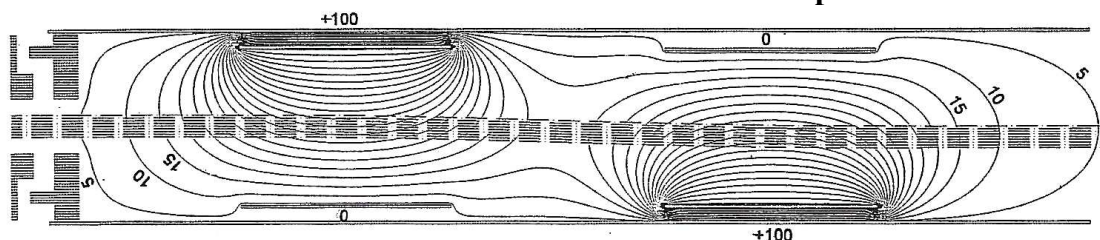
$$V_{quer} = \frac{d}{(0.25 \cdot l^2 + l \cdot D_{KD})} \cdot V_{ges} \cdot T_{ges} \cdot u_x \approx \sqrt{\frac{m}{q}} \cdot u_x \quad (2.4)$$

Der Grad der Ablenkung im Kondensatorfeld hängt für eine feste Ladung, bei vorgegebenen Potentialen und fester Geometrie, nur von der Wurzel aus der Ionenmasse und der Molekularstrahlgeschwindigkeit u_y ab. Wenn nun in grober Näherung für alle Massen u_y konstant ist, muß V_{quer} proportional mit der Wurzel aus der Ionenmasse geändert werden. In der folgenden Tabelle sind die theoretischen Ablenkspannungen für dieses Modell mit $u_y = 500$ m/sek, $d = 0.03$ m $l = 0.04$ m (0.025 m) und Flugstrecken von 0.97 m bzw. 1.47 m aufgeführt ($D_{KD} = D - 0.08$) :

Ionenmasse :	V_{quer} [Volt]: D=0.97 m	V_{quer} [Volt]: D=1.47 m
1	2 (3)	2 (3)
100	18 (29)	17 (27)
500	41 (66)	38 (62)
2000	82 (131)	76 (124)

Wird für die Kondensatorlänge l eine effektive Länge von 25 mm statt 40 mm angenommen, stimmt die Massenabhängigkeit der Ablenkspannung grob mit den experimentellen Spannungswerten überein (siehe Kapitel 4.1 Clusterspektren). Die Einführung einer effektiven Kondensatorlänge ist sinnvoll, da die Feldliniendichte und die Feldstärkekomponente senkrecht zur Detektorachse in den Randbereichen des Kondensators stark abnehmen (s. Abb. 2.5).

Abb. 2.5 Potentiallinien des benutzten Ablenkkondensatorpaares



Kapitel 3 Experimenteller Aufbau

3.1 Überblick über das Experiment

Im Rahmen der Diplomarbeit wurde ein gitterloses Flugzeitmassenspektrometer (FMS) mit einer speziellen Elektrodenkonfiguration entwickelt, das eine hohe Auflösung bei einem geringen Signalverlust ermöglichte. Das Massenspektrometer war gitterlos, weil aus konstruktiven Gründen nur eine Flugstrecke zur Verfügung stand, über die wahlweise Flugzeitmessungen mit Ionen oder Wasserstoff-Rydbergatomen, die beim Flug durch ein Gitter zum größten Teil ionisieren würden, möglich sein sollten.

Die Massenproben wurden jeweils in einem Gasgemisch aufbereitet und in einem überschallexpansionsgekühlten Molekularstrahl senkrecht mit einem fokussierten Laser zur Ionisierung gekreuzt [2].

Sämtliche mit dem FMS-Detektor gemessene Massen wurden in dem Experiment jeweils in Argon gemischt, so daß die nachgewiesenen Ionen- und Molekülcluster, unabhängig von ihrer Masse nach der erfolgten Überschallexpansion in etwa die Molekulargeschwindigkeit v_{Ar} von reinem überschallexpandiertem Argon (ca. 500 m/sek) parallel zum Molekularstrahl angenommen hatten [8]. Bei den Massenspektrometeraufnahmen wurden die Moleküle mit gepulstem Laserlicht bei einer Wellenlänge um 121 nm (VUV), welches in einer Differenzfrequenzmischzelle [2] aus 212.6 nm Laserlicht (UV) und 844 nm Laserlicht (IR) erzeugt wurde, oder in reinem UV-Licht (ca. 212 nm) ionisiert.

Die Flugstrecke war senkrecht zu der Laser- und Molekularstrahlachse orientiert, wodurch die maximal erfaßte Geschwindigkeitsbreite Δv_z der ionisierten Teilchen parallel zu dem elektrostatischen Abzugsfeld \vec{E}_1 des FMS (siehe Abb. 1.2 Kapitel 1.3) stark eingeschränkt wurde. Durch die hiermit erzielte Minimierung der "Umkehrzeit" konnte die Auflösung der Massenspektren stark erhöht werden. Diese Anordnung hatte jedoch den Nachteil, daß bei den massenspektroskopischen Aufnahmen die resultierende Driftgeschwindigkeit senkrecht zur Detektorachse mittels eines elektrostatischen Querfeldes, dessen Stärke von der Ionenmasse abhing, kompensiert werden mußte. Es war deshalb nicht möglich, komplette Massenspektren simultan mit einheitlicher Detektionswahrscheinlichkeit aufzunehmen (siehe Kapitel 2.5).

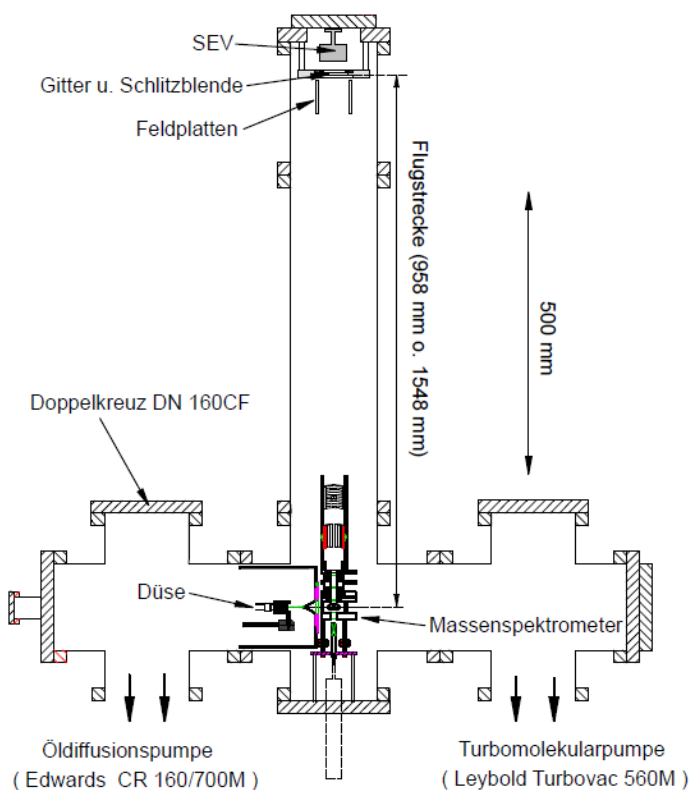
Bei den Rydbergflugzeitmessungen hatte die senkrechte Geometrie jedoch den Vorteil, daß nur Atome senkrecht zu dem Molekularstrahl, bei denen der Einfluß des Dopplereffektes minimal ist, nachgewiesen werden konnten. Für diese Atome ist die Nachweiswahrscheinlichkeit (nahezu) konstant.

Die Ionen bzw. Rydbergatome wurden am Ende der Flugstrecke mittels eines Sekundärelektronenvervielfachers (SEV) nachgewiesen. Vor der SEV-Eingangsdynode befand sich im Abstand von ca. 20 mm ein Gitter (0.1 mm Maschenweite), welches auf Massepotential gelegt wurde. Die Rydbergatome wurden nach der Flugstrecke unmittelbar hinter diesem Gitter feldionisiert.

Zur Optimierung der Energieauflösung bei den Rydbergatom-Flugzeitmessungen wurde vor dem SEV-Detektor eine 25 mm lange und 5 mm breite Schlitzblende montiert, wobei die schmale Blendenkante parallel zur Molekularstrahlachse verlief. Durch diese Blende wurde jedoch die unerwünschte massenabhängige Nachweisempfindlichkeit des FMS erheblich verstärkt, da immer nur Ionengruppen mit einer zur Detektorachse senkrechten Driftdifferenz von weniger als 5 mm simultan mit einer festen Querspannung nachgewiesen werden konnten.

Abb. 3.1 gibt einen Überblick über die Lage des FMS in der Vakuumkammer. Eine detaillierte Beschreibung der Vakuumkammer und des Lasersystems findet sich in der Dissertation von Peter Löffler [2].

Abb. 3.1 Vertikaler Schnitt durch die Vakuumkammer

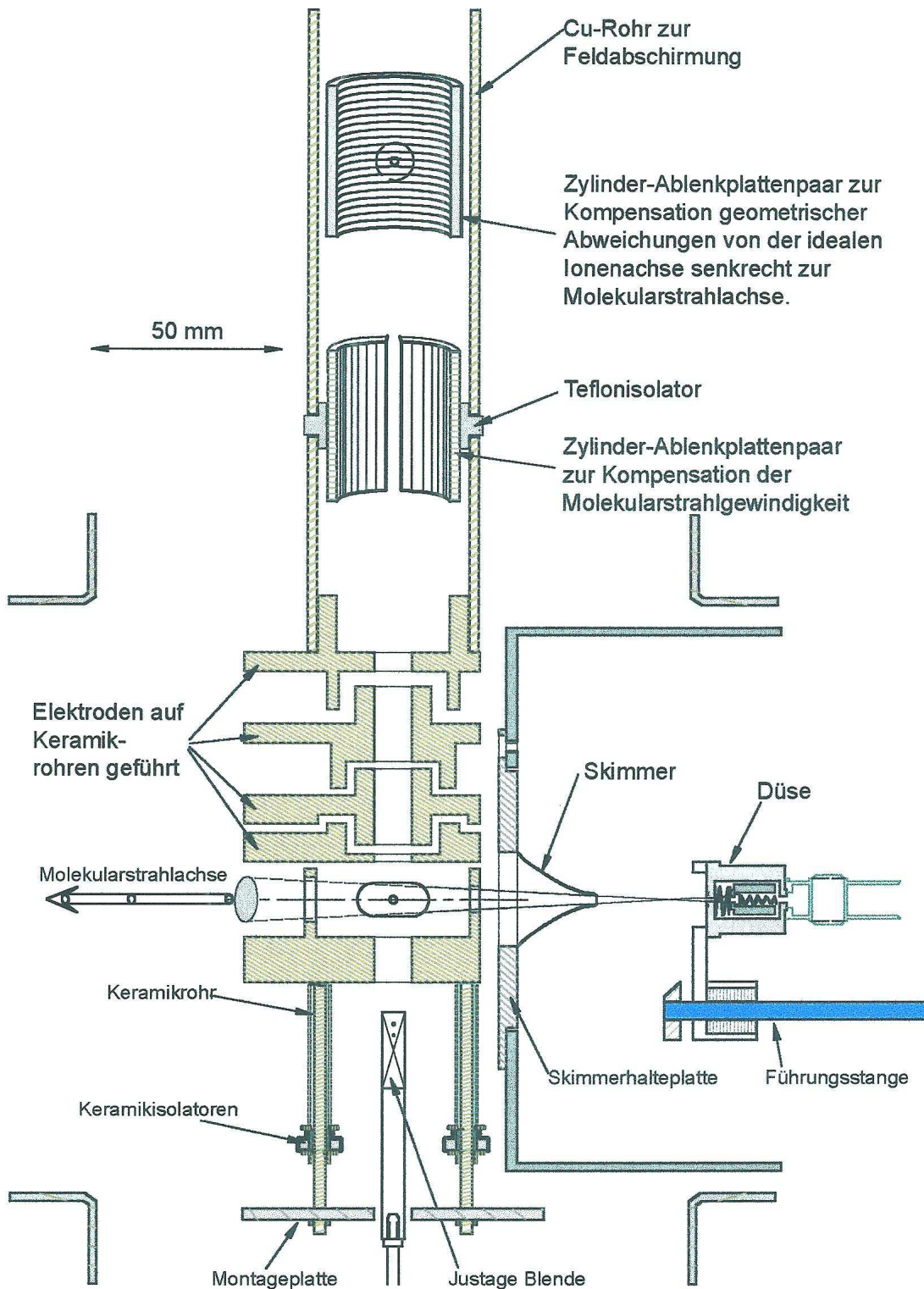


Die Vakuumkammer Abb. 3.1 bestand im wesentlichen aus einer differentiellen Pumpstufe, in der sich eine auf Führungsstangen gelagerte Düse befand [2] und einer Vakuumkammer (Hauptkammer), in der das FMS und ein Sekundärelektronenvervielfacher (MM-1-SG, Fa. Johnston) eingebaut waren. Die Vakuumkammer wurde für die Benutzung von drei unabhängigen Laserstrahlachsen konzipiert, die sich jeweils unter einen Winkel von 9° schnitten, wobei die mittlere Laserstrahlachse die Molekularstrahlachse senkrecht kreuzte. Der SEV befand sich am Ende der Flugstrecke mit einer Länge von 0.96 m oder 1.55 m. Die differentielle Pumpstufe und die Hauptkammer waren über einen Skimmer \varnothing 0.99 mm (Fa. Beam Dynamic) verbunden. Der Abstand zwischen Düse und Skimmer (s. Abb. 3.2) konnte zwischen 17 mm und 40 mm variiert werden. Bei einem festen Abstand von 47 mm zwischen der Skimmeröffnung und dem Dissoziationsvolumen ergab sich je nach dem Düsenabstand am Dissoziationsort ein Molekularstrahldurchmesser zwischen 2.7 und 5.1 mm. Eine detaillierte Beschreibung der hier verwandten Düse (Fa. General Valve) findet sich in der Diplomarbeit von Eckard Wrede [8].

Die gasförmigen Probesubstanzen (z. B. Acetylen, HCL oder HJ) wurden mit einem Düsenhinterdruck zwischen 1 und 2 bar mit einem Volumenanteil zwischen 7 - 15 % in Argon gemischt [2] und durch gepulstes Öffnen der Düse (je nach Substanz zwischen 100 und 250 μ s) ins Vakuum expandiert. Der Molekularstrahl wurde hierbei durch Überschall-expansion adiabatisch gekühlt.

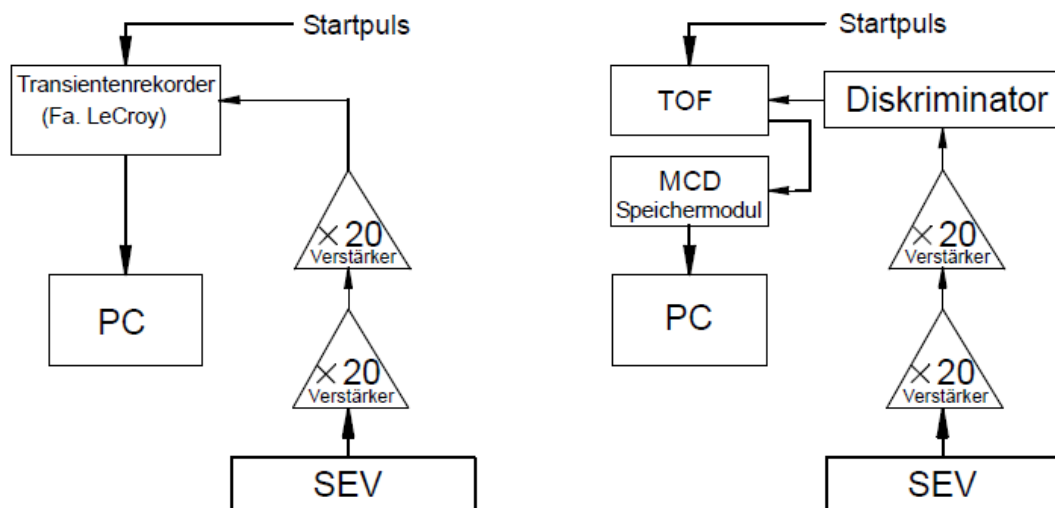
Aus Abb. 3.2 werden die relative Positionierung des FMS innerhalb der Kammer sowie die Düsenstrahl- und die Laserstrahlgeometrie deutlich. Der innere Feldbereich des FMS ist wirkungsvoll vor der geerdeten Skimmerhalteplatte abgeschirmt.

Abb. 3.2 Massenspektrometer (Übersicht)



3.2 Datenaufnahme und zeitliche Steuerung

Abb. 3.3 (a) Datenaufnahme mit Transientenrekorder (b) TOF-Modul



Zur Datenaufnahme wurde der SEV entweder im Einzelteilchen- oder im Proportional-Modus betrieben. Bei der ersten Betriebsart wurde eine SEV-Spannung zwischen 3.5 kV und 3.8 kV gewählt. Der absolute Ladungsfluß wurde dabei im wesentlichen von der SEV-Kapazität und der absoluten SEV-Spannung bestimmt.

Das SEV-Signal wurde über zwei schnelle Vorverstärker (Typ VT 120, Fa. Ortec) verstärkt und mittels eines 100 MHz-Diskriminators (Typ 436, Fa. Ortec) jeweils in einen einheitlichen Puls umgeformt und mit einem Vielkanalzähler (TOF-Modul) in Kombination mit einem Speichermodul (Typen Ultrafast TOF 7885, MCD-Modul, Fa. Fast-Comtec) einzeln aufsummiert.

Die VUV-Laserstrahlung oder die Dissoziationslaserstrahlung mußte soweit abgeschwächt werden, daß die Wahrscheinlichkeit für den Eingang mehrerer Ionen in den gleichen Kanal des Vielkanalzählers mit jedem Laserschuß möglichst gering war, da Mehrfachzähler mit einem geringeren zeitlichen Abstand als eine Kanalsbreite (5ns oder 10s) von der Aufnahmeelektronik nicht erfaßt werden konnten, so daß die Intensitätsverteilung des Spektrums verfälscht würde. Erst bei höhern Zählraten wurde das Spektrum zusätzlich durch eine Sättigung des SEV-Verstärkers verzerrt.

Die in dem MCD-Modul gespeicherten Daten konnten zu einem beliebigen Zeitpunkt über eine parallele Schnittstelle von einem PC (386-CPU) ausgelesen und über ein spezielles Programm (Fa. Fast-Comtec) graphisch dargestellt und auf Diskette abgespeichert werden.

Bei der überwiegenden Zahl der Massenspektren wurde der SEV im Proportional-Modus mit Spannungen von 2.3 bis 3.25 keV betrieben, wobei die SEV-Spannung so gewählt wurde, daß es bei dem maximalen Massensignal zu keiner Übersteuerung des SEV kam.

Die Signalintensität je Zeitkanal ist im Mittel (annähernd) proportional zu der in diesem Kanal eintreffenden Ionenanzahl, da jedes Ion zuvor von dem FMS auf eine einheitliche Energie (ca. 3.25 kV) beschleunigt wurde (der SEV erzeugt Signalintensitäten innerhalb einer festen Pulshöhenverteilung).

Die Pulse wurden vorverstärkt und ohne Diskriminator mit einem Transientenrekorder (Oszilloskop, Typ 9400 A, Fa. LeCroy) intern digitalisiert und jeweils in Abhängigkeit von dem Pulseingangszeitpunkt in einen von insgesamt 6000 Kanälen zwischengespeichert. Die Kanäle wurden von Laserpuls zu Laserpuls mit dem PC über eine parallele Schnittstelle, mittels eines von Eckard Wrede [2] speziell entwickelten Programms ausgelesen und aufsummiert. Die Zeitauflösung war bei der Datenaufnahme über den Transientenrekorder auf eine Kanalbreite von 10 ns beschränkt.

Bei der Aufnahme der Rydbergspektren [2] wurde die Nachbeschleunigungseinheit des FMS geerdet und an Elektrode 1 (siehe Abb. 2.2) ein positives Potential von ca. 10 Volt angelegt, um so am Dissoziationsort entstandene Ionen von den neutralen Rydbergatomen trennen zu können.

3.2.1 Eichung

Zur Eichung des Massenspektrometers wurden zunächst die Flugzeiten T_{FH} für die Wasserstoffionen der Masse m_H ermittelt, die eindeutig auf dem Oszilloskop hinter dem Streulichtsignal identifizierbar waren.

$$\text{Mit } C = \frac{m_H}{(T_{FH})^2} \quad \text{folgt } \Rightarrow m_x = C \cdot (T_{Fx})^2$$

Aus der gemessenen Flugzeit T_{Fx} konnte die unbekannte Ionenmasse m_x näherungsweise identifiziert werden. Auf diese Weise konnte die Flugzeit von Argon mit einer relativen Atommasse von 39.95 amu [20] eindeutig bestimmt werden. Die Genauigkeit der Eichkonstante C wurde schrittweise über die Identifikation höherer Massen (z. B. J_2) gesteigert.

Kapitel 4 Ergebnisse

4.1 Clusterspektren

Die hier vorgestellten Clusterspektren wurden über den Transientenrekorder mit einer Zeitauflösung von 10 ns aufgenommen, wobei der SEV im Proportionalmodus mit einer Spannung zwischen 3.2 kV und 3.7 kV betrieben wurde. Die Flugstrecke betrug 0.97 m. Zur Kompensation der Molekularstrahlgeschwindigkeit mußten unterschiedliche Ablenkspannungen, die in den Spektren jeweils angegeben werden, angelegt werden.

Die Argon-Clusterspektren wurden erzeugt, indem 2 Bar Argon in einem Stahlbehälter gegeben wurden und anschließend durch die Zufuhr von Helium mit einem Düsenhinterdruck von ca. 4 Bar, ohne mit diesem länger zu mischen, über die Düse expandiert wurde. Die Ionisation erfolgte bei einer Wellenlänge um 129 nm. Die Spektren wurden über jeweils 300 Laserpulse summiert.

Mit Hilfe der Clusterspektren konnte die experimentell erzielbare Auflösung des FMS abgeschätzt und mit der theoretisch zu erwartenden Massenauflösung verglichen werden.

Mit der Abschätzung 1.13 (s. Kapitel 1.4) ergaben sich, für eine effektive Geschwindigkeitsbreite von ca. 10 m/sek senkrecht zum Molekularstrahl (s. Kapitel 1.3) und einem Durchmesser Δs des Ionisationsvolumens von ca. 0.7 mm, folgende theoretische Auflösungen ohne Berücksichtigung der Coulombabstoßung.

Apparative Zeitauflösung	Flugstrecke 1.47m	Flugstrecke 0.97m
$\Delta T_{\text{app}} = 7\text{ns}$	R = 2763	R = 2250
$\Delta T_{\text{app}} = 12\text{ns}$	R = 2335	R = 1440

Bei sehr hohen Ionisationslaserintensitäten kam es zu einer deutlichen Signalverbreiterung, so daß vermutlich die untere Grenze für die Auflösung durch die Geschwindigkeitsverbreiterung infolge von Raumladungseffekten gegeben wurde (s. Abschätzung zum Coulombeffekt Kapitel 1.4). Die Auflösung des Massenspektrometers konnte aus Clusterspektren für Massen zwischen 1000 und 2500 amu abgeschätzt werden. Sie wurden jeweils über den Transientenrekorder mit einer Kanalbreite von 10 ns aufgenommen.

Zu diesem Zweck wurden gut strukturierte Spektren mit möglichst dicht aufeinander folgenden Massensignalen vergleichbarer Intensität gesucht (s. Abb. 4.1- 4.4). Hierbei konnten u. a. die Massen 2.094 und 2.096 (Abb. 4.4) noch eindeutig aufgelöst werden. Sie gehörten zu einer Doppel-Signallerie mit einem Abstand von jeweils 4 amu. Die sich periodisch in einem Massenabstand von 40 amu wiederholenden Doppelsignale, beginnend bei der Masse 2.090, paßten eindeutig in die ermittelte Massenskala. Für die genannten experimentellen Parameter konnten somit, für Massen über 2000 amu, Massenauflösungen von über **1000** erzielt werden.

Diese Auflösung kann mit der theoretisch abgeschätzten Auflösung von ca. 1400 durch die Berücksichtigung der Columbwechselwirkung in Einklang gebracht werden. Bereits bei geringen Ladungsdichten (s. Abb. 1.5) wird die Auflösung deutlich reduziert (z. B. wird nach 1.13 die Auflösung bei einem kugelförmigen Ionisationsvolumen von ca. 0.5 mm Durchmesser mit über 2.000 Ionen, $\Delta T_{\text{app}} = 12\text{ns}$ und $D = 0.97\text{ m}$ auf ca. 1000 limitiert).

Das Zustandekommen der Signallerie könnte mit dem Einbau eines Argon-36 Isotops (relative Häufigkeit 0.34 %) anstelle des Argon 40 Isotops erklärt werden. Die gemessene Signalintensität für die Argon 36 Isotopenvariante ist höher als die der reinen Argon-40 Clusterverbindung. Die Wahrscheinlichkeit für die Bildung eines $[\text{Ar}^{40}]_{46}$ -Clusters liegt jedoch bei ca. 0.84 und für die einfache Isotopenvariante bei nur ca. 0.13 [20]. Eine mögliche Ursache könnte eine über Resonanz bevorzugte Ionisation (bei ca. 129 nm) des Argon-36 Isotops sein. Die in den Teilspektren 4.1a bis 4.3a beobachteten Massen können mit der Bildung von $[\text{Ar}]_n$, $[\text{Ar}]_n[\text{J}_2]$ und $[\text{Ar}]_n[\text{Aceton}]$ erklärt werden.

Das Clusterspektrum in Abb. 4.5 kann mit der Bildung von protonierten $[\text{HCl}]_n[\text{H}]$ -Clustern erklärt werden. Es wurden ca. 100 mbar HCL mit 2 Bar Argon gemischt und anschließend durch die Zufuhr von Helium mit einem Düsenhinterdruck von ca. 4 Bar, ohne weitere Mischung, über die Düse expandiert. Das Spektrum wurde über 1000 Laserpulse bei einer Ionisations-Wellenlänge von 266 nm aufgenommen. Das Signal tritt jeweils in Gruppen mit den möglichen Isotopenkombinationen von Cl^{35} (relative Häufigkeit $p_1 = 0.758$) und Cl^{37} (relative Häufigkeit $p_2 = 0.242$) [20] auf. Die Kombinationswahrscheinlichkeiten unter den Isotopen können aus der Polynomentwicklung des Ausdrucks $(p_1 + p_2)^n$ abgeleitet werden. Mit zunehmender Clustermasse nimmt daher, wie in den Spektren beobachtet, die Anzahl der auftretenden Massensignale in den jeweiligen Clustergruppen zu. In Abb. 4.5b und 4.5c sind jeweils 3 Signalgruppen vergrößert dargestellt worden. Die relative Signalgewichtung in den einzelnen Gruppen stimmt mit der theoretisch zu erwartenden Gewichtung tendentiell überein.

[Ar]_n[J₂] - und [Ar]_n-CuIster (60 -160 Volt Ablenkspannung)

Abb. 4.1

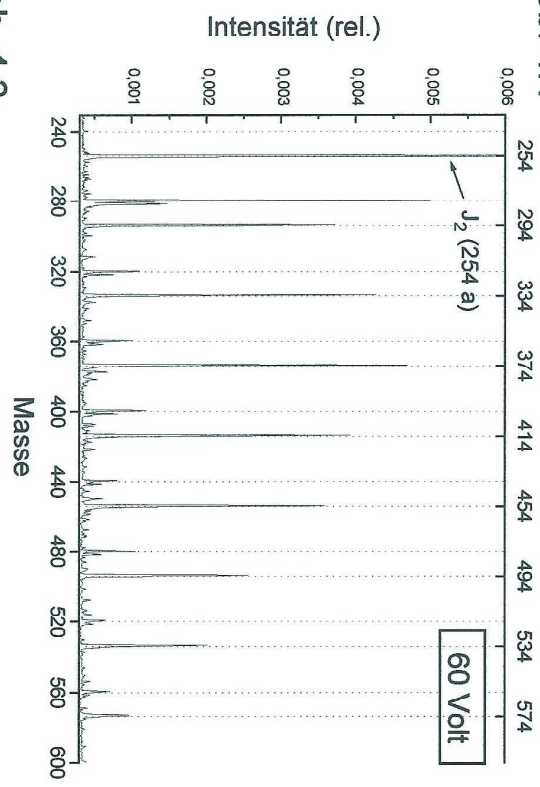


Abb. 4.2

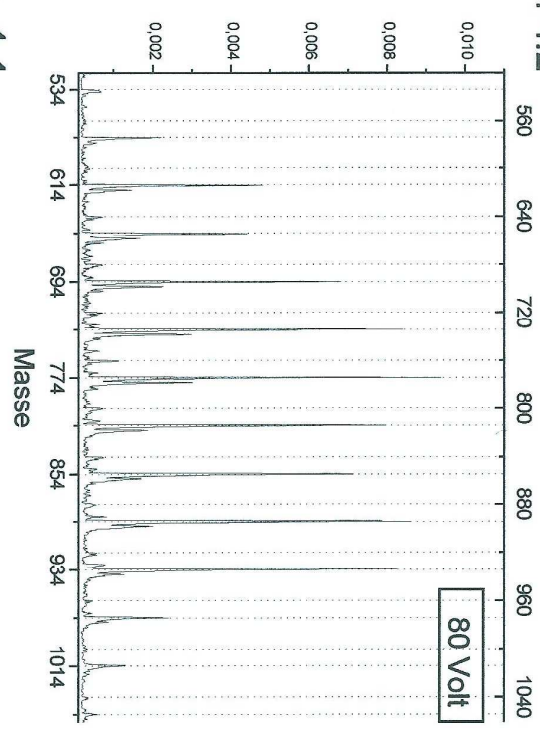


Abb. 4.3

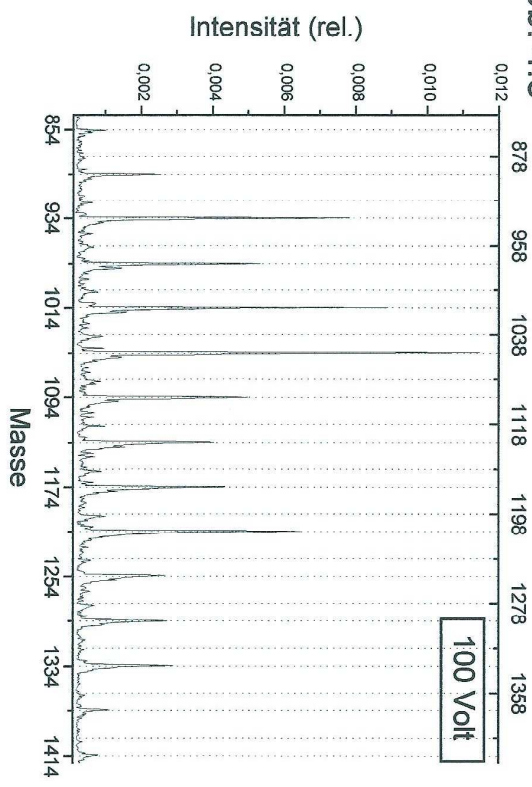
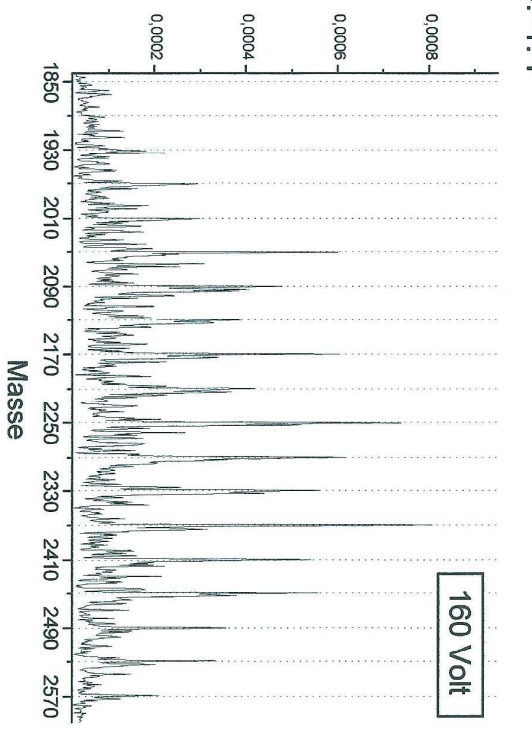


Abb. 4.4



[Ar]_n[J₂] - und [Ar]_n - Cluster (60 -160 Volt Ablenkspannung)

Abb. 4.1a

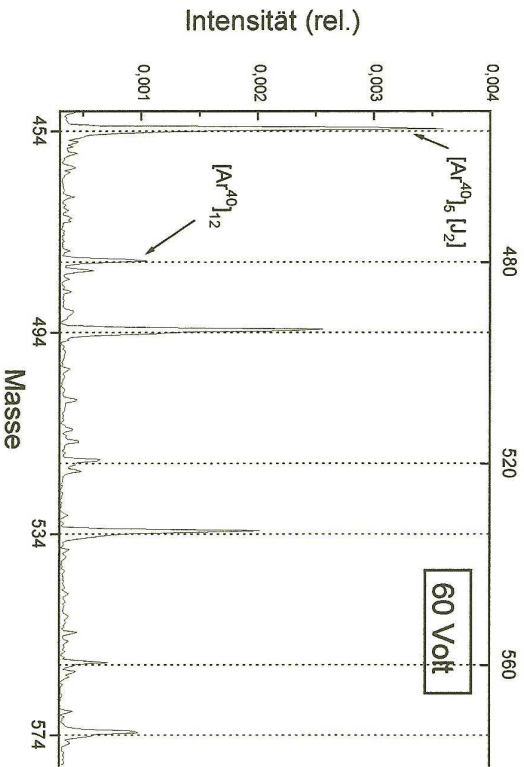


Abb. 4.2a

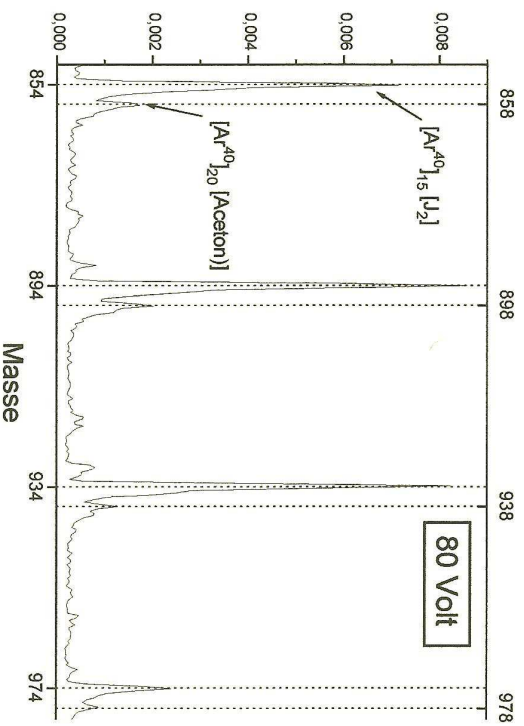


Abb. 4.3a

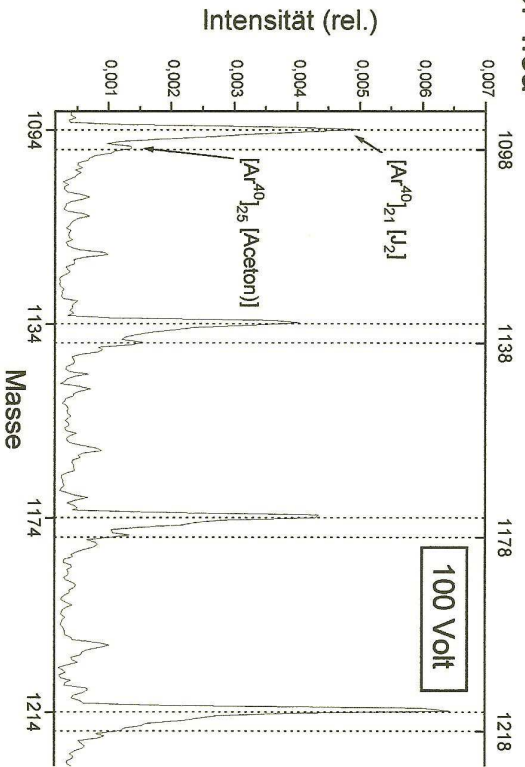
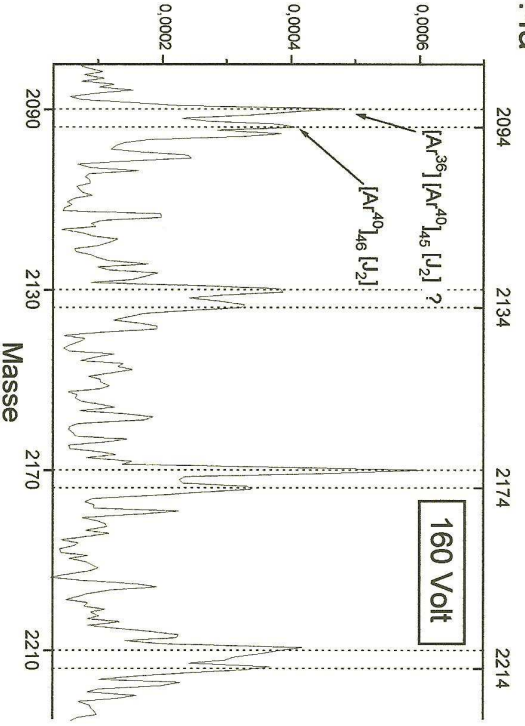


Abb. 4.4a



[HCL]_n[H]-Cluster

Abb. 4.5

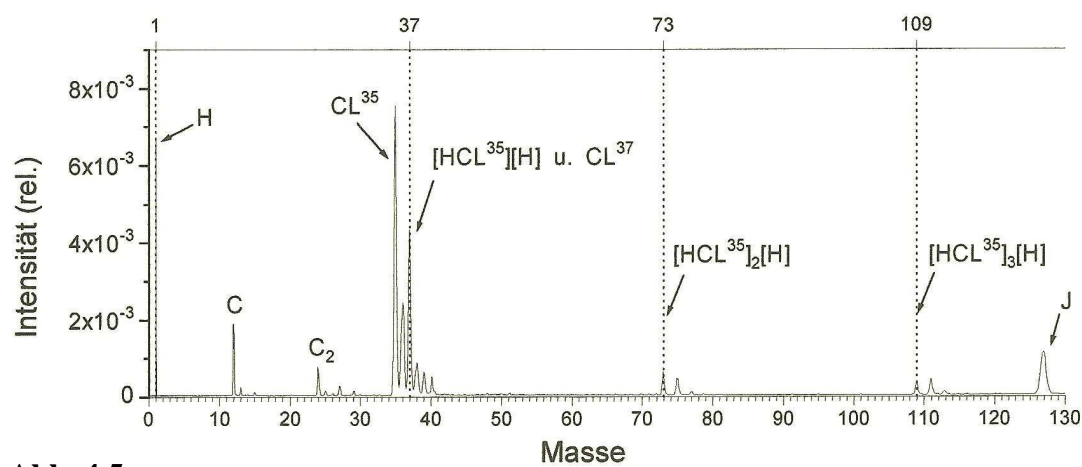


Abb. 4.5a

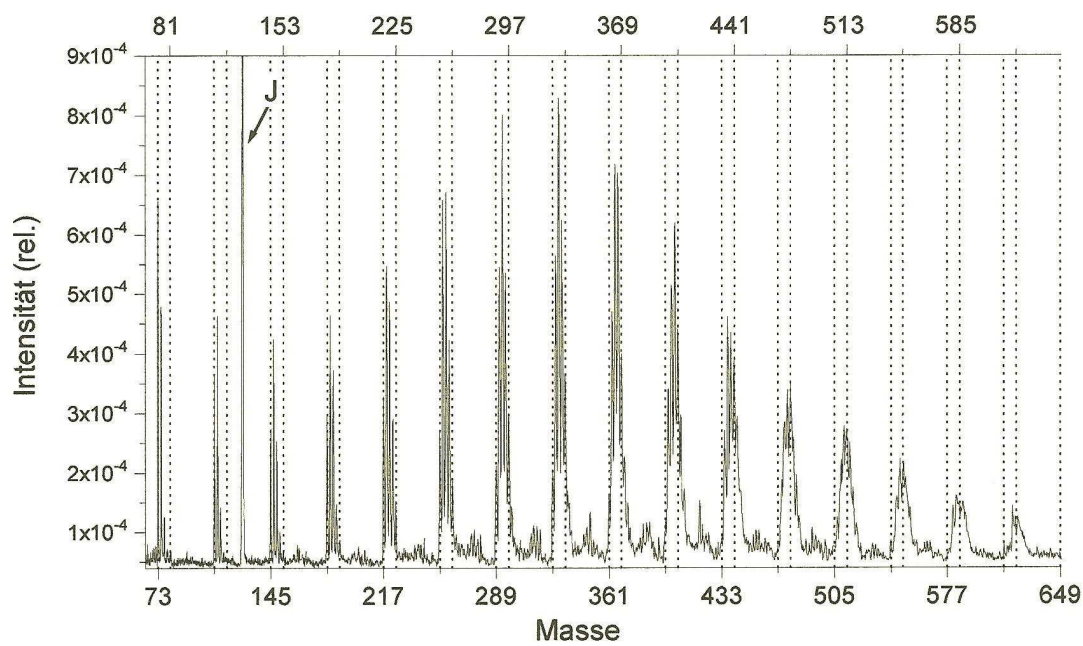


Abb. 4.5b

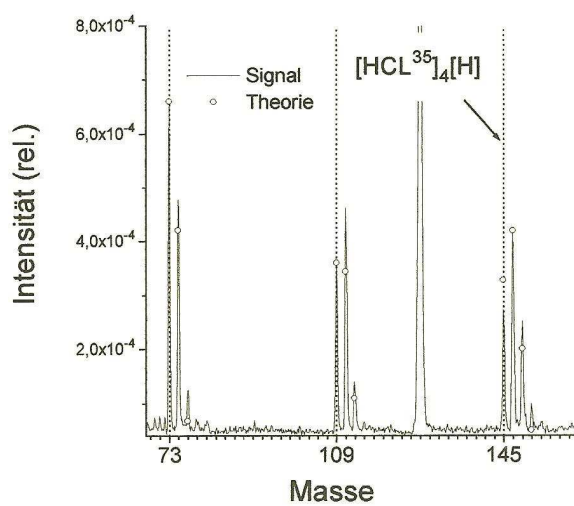
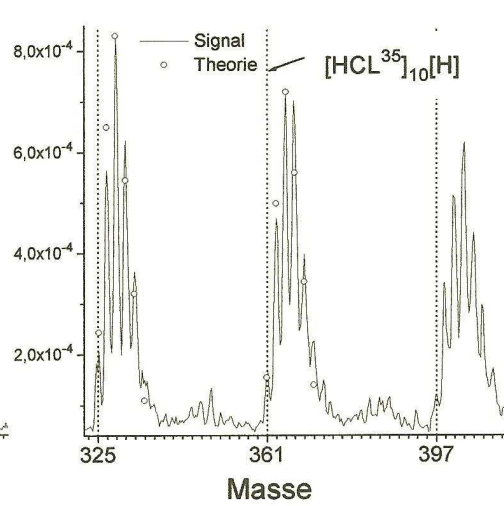


Abb. 4.5c



Kapitel 5

Methode zur 3dimensionalen Erfassung von Fragmentgeschwindigkeiten

Ziel dieses Experimentes war die Entwicklung und Erprobung einer Methode zur Erfassung der 3dimensionalen Geschwindigkeitsverteilung von Fragmenten, wie sie z. B. bei der Photodissoziation oder (reaktiven) Streuprozessen von Atomen oder Molekülen entsteht. Im folgenden Abschnitt wird nach einem kurzen Überblick, über einige zu diesem Zweck bereits entwickelte Methoden, die hier entwickelte Methode vorgestellt.

5.1 Überblick

Von der Gruppe D. W. Chandler [3] wurde 1987 der Grundstein in der Technik der simultanen 2dimensionalen Erfassung der kompletten Energie- und Winkelverteilung gelegt.

Bei diesem Verfahren wird die komplette Winkelverteilung eines selektiv über resonante Multiphotonenionisation ionisierten Fragmentes oder Moleküls mittels eines statischen elektrischen Feldes auf einen Phosphorschirm projiziert und das so erzeugte 2dimensionale Bild mit einer CCD-Kamera (s. Anhang D) aufgenommen.

Mittels einer inversen Abeltransformation [21] kann aus diesen Bildern die 3dimensionale Verteilung rekonstruiert werden, wenn die ursprünglich im Prozeß erzeugte 3dimensionale Winkelverteilung der Fragmente um eine ausgezeichnete Achse rotationssymmetrisch ist und diese Symmetrieachse parallel zu der Projektionsebene (Phosphorschirm) verläuft. Die 3dimensionale Winkelverteilung ergibt sich durch Rotation um die Symmetrieachse des rekonstruierten 2dimensionalen Bildes. Die Methode wurde u. a. an der rotationssymmetrischen Photodissoziationsverteilung des HJ-Moleküls getestet [3]. Ergebnisse aus der reaktiven Streuung von Wasserstoffatomen senkrecht zu einem D_2 -Molekularstrahl (die Symmetrieachse der Verteilung verläuft parallel zu dem Relativgeschwindigkeitsvektor von H und D_2) wurden für Schwerpunktsstoßenergien um 0.54 eV und 1.29 eV mit QCT-Rechnungen (Aoiz et al.) verglichen [22].

Im folgenden werden Meßmethoden zur direkten 3dimensionalen Winkelerfassung vorgestellt, bei der die Verteilung eine beliebige Symmetrie aufweisen kann. Zu diesen gehört auch die im Rahmen der Diplomarbeit entwickelte Meßmethode.

Mittels einer von Hong Ni, Joseph M. und James Valentini entwickelten Methode [4] kann die 3dimensionale Geschwindigkeitsverteilung mit einem sog. "position-sensitive-translational-spectroscopy" POSTS-Verfahren gewonnen werden. Das Verfahren wurde unter anderem mit HJ getestet. Mit einem gepulsten Laser einer Wellenlänge von 266 nm wurde HJ photodissoziiert und die H-Atome mit einem relativ zum Dissoziationsort in einer Ebene räumlich verschiebbaren gepulsten Probelaser in dem Abstand x, y über 2+1 REMPI ionisiert. Der Probelaser verlief senkrecht zu dieser Ebenen und konnte über einem Mikrometer-verschiebetisch exakt positioniert werden. Mit einer vorgegebenen Verzögerungszeit τ zwischen den Lasern wurde das Ionensignal als Funktion des Abstandes (x, y) jeweils über eine bestimmte Laserschußzahl aufsummiert. Die Ionen wurden mit einem TOF-Massenspektrometer abgezogen, um alle im Nachweisvolumen erzeugten Ionen simultan nachweisen können. Die v_x - u. v_y -Geschwindigkeitskomponenten sind dann über x, y und τ bestimmt. Die v_z -Komponente wurde über den Dopplereffekt mit dem Probelaser (möglichst schmalbandig hier 0.06 cm^{-1}) selektiert. Bei Laserdurchmessern von 0.1 mm konnte mit einer

Driftstrecke von 10 mm eine relative Auflösung der v_x - u. v_y - Komponenten von 1 % erreicht werden. Mit einer Erhöhung der Verzögerungszeit τ kann die Driftstrecke für die H-Atome und somit die Auflösung prinzipiell beliebig erhöht werden. Die theoretisch hohe Auflösung dieses Raumwinkelelement spezifischen Meßverfahrens mußte jedoch mit einer längeren Meßzeit erkauft werden. In den Demonstrationsmessungen wurden jeweils ausgewählte eindimensionale Intensitätsprofile für jeweils konstante v_z - und v_y - Geschwindigkeitskomponenten aufgenommen und mit simulierten eindimensionalen Intensitätsprofilen verglichen. Bei der Photodissoziation von HCl konnte die Bindungsenergie D_0 auf $\pm 1 \text{ cm}^{-1}$ genau bestimmt werden. Die Photodissoziation von HJ wurde nur mit einer relativen Geschwindigkeitsauflösung zwischen 5 % u. 10 % aufgenommen.

Mit den im folgenden vorgestellten Meßmethoden können jeweils simultan mehrere Raumwinkelelemente aus der zu untersuchenden 3dimensionalen Verteilung erfaßt werden, wobei jedoch mit keiner dieser Methoden die Fragmentverteilung simultan über 4π erfaßt werden konnte. In allen Fällen muß das nachzuweisende Fragment ionisiert werden.

Mit der sogenannten "Core-Sampling-Methode" nach J. A. Syage [5] wurde aus der 3dimensionalen Geschwindigkeitsverteilung jeweils simultan eine 1dimensionale Geschwindigkeitsverteilung aus einer Flugzeitmessung mit einem ortsfokussierenden FMS erfaßt, indem die zur Flugachse senkrechten Geschwindigkeitskomponenten mittels einer verschiebbaren Lochblende am Ende der Flugstrecke auf einen sehr kleinen Bereich eingeschränkt wurden. Die Ionen wurden unmittelbar hinter der Blende mit einer Vielkanalplatte (MCP) zeitaufgelöst nachgewiesen. Die Geschwindigkeitskomponenten können dann aus der Position der Blende und der Ionenflugzeit berechnet werden. Durch die Verwendung einer Schlitzblende mit einer 32poligen Anodenkette konnte simultan eine 2dimensionale Scheibe aus der 3dimensionalen Verteilung erfaßt werden.

Mit dieser Technik wurde unter anderem die Photodissoziation von CH_3I untersucht. Hierbei konnte die v_z -Geschwindigkeit des I-Atoms auf 30m/sek genau bestimmt werden. Bei einer maximalen Fragmentgeschwindigkeit von 800m/sek entspricht dies einer relativen Meßgenauigkeit von ca. 3.8 % .

Bei der im Rahmen der Diplomarbeit entwickelten Meßmethode wurde dagegen jeweils das gesamte in ein vorgegebenes Flugzeitintervall eintreffende Ionensignal orstaufgelöst mit einer CCD-Kamera als Bild aufgenommen. Der Geschwindigkeitsbetrag und das Verzweigungsverhältnis aus der HJ-Dissoziation konnten, aus dem Vergleich mittels geeignet simulierter Bilder (Kapitel 10), mit einer relativen Meßgenauigkeit von bis zu ca. 2 % bestimmt werden.

5.2 Prinzip der entwickelten Methode

Zur Erfassung der 3dimensionalen Geschwindigkeitsverteilung wurden die in dem zu untersuchenden spezifischen Reaktionsmechanismus erzeugten Teilchen unmittelbar nach ihrer Entstehung an dem Ort (x, y, z) (relativ zum Laborsystem) zu einem definierten Zeitpunkt t_0 mit einem Laser ionisiert und in den elektrostatischen Feldern eines speziellen Flugzeitmassenspektrometers b-FMS (s. Kapitel 6.2), auf einen orts- und zeitauflösenden Detektor projiziert. Die Fragmente, die den Detektor innerhalb eines frei wählbaren Flugzeitintervalls $[t, t + \Delta t]$ (Zeitscheibe mit der Dicke Δt) erreichten, wurden über einen Bildverstärker in Kombination mit einer CCD-Kamera [s. Anhang D] selektiv nachgewiesen. Die Dicke der Zeitscheiben wurde über die Öffnungszeit des Bildverstärkers, bis hinunter zu wenigen Nanosekunden, festgelegt. Die 3dimensionale Fragmentverteilung kann dann aus dem

jeweiligen Auftreffpunkt (x,y) auf der Detektoroberfläche und der zugehörigen mittleren Flugzeit $t + \Delta t/2$ rekonstruiert werden.

Die maximalen Geschwindigkeitskomponenten v_{\max} in und entgegen dem Abzugsfeld bestimmen das totale Flugzeitintervall $\Delta T_{\text{Diff}} = [T_{\text{Flug}(v_{\max})} - T_{\text{Flug}(-v_{\max})}]$ für die Ionen (1.10), wobei die Größe von ΔT_{Diff} im wesentlichen durch die "turn-around-time" (Kapitel 1.3) bestimmt wird. Die 3dimensionale Geschwindigkeitsverteilung ist erfaßt, wenn das totale Zeitintervall ΔT_{Diff} vollständig mit einzelnen Zeitscheiben der "Dicke" Δt überdeckt worden ist. Es ist zweckmäßig, die zu messenden Geschwindigkeitsvektoren der Teilchen in die Komponenten $v_x^{\text{lab}}, v_y^{\text{lab}}, v_z^{\text{lab}}$ relativ zu einem kartesischen Koordinatensystem K^{lab} (Labor-system) zu zerlegen. Werden nur die Fragmente, die mit der Flugzeit $t \pm \Delta t$ in die Bildebene (x,y) abgebildet werden, nachgewiesen, kann für den Grenzfall einer beliebig kleinen Flugzeitunschärfe Δt , die Geschwindigkeitskomponente v_z^{lab} über die Flugzeit t mit der Flugzeitumkehrfunktion $V_z(t)$ (s. Kapitel 1.3.1)

$$v_z^{\text{lab}} = V_z(t) \quad (5.1)$$

exakt berechnet werden. Die Geschwindigkeitskomponenten $v_x^{\text{lab}}, v_y^{\text{lab}}$ senkrecht zu der Detektorachse, bezüglich K^{lab} , können aus der Flugzeit t und den mittleren Ortskoordinaten x und y der jeweiligen Ioneaufreffpunkte (x,y) in der Bildebenen

mit: $v_x^{\text{lab}} = \frac{x}{t}$, $v_y^{\text{lab}} = \frac{y}{t}$ berechnet werden.

Im Experiment wurden die Muttermoleküle in einem überschallexpansionsgekühlten Molekularstrahl dissoziiert, so daß sich die Fragmentgeschwindigkeit \vec{v}_{sp} relativ zu dem Schwerpunktsystem des Muttermoleküls bei einer mittleren Molekularstrahlgeschwindigkeit $(u_x^{\text{lab}}, u_y^{\text{lab}}, 0)$ aus

$$\vec{v}_{sp} = (v_x^{\text{lab}} - u_x^{\text{lab}}, v_y^{\text{lab}} - u_y^{\text{lab}}, v_z^{\text{lab}})$$

ergibt. Die Koordinatentransformationen

$$v_x^{\text{sp}} = \frac{x}{t} - u_x^{\text{lab}} \quad v_y^{\text{sp}} = \frac{y}{t} - u_y^{\text{lab}} \quad v_z^{\text{sp}} = V_z(t) \quad (5.2)$$

werden im folgendem über den Operator \mathbf{A}

$$(v_x^{\text{sp}}, v_y^{\text{sp}}, v_z^{\text{sp}}) = \mathbf{A}[x, y, t, u_x^{\text{lab}}, u_y^{\text{lab}}, 0] \quad (5.3a)$$

und die inversen Transformationen mit

$$x = (v_x^{\text{sp}} + u_x^{\text{lab}}) \cdot t \quad y = (v_y^{\text{sp}} + u_y^{\text{lab}}) \cdot t \quad t = T(s_z, v_z^{\text{sp}}, m) \quad \text{über den Operator } \mathbf{A}^{-1} :$$

$$(x, y, t) = \mathbf{A}^{-1}[v_x^{\text{sp}}, v_y^{\text{sp}}, v_z^{\text{sp}}, u_x^{\text{lab}}, u_y^{\text{lab}}, 0] \quad (5.3b)$$

definiert.

Kapitel 6 Experimenteller Teil

6.1 Übersicht über das Experiment

In dem hier durchgeführten Experiment wurde Jodwasserstoffgas (HI) in einem überschall-expansionsgekühlten Molekularstrahl senkrecht mit polarisierter und gepulster UV-Laserstrahlung (ca. 5 ns Halbwertsbreite) bei einer Wellenlänge von 266 nm photodissoziiert. Der Dissoziationsort $(0,0,s_z)$ lag im Schnittpunkt des den Molekularstrahl nahezu senkrecht kreuzenden Dissoziationslasers.

Abb. 6.1 Experimentelle Düsen- und Laserstrahl-Geometrie (schematisch)

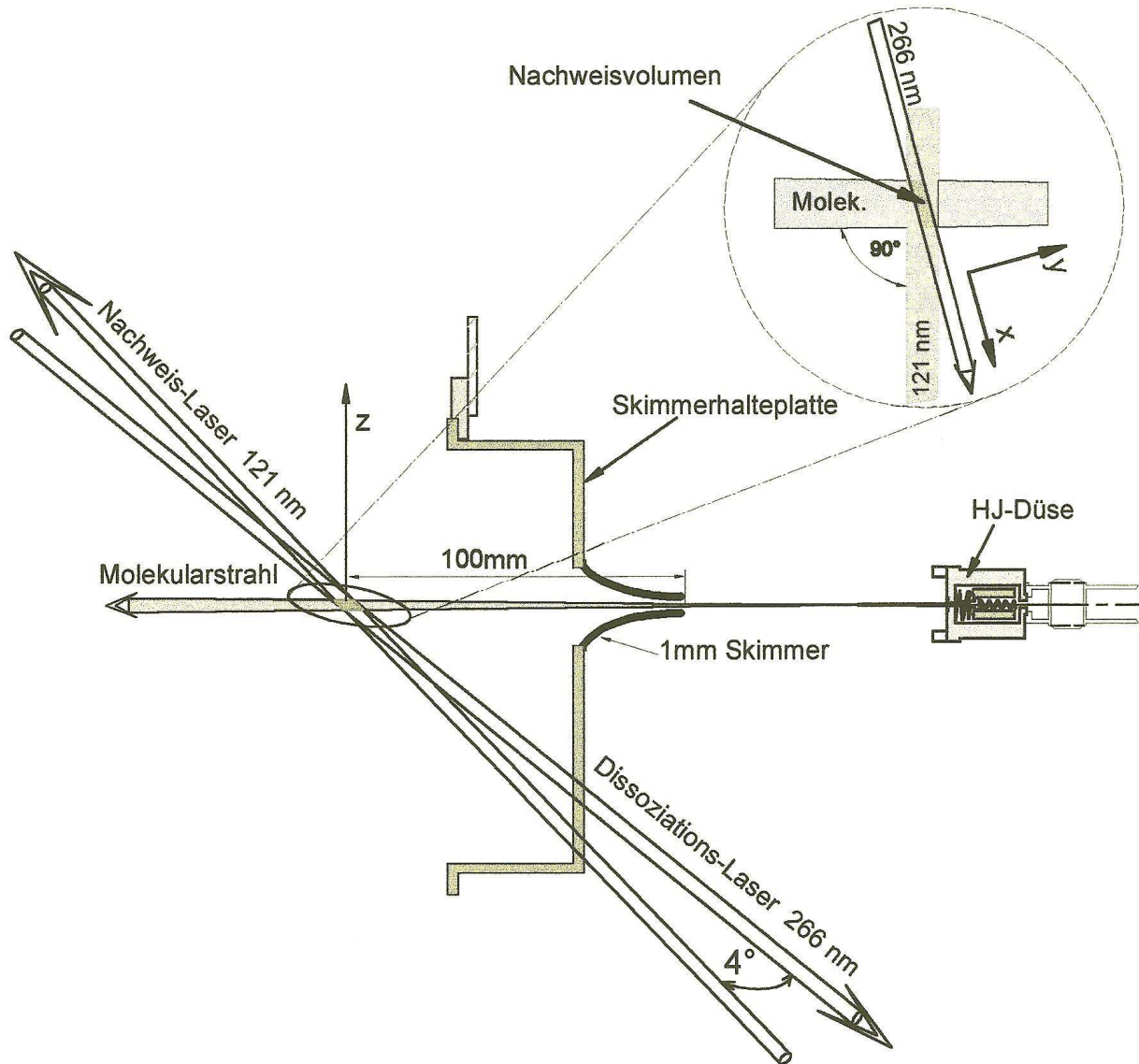
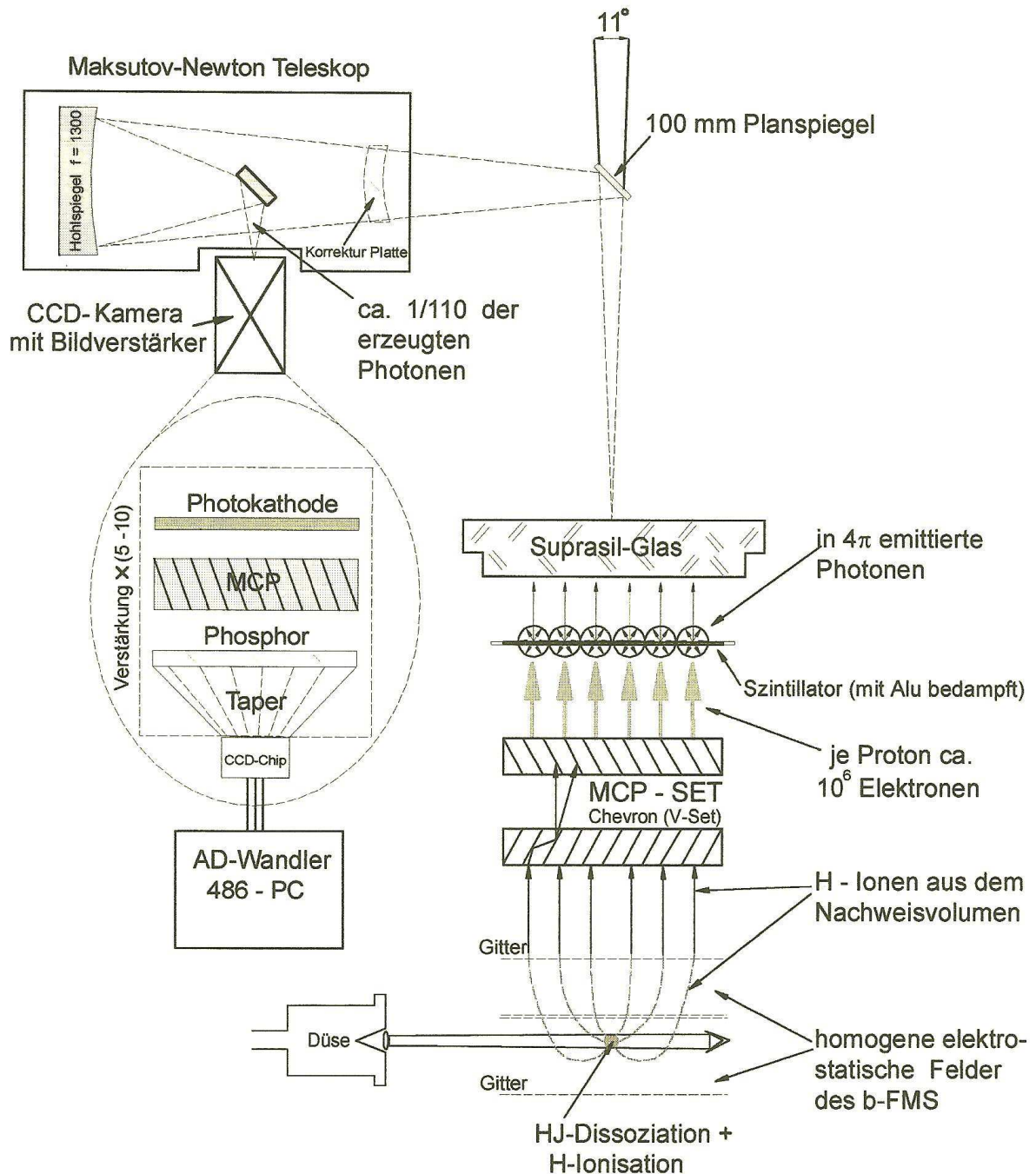


Abb. 6.2 Überblick (schematisch) über den experimentellen Aufbau



6.2 Aufbau des bildgebenden Flugzeitmassenspektrometers

Zur Abbildung der H-Atome aus der HJ-Dissoziation wurde ein spezielles Flugzeitmassenspektrometer (b-FMS) gebaut (s. Abb. 6.3). Es besteht im wesentlichen aus vier Abschnitten, die durch Gitter (Drahtdicke 0.021 mm, 0.1 mm Maschenweite, 67 % Transmission, Fa. Eyring) getrennt werden.

1. Abzugsbereich

Die ionisierten Fragmente werden in einem statischen relativ schwachen homogenen elektrischen Feld E_1 abgezogen. Ineinander verzahnte Ringelektroden mit einem Innendurchmesser von 80 mm schirmen das Feld wirkungsvoll vor äußeren Störpotentialen ab, so daß ein zur Detektorachse exakt paralleles Abzugsfeld innerhalb eines Zylinders von ca. 45 mm Durchmesser anliegt. Der Reaktionsort liegt auf der Symmetrieachse des FMS ca. 9 mm unterhalb des ersten Abzugsgitters. Die Ringelektrode vor dem Gitter hat für die sich unter einem Winkel von 4° schneidenden Laserstrahlachsen, und der Molekularstrahlachse jeweils Durchgangsbohrungen von 6 mm.

2. Nachbeschleunigungseinheit

Die Nachbeschleunigungseinheit besteht aus zwei durch Gitter getrennten homogenen Feldbereichen, um den Feldgradientensprung zwischen den einzelnen Gittern zu verkleinern. Mittels eines Trajektorienprogrammes (Simion 4.0 unter DOS) ergab sich aus einer Simulation, daß der Abbildungsfehler der noch relativ langsamen Ionen durch Felddurchgriffe im Bereich der Gittermaschen des ersten Gitters so deutlich reduziert werden konnte.

Eine ebene Gitterhalteelektrode mit 80 mm Durchmesser, in der ein Gitter mit 54 mm Durchmesser eingelassen ist, bildet mit dem ersten Gitter im Abstand von 3 mm die erste Nachbeschleunigungseinheit. Diese Elektrode liegt konstant auf Massepotential. Im Abstand von 22 mm liegt ein weiteres Gitter mit 54 mm Durchmesser auf negativem Potential. Das elektrische Feld wird durch eine ringförmige Mittelektrode stabilisiert, so daß es auf einem Durchmesser von ca. 45 mm zwischen den Gittern (nahezu) homogen ist.

3. Flugrohr

Ionen mit Trajektorien, die in der Nähe der Elektrodenränder (< 3 mm) verlaufen, werden durch eine auf Flugrohrpotential liegende Blende ausgeblendet, da diese sonst durch geringfügige Inhomogenitäten des Abzugsfeldes am Elektrodenrand zur Detektorachse fokussiert würden. Nach einer feldfreien Flugstrecke von ca. 450 mm gelangen die Ionen auf einen ortsauflösenden MCP-Detektor (Abb. 6.4), bestehend aus einem MCP-Set (Fa. Galileo \varnothing 40 mm) und einem nachfolgenden Szintillator (Phosphor). Die Flugstrecke ist durch ein Cu-Rohr (50 mm Innendurchmesser) mit feinen Öffnungen (zwecks Gasaustausch) elektrostatisch abgeschirmt. Es liegt mit der letzten Gitterelektrode und der Detektoreintrittsseite auf gemeinsamem Potential (s. elektrische Beschaltung Abb. 6.5).

4. Ortsauflösender MCP Detektor

Der Aufbau des ortsauflösenden Detektors wird in der Explosionszeichnung Abb. 6.4 ersichtlich. Die Ionen lösen auf der Eingangs-MCP Elektronen aus. Diese werden in der ersten und folgenden MCP über Sekundärelektronen-Vervielfältigung insgesamt um einen Faktor von bis zu 10^6 verstärkt. An die Eingangs-MCP wurde ein Potential von -5 keV angelegt. Über einen Spannungsteiler entfielen 1500 - 1590 Volt auf das MCP-Set. Mit dem verbleibenden Potential von ca. 3.5 keV wurden die Elektronen auf einen mit Aluminium bedampften Szintillator (Phosphor) beschleunigt. Mit dem Szintillator, der (laut Hersteller) eine Abklingzeit von ca. 1.8 ns hatte, konnten mit dem Detektor Flugzeitintervalle bis hinunter zu ca. 10 Nanosekunden aufgelöst werden. Bei den Bildaufnahmen wurde dieser über einen 50 Ohm Widerstand geerdet, um eine elektrostatische Aufladung der Szintillatoroberfläche zu unterbinden.

Abb. 6.3 Übersicht: Bildgebendes Flugzeitmassenspektrometer mit Detektor

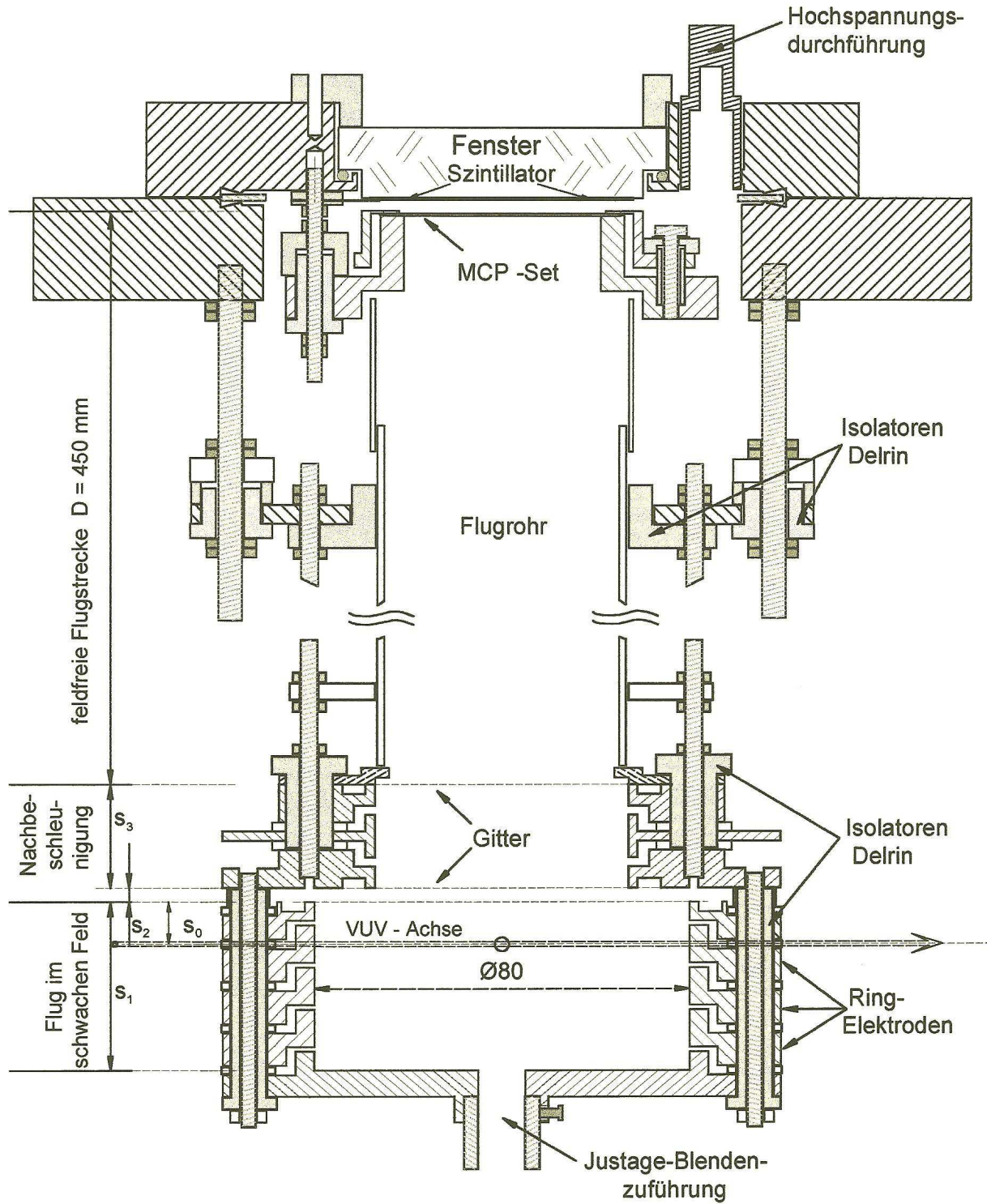


Abb. 6.4 Explosionszeichnung MCP- Detektorkopf

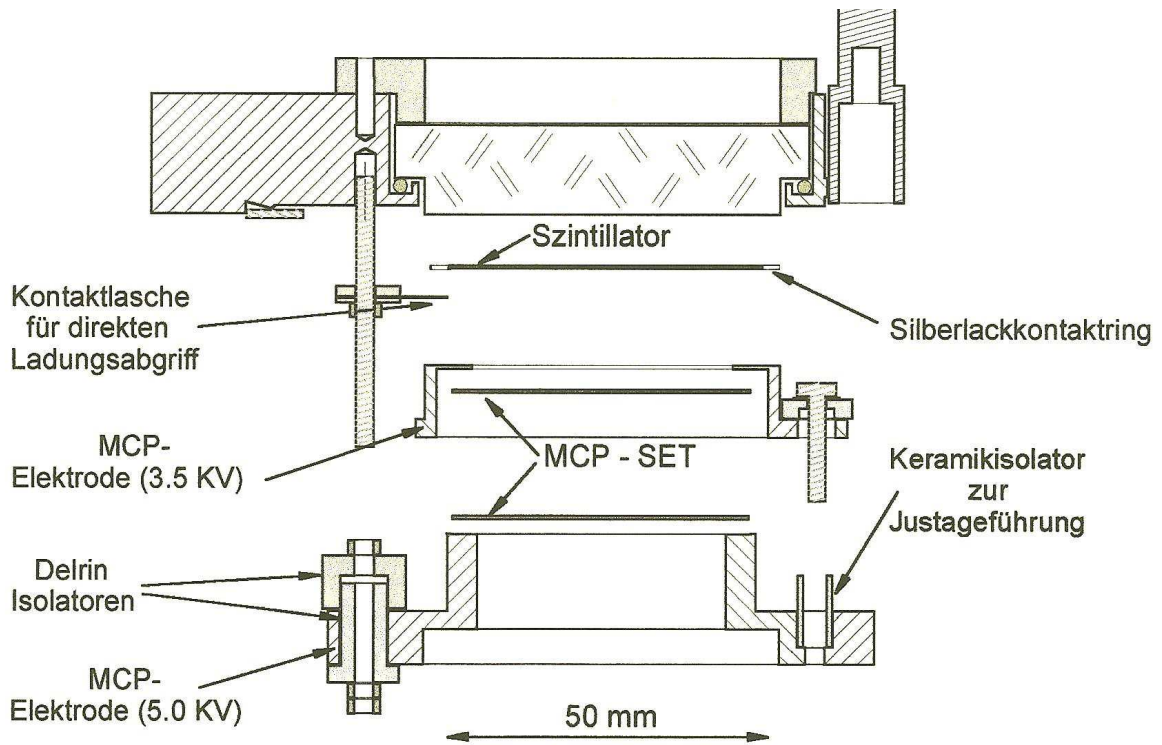
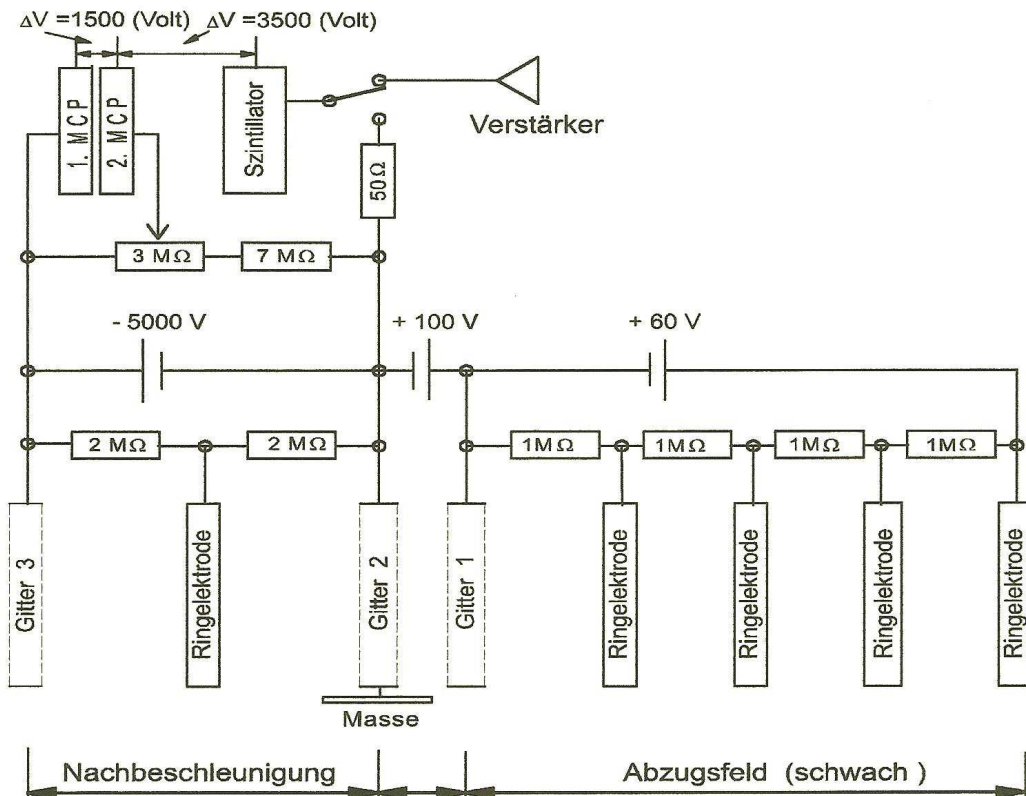


Abb. 6.5 Schaltplan für das b-FMS

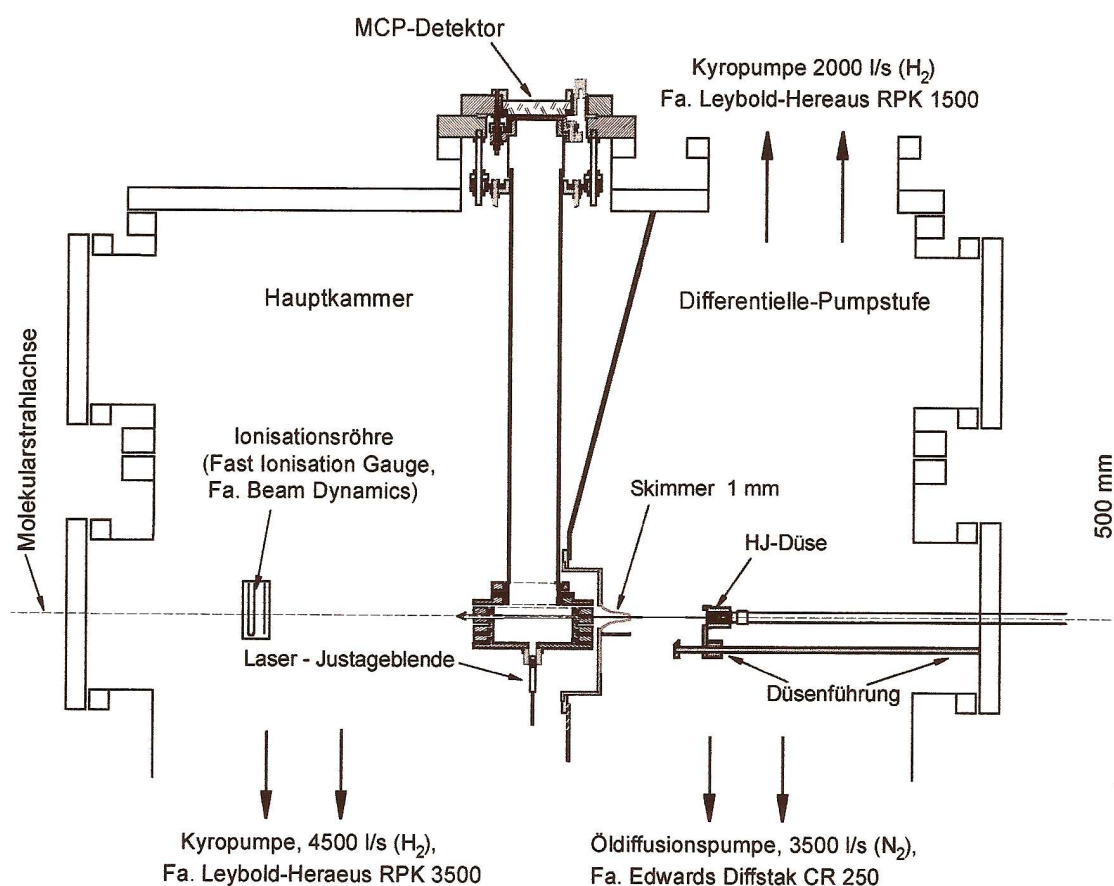


6.2.1 Vakuumkammer

Hauptbestandteil der UHV-Kammer ist ein Zylinder (\varnothing 800 mm, Höhe 475 mm) mit Anschlußflanschen der CF- u. ISO-K-Norm (s. Abb. 6.6). Die Vakuumkammer wird durch ein geschlossenes Metallgehäuse in zwei Bereiche geteilt (Hauptkammer und differentielle Pumpstufe [8]). Ein Gasaustausch zwischen den beiden Kammerteilen war nur über einen 0.99 mm Skimmer möglich.

Der Schnittpunkt von dem VUV-Laser und dem Molekularstrahl (s. Abb. 6.1) lag ca. 100 mm hinter dem 0.99 mm Skimmer (Fa. Beam Dynamics). Eine gepulste Molekularstahldüse (Fa. General Valve Serie 9-347-900 Öffnung \varnothing 0.504mm) erzeugte durch adiabatische Expansion eines HJ-Ar-Gemisches (mit 10-15 % HJ, bei 1 Bar Düsenvordruck) einen kalten HJ-Molekularstrahl. Im Vergleich zu kontinuierlichen Strahlquellen sind bei vorgegebener Pumpleistung des Vakuumsystems mit gepulsten Strahlquellen wesentlich höhere momentane Strahlintensitäten zu erreichen. Eine ausführliche Beschreibung des Düsenaufbaus findet sich in der Diplomarbeit von Karen Seekamp-Rahn [23]. Der Abstand zwischen Düse und Skimmer konnte zwischen 50 und 220 mm variabel eingestellt werden (siehe Abb. 6.1). Bei Düsenbetrieb wurden mit einem Ionisationsvakuumeter (Typ IE 211, Fa. Leybold) in der differentiellen Kammer Drücke von $1 \cdot 10^{-6}$ bis 10^{-5} mbar gemessen. Die Hauptkammer wurde mit einer Turbomolekularpumpe und bei laufender Düse zusätzlich mit einer Kyropumpe gepumpt (s. Abb. 6.6). In der Hauptkammer wurde bei Gasanfall ein Druck von ca. $7 \cdot 10^{-8}$ mbar (ohne Düse bis zu $2 \cdot 10^{-9}$ mbar) mit einem Quadrupol-Massenspektrometer gemessen.

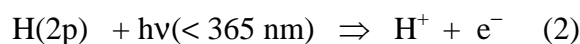
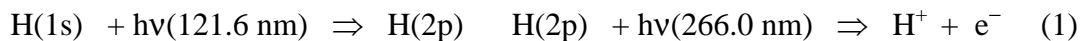
Abb. 6.6 Vertikaler Schnitt durch die Vakuumkammer mit Flugzeitspektrometer und Düse



Für sämtliche Zeitscheibenaufnahmen wurde ein Abstand um 120 mm zwischen der Düse und dem Skimmer gewählt, wobei ein Strahldurchmesser von ca. 2 mm am Dissoziationsort (Abb. 6.10) resultierte. Hierbei wurde mit einer schnellen Ionisationsröhre (Fast Ionisation Gauge, Fa. Beam Dynamics) ca. 350 mm hinter dem Skimmer eine Pulshalbwertsbreite zwischen 150 und 200 μs gemessen. Bei größeren Abständen waren die Düsenpulsintensitäten zu gering. Das HJ wurde in einem speziellen Gasstand aufbewahrt. Vor jeder Inbetriebnahme mußte dieser gründlich von J_2 durch mehrmaliges Spülen mit Ar-Gas gereinigt werden, weil sich sonst J_2 in der Düse anreicherte, wodurch der Anteil von ionisiertem J gegenüber dem dissoziierten HJ stark zunahm. Durch geringste Spuren von Wasser oder Sauerstoff (verursacht durch ein kleines Leck) wurden J_2 und Jodsäure freigesetzt, wodurch das Gemisch unbrauchbar wurde. Über eine Kurbel mit Zählwerk wurde eine Justageblende mit 0.7 und 0.5 mm Löchern an dem festgelegten Dissoziationsort gefahren. Die Position des Dissoziationsortes wurde vor dem Einbau des Detektors mit einem Theodolitfernrohr auf ca. 0.05 mm genau vermessen.

6.3 Durchführung des Experimentes

Jodwasserstoffgas (HJ) wurde in dem überschallexpansionsgekühlten Molekularstrahl senkrecht mit polarisierter und gepulster UV-Laserstrahlung (ca. 5 ns Halbwertsbreite) bei einer Wellenlänge von 266 nm photodissoziiert. Die bei der Fragmentation freigesetzten H-Atome wurden zum Nachweis in Kombination mit einem weiteren gepulsten Laser ionisiert. Dies erfolgte in zwei Schritten, indem die H-Atome resonant mit einer Wellenlänge von 121.6 nm vom 1s- in den 2p-Zustand angeregt wurden [2] (Lebensdauer ca. 1.6 ns) und anschließend durch die Aufnahme eines weiteren Photons nach einem der folgenden Schemata ionisiert wurden:



Eine 2-Photonen Ionisierung bei einer Wellenlänge von 121.6 nm wurde nicht beobachtet, da der Absorptionsquerschnitt des H(2p)-Zustandes für diese Wellenlänge praktisch Null war.

Zwischenzeitlich wurde die Intensität von 121.6 nm und der 266 nm Laserstrahlung so bemessen, daß die Ionisation der Wasserstoffatome nur mit einem zusätzlichen Farbstofflaser (Typ FL 2002, Fa. Lambda-Physik) bei einer Wellenlänge um 365 nm erfolge, um so den Erzeugungs- und Nachweisprozeß der H-Atome voneinander zu trennen.

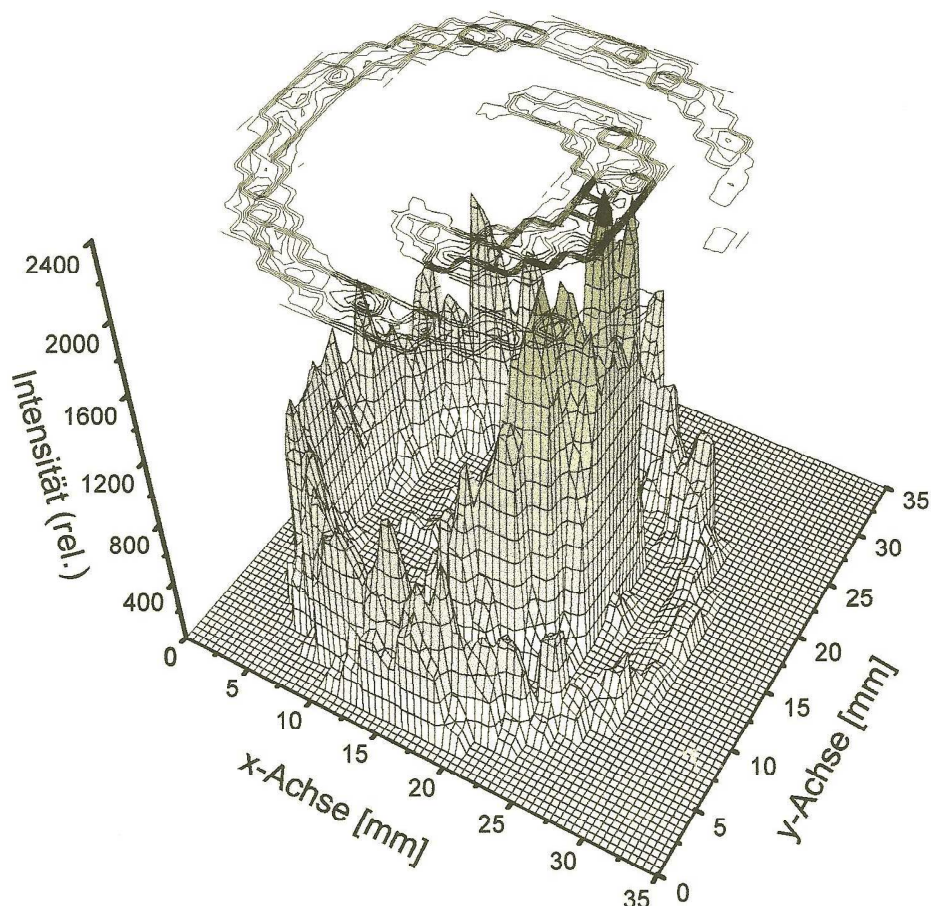
Da nach Schema (2) die Bilder keine andere Struktur zeigten und die Feinabstimmung von drei Lasern nach ihrer Intensität und Überlap nicht über längere Meßperioden stabil blieb, erfolgte in den Folgeaufnahmen die Ionisation jeweils nach Schema (1).

Die Größe des Nachweisvolumens wurde durch die Größe des Schnittvolumens von dem Nachweislaser, dem Dissoziationslaser und dem Molekularstrahl bestimmt. Die Kenntnis der Startkoordinaten (x,y,z) wurde auf die Größe dieses Nachweisvolumens begrenzt. Der Nachweiszeitpunkt t_0 ist über das Zeitintervall der Nachweislasershalbwertsbreite verschmiert worden. Die VUV-Laserfrequenz wurde mit einer Computer gestützten Gittersteuerung (UNIBI-Computerschnittstelle) kontinuierlich innerhalb eines Frequenzintervalls von ca. 300 GHz wegen des Dopplereffektes variiert, um alle Atome aus der Geschwindigkeitsverteilung im Mittel mit der gleichen Wahrscheinlichkeit in den H(2p)-Zustand anzuregen. Die VUV-

Wellenlänge wurde in einer Schrittweite von ca. 1.3 Gigahertz über dieses Frequenzintervall verschoben (Schrittfrequenz ca. 16.3 Hz).

Die Ionen wurden in dem schwachen homogenen elektrostatischen Abzugsfeld des b-FMS abgezogen (s. Kapitel 6.2), und anschließend auf eine Energie von ca. 5 keV nachbeschleunigt. Nach einer Driftstrecke von 0.45 m wurden sie mit einer MCP zeit- und 2dimensional orts aufgelöst nachgewiesen. Das elektrische Signal wurde über einen Phosphor- oder Szintillatorschirm in ein optisches Signal umgewandelt. Nach einer Abbildung über ein Maksutov-Newton Teleskop (s. Abb. 6.2), wurde dieses mit einer CCD-Kamera (s. Anhang D) nach einer variabel einstellbaren Verzögerungszeit (Delay), relativ zu dem VUV-Laserpuls, innerhalb der Kameraöffnungszeit (Gate) von typischerweise 20 bis 100 ns aufsummiert. In einer Zeitscheibe wurden auf diese Weise nur diejenigen Ionen aus jeweils insgesamt 4000 Laserschuss nachgewiesen (im Mittel ca. 10 Teilchen pro Schuss) deren Flugzeiten innerhalb des der Zeitscheibe zugeordneten Zeitintervalls Δt lagen. Die Verzögerungszeit wurde nach jeweils 4000 Laserschuss um die durch die Kameraöffnungszeit festgelegte Dicke der Zeitscheiben verschoben, wobei das optische Bild des Szintillators (Phosphors) mit der CCD-Kamera jeweils während der Bildverstärkeröffnungszeit Δt in einem 2dimensionalen Feld (Bildmatrix) mit 286×384 Pixel aufintegriert wurde.

Abb. 6.7: Darstellung der in einer Zeitscheibe abgespeicherten Daten in einer Reliefdarstellung und Konturdarstellung. Der Auftreffpunkt (x,y) eines Ions auf der Bildmatrix hängt von den v_x - und v_y - Geschwindigkeitskomponenten nach der Photodissoziation ab. Die zugehörigen Intensitäten sind auf der z-Achse aufgetragen.



6.3.1 Lasersystem

Eine detaillierte Beschreibung des hier benutzten Lasersystems wird sich in der Dissertation von Eckard Wrede [24] finden.

266 nm Dissoziationslaser

Als Dissoziationslaser diente ein gepulster 10Hz Nd-YAG-Laser (Typ DCR -1 , Fa. Quanta Ray). Mittels zweimaliger Verdopplung der Fundamentalen in KDP-Kristallen wurde mit diesem eine Wellenlänge von 266 nm erzeugt. Für die Laserpulslänge wurde mit einer schnellen Photodiode eine Halbwertsbreite von ca. 5 ns ermittelt.

Es wurden Pulsenergien (mit einem pyroelektrischen Messkopf) von ca. 5 bis 7 mJ direkt hinter den Kristallen gemessen. Mit einer $\lambda/2$ Platte konnte die Polarisation des Lasers relativ zu einem Polarisator beliebig gedreht werden. Die Dissoziations-Laserleistung konnte so kontinuierlich zwischen ca. 0.2 bis 5 mJ variiert werden. Vor der $\lambda/2$ Platte befand sich eine Blende, um einen runden Sektor von ca. 3 mm Durchmesser aus dem ursprünglich kreisförmigen inhomogenen Laserprofil von ca. 8 mm Durchmesser auszuschneiden. Hierdurch ließ sich der Dissoziationslaser definiert auf einen Durchmesser von ca. 0.5 mm fokussieren.

Der 266 nm Laserstrahl wurde über einen dielektrischen Spiegel auf den Polarisator gelenkt, mit dem die Polarisationsrichtung des Dissoziationslasers festgelegt wurde. Ca. 10 cm vor dem Polarisator befand sich eine Linse ($f = 1000$ mm), mit der der Laserstrahl auf die Justageblende in der Vakuumkammer fokussiert wurde (s. Abb. 6.8).

121 nm Nachweislaser

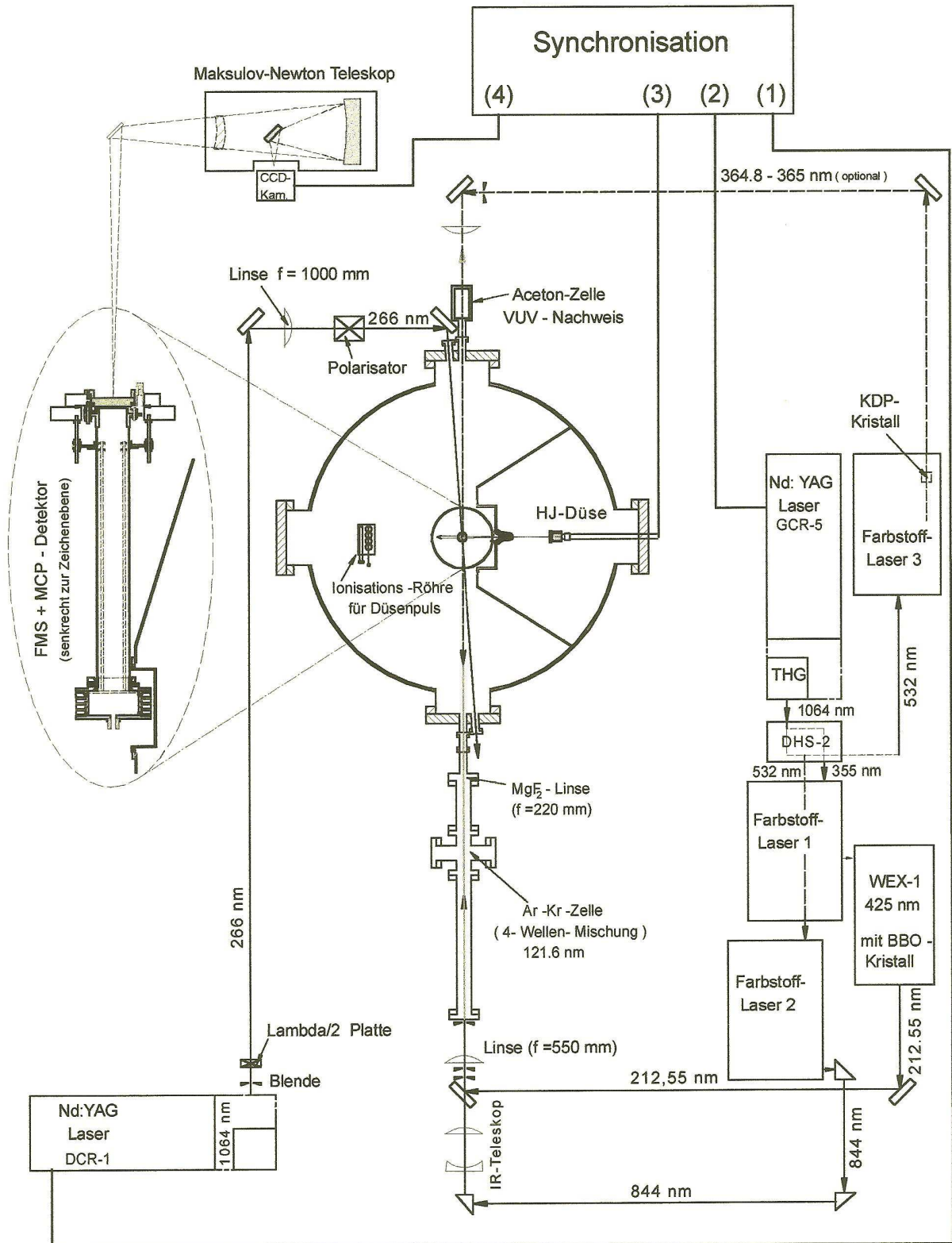
Der Nachweislaser, mit einer Wellenlänge von 121 nm, wurde über eine resonante Vier-Wellenmischung aus 844 nm und 212.55 nm Photonen in einem phasenangepassten Argon-Krypton-Gemisch erzeugt [25]. Als Pumplaser diente ein gepulster 10 Hz Nd-YAG-Laser mit Injection Seeder (Typ GCR-5, Fa. Spectra Physiks. Die 212.55 nm Pulse (ca. 3 mJ) wurden in einer Verdopplungseinheit (WEX-1 Fa. Quanta Ray) mit einem BBO Verdopplungskristall aus 425 nm Pulsen eines Farbstofflasers (in Dioxan gelöstes Bis-MSB wurde mit 355 nm transversal gepumpt) erzeugt [2].

Der Nachweislaser wurde am Dissoziationsort auf einen Durchmesser von ca. 0.7 mm fokussiert. Bei der Messung wurde, wegen der Dopplerverbreiterung für die schnellen Wasserstoffatome aus der HJ-Dissoziation von ca. 300 GHz, die mit einem Infrarotfarbstofflaser (in Dimethylsulfoxid gelöstes Styrol 9 wurde mit 532 nm transversal gepumpt) erzeugte Strahlung von ca. 844 nm über einem Wellenlängenbereich von ca. 0.75 nm mit einer Computer gestützten Gittersteuerung (UNIBI-Computerschnittstelle) kontinuierlich variiert

365 nm Laser

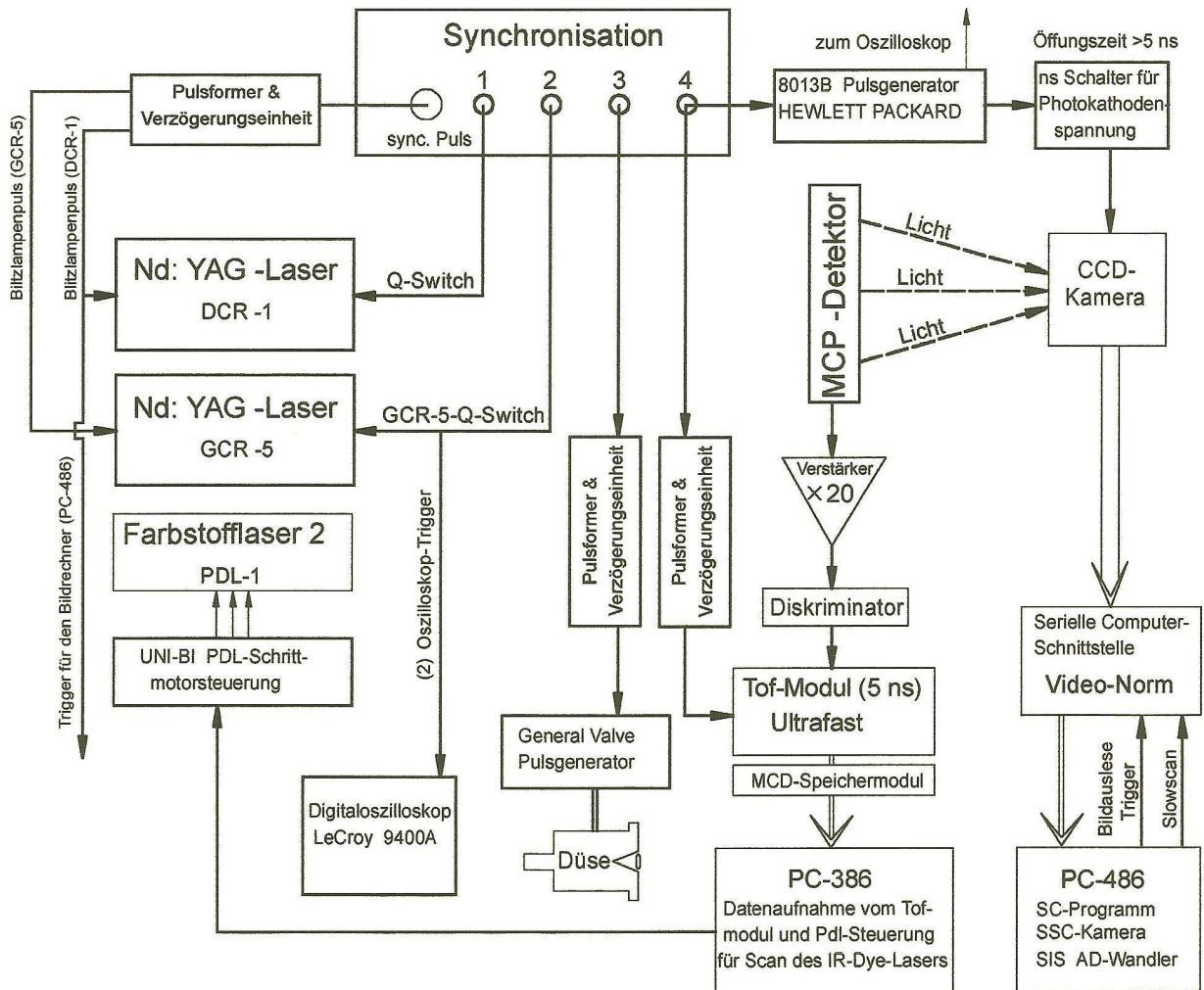
Mit einem Farbstofflaser (Typ FL 2002, Fa. Lambda-Physik) wurden (vorübergehend) Laserpulse mit einer Wellenlänge von ca. 730 nm erzeugt (in Methanol gelöstes Pyridin-2 wurde mit 532 nm transversal gepumpt). Nach Frequenzverdopplung im einem KDP-Kristall wurde so Laserlicht um 365 nm mit bis zu 5 mJ je Puls erzeugt.

Abb. 6.8 Überblick über den Aufbau des benutzten Lasersystems und der Anordnung der oben beschriebenen Komponenten



6.3.2 Zeitliche Steuerung des Experimentes und Datenaufnahme

Abb. 6.9 Überblick über die zeitliche Steuerung des Experimentes



Zum Nachweis der Wasserstoffatome aus der HJ-Dissoziation ist ein räumlicher und zeitlicher Überlapp des Dissoziationslasers und des VUV-Nachweislasers mit dem gepulsten Molekularstrahl erforderlich. Zur zeitlichen Synchronisation von Laser, Düse, und Kameraelektronik diente ein 10 Hz Pulsgenerator (UNIBI) mit fünf voneinander unabhängig einstellbaren Verzögerungseinheiten im Bereich von 0 bis 99 ms. Im Experiment wurden vier Kanäle dieser Pulseinheit belegt (siehe Abb. 6.9).

Der Referenzzeitpunkt für die Zeitsteuerung war durch den Triggerzeitpunkt des GCR-5 Pockelszellenpulses (GCR-Q-Switch) (Kanal 2) gegeben. Zur Kontrolle des Signals wurde ein digitales Oszilloskop (Typ, 9400A, Fa. LeCroy, 150MHz) synchron zu diesem Zeitpunkt getriggert. Der zeitliche Überlapp zwischen Dissoziations- und Nachweislaser wurde durch

Schieben des Laserzeitpunktes für den Dissoziationslaser (DCR-Q-Switch) (Kanal 1) über das totale Wasserstoffionensignal optimiert.

Über Kanal 3 wurde ein Pulsgenerator für die Düsensteuerung (Fa. General Valve) getriggert.

Über Kanal 4 wurde wahlweise ein Pulsgenerator (8013B P. Generator, Fa. Hewlett Packard), mit dem der Öffnungszeitpunkt (Delay) und die Öffnungsdauer (Gate) für den Bildverstärker festgelegt wurden, oder das in Kapitel 3.2 beschriebene ToF-Modul zur Aufnahme des totalen Signals getriggert. Die Pulse des Pulsgenerators mußten überwiegend (s. Abb. 6.9) jeweils über einen Pulsformer (Gate & Delay, Fa. Ortec), mit dem gleichzeitig der Signalzeitpunkt verschoben werden konnte, in TTL-Pulse transformiert werden.

Für die Gittersteuerung des Infrarotfarbstofflasers wurde ein Schrittmotor über eine spezielle Computerschnittstelle (UNIBI) mit einem Computer (PC 386-CPU, 16 MHz) für die Datenaufnahme im Interrupt-Verfahren gesteuert.

Die Bildaufnahme erfolgte mittels eines Slow-Scan CCD-Kamerasystems, das im wesentlichen aus der in Anhang D vorgestellten CCD-Kamera, einem Spannungsschalter im Nanosekundenbereich, und einem Computersystem (PC 486-CPU, 33 MHz) inklusive einer speziellen Software für das Auslesen der Kameradaten bestand.

Bei der Datenaufnahme wurde der Bildverstärker nach einer vorgewählten Verzögerungszeit jeweils für ein festgelegtes Zeitintervall geöffnet. Mit jedem Laserschuß wurde während der Öffnungszeit das Photonensignal vom Szintillator elektronisch mit dem 286×384 Pixel umfassenden CCD-Chip der Kamera aufintegriert und nach jeweils 10 Laserpulsen über eine serielle Computerschnittstelle ausgelesen. Mittels einer speziellen Analog/Digital-Karte (12Bit-AD-Wandler) wurde das Signal analog ausgelesen und in 2 Byte Zahlen digitalisiert. Bei den Zeitscheibenaufnahmen wurden mit dem PC-Programm jeweils 350 bis 400 Einzelbilder ausgelesen und in einer 286×384 großen Zahlenmatrix aufsummiert. Die Daten wurden wahlweise in einem 2Byte- oder 4Byte-Zahlenformat abgespeichert.

6.3.3 Abschätzung des Molekularstrahldurchmessers

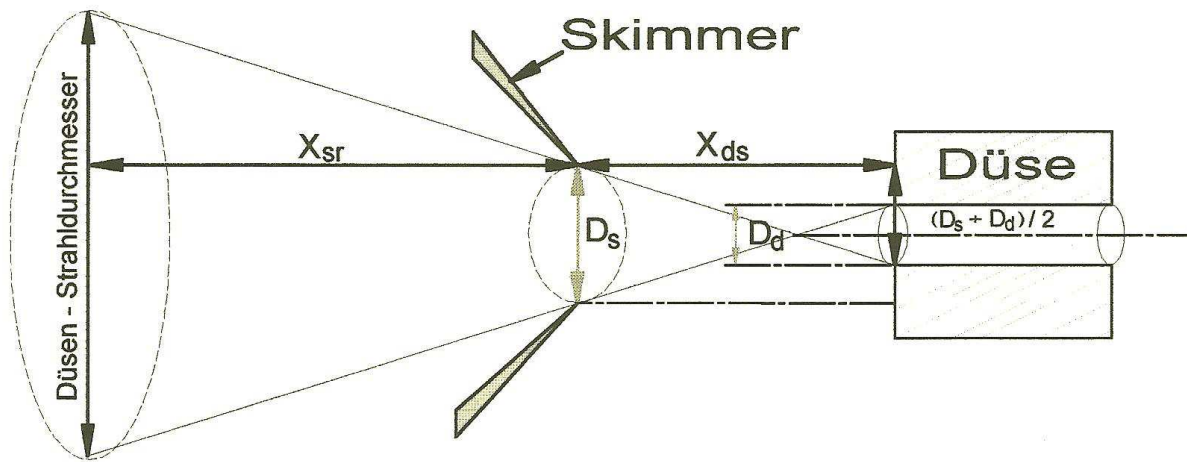
Die Kenntnis des Molekularstrahldurchmessers am Dissoziationsort ist für eine Abschätzung der Größe des Dissoziationsvolumens erforderlich. Die Strahldivergenz kann rein geometrisch abgeschätzt werden, wenn der Skimmerabstand so groß gewählt wird, daß die Strahlabstümmung in dem Bereich der freien molekularen Strömung erfolgt. In diesem Fall kann angenommen werden, daß sich die Moleküle auf geradlinigen Trajektorien bewegen.

Aus der Zeichnung (s. Abb. 6.10) wird ersichtlich, wie sich der Strahldurchmesser am Dissoziationsort geometrisch abschätzen läßt. Der Abstand von Düse zu Skimmer X_{ds} konnte zwischen 50 mm und 220 mm variabel eingestellt werden. Die Distanz von der Skimmeröffnung bis zum HJ-Dissoziationsort X_{sr} betrug ca. 100 mm. Bei einer Düsenöffnung $D_d \varnothing 0.504$ mm und einem Skimmerdurchmesser $D_s \varnothing 0.99$ mm ergab sich mit

$$D_{Strahl} = X_{sr} * \frac{D_d + D_s}{X_{ds}} + D_s$$

ein geometrischer Strahldurchmesser zwischen 3.99 mm ($X_{ds} = 50$ mm) und 1.68 mm ($X_{ds} = 220$ mm) am Dissoziationsort. Im Experiment betrug D_{Strahl} ca. 2 mm ($X_{ds} = 120$ mm).

Abb. 6.10 (geometrische Abschätzung des Strahldurchmessers)



Kapitel 7 Eigenschaften des bildgebenden Flugzeitmassenspektrometers

7.1 Experimentelle Auflösung (Fehlerrechnung)

Die Geschwindigkeits- und Winkelauflösung für den betrachteten Prozeß wird durch die Unschärfen $\Delta v_x^{sp}, \Delta v_y^{sp}, \Delta v_z^{sp}$ der berechneten kartesischen Fragment- Geschwindigkeitskomponenten im Schwerpunktsystem der (des) Edukte(s) begrenzt. Die Unschärfen können mit einer gaußschen Fehlerfortpflanzung unter der Annahme, daß die mit Fehlern behafteten Meßgrößen $x, y, t, u_x^{lab}, u_y^{lab}, u_z^{lab}$ voneinander unabhängig sind, unter Verwendung der Koordinatentransformation 5.3a abgeschätzt werden.

Bei einem endlichen Startvolumen, dessen genaue Größe durch das Schnittvolumen zwischen dem Molekularstrahl und dem Nachweislaser (mit der Laserpulsdauer Δt) bestimmt wird, ergibt sich mit:

- $\Delta x, \Delta y$: resulierende Ortsunschärfen für die Fragmentabbildung durch ein endliches Nachweisvolumen, einer endlichen Pixelgröße und Abbildungsfehler durch die Gitter
- Δz : Unschärfe des Startvolumens parallel zur Detektorachse
- Δt_{Ap} : resulierende Zeitunschärfe aus der festgelegten Bildverstärkeröffnungszeit ΔT , der Laserpulsdauer und der Zeitauflösung der Elektronik

$\Delta u_x^{lab}, \Delta u_y^{lab}, \Delta u_z^{lab}$: Unschärfen der Komponenten der Schwerpunktschwindigkeit

$$\text{und } v_x^{sp} = \frac{x}{t} - u_x^{lab} \quad v_y^{sp} = \frac{y}{t} - u_y^{lab} \quad v_z^{sp} = v_z^{lab} = V_z(t)$$

für $\Delta v_x^{sp}, \Delta v_y^{sp}$

$$\Delta v_x^{sp}(x, t) = \sqrt{\left(\frac{1}{t} \cdot \Delta x\right)^2 + \left(\frac{x}{t^2} \cdot \Delta t_{Ap}\right)^2 + (\Delta u_x^{lab})^2} \quad \Delta v_y^{sp}(y, t) = \sqrt{\left(\frac{1}{t} \cdot \Delta y\right)^2 + \left(\frac{y}{t^2} \cdot \Delta t_{Ap}\right)^2 + (\Delta u_y^{lab})^2}$$

(7.1a,b)

Die Umkehrfunktion $V_z(t)$ zu $T_{\text{Flug}}(s_z, v_z^{lab}, m)$ (s. 1.3.1) wird implizit über die Masse m und den Gitterabstand s_z parametrisiert. Nur wenn $T_{\text{Flug}}(s_z, v_z^{lab}, m)$ in erster Näherung von s_z unabhängig ist (Raumfokussierung), kann (für eine feste Masse m) v_z^{sp} auch für ein endliches Nachweisvolumen eindeutig über die Flugzeit t bestimmt werden. Δv_z^{sp} läßt sich dann für eine gegebene Zeitscheibe zu der mittleren Flugzeit t mit

$$\Delta v_z^{sp} = \frac{\delta V_z(t)}{\delta t} \cdot \Delta t_{Ap} \quad (7.1c)$$

abschätzen (s. auch 1.12). Sind die Unschärfen $\Delta u_x^{lab}, \Delta u_y^{lab}, \Delta u_z^{lab}$ der Schwerpunktschwindigkeitskomponenten, wie im vorliegenden Experiment, gegenüber den anderen Meßfehlern klein, können diese in guter Näherung vernachlässigt werden.

Für ein punktförmiges Startvolumen, eine infinitesimale Laserpulsdauer und eine ideale Ionenabbildung, ist die Auflösung der Geschwindigkeitskomponenten v_x, v_y, v_z nur durch die

gewählte Bildverstärkeröffnungszeit ΔT und die Pixelgröße $\Delta x \Delta y$ limitiert. Bei einer Bild-Matrix von 286×286 Pixeln kann das totale Geschwindigkeitsintervall $[v_{\max}, -v_{\max}]$ längs einer Koordinatenachse dann bestenfalls in 286 Intervallen abgebildet werden. Die relative Auflösung für die v_x und v_y Geschwindigkeitskomponenten wird somit auf ca. 0.7 % begrenzt. Für die HJ-Dissoziation ergab sich mit $v_{\max} = 17460 \text{ m/sek}$ (in grober Näherung) für Δv_x^{sp} und Δv_y^{sp} eine absolute Auflösung von ca. 123 m/sek. Die Auflösung für die v_z -Komponente wurde durch die Dicke der Zeitscheiben bestimmt. Im Experiment wurden 11 Zeitscheiben mit einer Bildverstärkeröffnungszeit von ca. 15 ns aufgenommen. Der Bildverstärkeröffnungszeitpunkt wurde um jeweils von 20 ns verschoben. Hierdurch wurde die relative Auflösung für die v_z -Komponente auf ca. 18 % begrenzt (Δv_z^{sp} ca. 3180 m/sek), wobei das in eine Zeitscheibe abgebildete Geschwindigkeitsintervall Δv_z^{sp} mit zunehmender Flugzeit wegen (1.12) immer schmaler wurde (s. Abb. 7.1a). Die Auflösung für die v_z -Komponente war in der letzten Zeitscheibe, in Vergleich zur ersten, fast zweimal höher (Abb. 7.1b).

Abb. 7.1a : Verlauf der inversen Flugzeitfunktion $V_z(t)$ für $V_1 = 60$ Volt (s. Kapitel 1.3.1). Die Ionenflugzeit t ist eindeutig (in guter Näherung) mit v_z^{sp} verknüpft ($v_z^{sp} = V_z(t)$).

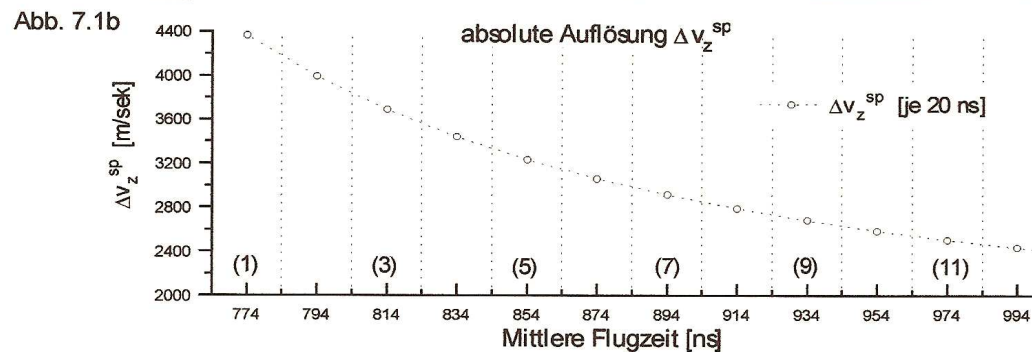
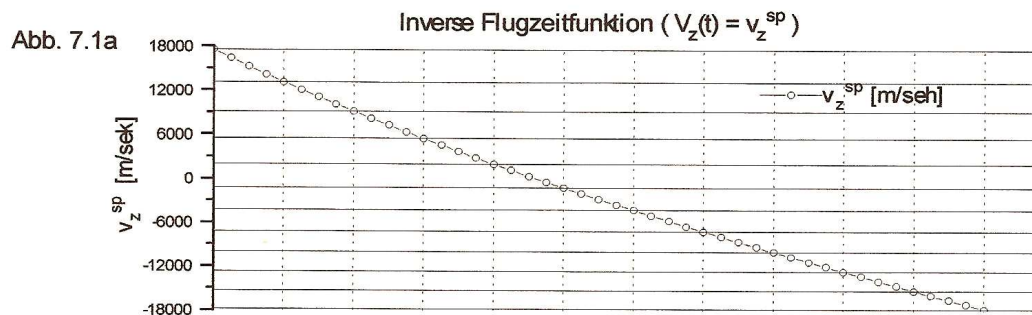


Abb. 7.1b : Absolute Auflösung von Δv_z^{sp} in den 11 Zeitscheiben (mit $\Delta T = 20$ ns) als Funktion der mittleren Flugzeit t für Wasserstoffatome aus der HJ-Dissoziation bei 60 Volt (idealisiert)

Wenn der Geschwindigkeitsbetrag v , der über den Prozeß mit einer bestimmten Energie auftretenden Fragmentgruppen separat (z. B. über eine Flugzeitmessung) bestimmbar ist und das Signal aus verschiedenen Geschwindigkeitsgruppen in keiner der aufgenommenen Zeitscheiben in gemeinsame Pixel gezählt werden kann, ist für die jeweilige Gruppe der Betrag der v_z -Komponente direkt aus den v_x - und v_y -Komponenten mit einer relativen Auflösung von jeweils 0.7 % viel genauer als über 5.3a

mit : $|v_z| = \sqrt{v^2 - \bar{v}_x^2 - \bar{v}_y^2}$ (7.2) berechenbar.

Das Vorzeichen von v_z konnte jedoch nur direkt über die Umkehrfunktion $V_z(t)$ bestimmt werden, so daß dieses für das Zeitintervall, in denen v_z -Komponenten beider Vorzeichen abgebildet werden konnten, unbestimmt blieb (z. B. resultierte bei den Zeitscheibenaufnahmen mit 60 Volt Abzugsspannung ein Intervall von ca. 3300 m/sek unbestimmten Vorzeichens in der fünften Zeitscheibe (Abb. 7.1b)).

Die resultierende Auflösung, die sich den 11 Zeitscheiben erzielen ließ, war für die Bestimmung der allgemeinen differentiellen Geschwindigkeits- und Winkelverteilung im Vergleich zu einer einfachen Projektion z. B. [26] aufgrund der erhöhten Informationsdichte wesentlich höher.

Bei der Auswertung der Zeitscheibenbilder (s. Kapitel 10) wurde 7.2 implizit in der Rechnung berücksichtigt, so daß der Geschwindigkeitsbetrag v mit der dort durchgeführten Fehlerquadratminimierung auf bis zu ca. 100 m/sek genau bestimmt werden konnte.

In Abb. 7.2a und 7.2b ist die relative und die absolute radiale Geschwindigkeitsauflösung

$\Delta v_{xy}^{sp} = \sqrt{(\Delta v_x^{lab})^2 + (\Delta v_y^{lab})^2}$ für die einzelnen Zeitscheiben, für $V_1 = 60$ Volt und einer Öffnungszeit von 20 ns mit der Abschätzung 7.1a und 7.1b berechnet worden. Es wird ersichtlich, daß Δv_{xy}^{sp} mit x , y und der Flugzeit variiert.

Abb. 7.2a Geschwindigkeitsauflösung Δv_{xy} in den Zeitscheiben T_1 bis T_{11} (relativ in %)

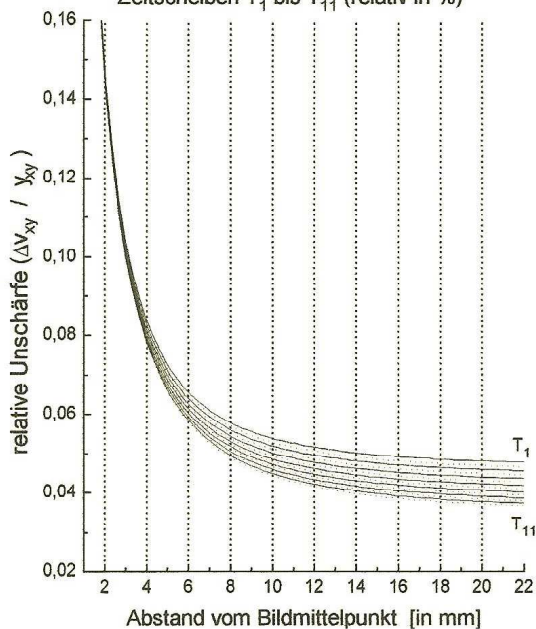
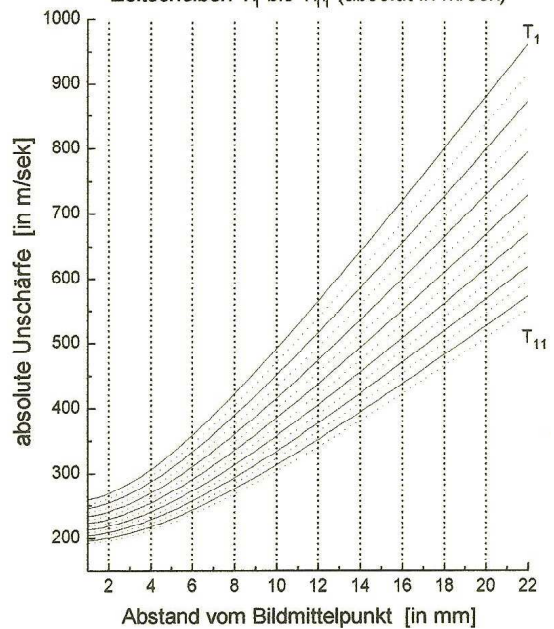


Abb. 7.2b Geschwindigkeitsauflösung Δv_{xy} in den Zeitscheiben T_1 bis T_{11} (absolut in m/sek)



7.2 Kriterien für die Wahl der Feldstärken bei dem bildgebenden FMS

Bei dem b-FMS mit einem homogenen Abzugsfeld in z-Richtung wird die relative Auflösung der Geschwindigkeitskomponenten in der x-y-Ebene nur durch das Verhältnis von dem Durchmesser des Nachweisvolumens in der x-y-Ebene und dem maximalen Durchmesser der Abbildung auf die MCP bestimmt. Beim gegebenen MCP-Durchmesser D sind die Feldstärken des b-FMS deshalb so zu bemessen, daß die Geschwindigkeitsgruppen aus dem untersuchten Fragmentationsprozeß über den ganzen MCP-Durchmesser abgebildet werden können.

Die relative Auflösung Rv_z [mit $Rv_z = \Delta v_z / (2v_{\max})$ in %] für die Geschwindigkeitskomponente v_z^{lab} kann über den Quotienten aus dem über die Umkehrzeit $\Delta T_{\text{turn}}(v_{\max})$ (s. 1.6) gegebenen Flugzeitintervall, in das die Ionen "abgebildet" werden können und der mit einem idealen Szintillator (Abklingzeit = 0 ns) erzielbaren Zeitscheibendicke $\Delta T_{\min} = \sqrt{\Delta T_{\text{Ort}}^2 + \Delta T_{\text{Ap}}^2}$

$$\text{mit } \frac{1}{Rv_z} = Z = \frac{\Delta T_{\text{Turn}}(v_{\max})}{\sqrt{2} \cdot \Delta T_{\min}} = \frac{\sqrt{2} \cdot m \cdot v_{\max}}{qE_1 \cdot \Delta T_{\min}} \quad (7.3)$$

abgeschätzt werden. Z entspricht der mit dem idealen Szintillator maximal erzielbaren Anzahl nicht überlappender Zeitscheiben. Bei gegebenem maximalen Fragmentimpuls $m \cdot v_{\max}$ ist Z umgekehrt proportional zur Abzugsfeldstärke E_1 (für $\Delta T_{\min} = \text{kons.}$). Deshalb wird E_1 möglichst klein gewählt. Die übrigen Feldstärken werden dann so bemessen, daß die Raumfokussierungsbedingung (s. 1.9) mit $\Delta T_{\text{Ort}} = 0$ erfüllt wird. Hierbei ist zu beachten, daß eine raumfokussierende Abbildung nur mit einer längeren Flugstrecke D (im Experiment $D = 0.45$ m) mit einem schwachen Abzugsfeld E_1 bei den erforderlichen hohen Nachbeschleunigungsfeldstärken möglich ist, da sich der Abstand des Raumfokussierungspunktes mit abnehmender Feldstärke E_1 entfernt (siehe Abb. 2.4). Der maximale Durchmesser D_{\max} für die Abbildung am Ort der MCP kann mit (1.5) und $E_{\text{Kin}} = \frac{1}{2} m \cdot v_{\max}^2$ durch

$$D_{\max} \cong \left(\sqrt{\frac{2m \cdot s_0}{qE_1}} + T_{\text{rest}}(E_2, E_3) \right) \cdot v_{\max} \approx \sqrt{E_{\text{Kin}}} \quad (7.4)$$

abgeschätzt werden.

D_{\max} ist für Fragmente mit einheitlicher Energie und derselben Geschwindigkeitsverteilung (näherungsweise) gleich. Da die Fragmentgeschwindigkeit v_{\max} für eine feste Translationsenergie proportional zu $1/\sqrt{m}$ ist, nimmt Z bei festem D_{\max} proportional mit \sqrt{m} zu.

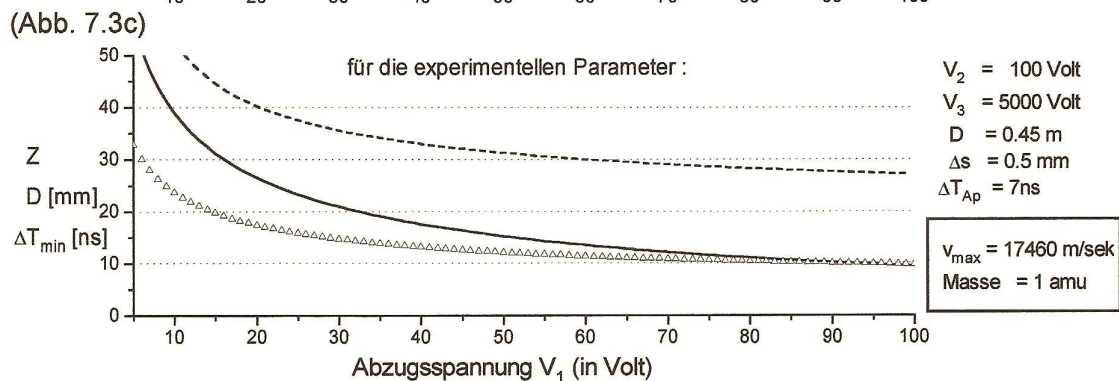
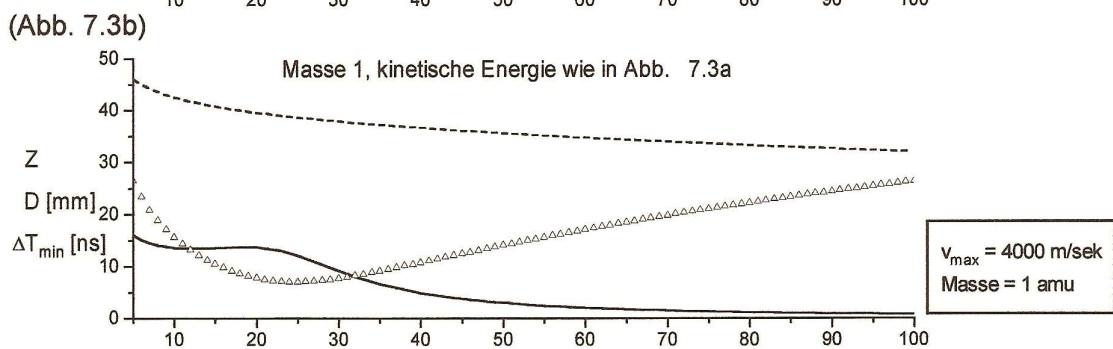
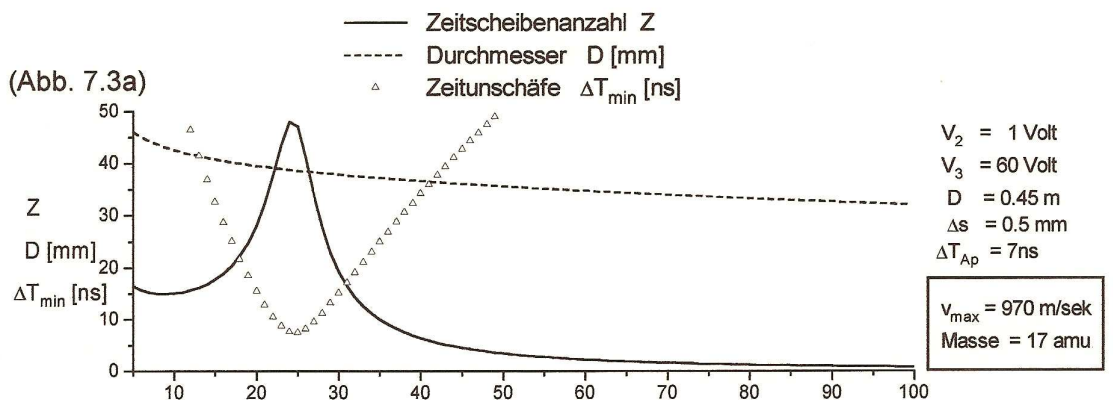
Wegen der hohen Geschwindigkeit der H-Atome von bis zu 17460 m/sek war es jedoch nicht möglich, die Potentiale des b-FMS so zu wählen, daß bei Erfüllung der Raumfokusbedingung die Ionen noch auf den ganzen MCP-Durchmesser abgebildet werden konnten. Mit den im Experiment gewählten Spannungen ergaben sich für ΔT_{Ort} ca. 9 ns (für $m=1$), so daß für $\Delta T_{\text{Ap}} = 7\text{ns}$ und einer Bildverstärkeröffnungszeit ΔT_{Gate} von ca. 15 ns (s. Kapitel 11.3) die Zeitscheiben über ein Zeitintervall $\Delta T_{\min} = \sqrt{\Delta T_{\text{Ort}}^2 + \Delta T_{\text{Ap}}^2 + \Delta T_{\text{Gate}}^2}$ von mindestens 19 ns Halbwertsbreite verschmiert wurden.

7.2.1 Potentialwahl für die Abbildung schwerer Fragmente

Bei größeren Fragmentmassen sind infolge der Impuls- und Energieerhaltung die Fragmentgeschwindigkeiten kleiner. Um z. B. eine relative Auflösung R_{V_z} von unter 10 % für Ionen der Masse 17 zu erhalten, dürfen diese innerhalb des b-FMS nur ein Potential von maximal ca. 100 Volt durchlaufen. Zum Nachweis mit dem MCP-Detektor müßten diese dann vor dem Detektor auf einige tausend Elektronenvolt nachbeschleunigt werden. Bei der in diesem Experiment vorliegenden Molekularstrahlgeschwindigkeit von ca. 500 m/sek senkrecht zur Detektorachse würde es bei einer Masse von 17 amu zu einer Drift von mehreren Zentimetern, ohne Kompensation mit einem geeigneten Querfeld innerhalb der Driftstrecke D , kommen.

In den Abbildungen 7.3a bis c wird der Einfluß der Abzugsspannung V_1 auf den maximal möglichen Durchmesser D einer Zeitscheibe, auf die theoretisch erzielbare Zeitauflösung ΔT (idealer Szintillator), und auf die Anzahl Z nicht überlappender Zeitscheiben deutlich.

In den Abbildungen 7.3a und 7.3b wird die Wirkung der Raumfokussierung auf Z am Beispiel der Atommasse 1 und 17 für eine feste kinetische Energie veranschaulicht. Näherungsweise gilt: $Z \approx \sqrt{m}$. In Abb. 7.3c sind D , ΔT und Z mit den experimentellen Parametern (in der Abbildung angegeben) berechnet worden.



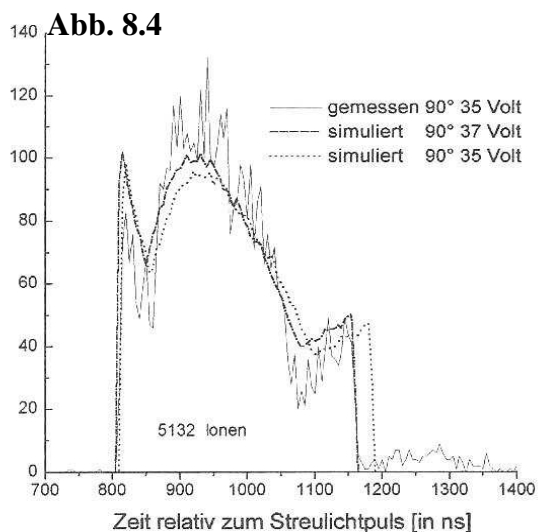
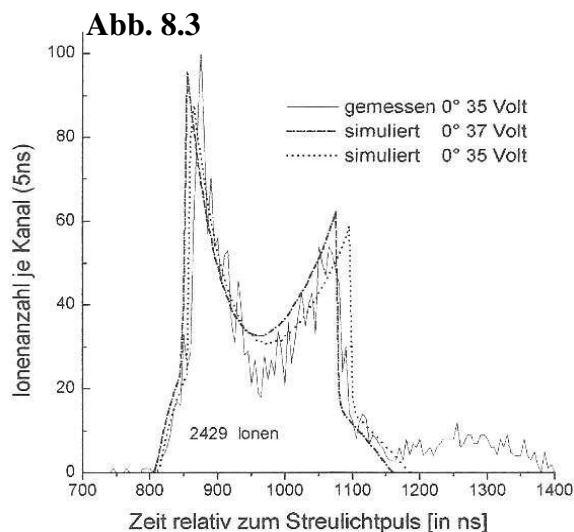
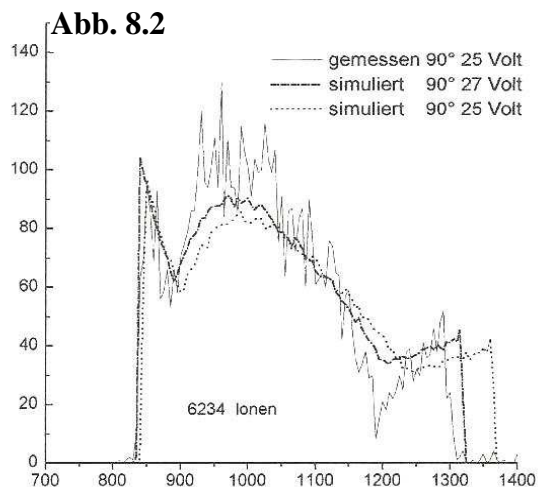
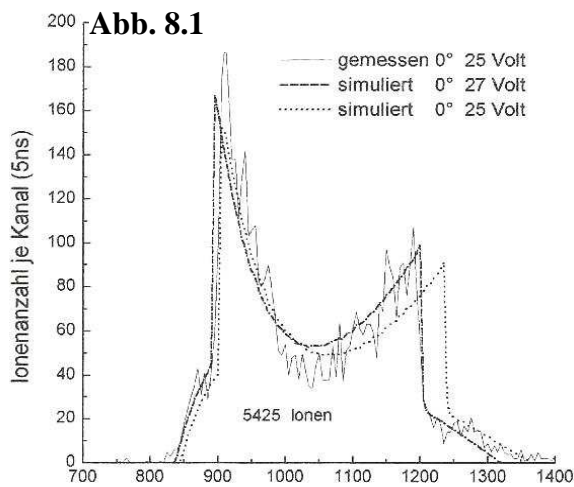
Kapitel 8 Erste Ergebnisse

8.1 H⁺- Flugzeitspektren

Die resultierende Flugzeitverteilung aus der HJ-Dissoziation wurde unter einem Polarisationswinkel von 0° und 90° mit dem im Kapitel 3.2 beschriebenen Vielkanalzähler bei einer Kanalbreite von 5 ns aufsummiert, ohne die Ionenauffreffpunkte ortsaufgelöst nachzuweisen. Hierbei wurden an das b-FMS die für die Zeitscheibenaufnahmen erforderlichen Potentiale angelegt. Die in den Mikrokanalplatten freigesetzten Elektronen sind entweder über die mit Aluminium bedampfte (Phosphor) Szintillatorschicht oder mit einer Metallelektrode (Ø 40 mm) aufgefangen worden.

In den Abbildungen 8.1 bis 8.4 werden bei 0° und 90° gemessene Spektren mit simulierten Spektren für entsprechende Potentiale verglichen, nachdem die simulierten Spektren jeweils auf die gemessenen Spektren normiert worden sind. Die Spektren stimmten mit den simulierten Spektren relativ gut überein, wenn die im Experiment angegebenen Abzugsspannungen jeweils um 2 Volt erhöht wurden.

Vergleich von gemessenen und simulierten H⁺- Flugzeitspektren

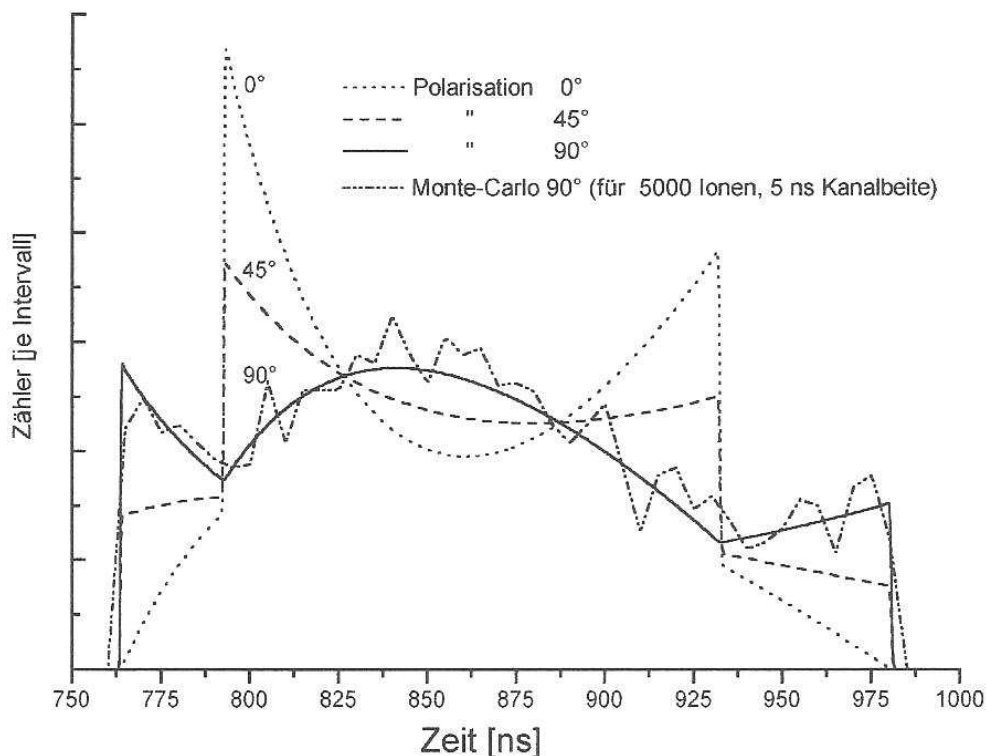


Dies legt den Verdacht nahe, daß die Abzugsspannungen bei dieser Messung systematisch um 2 Volt verschoben waren, da selbst bei einer Variation der Flugstreckenlänge oder der Nachbeschleunigungsspannungen um den Faktor 2 nur die Flugzeitskala geschoben würde, ohne das sich dabei die relative Verteilung auf die einzelnen Flugzeitkanäle (merklich) ändert, da (in guter Näherung) die Flugzeitabhängigkeit von der v_z -Komponente nur über die Feldstärke E_1 bestimmt wird (s. 1.5).

Bei einer Kanalbreite von 5 ns gibt ein so aufgenommenes Flugzeitspektrum Auskunft über die Verteilung des gesamten Ionensignals auf einen Satz aufeinanderfolgender, jeweils 5 ns "dicker" Zeitscheiben. Aus dieser Verteilung kann die relative Gewichtung für die gemessenen zweidimensionalen Zeitscheiben ermittelt werden. Für den direkten Vergleich zwischen den einzelnen gemessenen und theoretischen Bildern war eine direkte Gewichtung jedoch nicht erforderlich.

In Abb. 8.5 wurde die Flugzeitverteilung aus der HJ-Dissoziation unter einem Polarisationswinkel von 0° , 45° und 90° ($V_1 = 60$ Volt) mit der theoretischen Winkelverteilung berechnet. Für 90° ist zusätzlich ein Flugzeitspektrum aus einer Monte-Carlo-Simulation mit 5000 Ionen eingezeichnet. Die Verteilung ändert sich in charakteristischer Weise mit der Polarisation.

Abb. 8.5 Simuliertes H^+ - Flugzeitspektrum (60 Volt)



In mit vergleichbarer Teilchenzahl (50000 - 10000) monte-carlo-simulierten Spektren zeigten sich, wie in den gemessenen Spektren, zwischen den einzelnen Flugzeitkanälen heftige Schwankungen (siehe Abb. 8.5). Vor jeder Zeitscheibenaufnahme wurde ein H^+ - Flugzeitspektrum aufgenommen und mit einer Simulationsrechnung verglichen, um sicherzustellen, daß alle abgebildeten H-Ionen aus der HJ-Photodissoziation bei einer Wellenlänge von 266 nm entstanden sind.

8.2 Optimierung der experimentellen Parameter und erste Zeitscheiben

Anhand der H^+ - Flugzeitspektren wurden die experimentellen Parameter wie das Laserdelay zwischen Dissoziations- und Nachweislaser, Laserintensitäten, Polarisation des Dissoziationslasers, Düsenzeitpunkt, HJ-Argon-Mischungsverhältnis, das erforderliche Frequenzintervall (Scan-Intervall) über das der 121nm Nachweislaser variiert werden mußte und die MCP-Spannung zum Einzelteilchennachweis optimiert.

Vor jeder Zeitscheibenaufnahme wurde ein H^+ - Flugzeitspektrum aufgenommen um sicherzustellen, daß nur HJ dissoziierte und der Signalanteil aus dem Hintergrundgas in der Vakuumkammer (z. B. Kohlenwasserstoffspuren) vernachlässigbar war. Die Feineinstellung des Scanbereiches um 121.6 nm erfolgte über die direkte Beobachtung von Einzelbildern (über je 10 Laserschuß). Bei einem zu kleinen Scanintervall waren die Bilder unter einem Polarisationswinkel von 0° oder 90° parallel zur Dissoziationslaserstrahlachse asymmetrisch. Die Zeitscheibenaufnahmen erfolgten mit folgenden Parametern :

- 266 nm UV - Laserenergie $< 0,4$ mJ (\varnothing 0.5 mm FWHM)
- 121 nm VUV- Laserenergie $< 10^{11}$ Photonen je Puls (\varnothing 0.7 mm FWHM)

Bei der Bildaufnahme wurde die Gasfüllung in der Differenzfrequenz-Mischzelle [2] von ca. 450 mbar auf ca. 10-50 mbar zur Reduzierung der VUV-Laserleistung abgepumpt. Die absolute VUV-Laserleistung konnte bei diesen Intensitäten nicht mehr bestimmt werden. Des weiteren wurde der 212.5 nm Laser durch Blockieren des Pumpstrahls (ca. 90 %) von dem 424 nm Farbstofflaser (s. Abb. 6.8) stark abgeschwächt. Der VUV-Scan erfolgte ohne Phasen Anpassung, um über den vollständigen Scanbereich von ca. 300 GHz eine konstante VUV-Laser-Leistung zu erhalten.

Die Zeitscheibenaufnahmen wurden mit einer Bildverstärkeröffnungspulsdauer von 20 ns durchgeführt (bei dieser Pulsdauer lag die tatsächliche Öffnungszeit des Bildverstärkers bei nur ca. 13 ns (s. Kapitel 11.3). Die Verzögerungszeit des Bildverstärkeröffnungspulses relativ zum Nachweislaserszeitpunkt wurde zwischen den einzelnen Zeitscheibenaufnahmen um jeweils 20 ns verschoben.

Die Düse wurde mit einem 10- bis 12-prozentigen HJ-Argon-Gemisch bei einem totalen Druck von ca. 1 bar betrieben. Bei einer Düsenöffnungszeit von 150 μ s ergaben sich 350 mm hinter der Düse Pulse mit einer Halbwertsbreite von 100 bis 200 μ s.

8.3 Bildaufbereitung

Die mit dem Slow-Scan-Kamerasystem [Anhang D] aufgenommen Bilder mußten in einer geeigneten Form aufbereitet werden, um mit den simulierten Bildern direkt verglichen werden zu können.

Die Zeitscheiben wurden ursprünglich jeweils in eine 286×384 Pixel große Matrix des CCD-Chips abgespeichert. Eine Fläche von mindestens 286×98 Pixeln (25 %) war somit selbst bei optimaler Abbildung für den direkten Bildvergleich unbedeutend.

Vor dem Bildvergleich mußte zuerst der Abbildungsmaßstab auf die Bildmatrix ermittelt werden. Im Experiment wurde dieser aus dem bekannten Durchmesser des gut sichtbaren Szintillatorrandes von 40 mm Durchmesser ermittelt. Der Szintillatordurchmesser wurde über eine Länge von 359 Pixeln abgebildet. Somit ergab sich für jedes Bildpixel eine Feldgröße von ca. $0.11 \times 0.11 \text{ mm}^2$. Die simulierten Bilder wurden analog zu den Meß-bildern in einer jeweils 286×286 Pixel großen Matrix abgespeichert.

Die Simulation wurde mit der im Experiment benutzten Abzugsspannung $U_1 = 60$ Volt durchgeführt, wobei sich für die Zeitscheiben am Ort der MCP rechnerisch ein maximaler Durchmesser von ca. 30 mm ergab (s. Abb. 7.3c). Zwischen den Zeitscheibendurchmessern der einzeln gemessenen und simulierten Bilder ergab sich eine gute Übereinstimmung, wenn die gemessenen Bilder mit dem ermittelten Abbildungsmaßstab skaliert wurden.

Um die gemessenen Bilder mit den simulierten Bildern vergleichen zu können, mußten sich die Bild- und Simulationsmatrizen auf einen einheitlichen Koordinatenursprung beziehen. Dieser war bei den gemessenen Bildern über den geometrischen Mittelpunkt der runden Zeitscheiben gegeben. In der Praxis wurde der Mittelpunkt bei einer möglichst symmetrischen Zeitscheibe ermittelt und anschließend in ein 286×286 Pixel großes Feld mit den Mittelpunktskoordinaten (143,143) zentriert. Die übrigen Zeitscheiben wurden dann um dieselben x- und y-Koordinaten verschoben. Ein abschließender Vergleich stellte sicher, ob die Kameraposition bei allen Zeitscheibenaufnahmen unverändert war (nur bei den Zeitscheiben mit gut sichtbarem Szintillatorrand konnte dies unmittelbar kontrolliert werden - dies war in fast allen Bildern der Fall).

Infolge der Molekularstrahlgeschwindigkeit von ca. 500 m/sek kam es zwischen der "frühesten" und "spätesten" Zeitscheibe in der Detektorbildebene zu einer räumlichen Verschiebung senkrecht zur Detektorachse. Bei der in Experiment vorliegenden Flugzeitdynamik von 210 ns betrug die relative Verschiebung nur ca. 0.1 mm (ca. eine Pixellänge), so daß die Zeitscheiben nahezu unverzerrt abgebildet wurden. Insgesamt wurde der ganze Zeitscheibensatz infolge der Molekularstrahlgeschwindigkeit um ca. 0.35 mm relativ zur Detektorachse verschoben.

Anschließend wurde eindeutiges Störsignal und statistisch verteiltes Untergrundsignal in geeigneter Weise vom Nutzsignal getrennt, um das Konvergenzverhalten bei der anschließenden Auswertung über eine Fehlerquadrat-Minimierung mit einem in geeigneter Weise simulierten Bildersatz nach Möglichkeit nicht zu verfälschen.

Die Wirkungsweise der hier angewandten Störsignaleliminierung wird im folgenden beispielhaft an drei Zeitscheiben auf den Seiten 59 u. 60 demonstriert.

In Bild 1 ist das Ionensignal über 10 Laserschüsse für eine feste Wellenlänge summiert worden. Infolge der Dopplerverschiebung wurden selektiv nur Ionen, deren Doppler-frequenz innerhalb der Laserbandbreite von ca. 100 GHz fiel, für deren v_x -Geschwindigkeitskomponente also $|v_0(1 - v_x/c) - v_0| < 50 \text{ GHz}$ erfüllt war, nachgewiesen ($v_0 = 121.6 \text{ nm Lyman-}\alpha$).

Aus dem eingezeichneten Profil zu Bild 1 (Profil 1) ist die resultierende Auflösung für die Abbildung eines Ions zu entnehmen, dessen Signal vollständig innerhalb des markierten Profils liegt. Die Profilform, die von einem einzelnen Ion resultiert, ließ sich mit einer 2dimensionalen gaußförmigen Pixelverteilung bei einer Halbwertsbreite von 0.8 mm gut wiedergeben (s. Profil 1).

In den Bildern 2 u. 3 wurde das Signal über jeweils 3500 Laserschüsse summiert, wobei die VUV- Wellenlänge über ein Frequenzintervall von ca. 400 GHz variiert wurde.

Die Originalbilder sind stark verrauscht. Aus den zugehörigen markierten Bildprofilen (Profil 2 u. 3) über jeweils 5×286 Pixel (für Bild 3 zusätzlich über 1×286 Pixel) sind jetzt heftige Signalschwankungen von Pixel zu Pixel sichtbar, die wesentlich größer als die zu erwartenden Pixelschwankungen sind, die sich aus einer Summation über die im Einzelspektrum beobachteten gaußförmig verteilten Einzelsignale ergeben würden.

Auf den Zeitscheibenbildern wurden meist in einigen tausend isolierten Pixeln, die über die Bildmatrix zufällig verteilt waren, Signaleinträge festgestellt, die mit dem Signaleintrag in den strukturierten Pixelbereichen vergleichbar oder sogar größer waren. Die Bilder waren auch nach Untergrundabzug und selektiver Signalelimination (ab einem geeignet gewählten oberen Grenzwert) meist sehr stark verrauscht (s. Bilder u. Profile 2-3).

Das Rauschen konnte durch Kühlen des Bildverstärkers mit Kühlwasser (auf ca. $15\text{ }^{\circ}\text{C}$) verringert werden. Durch eine gaußgewichtete Glättung der Bilder über 9 oder 25 Pixel wurden die strukturierten Bereiche durch den Rauschanteil stark verschleiert.

Als geeignete Lösung zur Reduzierung des Rauschanteils, ohne dabei den strukturierten Signalanteil merklich zu verändern, hat sich ein pixelselektives Glättungsverfahren herausgestellt, bei dem nur über diejenigen Pixel, die im Vergleich zu ihren unmittelbaren Nachbarpixeln deutlich mehr Signal enthielten, geglättet wurde. Bei der "Glättung" eines solchen Pixels wurde die Signalmenge des betroffenen Pixels durch den Mittelwert von den 8 unmittelbar benachbarten Pixeln ersetzt. Wobei jeweils nur über diejenigen Pixel selektiv geglättet wurde, die von mindestens fünf unmittelbaren Nachbarpixeln umgeben waren, deren jeweilige Pixelzählrate um mindestens 5 % kleiner als das zu glättende Pixel war.

Das oben vorgestellte Verfahren wurde mit unterschiedlichen "Schwellen-Kriterieren" für die selektive Glättung getestet, wobei mit den oben genannten Zahlen die besten Resultate erzielt wurden. Die gemessenen Bilder wurden jeweils mehrmals hintereinander selektiv geglättet, bis die Pixelwerte nach ca. 3 bis 10 Zyklen konvergierten.

Das Konvergenzverhalten wird am Beispiel des Einzelprofils (Profil 3a) demonstriert. Die Wirkung der selektiven Pixelglättung im Vergleich zu einer Gaußglättung ist aus den Profilen 2-3 zu erkennen. Signal welches nur in ein isoliertes Pixel gezählt wurde, wurde vollständig unterdrückt und heftige Pixel-zu-Pixel-Schwankungen wurden gedämpft, so daß die selektiv geglättete 2dimensionale Intensitätsverteilung der einhüllenden, der ursprünglichen 2dimensionalen Intensitätsverteilung entsprach. Das starke Rauschen konnte mit diesem Verfahren in allen Zeitscheiben wirkungsvoll reduziert werden.

Die folgenden Bilder sind jeweils auf ein Pixelmaximum von 4095 Zählern normiert und in einer einheitlichen Farbtabelle mit 64 Farben dargestellt worden, wobei der Farbwert der Hintergrundfarbe dem Wert maximaler Intensität oder einer Zählrate von Null entspricht.

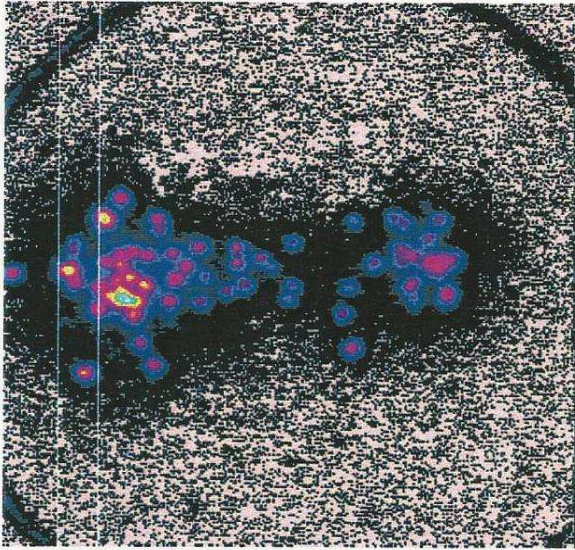
Farbtabelle : Werte 0-63



Die Wirkungsweise der selektiven Glättung für jedes Bild wird an einen jeweils markierten Bildprofil über 20×286 bzw. 5×286 Pixel demonstriert.

In Bild 1 ist die Orientierung der Bilder relativ zu dem Koordinatensystem K^{lab} eingezeichnet. Der Dissoziationslaserstrahl verläuft parallel zu der im Bild 1 eingezeichneten x-Achse.

Bild (1) 10 Laserschuss ohne Scan (original)



10 Laserschuss ohne Scan (selektiv geglättet)

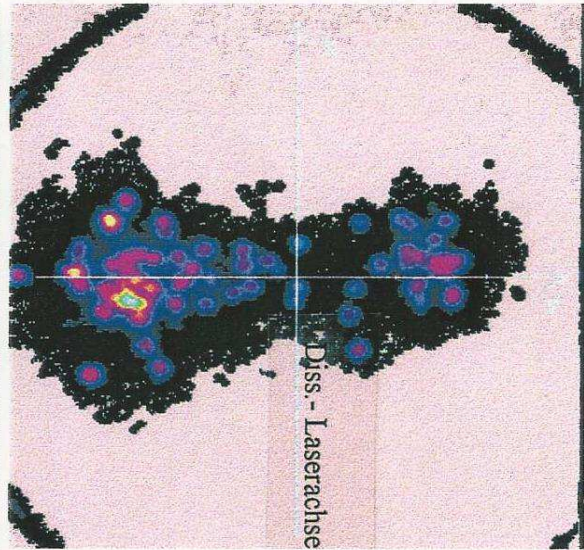
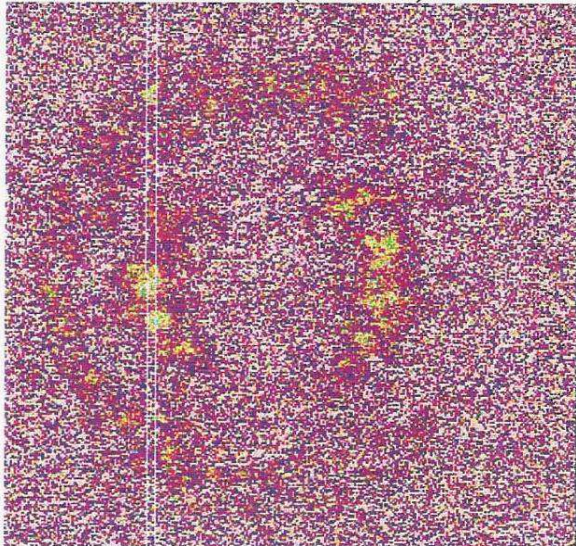
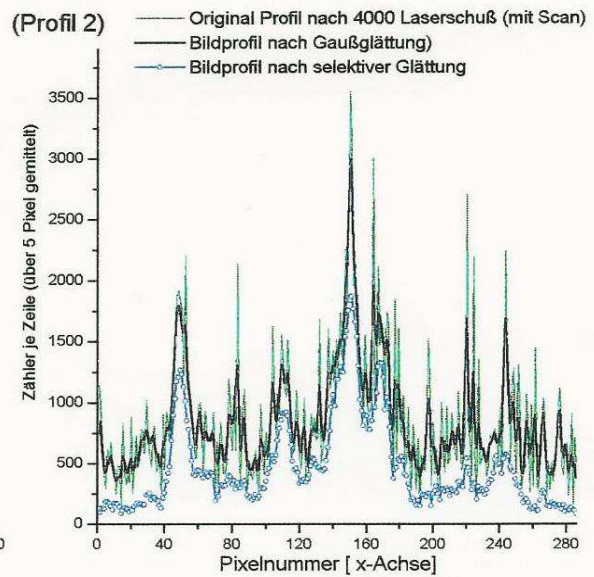
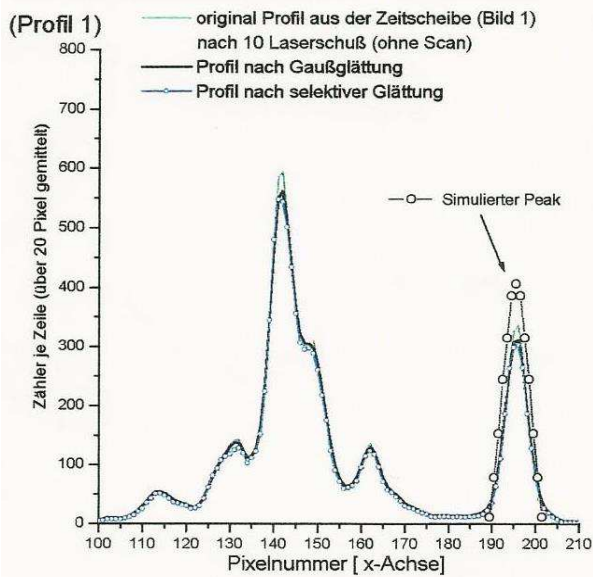
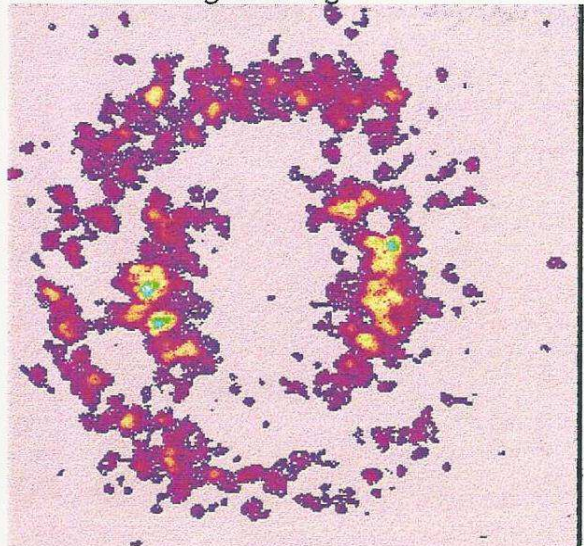


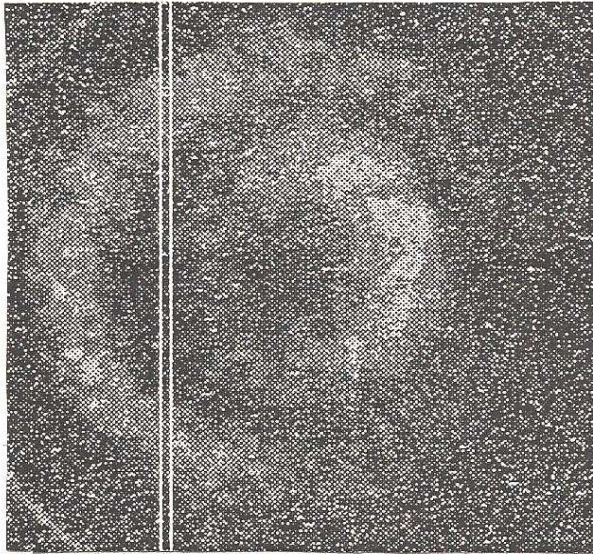
Bild (2) 3500 Laserschuss, (stark verrauscht) im Bereich von (300 -2600) Zähler



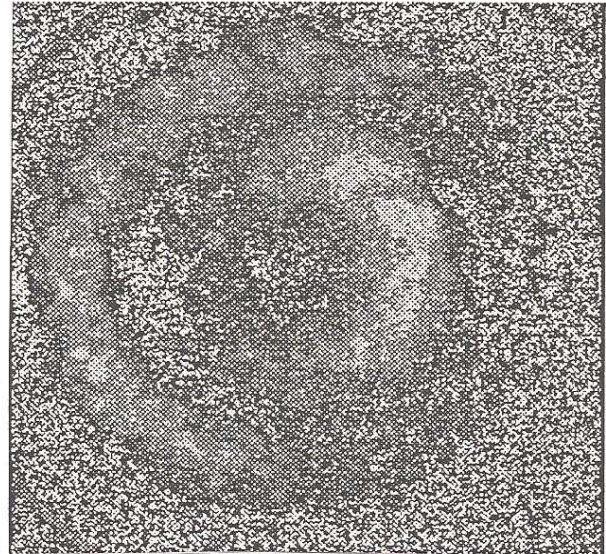
selektive Glättung des Originals und 300 Zähler Untergrundabzug



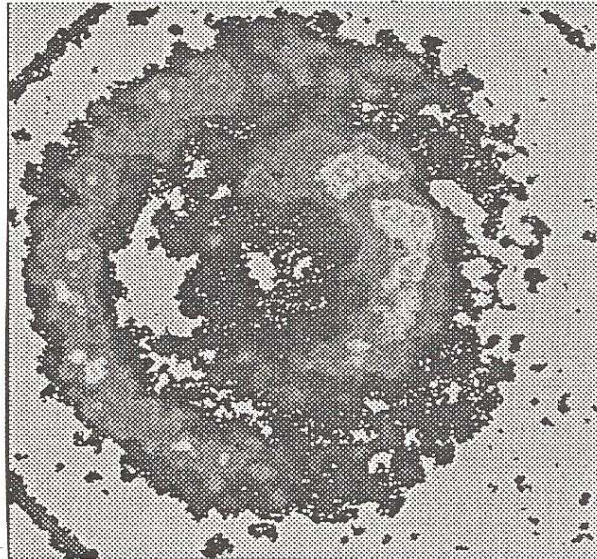
(Bild 3) Original Zeitscheibe 3, 45°



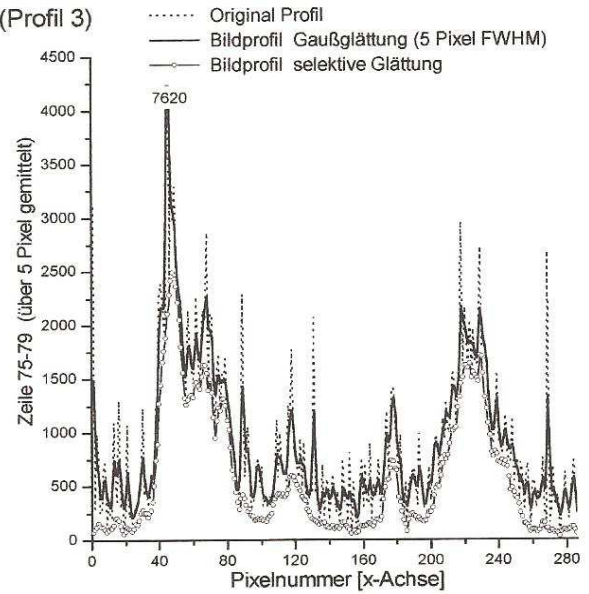
(Bild 3) (Bereich von 200 bis 5600 Zähler)



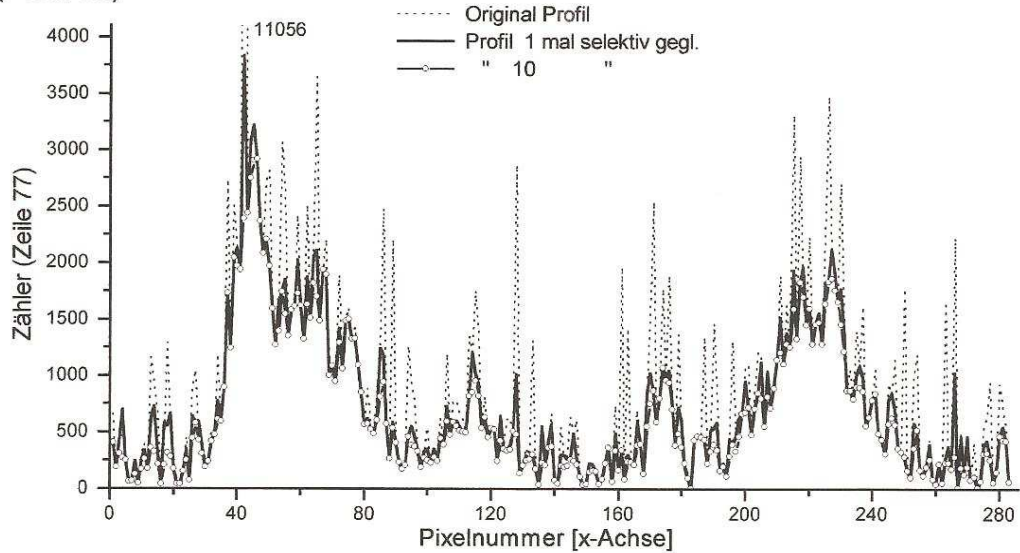
(Bild 3) selektive Glättung und 200 Zähler
Untergrundabzug



(Profil 3)



(Profil 3a)



Kapitel 9 Theorie zur Auswertung der Zeitscheiben

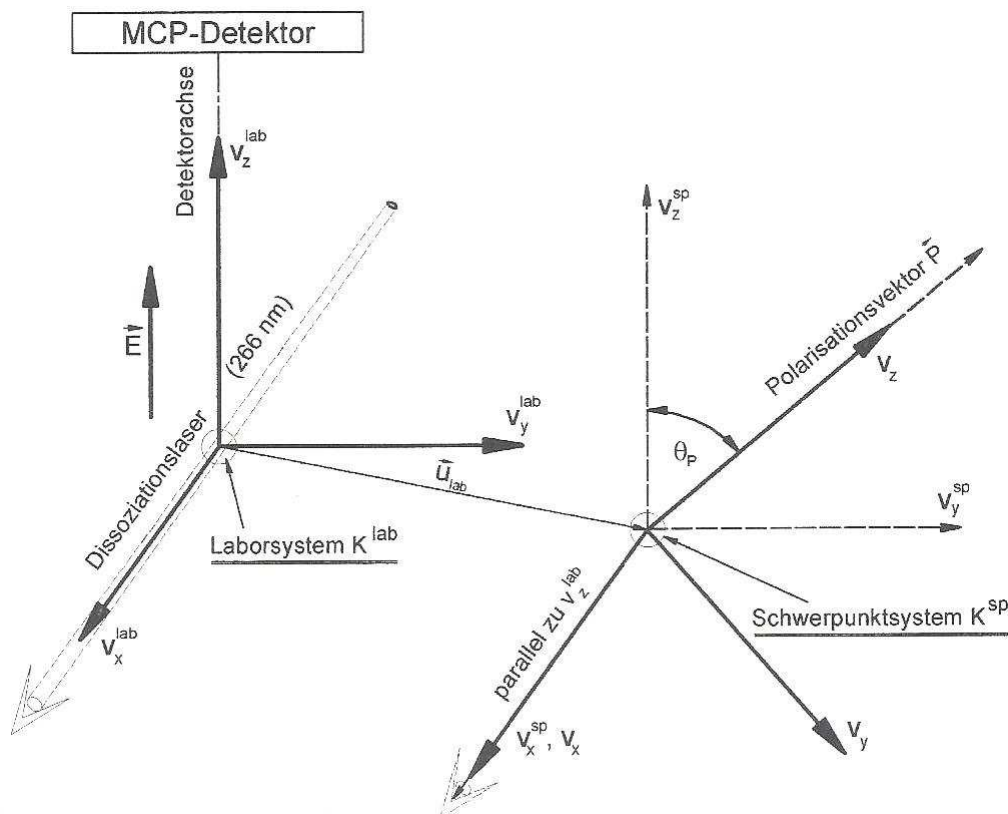
9.1 Differentielle Winkelverteilung und Koordinatentransformation

Im folgenden Kapitel wird aufgeführt, wie mit der im Rahmen der Diplomarbeit entwickelten Methode die 3dimensionale Geschwindigkeitsverteilung aus einem (beliebigen) Fragmentationsprozeß explizit auf die Form einer differentiellen Winkelverteilung (Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung) überführt werden kann.

Hierzu ist es sinnvoll, die Fragmentverteilung bezüglich einer ausgezeichneten Achse darzustellen. Bei der Fragmentation eines Moleküls durch Photodissoziation mit polarisiertem Laserlicht, wie im durchgeführten Experiment, ist der Polarisationsvektor \vec{P} des Dissoziationslasers eine solche ausgezeichnete Achse, da die individuelle Wechselwirkung der Moleküle nur von deren relativen Orientierung zu \vec{P} abhängt.

Um die molekulspezifische Geschwindigkeitsverteilung darzustellen, wird hierzu die Geschwindigkeitsverteilung im Schwerpunktsystem des Moleküls in geeigneten Koordinaten (hier Kugelkoordinaten) dargestellt. In dem durchgeführten Experiment wurden die Moleküle in einem Überschallmolekularstrahl bei einer mittleren Molekularstrahlgeschwindigkeit \vec{u}_{lab} , die in diesem Fall mit der Schwerpunktschwindigkeit des Moleküls äquivalent war, dissoziiert.

Abb. 9.1 Übersicht über die benutzten Bezugssysteme



Zur genauen Beschreibung werden zwei kartesische Koordinatensysteme eingeführt. Das erste Koordinatensystem ist mit dem Labor fest verbunden K^{lab} (Laborsystem) wobei dessen

v_x -Achse mit der Dissoziationslaserachse und dessen v_z -Achse mit der Detektorachse des b-FMS zusammenfällt. Der Auftreffpunkt (x,y) der Ionen in der Detektorbenen wird durch zwei Koordinatenachsen, die parallel zu der v_x - und v_y -Achse in \mathbf{K}^{lab} verlaufen, beschrieben. Das zweite Koordinatensystem \mathbf{K}^{sp} bewegt sich relativ zu \mathbf{K}^{lab} mit der Schwerpunktschwindigkeit \vec{u}_{lab} , wobei dessen v_x -Achse parallel zur Dissoziationslaserstrahlachse ausgerichtet ist. Die v_z -Achse von \mathbf{K}^{sp} verläuft parallel zu dem Polarisationsvektor \vec{P} . Die Orientierung des Polarisationsvektors \vec{P} wird durch den Polarisationswinkel Θ_p , der durch den eingeschlossenen Winkel zwischen der Detektorachse und dem Polarisationsvektor \vec{P} definiert ist, festgelegt.

Die gesuchte differentielle Winkelverteilung $I(\theta, \varphi, v)$ für den Fragmentationsprozeß ergibt sich prinzipiell aus der Bestimmung der jeweiligen Anzahl N der Teilchen, die mit dem mittleren Geschwindigkeitsbetrag v innerhalb eines Geschwindigkeitsintervalls dv unter dem mittleren Raumwinkel θ, φ in das zugehörige Raumwinkelement mit der Größe $v^2 \sin(\theta) d\theta d\varphi dv$ gestreut worden sind. Wenn jedem Bildpixel (x, y) mit Z Zählern aus der Zeitscheibe $N(t)$ in eindeutiger Weise ein Koordinatenvektor (θ, φ, v) über eine geeignete Parametrisierung der Form $\theta(x,y,t), \varphi(x,y,t), v(x,y,t)$ zugeordnet werden kann, folgt aus:

$Z(\theta, \varphi, v)$: Signalmenge die durch Ionen mit den zugeordneten Koordinaten (θ, φ, v) erzeugt wurde

dV : Größe des Volumenelementes dV ($dV = v^2 \sin(\theta) d\theta d\varphi dv$) in das die Teilchen, infolge der Unschärfe dv des Geschwindigkeitsbetrages v und den Unschärfen der Winkel $d\theta$ und $d\varphi$, die aus der Pixelgröße $dx dy$ und der Zeitscheibendicke dt resultieren (sie sind im Allgemeinen von dem "Ort" (x,y,t) abhängig) gezählt wurden

N_{ges} : Totale Signalmenge

prinzipiell die gesuchte differentielle Winkelverteilung (Wahrscheinlichkeitsdichte-verteilung)

$$g(\theta, \varphi, v) = \frac{Z(\theta, \varphi, v)}{N_{ges} v^2 \sin(\theta) d\theta d\varphi dv} \left[\frac{\text{Teilchen}}{\text{Steradian} \cdot \left(\frac{m}{sek}\right)^3} \right]$$

Die Koordinatentransformation von den im Labor gemessenen Koordinaten $\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{t}$ (unter Einbeziehung der mittleren Molekularstrahlgeschwindigkeit $(u_x^{lab}, u_y^{lab}, 0)$) in die Polarkoordinaten θ, φ und v in \mathbf{K}^{sp} kann aus den folgenden mit den Operatoren A, B, und C gekennzeichneten Transformationen zusammengesetzt werden:

1. Berechnung der jeweiligen Fragmentgeschwindigkeit relativ zu dem Schwerpunktsystem \mathbf{K}^{sp} aus der Flugzeit \mathbf{t} und dem Auftreffpunkt (x,y) in der Bildebenen $A[(x, y, t, u_x^{lab}, u_y^{lab}, 0)] \Rightarrow (v_x^{sp}, v_y^{sp}, v_z^{sp})$
2. Rotation des Koordinatensystems \mathbf{K}^{sp} um dessen x -Achse mit dem Polarisationswinkel θ_p $B[(v_x^{sp}, v_y^{sp}, v_z^{sp})] \Rightarrow (v_x, v_y, v_z)$

3. Transformation in Polarkoordinaten (C) $\mathbf{C} [(v_x, v_y, v_z)] \Rightarrow (\theta, \varphi, v)$

Mit der Transformation $T = \mathbf{CBA}$ werden die Koordianten θ, φ, v über x, y, t parametrisiert.

$$(\theta, \varphi, v) = \mathbf{CBA} [(x, y, t)] \quad (9.1a)$$

Die Umkehrtransformation $T^{-1} = \mathbf{A}^{-1}\mathbf{B}^{-1}\mathbf{C}^{-1}$ parametrisiert die Koordinaten x, y, t über θ, φ, v

$$(x, y, t) = \mathbf{A}^{-1}\mathbf{B}^{-1}\mathbf{C}^{-1} [(\theta, \varphi, v)] \quad (9.1b)$$

Transformation 1: Der Operator A ist in (5.3a) definiert worden

Transformation 2: Die Rotation des Koordinatensystems K^{SP} um dessen X-Achse mit dem Polarisationswinkel Θ_P kann mit der linearen Transformation

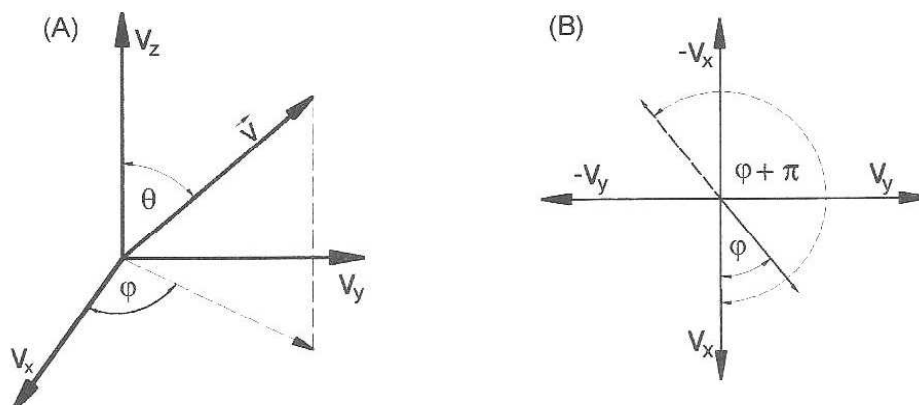
$$\begin{pmatrix} v_x \\ v_y \\ v_z \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos(\Theta_P) & \sin(\Theta_P) \\ 0 & -\sin(\Theta_P) & \cos(\Theta_P) \end{bmatrix} \cdot \begin{pmatrix} v_x^{SP} \\ v_y^{SP} \\ v_z^{SP} \end{pmatrix} \quad (9.2)$$

beschrieben werden. Diese Koordinatentransformation wird im folgenden mit dem Operator \mathbf{B} abgekürzt :

$$(v_x, v_y, v_z) == \mathbf{B} [(v_x^{SP}, v_y^{SP}, v_z^{SP})] \quad (9.3a)$$

Transformation 3: Für die Darstellung der differentiellen Winkelverteilung in Kugelkoordinaten müssen die Schwerpunkts-Geschwindigkeitskomponenten (v_x, v_y, v_z) nur noch in Kugelkoordinaten θ, φ , und v bezüglich des Systems K^{SP} parametrisiert werden. Die Winkel θ, φ , unter dem die zufällig orientierten Moleküle mit den Gschwindigkeitsbetrag v relativ zu K^{SP} dissoziieren, ergeben sich aus der in Abb. 9.2 ersichtlichen Transformation.

Abb. 9.2 Transformation in Kugelkoordinaten



$$v = \sqrt{(v_x^2 + v_y^2 + v_z^2)} \quad (9.4)$$

$$\theta = \arccos\left(\frac{v_z}{v}\right) \quad (9.5)$$

$$\varphi = \arccos\left(\frac{v_x}{\sqrt{v_x^2 + v_y^2}}\right) \quad (\text{für } v_y \geq 0)$$

$$\varphi = \arccos\left(\frac{-v_x}{\sqrt{v_x^2 + v_y^2}}\right) + \pi \quad (\text{für } v_y < 0) \quad (9.6)$$

Die Koordinaten Transformationen 9.4 - 9.6 werden mit dem Operator \mathbf{C} zu

$$(\theta, \varphi, v) = \mathbf{C}[(v_x, v_y, v_z)] \quad (9.7a)$$

und die Rücktransformationen

$$\begin{aligned} v_x &= v \cos(\theta) \cos(\varphi) \\ v_y &= v \cos(\theta) \sin(\varphi) \\ v_z &= v \cos(\theta) \end{aligned}$$

mit dem Operator \mathbf{C}^{-1} zu

$$(v_x, v_y, v_z) = \mathbf{C}^{-1}[(\theta, \varphi, v)] \quad (9.7b)$$

zusammengefaßt.

9.2 Transformation der Wahrscheinlichkeitsdichten

Im Experiment wurden die Ionen je Zeitscheibe auf eine Matrix von 286×384 Pixeln abgebildet. Für jedes Pixel der Größe $\Delta x \Delta y$ aus der Zeitscheibe der Nummer $N(t)$ ist somit die Signalmenge $\mathbf{Z}(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{t})$, die innerhalb der Zeitscheibendicke Δt nach einer mittleren Flugzeit \mathbf{t} am Ort (\mathbf{x}, \mathbf{y}) des Pixels summiert wurde, bekannt.

Da jedoch bei dieser Methode die Zeitscheiben nacheinander aufgenommen wurden und sich die Signalintensität im allgemeinen während der Meßzeit geändert hatte, mußten die Signalintensitäten einer jeden Zeitscheibe im Anschluß geeignet normiert werden.

Hierzu wurde zunächst jede einzelne Zeitscheibe auf 1 normiert, indem jeder Pixelwert durch die Summe aller Pixel der zugehörigen Zeitscheibe dividiert wurde. Anschließend wurde jedes Pixel mit einem von der zugehörigen Zeitscheibe abhängigen experimentell bestimmten Gewichtungsfaktor (Wert 0 bis 1), der die Verteilung des totalen Signals auf die einzelnen Zeitscheiben charakterisiert (s. H^+ - Flugzeitspektren Kapitel 8.1) multipliziert. Die so erzeugten Zahlenwerte eines jeden Pixels in den einzelnen Zeitscheiben geben dann die experimentelle Wahrscheinlichkeit $p(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{t})$ an, mit der in dem "Volumenelement" der festen Größe $\Delta x \Delta y \Delta t$ am mittleren Pixelort (\mathbf{x}, \mathbf{y}) der Zeitscheibe $N(t)$, die zur mittleren Teilchenflugzeit \mathbf{t} gehört, ein Teilchen eintreffen kann. Die Wahrscheinlichkeiten $p(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{t})$ beziehen sich jeweils auf ein "Volumenelement" Größe $\Delta x \Delta y \Delta t$. Der Quotient aus $p(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{t})$

und dem Wert des konstanten ‘‘Volumenelementes‘‘ $d\mathbf{x}d\mathbf{y}d\mathbf{t}$ kann dann als eine experimentelle Wahrscheinlichkeitsdichte $\mathbf{W}(x,y,t)$ interpretiert werden, durch die die von den experimentellen Parametern abhängige Verteilung des Signals auf die einzelnen Zeitscheiben charakterisiert wird.

$$W(x,y,t) = \frac{Z(x,y,t)}{N_{ges} dxdydt} = \frac{p(x,y,t)}{dxdydt} \left[\frac{\text{Teilchen}}{m^2 \cdot sek} \right]. \quad (9.8)$$

Aus der Definition 9.8 folgt: $\int_{-X}^{+X} \int_{-Y}^{+Y} \int_{T_{min}}^{T_{max}} W(x,y,t) dxdydt = 1$

$$\text{und } Z(x,y,t) = N_{ges} \cdot W(x,y,t) dxdydt$$

Wenn insgesamt N_{ges} Teilen ionisiert wurden, kann Z als der Erwartungswert interpretiert werden, daß Z Zähler im Zeitintervall dt innerhalb der Zeitscheibe $N(t)$ in das Pixel (x,y) mit der Fläche $dxdy$ nach einer mittleren Flugzeit t summiert werden.

Die gesuchte molekülspezifische Geschwindigkeitsverteilung kann allgemein durch eine Wahrscheinlichkeitsdichteverteilung $\mathbf{g}(\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\varphi}, \mathbf{v})$ im Schwerpunktsystem K^{sp} des Moleküls beschrieben werden, die über die aus Abb. 9.1 ersichtlichen Kugelkoordinaten $\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\varphi}, \mathbf{v}$ parametrisiert wird.

Durch das b-FMS wird $\mathbf{g}(\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\varphi}, \mathbf{v})$ in die experimentelle Wahrscheinlichkeitsdichte-verteilung $W(x,y,t)$ transformiert, durch die dann die spezifische Verteilung des Ionensignals N_{ges} auf die einzelnen Zeitscheiben beschrieben wird.

Da bei der 4π -Abbildungung mit dem b-FMS die Teilchenzahl erhalten bleibt, muß zwischen den beiden Verteilungen folgende Integralgleichung erfüllt sein:

$$\int_{-X}^{+X} \int_{-Y}^{+Y} \int_{T_{min}}^{T_{max}} W(x,y,t) dxdydt = \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \int_0^v g(\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\varphi}, v) v^2 \sin(\boldsymbol{\theta}) d\boldsymbol{\theta} d\boldsymbol{\varphi} dv = 1 \quad (9.9)$$

Die Transformation zwischen der experimentell bekannten Wahrscheinlichkeitsdichte $\mathbf{W}(x,y,t)$ und $\mathbf{g}(\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\varphi}, \mathbf{v})$ kann durch eine geeignete Jakobitransformation zwischen den Koordinatenvektoren (x,y,t) und $(\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\varphi}, \mathbf{v})$ und den korrespondierenden Volumenelementen $d\mathbf{x}d\mathbf{y}d\mathbf{t}$ bzw. $d\boldsymbol{\theta}d\boldsymbol{\varphi}d\mathbf{v}$ beschrieben werden, die implizit das Abbildungsverhalten des b-FMS berücksichtigt.

Werden die Koordinaten x, y, t in K^{lab} über die Polarkoordinaten $\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\varphi}$ und \mathbf{v} im Koordinatensystem K^{sp} gemäß $x(\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\varphi}, \mathbf{v}), y(\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\varphi}, \mathbf{v})$ und $t(\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\varphi}, \mathbf{v})$ parametrisiert, ergibt sich, unter Einbeziehung des Integralsatzes von Jakobi und 9.9

mit $|T^{-1}| := \text{Betrag der Jakobideterminante der Koordinatentransformation}$

$$T^{-1} [(\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\varphi}, \mathbf{v})] = (x, y, t) \text{ (s. 9.1b)}$$

folgender allgemeiner Zusammenhang zwischen W und g :

$$\int_0^\pi \int_0^{2\pi} \int_0^v W(x(\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\varphi}, v), y(\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\varphi}, v), t(\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\varphi}, v)) \cdot |T^{-1}| \cdot d\boldsymbol{\theta} d\boldsymbol{\varphi} dv = \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \int_0^v g(\boldsymbol{\theta}, \boldsymbol{\varphi}, v) v^2 \sin(\boldsymbol{\theta}) d\boldsymbol{\theta} d\boldsymbol{\varphi} dv \quad (9.10)$$

Der Wert der Determinante $|T^{-1}|$ ergibt sich aus:

$$|T^{-1}| = |A^{-1} \cdot B^{-1} \cdot C^{-1}| = |A^{-1}| \cdot |B^{-1}| \cdot |C^{-1}| \text{ und } |B^{-1}| = 1 \text{ zu}$$

$$|T^{-1}| = |A^{-1}| \cdot |B^{-1}| = \begin{vmatrix} \frac{\delta x}{\delta v_x} & \frac{\delta x}{\delta v_y} & \frac{\delta x}{\delta v_z} \\ \frac{\delta y}{\delta v_x} & \frac{\delta y}{\delta v_y} & \frac{\delta y}{\delta v_z} \\ \frac{\delta t}{\delta v_x} & \frac{\delta t}{\delta v_y} & \frac{\delta t}{\delta v_z} \end{vmatrix} \cdot \begin{vmatrix} \frac{\delta v_x}{\delta \theta} & \frac{\delta v_x}{\delta \varphi} & \frac{\delta v_x}{\delta v} \\ \frac{\delta v_y}{\delta \theta} & \frac{\delta v_y}{\delta \varphi} & \frac{\delta v_y}{\delta v} \\ \frac{\delta v_z}{\delta \theta} & \frac{\delta v_z}{\delta \varphi} & \frac{\delta v_z}{\delta v} \end{vmatrix}$$

und explizit unter Verwendung von $|A^{-1}| = 1/|A| = \frac{t^2}{\left| \frac{\partial V_z(t)}{\partial t} \right|}$ und $|C^{-1}| = v^2 \cdot \sin(\theta)$

$$\text{zu } |T^{-1}| = \frac{t^2}{\left| \frac{\partial V_z(t)}{\partial t} \right|} \cdot v^2 \cdot \sin(\theta)$$

Weil die Integrale auf beiden Seiten der Gleichung 9.10 für beliebige im gemeinsamen Definitionsbereich der jeweiligen Integranden liegenden Integrationsgrenzen übereinstimmen müssen, ergibt sich folgender Zusammenhang zwischen $g(\theta, \varphi, v)$ und $W(x, y, t)$:

$$g(\theta, \varphi, v) = W(x(\theta, \varphi, v), y(\theta, \varphi, v), t(\theta, \varphi, v)) \cdot \frac{t^2}{\left| \frac{\partial V_z(t)}{\partial t} \right|}$$

$g(v, \theta, \varphi)$ kann dann pixelweise mit den experimentell bekannten Daten

$Z(x, y, t)$: Zähler im Pixel (x, y) aus der Zeitscheibe $N(t)$ zur mittleren Flugzeit t

x, y : Pixelkoordinaten

$dxdy$: Pixelgröße

t : mittlere gemessene Flugzeit t (definiert Nummer der Zeitscheibe N)

dt : Dicke der Zeitscheibe (durch Öffnungsdauer der Kamera bestimmt)

Θ_p : Polarisationswinkel des Dissoziationslasers

u_y^{lab} : Molekularstrahlgeschwindigkeit parallel zur Molekularstrahlachse

$V_z(t)$: Umkehrfunktion der Flugzeitfunktion $T(v_z, t)$

in Verbindung mit der Koordinatentransformation $(\theta, \varphi, v) = \mathbf{CBA}[(x, y, t)]$ (9.1a)

über

$$g(\theta, \varphi, v) = \frac{Z(x, y, t)}{N_{ges} dxdy dt} \cdot \frac{t^2}{\left| \frac{\partial V_z(t)}{\partial t} \right|} \left[\frac{\text{Teilchen}}{\text{Steradian} \cdot \left(\frac{m}{\text{sek}} \right)^3} \right] \quad (9.11)$$

berechnet werden.

Die zu den Koordinaten x, y, t korrespondierenden Polarkoordinaten θ, φ, v der gesuchten differentiellen Winkelverteilung $g(\theta, \varphi, v)$ ergeben sich formal aus der Transformation (9.1a).

Explizit können sie über die folgenden mit 5.3 und 9.3 - 9.6 abgeleiteten Transformationen, die über den Polarisationswinkel Θ_p parametrisiert werden, berechnet werden :

$$v_y := \cos(\Theta_p) \cdot \left(\frac{x}{t} - u_x^{lab} \right) + \sin(\Theta_p) \cdot V_z(t) \quad (\text{siehe 9.3})$$

$$v(x, y, t) = \sqrt{\left(\frac{x}{t} - u_x^{lab} \right)^2 + \left(\frac{y}{t} - u_y^{lab} \right)^2 + (V_z(t))^2} \quad (9.12a)$$

$$\theta(x, y, t) = \arccos \left(\frac{-\sin(\Theta_p) \cdot \left(\frac{y}{t} - u_y^{lab} \right) + \cos(\Theta_p) \cdot V_z(t)}{v} \right) \quad (9.12b)$$

$$\varphi(x, y, t) = \arccos \left(\frac{+\left(\frac{x}{t} - u_x^{lab} \right)}{\sqrt{\left(\frac{x}{t} - u_x^{lab} \right)^2 + (v_y)^2}} \right) \quad (\text{für } v_y \geq 0) \quad (9.12c)$$

$$\varphi(x, y, t) = \arccos \left(\frac{-\left(\frac{x}{t} - u_x^{lab} \right)}{\sqrt{\left(\frac{x}{t} - u_x^{lab} \right)^2 + (v_y)^2}} \right) + \pi \quad (\text{für } v_y < 0)$$

Formel (9.11) verknüpft die Meßdaten mit der gesuchten 3dimensionalen differentiellen Geschwindigkeits- und Winkelverteilung aus den Zeitscheibendaten.

9.3 Unterschiede in der Darstellung der experimentellen und differentiellen Wahrscheinlichkeitsdichte.

Nur bei im Molekularstrahl ausgerichteten asymmetrischen Molekülen resultiert im allgemeinen eine 2dimensionale Winkelverteilung $I(\theta, \varphi)$ der Fragmente relativ zum Polarisationsvektor des Dissoziationslasers. Bei einer isotropen Verteilung der Molekülorientierungen im Strahl resultiert unabhängig von der Symmetrie der Moleküle immer eine zu dem Polarisationsvektor rotationssymmetrische Verteilung.

Für lineare Moleküle, wie dem untersuchten HJ-Molekül, ist die resultierende Winkelverteilung, unabhängig von der Verteilung der Molekülorientierungen, rotations-symmetrisch zur Polarisationsachse des Dissoziationslasers.

Die bei der HJ-Photodissoziation vorkommenden diskreten Geschwindigkeitsgruppen v_1 und v_2 , werden hier mit den Indizes 1 (für schnell) und 2 (für langsam) gekennzeichnet. Die differentielle Winkelverteilung für die jeweilige diskrete Geschwindigkeitsgruppe ist durch :

$$I_1(\theta) = 3/8 \cdot \pi \sin^2 \theta \quad (\text{schnell})$$

(Siehe Anhang A Theorie zur HJ-Dissoziation)

$$I_2(\theta) = 3/4 \cdot \pi \cos^2 \theta \quad (\text{langsam})$$

gegeben.

Bei der Photodissoziation treten sie simultan in einem bestimmten Verzweigungsverhältnis auf. Im folgenden wird das Verzweigungsverhältnis durch den Gewichtungsfaktor f charakterisiert. Bei der HJ-Photodissoziation mit einer Wellenlänge von 266 nm beträgt der Gewichtungsfaktor f für die schnellen Teilchen **0.64** [23] (der Gewichtungsfaktor für die langsamen Teilchen ist über "1-f" gegeben). Somit ergibt sich folgender Ausdruck für die resultierende theoretische Winkelverteilung $I_{12}(\theta)$:

$$I_{12}(\theta) = f \cdot I_1(\theta) + (1 - f) \cdot I_2(\theta) \quad (9.13)$$

Prinzipiell sollte die experimentell gewonnene 3dimensionale differentielle Geschwindigkeitsverteilung $g(\theta, \varphi, v)$ (9.11) nach Integration über φ und dem zur jeweiligen Geschwindigkeitsgruppe gehörenden Geschwindigkeitsintervall $[v+dv, v-dv]$ mit $I_1(\theta)$ bzw. $I_2(\theta)$ übereinstimmen. Die Verteilung I_{12} ist gemäß :

$$\int_0^{2\pi} \int_0^\pi I_{12}(\theta) \sin(\theta) d\theta d\varphi = 1 \quad (\text{mit } I(\theta, \varphi, v) \text{ aus 9.14})$$

auf 1 normiert. I_{12} geht formal aus der Integration von $g(\theta, \varphi, v)$ über v und φ hervor.

Es gilt :

$$I_{12}(\theta) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^{v_\infty} g(\theta, \varphi, v) \cdot v^2 d\varphi dv$$

9.4 Berechnung der idealen Zeitscheiben

Um die zugehörigen Bilder berechnen (simulieren) zu können, die bei der Abbildung einer bekannten durch die differentielle Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion $I_{12}(\theta)$ beschriebenen Fragmentverteilung entstehen würden, muß $I_{12}(\theta)$ in eine zu der experimentellen Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion $W(x,y,t)$ (siehe 9.8) analogen Funktion $W_{sim}(x,y,t)$ transformiert werden. Die Besetzungswahrscheinlichkeit $p_{sim}(x,y,t)$ für ein Pixel(x,y) der Größe $dx dy$ in der Zeitscheibe $N(t)$ mit der Dicke dt ist dann allgemein über

$$p_{sim}(x, y, t) = W_{sim}(x, y, t) dx dy dt$$

gegeben.

Da die beiden Geschwindigkeitsgruppen der real vorkommenden Winkelverteilung experimentell bedingt immer über ein endliches Geschwindigkeitsintervall verschmiert sind, wurden für die Simulation der 3dimensionalen Geschwindigkeitsverteilung die mit $I_1(\theta)$ bzw $I_2(\theta)$ gegebenen diskreten Winkelverteilungen (s. Kapitel 9.3) durch eine sich über ein endliches Geschwindigkeitsintervall erstreckende Geschwindigkeitsverteilung $I(\theta,v)$ ersetzt, um so die jeweilige Fragmentverteilung aus dem zugehörigen Dissoziationskanal, die sich jeweils über

eine Schale mit einem gaußförmigen Geschwindigkeitsprofil Δv endlicher (Dicke) erstreckt, beschreiben zu können.

- Mit
- C : Normierungskonstante
 - FWHM : Halbwertsbreite der Geschwindigkeitsverteilung
 - σ_v : Standardabweichung $\sigma_v = \frac{FWHM}{2 \cdot \sqrt{2 \ln(2)}}$
 - \bar{v} : Erwartungswert für die Fragmentgeschwindigkeit v
 - \bar{v}_1 \bar{v}_2 : Erwartungswert für v_1 bzw. v_2

ergibt sich dann allgemein folgende über β und \bar{v} parametrisierte Funktion $I_{\beta \bar{v}}(\theta, v)$ zur Beschreibung der Winkelverteilung einer Geschwindigkeitsgruppe:

$$I_{\beta \bar{v}}(\theta, v) = \frac{C}{4 \cdot \pi} \left(1 + \beta * P_2(\cos(\theta)) \right) \cdot \exp \left[-0.5 \cdot \left(\frac{v - \bar{v}}{\sigma_v} \right)^2 \right] \left[\frac{\text{Teilchen}}{\text{Steradian} \cdot \left(\frac{m}{\text{sek}} \right)^3} \right] \quad (9.14)$$

Die resultierende differentielle Geschwindigkeitsverteilung $I_{f \beta_1 \beta_2 \bar{v}_1 \bar{v}_2}(\theta, v)$ für beide Geschwindigkeitsgruppen ergibt sich dann, in Analogie zu (9.13), mit (9.14) zu

$$I_{f \beta_1 \beta_2 \bar{v}_1 \bar{v}_2}(\theta, v) = f \cdot I_{\beta_1 \bar{v}_1}(\theta, v) + (1 - f) \cdot I_{\beta_2 \bar{v}_2}(\theta, v) \quad (9.15)$$

Die Normierungskonstante C in (9.14) ergibt sich jeweils aus der Normierungsbedingung:

$$\int_0^\pi \int_0^{2\pi} \int_0^v I_{\beta \bar{v}}(\theta, v) v^2 \sin(\theta) d\theta d\varphi dv = 1 \quad \text{für } \bar{v} = \bar{v}_1 \text{ bzw. } \bar{v}_2$$

$$\text{zu } C_1 = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \cdot \sigma_v \cdot \bar{v}_1^2} \quad \text{bzw.} \quad C_2 = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \cdot \sigma_v \cdot \bar{v}_2^2} \quad (\text{C ist für alle } \beta \in [-1,2] \text{ gleich})$$

Das FMS transformiert die Verteilung $I_{f \beta_1 \beta_2 \bar{v}_1 \bar{v}_2}(\theta, v)$, in Abhängigkeit von den gewählten Beschleunigungsspannungen, in charakteristische zweidimensionale Signal-muster auf den einzelnen Zeitscheiben (siehe Kapitel 8). Die Signalmenge in jedem Pixel (x,y) ergibt sich aus der Integration der kontinuierlichen Verteilung $I_{f \beta_1 \beta_2 \bar{v}_1 \bar{v}_2}(\theta, v)$ über die Pixelfläche dx dy und die Zeitscheibendicke ΔT .

Um die Integration über die Zeitscheiben praktisch durchzuführen, muß $I_{f \beta_1 \beta_2 \bar{v}_1 \bar{v}_2}(\theta, v)$ über die Koordinaten x, y und t parametrisiert werden. In Analogie zu (9.10) kann die Transformation von $I_{f \beta_1 \beta_2 \bar{v}_1 \bar{v}_2}(\theta, v)$ durch das FMS mit einer entsprechenden Jakobitransformation beschrieben werden.

Mit den Funktionaldeterminanten $|A|$, $|B|$, $|C|$ der Transformationen A,B,C ergibt sich mit $|B| = 1$, wobei die Koordinaten θ, φ, v über x, y, t gemäß (9.1a) parametrisiert werden, folgende Beziehung zwischen der gesuchten Funktion $W_{\text{sim}}(x,y,t)$ und der vorgegeben Wahrscheinlichkeitsdichtefunktion $I_{f \beta_1 \beta_2 \bar{v}_1 \bar{v}_2}(\theta, v)$ unter Einführung der

$$\text{Abkürzung: } \tilde{I}(\theta, v) = I_{f \beta_1 \beta_2 \bar{v}_1 \bar{v}_2}(\theta, v) \cdot v^2 \cdot \sin(\theta)$$

$$\int_0^\pi \int_0^{2\pi} \int_0^{v_\infty} \tilde{I}(\theta, v) d\theta d\varphi dv = \int_{-X}^{+X} \int_{-Y}^{+Y} \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} \tilde{I}(\theta(x, y, t), v(x, y, t)) \cdot |C| \cdot |A| \cdot dx dy dt = \int_{-X}^{+X} \int_{-Y}^{+Y} \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} W_{sim}(x, y, t) dx dy dt$$

Da die aufgeführte Gleichung für beliebige den Definitionsbereich von W bzw. \tilde{I} einschließende Integrationsgrenzen gültig ist, folgt mit

$$\iiint \tilde{I}(\theta(x, y, t), v(x, y, t)) \cdot \begin{vmatrix} \frac{\partial \theta}{\partial v_x} & \frac{\partial \theta}{\partial v_y} & \frac{\partial \theta}{\partial v_z} \\ \frac{\partial \varphi}{\partial v_x} & \frac{\partial \varphi}{\partial v_y} & \frac{\partial \varphi}{\partial v_z} \\ \frac{\partial v}{\partial v_x} & \frac{\partial v}{\partial v_y} & \frac{\partial v}{\partial v_z} \end{vmatrix} \cdot \begin{vmatrix} \frac{\delta v_x}{\delta x} & \frac{\delta v_x}{\delta y} & \frac{\delta v_x}{\delta z} \\ \frac{\delta v_y}{\delta x} & \frac{\delta v_y}{\delta y} & \frac{\delta v_y}{\delta z} \\ \frac{\delta v_z}{\delta x} & \frac{\delta v_z}{\delta y} & \frac{\delta v_z}{\delta z} \end{vmatrix} \cdot dx dy dt = \iiint W_{sim}(x, y, t) dx dy dt,$$

$$|C| = \frac{1}{|C^{-1}|} = \frac{1}{v^2 \cdot \sin(\theta)}, \quad |A| = \frac{1}{t^2} \cdot \frac{\delta V_z(t)}{\delta t}, \quad \tilde{I}(\theta, v) = I_{f, \beta_1, \beta_2, \bar{v}_1, \bar{v}_2}(\theta, v) \cdot v^2 \cdot \sin(\theta),$$

der Transformation $\theta(x, y, t)$ (9.12b), die über die Polarisation des Dissoziationslasers Θ_P parametrisiert wird, der Transformationen (9.12a) und (9.15) die gesuchte Wahrscheinlichkeitsdichte $W_{sim}(x, y, t)$. Sie wird über den Parametersatz $(f, \beta_1, \beta_2, \bar{v}_1, \bar{v}_2)$ parametrisiert.

$$W_{sim}(x, y, t) = f \cdot \frac{1 + \beta_1 P_2(\cos(\theta(x, y, t)))}{2(2\pi)^{\frac{3}{2}} \sigma_v \cdot \bar{v}_1^2} \cdot \exp\left[-0.5 \cdot \left(\frac{v(x, y, t) - \bar{v}_1}{\sigma_v}\right)^2\right] \cdot \frac{1}{t^2} \cdot \frac{\delta V_z(t)}{\delta t} +$$

$$(1-f) \cdot \frac{1 + \beta_2 P_2(\cos(\theta(x, y, t)))}{2(2\pi)^{\frac{3}{2}} \sigma_v \cdot \bar{v}_2^2} \cdot \exp\left[-0.5 \cdot \left(\frac{v(x, y, t) - \bar{v}_2}{\sigma_v}\right)^2\right] \cdot \frac{1}{t^2} \cdot \frac{\delta V_z(t)}{\delta t} \quad (9.16)$$

Die Wahrscheinlichkeit $p_{sim}(x, y, t)$, mit der ein Teilchen in das Zeitintervall Δt , das gegenüber dem totalen Flugzeitintervall klein ist, in ein Pixel der Größe $\Delta x \Delta y$ am Ort (x, y) nach der mittleren Ionenflugzeit t eintrifft, ergibt sich dann exakt mit (9.16) zu

$$p_{sim} = \int_{x-\Delta x/2}^{x+\Delta x/2} \int_{y-\Delta y/2}^{y+\Delta y/2} \int_{t-\Delta t/2}^{t+\Delta t/2} W_{sim}(x, y, t) dx dy dt \quad (9.17a)$$

und (in guter Näherung) über

$$p_{sim}(x, y, t) = W_{sim}(x, y, t) \cdot \Delta x \Delta y \Delta t \quad (9.17b)$$

Wenn die ‘‘Dicke‘‘ Δt einer Zeitscheibe (wie im Experiment) bereits mehrere Prozent des totalen Flugzeitintervalls ausfüllt, kann die resultierende Wahrscheinlichkeit $p_{sim}(x, y, t)$, mit der die Ionen in das Pixel (x, y) der Größe $\Delta x \Delta y$ innerhalb der Zeitscheibe $N(t)$ ab der Flugzeit t gezählt werden, durch eine Summe über Z_{int} Unterzeitscheiben der Dicke $\frac{\Delta t}{Z_{int}}$

über

$$p_{sim}(x, y, t) = \sum_{k=0}^{Z_{int}} W_{sim}(x, y, t + k \cdot \frac{\Delta t}{Z_{int}}) \cdot \frac{\Delta x \Delta y \Delta t}{Z_{int}} \quad (9.18)$$

(näherungsweise) berechnet werden.

Hierbei muß Z_{int} , je nach der erforderlichen Genauigkeit, geeignet gewählt werden. Zur Simulation der im Experiment vorliegenden Zeitscheiben mit ca. 20 ns Dicke erwiesen sich je Zeitscheibe ca. 100 Unterzeitscheiben als ausreichend.

Falls sich die Wahrscheinlichkeitsdichte $W_{\text{sim}}(x,y,t)$ innerhalb des ausgedehnten Pixelelementes der Größe $\Delta x \Delta y$ merklich ändert, müssen die Pixel der Größe $\Delta x \Delta y$ in geeigneter Weise unterteilt werden.

Für die Berechnung von p_{sim} mit den experimentellen Parametern war eine weitere Unterteilung der Pixel nicht erforderlich. Z_{int} konnte so dimensioniert werden, daß der relative Summationsfehler über alle Wahrscheinlichkeiten $p_{\text{sim}}(x,y,t)$ kleiner $2 \cdot 10^{-6}$ war. Für die Auswertung der Bilder ist im Rahmen dieser Arbeit ein C-Programm geschrieben worden. Es wurde mit einem 32-bit-Compiler übersetzt.

Kapitel 10 Methode der Zeitscheibenauswertung

10.1 Normierung

Aus der Fehlerrechnung (Kapitel 7.1) ergibt sich, daß sich die differentielle Wahrscheinlichkeitsdichte $g(\theta, \varphi, v)$ selbst bei optimaler Auflösung, in der jedes Teilchen bei der Abbildung jeweils nur Signal in einem Pixel induziert, auf relativ große Volumenelemente der Größe $v^2 \sin(\theta) d\theta d\varphi dv$ mit ($\Delta v \leq 4000 \text{ m/sek}$, $\Delta \theta$ und $\Delta \varphi \leq 10^\circ$) bezieht. Um zu überprüfen, inwiefern die aufgenommenen Bilder mit der theoretischen Verteilung $I(\theta, v)$, (9.15) übereinstimmen wurden die gemessenen Zeitscheibenbilder pixelweise mit geeignet simulierten Zeitscheiben, die mit der Simulationsfunktion $p_{\text{sim}}(x,y,t)$ (9.19) berechnet wurden, über eine Fehlerquadratminimierung verglichen.

Im Experiment wurde das Signal eines Teilchens gaußförmig über eine Fläche von ca. 7×7 Pixeln (FWHM) verschmiert. Bei dem experimentellen Abbildungsmaßstab entspricht dies einer Halbwertsbreite von ca. 0.8 mm je Ion (s. Profil 1 Seite 59).

Für die simulierten Zeitscheiben wurde das experimentelle Abbildungsverhalten der Ionensignale auf die Zeitscheiben berücksichtigt, indem die simulierten Werte jedes Pixels auf der Bildmatrix über ein Feld von 13×13 Pixeln gaußförmig mit einer festen Halbwertsbreite von ca. 0.8 mm ($\cong 7$ Pixel) verschmiert wurden. Bei der Simulation der Zeitscheiben wurde jeweils von einem punktförmigen Startvolumen ausgegangen. Ein ausgedehntes Nachweisvolumen führt dazu, daß die Verteilung über mehrere Bildpixel verschmiert wird. Im Experiment wurde der größte Anteil der Ionen innerhalb eines zylindrischen Volumens von ca. 0.5 mm Durchmesser und 1 mm Länge dissoziiert. Da die hieraus resultierende Verschmierung jedoch durch die aus dem experimentellen Abbildungsfehler (s. oben) resultierende Pixelverschmierung nahezu überdeckt wurde, war es ausreichend die Bilder für

ein punktförmiges Startvolumen zu berechnen und anschließend über die Pixelhabwertsbreite zu verschmieren.

Da jedoch die Fragmentationsrate je Laserpuls über den Zeitraum, indem die Zeitscheiben nacheinander aufgenommen worden sind, nicht konstant war, mußten die Zeitscheibensätze vor dem Bildvergleich normiert werden. Hierzu boten sich zwei unterschiedliche Arten der Normierung an:

- A) Wenn das H^+ - Flugzeitspektrum bekannt ist (Kapitel 8.1), können die gemessenen Zeitscheiben (mit N_t numeriert) entsprechend dem Signalanteil $S(N_t)$ gewichtet werden, der in das von der jeweiligen Zeitscheibe N_t überdeckte Zeitintervall $[T, T + \Delta T]$ fällt. Die Gewichtung der simulierten Zeitscheiben resultiert aus der über den Parametersatz $(f, \beta_1, \beta_2, v_s, v_l)$ gewählten Simulationsfunktion $P_{sim}(x,y,t)$, wobei die totale Pixelsumme des simulierten Zeitscheibensatzes mit der des gewichteten Bildersatzes übereinstimmen muß.
- B) Bei unbekannter Flugzeitverteilung werden die gemessenen und simulierten Bilder jeweils einzeln auf den gleichen Wert normiert (Ähnlichkeitsvergleich).

Mit BZ : Anzahl der aufgenommenen Zeitscheiben

T_{min} : Flugzeit für die schnellsten Fragmente

$S(N_t)$: Der Signalanteil, in der das von der Zeitscheibe (mit der Nummer N_t) überdeckte Zeitintervall $[T, T + \Delta t]$ fällt (mit $T = T_{min} + N_t \Delta t$).

$Z(x, y, N_t)$: Die innerhalb der Zeitscheibe mit der Nummer N_t in den Pixel der Größe $\Delta x \Delta y$ am mittleren Ort (x, y) summierte Signalmenge

$p_{sim}(x, y, N_t)$: simulierte Besetzungswahrscheinlichkeit für das Pixel (x, y) in der Zeitscheibe N_t (s. 9.18)

$\hat{p}(x, y, N_t)$: gemessene Besetzungswahrscheinlichkeit für das Pixel (x, y) in der Zeitscheibe N_t

ergibt sich folgender Ausdruck für $\hat{p}(x, y, N_t)$:

$$\hat{p}(x, y, N_t) = \frac{S(N_t) \cdot Z(x, y, N_t)}{\sum_{x=-143}^{143} \sum_{y=-143}^{143} Z(x, y, N_t)} \quad (10.1)$$

mit : $\sum_{N_t=1}^{BZ} S(N_t) = 1$

Bei der Normierung nach Methode A ist $\hat{p}(x, y, N_t)$ zu der in Kapitel 9.2 definierten experimentellen Besetzungswahrscheinlichkeit $p(x,y,t)$ des jeweiligen Zeitscheibensatzes äquivalent.

Bei der Normierung nach **B** wird für alle gemessenen Zeitscheiben $S(N_t)$ gleich $1/BZ$ gesetzt, so daß sich die Besetzungswahrscheinlichkeiten $\hat{p}(x, y, N_t)$ und $p_{sim}(x, y, N_t)$ jeweils nur auf eine Zeitscheibe beziehen.

10.2 Bildvergleich

Als Maß für die Ähnlichkeit des simulierten Zeitscheibensatzes und der gemessenen Bilder ist die wie folgt definierte Fehlerquadratsumme σ^2

$$\sigma^2 = \sum_{x=-143}^{+143} \sum_{y=-143}^{+143} \sum_{N_t}^{BZ} [\hat{p}(x, y, N_t) - p_{sim}(x, y, N_t)]^2$$

eingeführt worden.

Über σ^2 werden jeweils sämtliche Pixel der gemessenen und simulierten Bilder simultan bewertet. Vor dem Bildvergleich wurde in den gemessenen Zeitscheiben eindeutiges Störsignal und statistisch verteiltes Untergrundsignal in geeigneter Weise von dem Nutzsignal getrennt (s. Bildaufbereitung Kapitel 8.3).

Da die zu den gemessenen Zeitscheibenaufnahmen gehörigen H^+ -Flugzeitspektren leider nur mit einer geringen Statistik aufgenommen wurden, mußte der Zeitscheibenvergleich ausschließlich nach Methode B erfolgen.

Die in Kapitel 8.1 vorgestellten H^+ -Flugzeitspektren (mit ausreichender Statistik) demonstrieren, daß eine Normierung nach Methode A prinzipiell möglich ist.

An durchgeführten Monte-Carlo-Simulationsrechnungen (für 5000-15000 Ionen), die mit $I_{12}(\theta)$ (s. 9.13) gewichtet wurden, zeigte sich jedoch, daß die in der Zeitscheibengewichtung zusätzlich enthaltene Information für das Konvergenzverhalten von σ^2 unwesentlich ist.

Dies kann mit einer Überbestimmtheit, der sich nur über einen 5dimensionalen Konfigurationsraum erstreckenden Simulationsfunktion p_{sim} (9.18) (mit $f, \beta_1, \beta_2, v_1, v_2$ parametrisiert) erklärt werden. Die 7 bis 11 unbestimmten Gewichtungsfaktoren für die gemessenen Zeitscheiben haben bei einer Anzahl von 81796 Pixel je Zeitscheibe keinen meßbaren Einfluß auf den Konvergenzwert des gesuchten 5dimensionalen Parametervektors, für den σ^2 minimal wird. Bei einer Normierung nach Methode A nimmt nur der Absolutwert des σ^2 -Minimums geringfügig zu.

Die im folgenden skizzierte Vorgehensweise führte bei der Fehlerquadratminimierung über die aufgenommenen Zeitscheiben zu einem schnellen und eindeutigen Konvergenzverhalten.

Der Parametervektor $(f, \beta_1, \beta_2, v_1, v_2)$ kann zunächst mit beliebigen Startwerten vorbesetzt werden. Da das Signal aus beiden Geschwindigkeitsgruppen in allen Zeitscheiben (nahezu) in separate Pixel gezählt wurde (s. Zeitscheibenbilder Kapitel 12.1), können die Fragmentgeschwindigkeiten v_1, v_2 in erster Näherung über einen Vergleich der Ringdurchmesser in den Bildern bestimmt werden (Genauigkeit ca. ± 200 m/sek).

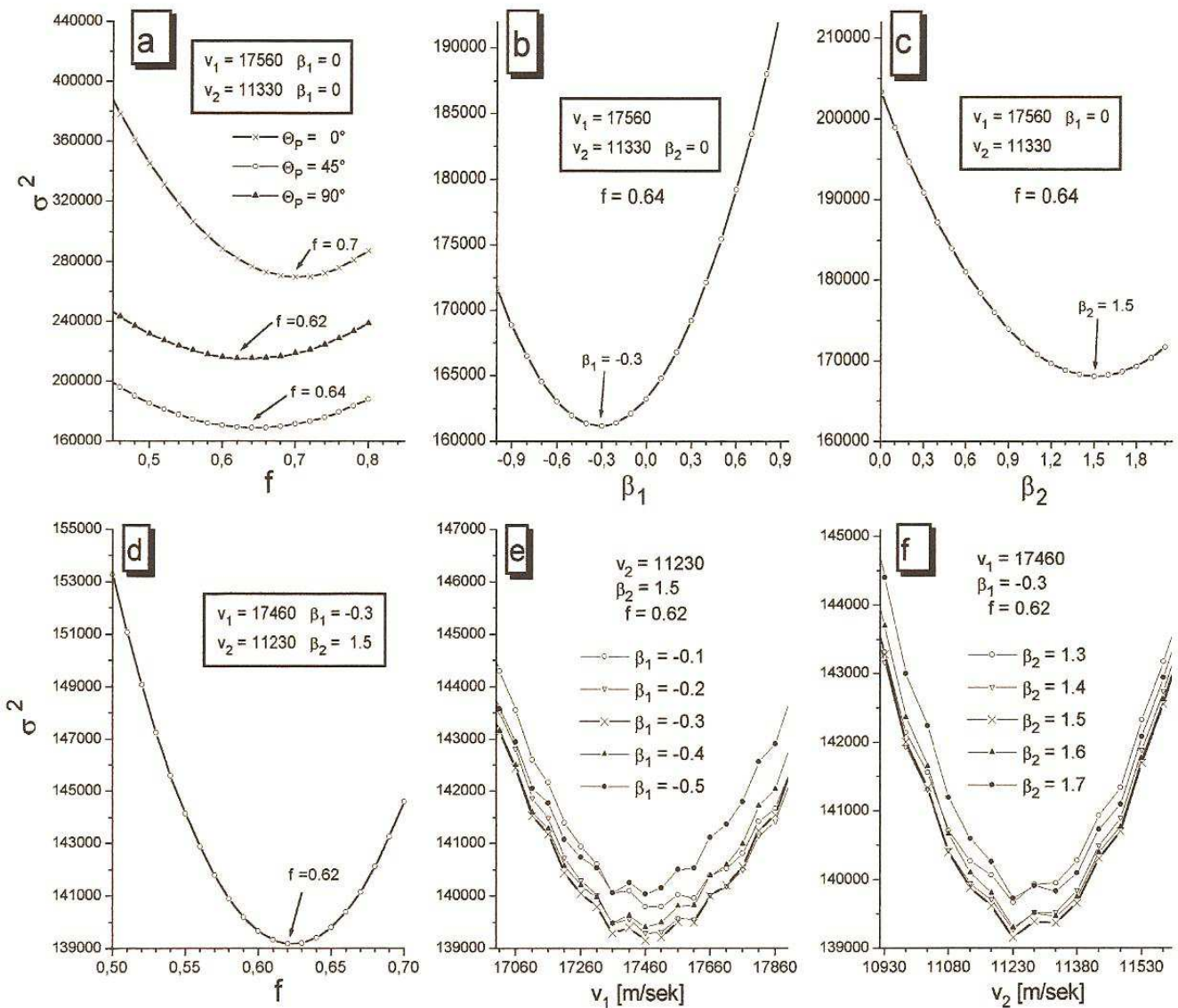
Anschließend kann der Verzweigungsfaktor f (s. Anhang A) unter Verwendung der Werte von v_1 und v_2 , über die Minimierung von σ^2 in erster Näherung bestimmt werden, indem die Bilder mit einer isotropen Verteilungsfunktion ($\beta_1 = \beta_2 = 0$) verglichen werden (s. Abb. 10.1a). Werden die so ermittelten Startwerte (v_1, v_2, f) in p_{sim} eingesetzt, können nacheinander die β -Parameter für beide Geschwindigkeitsgruppen über das Minimum von σ^2 angenähert werden. Der anfangs unbekannte β -Parameter in der zweiten Gruppe kann dabei mit einem beliebigen Startwert vorbesetzt werden (s. Abb. 10.1b und c).

Anschließend kann mit dem so ermittelten Startvektor $(f, \beta_1, \beta_2, v_1, v_2)$ über ein iteratives Verfahren der Parametervektor für das Absolute σ^2 -Minimum gefunden werden. Hierzu wird nacheinander schrittweise jeweils eine Koordinate des Parametervektors variiert und mit dem Wert, für den die Fehlerquadratsumme σ^2 ein eindeutiges Minimum annimmt (in sofern

vorhanden) belegt. Allgemeine Lösungsalgorithmen zur Minimierung einer n-dimensionalen Funktion finden sich z.B in den Numerical Recipes [27]. Der Parameter-vektor konvergierte bei den Zeitscheibenaufnahmen bereits nach 1 bis 2 zyklischen Durch-läufen gegen einen festen Wert.

In den Abbildungen 10.1e und f wird das Konvergenzverhalten für σ^2 in Abhängigkeit von v_1 bzw. v_2 an den gemessenen 45° Zeitscheiben demonstriert. Für beide Dissoziationskanäle resultiert eine absolute Geschwindigkeitsauflösung von ca. 100 m/sek. Eine Änderung der β -Werte von ± 0.1 kann über das σ^2 -Minimum noch eindeutig aufgelöst werden.

Abb. 10.1(a – f) σ^2 - Konvergenzverhalten gemessener Zeitscheiben ($\Theta_P = 45^\circ$)
(Ähnlichkeitsvergleich)



Kapitel 11 Ergebnisse

11.1 Ergebnisse aus dem Bildvergleich

Es stellte sich bei der Fehlerquadratberechnung, sowohl für die über Integration exakt berechneten als auch für die gemessenen Zeitscheibensätze, heraus, daß das Fehlerquadratminimum (fast) nicht von der gewählten Zeitscheibengewichtung abhing. Der Einfluß der Zeitscheibengewichtung auf die Fehlerquadratsumme kann somit gegenüber dem Einfluß des Parametersatzes ($f, \beta_1, \beta_2, v_1, v_2$) auf die Fehlerquadratsumme vernachlässigt werden.

Die H^+ - Flugzeitverteilung wurde nur für die Ermittlung der exakten zeitlichen Breite des Flugzeitintervalls benötigt, um den Rand der ersten Zeitscheibe auf einen exakt definierten Zeitpunkt setzen zu können (z. B. auf das Flugzeitminimum). Hierzu war jedoch keine längere Meßzeit, wie für die Bestimmung der exakten Verteilung erforderlich (8.1).

Eine (möglichst) genaue Kenntnis der Zeitscheibengewichtung ist jedoch für die direkte Bestimmung der differentiellen Geschwindigkeitsverteilung $I(\theta, \varphi, v)$ aus den Zeitscheibensätzen nach (9.11) erforderlich.

Es wurden Zeitscheiben mit einer Dissoziationslaserpolarisation von 0° , 45° , und 90° aufgenommen. Bei der Auswertung der Zeitscheibensätze wurden die Geschwindigkeitsbeträge v_1 und v_2 beider Dissoziationskanäle jeweils in einer Schrittweite von 50 m/sek über ein Geschwindigkeitsintervall von [16710, 18210] m/sek bzw. [10480, 11980] m/sek variiert, da die Geschwindigkeitsauflösung in den Bildebenen bei der vorliegenden Pixeldichte auf ca. 100 m/sek limitiert war (0.7 % von der maximalen Geschwindigkeit v_1 s. Fehlerabschätzung Kapitel 7.1). Die Betaparameter β_1 und β_2 wurden jeweils in einer Schrittweite von 0.1 über den Definitionsbereich von [-1, 2] variiert.

Zur Bestimmung des Verzweigungsverhältnisses wurde der Gewichtungsfaktor f für die schnellen Teilchen beginnend bei 0.2 in einer Schrittweite von 0.01- 0.25 bis zu 1 erhöht. Für die Zeitscheibensätze wurde zusätzlich zu der experimentell eingestellten Dissoziationslaserpolarisation Θ_p die Fehlerquadratrechnung für einen um $\pm 5^\circ$ abweichenden Polarisationswinkel untersucht.

Es stellte sich heraus, daß in allen Zeitscheiben ein absolutes Fehlerquadratminimum für die variierten Parameter (Tabelle Seite 76+77) bei einer Simulation mit einem um 5° kleineren Polarisationswinkel Θ_p erzielt wurde. Eine mögliche Ursache könnte eine um ca. $+5^\circ$ verschobene Polarisationswinkelskala gewesen sein.

In Bild 1 (Seite 59) ist die Orientierung der Bilder relativ zu dem Koordinatensystem K^{Lab} eingezeichnet. Der Dissoziationslaserstrahl verläuft parallel zu der im Bild 1 eingezeichneten x-Achse. Die Bilder sollten unabhängig von der Polarisation eine Spiegelsymmetrie zu der eingezeichneten y-Achse aufweisen. Unter 0° und 90° sollten sie zusätzlich spiegelsymmetrisch zur Dissoziationslaserstrahlachse sein. In allen abgebildeten Zeitscheiben war jedoch der Signaleintrag in den rechten Bildhälften stets geringer als theoretisch erwartet. Diese Asymmetrie parallel zu der Dissoziationslaserachse geht besonders deutlich aus den totalen Zeitscheiben unter 0° und 90° hervor. Die Ursache für diese Asymmetrie war nicht bekannt und konnte deshalb nicht behoben werden. Möglicherweise war die Empfindlichkeit der MCP-Oberfläche oder die Szintillatoroberfläche nicht isotrop. Drehen der Kamera zeigte, daß eine inhomogene Bildverstärkung nicht die Ursache gewesen sein konnte, weil die Asymmetrie-vorzugsrichtung nach Drehen der Kamera zusammen mit dem Bild rotiert wurde. Eine Kamerainhomogenität beträfe dagegen immer die gleichen Stellen auf der Bildmatrix.

Deshalb wurde σ^2 für die jeweiligen Bildhälften separat in jeder Simulationsrechnung erfaßt (Die Rechts-Links-Asymetrie ist auch an der jeweiligen Signalsumme über die Bildhälften der Zeitscheibensätze zuerkennen). Die jeweils gefundenen Minima für den Parametervektor ($f, \beta_1, \beta_2, v_1, v_2$) sind in den folgenden Tabellen in Abhängigkeit von der Polarisation aufgelistet.

Ergebnisse aus den 0° Zeitscheiben

\$: absolutes Fehlerquadratminimum
 ideale Werte : $v_1 = 17460$ m/sek $v_2 = 11230$ m/sek $\beta_1 = -1$ $\beta_2 = +2$ $f = 0.64$

A) ganzes Bild

Polarisation :	-5°	0°	+5°
v_1 :	17460 \$	17460	17460
v_2 :	11280 \$	11280	11330
β_1 :	+ 0.9 \$	+ 1.0	+ 1.1
β_2 :	+ 1.8 \$	+ 1.7	+ 1.6
f :	0.6 \$	0.62	0.64

B) linke Bildhälfte

v_1 :	17460 \$	17310	17310
v_2 :	11280 \$	11330	11380
β_1 :	+ 1.0 \$	+ 1.1	+ 1.2
β_2 :	+ 2.0 \$	+ 1.9	+ 1.7
f :	0.62 \$	0.63	0.64

C) rechte Bildhälfte

v_1 :	17610 \$	17610	17610
v_2 :	11230 \$	11180	11130
β_1 :	+ 0.8	+ 1.0	+ 1.1 \$
β_2 :	+ 1.6 \$	+ 1.6	+ 1.5
f :	0.62 \$	0.63	0.64

Ergebnisse aus den 45° Zeitscheiben

A) ganzes Bild

Polarisation :	35°	40°	45°	50°
v_1 :	17360	17360 \$	17460	17460
v_2 :	11380	11330 \$	11230	11230
β_1 :	- 0.1 \$	- 0.2	- 0.3	- 0.4
β_2 :	+ 1.7	+ 1.6 \$	+ 1.5	+ 1.3
f :	0.6 \$	0.61	0.62	0.63

B) linke Bildhälfte

Polarisation :	35°	40°	45°	50°
v₁ :	17210	17110 \$	17110	17110
v₂ :	11480	11380 \$	11380	11380
β₁ :	- 0.2	- 0.3 \$	- 0.4	- 0.4
β₂ :	+ 2.0	+ 1.9 \$	+ 1.8	+ 1.6
f :	0.59	0.6 \$	0.61	0.62

C) rechte Bildhälfte

v₁ :	17610 \$	17610	17610	17610
v₂ :	11130 \$	11130	11080	11080
β₁ :	+ 0.1 \$	0.0	- 0.2	- 0.2
β₂ :	+ 1.5	+ 1.4 \$	+ 1.2	+ 1.0
f :	0.61 \$	0.62	0.63	0.64

Ergebnisse aus den 90° Zeitscheiben

A) ganzes Bild

Polarisation :	85°	90°	95°
v₁ :	17210 \$	17310	17210
v₂ :	10880 \$	10880	10880
β₁ :	- 0.8 \$	- 0.8	- 0.7
β₂ :	+ 0.6 \$	+ 0.6	+ 0.5
f :	0.66 \$	0.66	0.66

B) linke Bildhälfte

v₁ :	11310 \$	17460	17460
v₂ :	10780 \$	10780	10630
β₁ :	- 0.8 \$	- 0.9	- 0.8
β₂ :	+ 0.9 \$	+ 0.8	+ 0.7
f :	0.63 \$	0.62	0.63

C) rechte Bildhälfte

v₁ :	16960 \$	16960	16960
v₂ :	11280 \$	11280	11280
β₁ :	- 0.7 \$	- 0.6	- 0.6
β₂ :	+ 0.4 \$	+ 0.3	+ 0.3
f :	0.69 \$	0.7	0.69

11.2 Ermittelte experimentelle Nachweiswahrscheinlichkeit für die Teilchen

Die aus der HJ-Dissoziation erzeugten Ionen wurden in den durch Gitter getrennten Feldabschnitten des b-FMS auf ca. 5 keV beschleunigt, bevor sie auf eine Mikrokanalplatte (MCP) (Fa. Galileo) abgebildet wurden. Die Güte der Abbildung hing dabei entscheidend von der Homogenität der elektrostatischen Felder ab. Deshalb wurden sehr feinmaschige Gitter (0.1 mm Maschenweite 0.021mm Drahtdicke) mit einer Transmission von ca. 68 % verwendet. Bei der Aufnahme der H^+ - Flugzeitspektren (s. Kapitel 8.1) wurde mit grobmaschigeren Gittern (0.58 mm Maschenweite, 87.5 % Transmission) gearbeitet, um ausreichend Signal zu erhalten. Es stellte sich jedoch anhand spannungsunabhängiger periodischer Bildstrukturen heraus, daß diese Gitter starke Abbildungsfehler verursachten.

Bei einer Transmission von 68 % verbleibt ein Restsignal von ca. 30 % hinter dem dritten Gitter, bevor die Ionen auf die MCP abgebildet werden (s. Abb. 6.2). Das Verhältnis der für Ionen sensitiven MCP-Fläche in bezug zur totalen MCP-Oberfläche (Open Area Ratio, OAR) betrug ca. 69 %. Somit wurde die effektive Nachweiswahrscheinlichkeit für die ursprünglich erzeugten Ionen auf ca. 21 % begrenzt.

Des weiteren hängt die Nachweiseffizienz von der vorliegenden Ionenenergie und Ionensorte ab. Für Protonen ist diese bei Energien zwischen ca. 2 keV und 50 keV optimal. Die Ionen lösen in den MCP-Kanälen eine Elektronenlawine aus. Die Verstärkung g einer Einzel-MCP wird im wesentlichen von der angelegten MCP-Spannung V_{mcp} bestimmt. Vom Hersteller wurden folgende Werte für g angegeben:

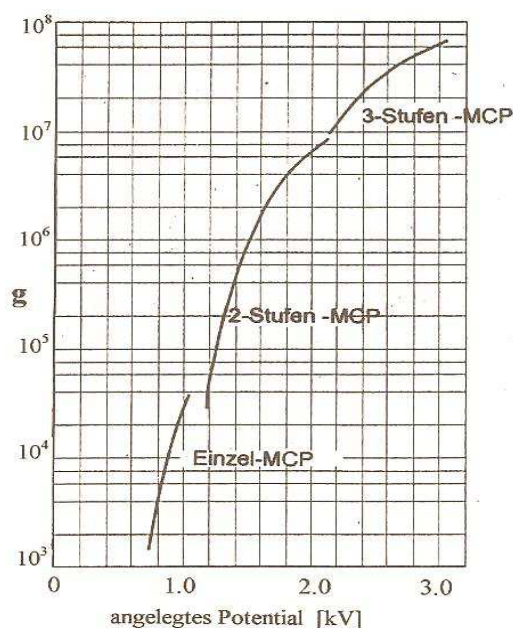
$$g = 2000 \text{ für } V_{mcp} = 700 \text{ Volt,}$$

$$g = 23000 \text{ für } V_{mcp} = 1000 \text{ Volt}$$

Für zwei MCP-Platten (Doppel-MCP) ergibt sich Verstärkung für nicht als einfaches Produkt von g , da infolge von Raumladungseffekten im Bereich der Mikrokanalenden durch elektrostatische Abstoßung die Sekundärelektronenvervielfältigung gehemmt wird. Besonders bei einer hohen Einzelverstärkung nimmt deshalb die effektive Verstärkung der Doppel-MCP merklich ab.

In Abb. 11.1 ist das typische Verstärkungsverhalten für eine ein- zwei- und dreistufige MCP-Kombination zu entnehmen.

Abb. 11.1



Im Experiment wurde das MCP-Set mit 1.570 Volt betrieben, so das gemäß der Verstärkungscharakteristik Abb. 11.1, die Gesamtverstärkung I_{mcp} des Ionensignals ca. 10^6 betragen haben dürfte.

Die in den Mikrokanalplatten freigesetzten Elektronen wurden auf einen mit Aluminium bedampften Szintillator (Fa. Zinsser Analytic Typ Za 236 mit 1.87 ns Abklingzeit, laut Hersteller) mit einer Energie von ca. 3.5 keV abgebildet und lösten dort Lichtquanten bei einem Fluoreszenz-Maximum von ca. 410 nm aus. Die Quantenausbeute des Szintillators ist nur für Ionen im MeV-Bereich genau vermessen worden (soweit bekannt). Für einen nicht bedampften Szintillator kann diese grob mit 5 Photonen je 0.1 keV Elektronenergie abgeschätzt werden. Demnach läge die Photonenausbeute je 3.5 kV Elektron bei ca. 180.

Ein qualitativer Vergleich der Lichtausbeute mit einem vorher verwandten Phosphor vom Typ P47 (Fa. Proxitronic, 55 ns Abklingzeit von 90 % auf 10 % , Fluoreszenzmaximum 434 nm) und dem Szintillator ergab, daß der mit Aluminium bedampfte Szintillator eine mit dem Phosphor vergleichbare Lichtausbeute hatte. Der P47 Phosphor sollte laut Hersteller (Datenblatt Proxitronic) für 3.5 keV Elektronen eine Photonenausbeute N_P von ca. 230 aufweisen. Eine exakte Angabe war vom Hersteller nicht möglich, da N_P u. a. stark mit der Korngröße und Schichtdicke des Phosphors variiert (Schichtdicke und Korngröße müssen für eine optimale Photonenausbeute auf die Elektronenenergie (typisch ca. 3- 15 keV) abgestimmt werden).

Etwa 1/110 der in 4π emittierten Photonen (da die Reflektivität der Aluminiumschicht nicht genau bekannt war, Schätzung ca. 10 - 30 %, wurden die zusätzlich reflektierten Photonen in dieser Abschätzung nicht berücksichtigt) wurden über ein Maksutov-Newton-Teleskop (s. Abb. 6.2) auf den Bildverstärker abgebildet.

Der Bildverstärker (s. Anhang D) hatte eine Detektionswahrscheinlichkeit P_{Det} von ca. 0.13 (13%). Sie resultiert aus der Transmission des Bildverstärkereingangsfensters von typischerweise ca. 95 %, der Quantenausbeute der Photokathode von ca. 20 % und einer OAR von ca. 70 % der im Bildverstärker integrierten MCP.

Wenn die Ionen, die das Eingangs-MCP-Set erreicht haben (ca. 21% der ursprünglich erzeugten Ionen), mit einer Wahrscheinlichkeit von über 95 % mit dem Bildverstärker nachgewiesen werden sollen, muß demnach von jedem dieser Ionen eine Nettophotonenanzahl S_N von mindestens 22 vor dem Bildverstärkereingang eintreffen (die Wahrscheinlichkeit, daß 22 Photonen in Folge nicht von diesem Bildverstärker registriert werden, ist kleiner 5 %). Bei einer Photonenausbeute N_P ergibt sich für S_N :

$$S_N = \frac{1}{110} \cdot N_P \cdot I_{mcp} \quad (11.1)$$

N_P kann abgeschätzt werden, wenn die Verstärkung des Bildverstärkers I_{Bild} , I_{mcp} und die mittlere Anzahl an Zählern \bar{N}_{Ion} , die jedem Ion in der Bildmatrix zugeordnet werden, bekannt sind. \bar{N}_{Ion} konnte aus Zeitscheibenaufnahmen über jeweils 10 Laserschuß bestimmt werden. Einem einzelnen Ion wurden im Mittel ca. 30000 Zähler zugeordnet, die sich auf der Bildmatrix gaußförmig über eine Fläche von ca. 100 Pixel verteilten (s. Bild 1 Seite 59).

Die Gesamtverstärkung I_{Bild} des Kamerasystems (Bildverstärker, CCD-Kamera und Kameraaufnahmeelektronik, s. Anhang D), die durch den Quotienten der eingehenden Photonenanzahl und der von der Photonenanzahl abhängigen elektronischen Pulsanzahl definiert wird, lag zwischen 5 und 10. Die Photonenausbeute N_P des bedampften Szintillators ergibt sich dann aus :

$$30000 \approx \bar{N}_{Ion} = I_{mcp} \cdot N_P \cdot \frac{1}{110} \cdot I_{Bild} \Rightarrow N_P = 30000 \cdot \frac{110}{I_{mcp} \cdot I_{Bild}} \quad (11.2)$$

Mit $I_{mcp} = 10^6$ und $I_{Bild} = 5$ (10) ergab sich für den Szintillator eine Photonenausbeute von 0.66 (0.33) (180 erwartet). Somit kommen von jedem Ion, welches über das MCP-Set eine Elektronenlawine induziert hat, mindestens 3000 Photonen vor dem Bildverstärker an (s. 11.1). Jedes "verstärkte" Ion kann nahezu mit einer Wahrscheinlichkeit von 100 % nachgewiesen werden. Eine Einzel-MCP mit $I_{mcp} = 10^4$ wäre somit völlig ausreichend gewesen, um die Ionen mit der in diesem Experiment maximal erzielbaren Nachweiswahrscheinlichkeit von ca. 21 % detektieren zu können ($S_N \approx 30$).

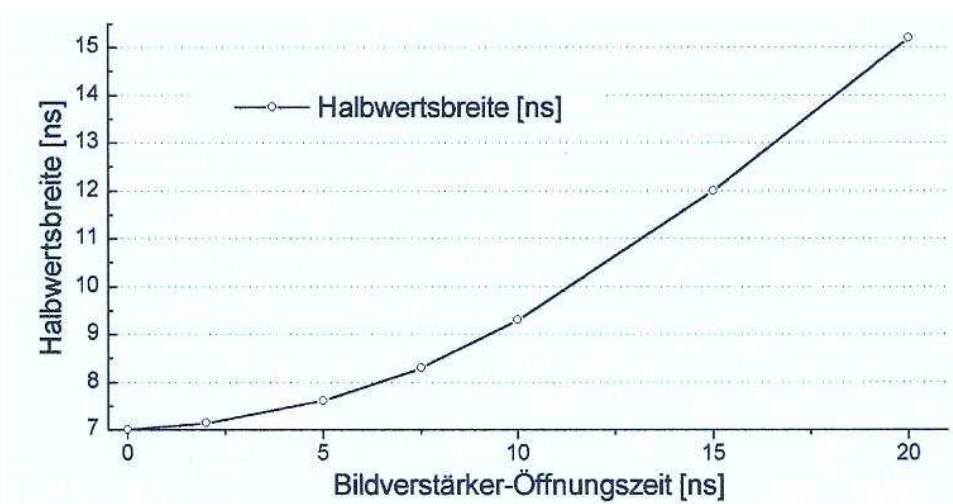
Bei dem eingesetzten Plastik-Szintillator Za 236 handelt es sich um einen organischen Szintillator. Als Grundmaterial dienen Polymere aus aromatischen oder alifatischen Verbindungen. In diesen sind primär organische Fluoreszenzstoffe (z.B. bis-MSB) eingebettet, die beim Zerfall UV-Licht emittieren. Über einen weiteren Fluoreszenzstoff (Wellenlängenschieber) wird das UV-Licht in sichtbares Licht transformiert, das auf die Wellenlängempfindlichkeit für Photokathoden abgestimmt ist.

11.3 Bestimmung der Abklingzeiten beim Szintillator und Phosphor

Zur Bestimmung der Abklingzeiten wurde der Szintillator (Za 236) bzw. Phosphor (P47) gleichmäßig mit UV-Streulicht ausgeleuchtet. Relativ zu dem festen UV-Streulichtpuls wurde der Bildverstärker nach einer frei wählbaren Verzögerungszeit τ relativ zum Laserpuls, jeweils für ein Zeitfenster von ca. 5 - 7 ns geöffnet. Im Anschluß wurde über τ das Zeitfenster relativ zum Laserpuls in einer Schrittweite von einer Nanosekunde (beim Phosphor in 2 ns Schritten) verschoben, wobei für jede Zeitfensterposition die vom Szintillator (Phosphor) emittierte Lichtmenge über jeweils 40 Laserschüsse aufintegriert wurde.

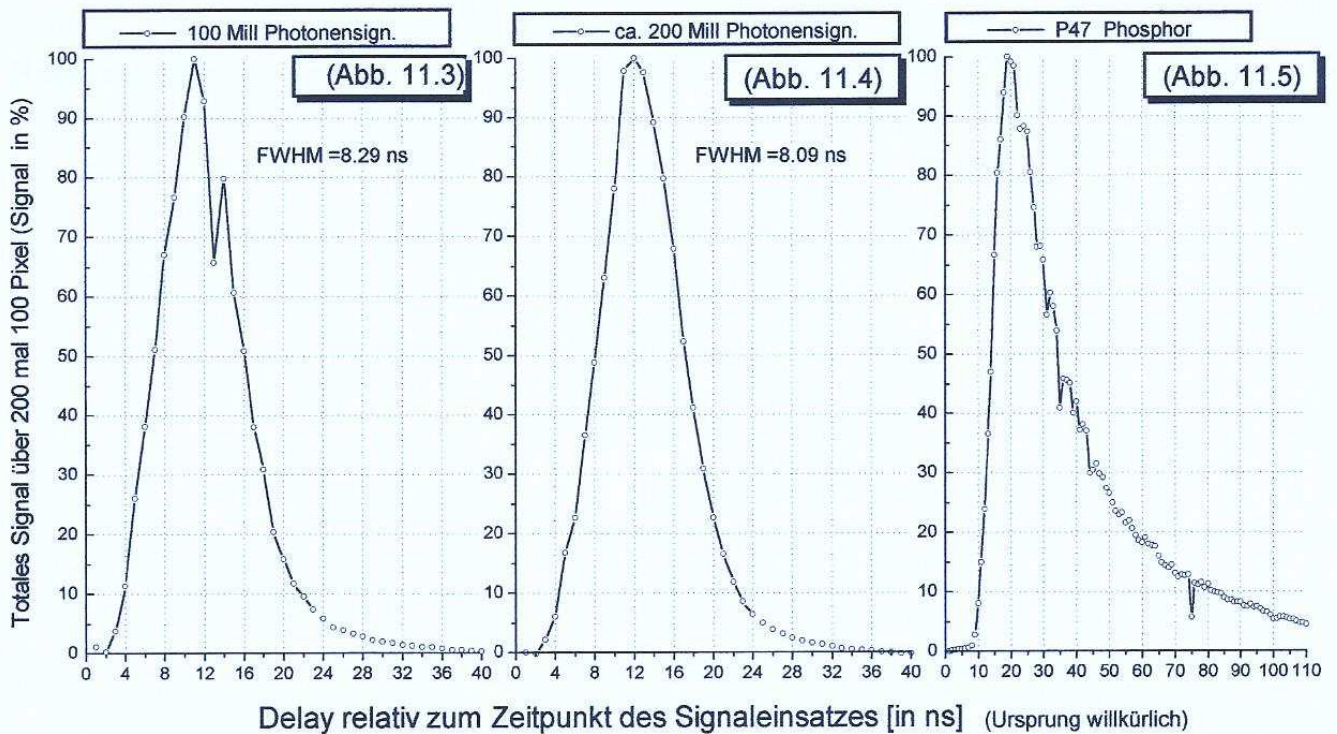
Zur Abschätzung der Zeitauflösung dieser Messmethode wird das Zeitprofil des Lasers mit einer Gaußfunktion von 7 ns Halbwertsbreite beschrieben und die Öffnungsfunktion des Bildverstärkers durch eine Rechteckfunktion simuliert. Die maximale Auflösung ergibt sich dann aus der Faltung dieser Funktionen. In Abb. 11.2 ist die so ermittelte Auflösungsgrenze in Abhängigkeit von der Bildverstärkeröffnungszeit dargestellt.

Abb. 11.2



Die Messergebnisse sind aus den Abbildungen 11.3 bis 11.5 ersichtlich.

Abb. 11.3 + 11.4 Messkurve des selbstbedampften Szintillators
Abb. 11.5 “ des P 47 Phosphors



Die gemessenen Halbwertsbreiten von 8.3 ns (bzw. 8.1 ns bei einer Verdopplung des totalen Streulichtsignals) resultieren aus der Faltung der Szintillatorabklingkurve, dem zeitlichen Laserprofil und der Öffnungsfunktion des Zeitfensters mit einer Breite von ca. 5 ns. Die Laserhalbwertsbreite von ca. 6-7 ns und die Breite des Zeitfensters begrenzen die Zeitauflösung für die Abklingkurven auf ca. 7-8 ns. Deshalb ist die gemessende Szintillatorabklingkurve nahezu vollständig von dem gaußförmigen Laserprofil überdeckt worden und kann mit dieser Messmethode nicht mehr aufgelöst werden. Aus der Messkurve folgt, daß die obere Grenze für die Szintillatorabklingzeit unter 4 ns lag.

Bei dem getesteten P47 Phosphor konnte das vom Hersteller angegebene exponentielle Abklingverhalten, mit einer Leuchtdichteänderung von 90 % auf 10 % in 55 ns, aus dem Abklingverlauf der Messkurve von ca. 60 ns bestätigt werden. Durch den Einsatz des Szintillators konnte das zur Verfügung stehende totale Flugzeitintervall für die Wasserstoffionen von ca. 215 ns erfolgreich in 11 Zeitscheiben mit einen Zeitabstand von je 20 ns unterteilt werden. Im Unterschied zum P47-Phosphor wurde so eine getrennte Abbildung der beiden Geschwindigkeitsgruppen (s. Kapitel 7.1 und Bilder Kapitel 12.1) aus der HJ-Dissoziation in allen Zeitscheiben ermöglicht.

Kapitel 12 Zusammenfassung und Ausblick

Im Experiment wurde mit der bekannten 1dimensionalen Winkelverteilung $I(\theta)$ aus der HJ-Photodissoziation getestet, ob mit dem Detektoraufbau die Erfassung einer 3dimensionalen Geschwindigkeitsverteilung über den vollen Raumwinkel prinzipiell möglich ist. Mit den aufgenommenen H^+ -Flugzeitspektren (Kapitel 8.1) wurde sichergestellt, daß bei dem Abbildungstest tatsächlich Wasserstoffionen aus der HJ-Dissoziation bei einer Wellenlänge von 266 nm erzeugt wurden und innerhalb des relevanten Zeitintervalls keine Ionen aus anderen Prozessen die Abbildung verfälschten (z. B. aus einer HJ-Photodissoziation mit 212 nm). Für verschiedene Polarisationswinkel Θ_P des Dissoziationslasers, der die Orientierung der Symmetrieachse der über $I(\theta, v)$ (s. 9.15) beschriebenen 3dimensionalen Geschwindigkeitsverteilung relativ zum Laborsystem festgelegt, wurde durch Vergleich von gemessenen und simulierten Bildern das Abbildungsverhalten des Detektors überprüft.

Es wurde überprüft, inwieweit die allgemein experimentell gewonnene Winkelverteilung mit der theoretischen vom Azimutalwinkel ϕ unabhängigen Verteilungsfunktion $I(\theta)$ (s. 9.13) übereinstimmt, indem alle gemessenen Bilder auf eine bestimmte Weise normiert wurden und pixelweise mit den theoretischen Bildern über die Summe der quadratischen Abweichung verglichen wurden (Kapitel 10).

Hierzu wurde die theoretische Funktion $I(\theta, v)$ explizit über die Betaparameter β_1 , β_2 , für beide Geschwindigkeitsgruppen v_1 , v_2 und das Verzweigungsverhältnis f parametrisiert (9.15). Es hat sich in Monte-Carlo-Simulationen für verschiedene Polarisierungen gezeigt, daß bereits mit einer relativ geringen Anzahl an Ereignissen (z. B. 10.000) die Parameter β_1 , β_2 , v_1 , v_2 , g mit einer relativ großen Genauigkeit über die Fehlerquadrat-Minimierung (Kapitel 10) bestimmt werden können. In grober Abschätzung ergaben sich aus Monte-Carlo-Simulationen mit einer Auflösung der Ionenabbildung von 0.8 mm Halbwertsbreite folgende relative Fehlergrenzen: β_1 u. $\beta_2 < 4\%$, v_1 u. $v_2 < 1\%$, $f < 4\%$. Das Konvergenzverhalten für die Parameter ist von der Polarisation abhängig.

In den experimentellen Messergebnissen konnte diese Genauigkeit in der Geschwindigkeitsauflösung für beide Dissoziationskanäle bei den Zeitscheibensätzen, die mit einer Dissoziationslaserpolarisation von 0° u. 45° aufgenommen wurden, bestätigt werden, wobei die Fehlerquadratminima für die insgesamt elf 45° -Zeitscheiben im Vergleich zu den aufgenommenen sieben 0° -Zeitscheiben deutlich ausgeprägter waren.

In den 0° und 45° -Zeitscheibensätzen wurden in Übereinstimmung mit den bekannten Messwerten die Geschwindigkeiten für beide Dissoziationskanäle mit einer Genauigkeit von ca. 100 m/sek bestimmt und für das Verzweigungsverhältnis ein f -Wert zwischen 0.6 und 0.65 gemessen.

In den 45° Bildern spiegeln die ermittelten Betaparameter mit $\beta_1 = -0.3$, und $\beta_2 = 1.5$ die theoretischen Asymmetrien in richtiger Weise wider, wobei die Abweichung von den theoretischen Werten (wahrscheinlich) auf die in den totalen Zeitscheiben eindeutig erkennbare rechts- links- Asymmetrie bezüglich der x -Achse (Laserstrahlachse) zurückzuführen ist.

Allgemein stimmen die Betaparameter in den linken Bildhälften besser mit den theoretischen Werten überein.

Das Abbildungsverfahren funktioniert somit prinzipiell in korrekter Weise. Für den Ionenachweis wäre eine Einzel-MCP in Kombination mit dem bedampften Szintillator ausreichend gewesen (Kapitel 11.2). Ein besseres Abbildungsverhalten könnte mit einem homogen bedampften Szintillator in Verbindung mit einer Einfach-MCP erzielt werden. Eine

direkte glassfaseroptische Kopplung des Bildverstärkers mit dem Quarzfenster würde die Abbildungsfehler und Lichtverluste minimieren.

Des weiteren kann die Auflösung durch eine Einengung des Nachweisvolumens z. B. durch eine Verringerung des Molekularstrahldurchmessers am Dissoziationsort und einem senkrecht zum Dissoziationslaser verlaufenden Nachweislaser erhöht werden.

Um mit dieser Methode schwere Fragmente abbilden zu können, ist eine längere Flugstrecke (z. B. 0.45 m) unbedingt erforderlich (siehe Kapitel 7.2.1). Da zur Aufrechterhaltung der Raumfokussierungsbedingung diese nur auf maximal 100 Elektronenvolt nachbeschleunigt werden können, müßten sie vor der MCP durch ein zusätzliches Gitterpaar auf ca. 3 - 5 keV nachbeschleunigt werden

12.1 Bilder

Auf den folgenden Seiten sind die gemessenen Zeitscheiben für $\Theta_p = 0^\circ$, 45° und 90° abgebildet. Für 0° und 45° sind zusätzlich die aus einer Monte-Carlo-Simulation mit 15000 Ionen resultierenden Bilder beigefügt. Hierbei wurde das Signal eines jeden Pixels gaußförmig über eine Halbwertsbreite von 0.8 mm (ca. 7 Pixel) verschmiert. Die mittleren Ionenflugzeiten für die Abbildung zwischen zwei aufeinander folgenden Zeitscheibenbildern nehmen um jeweils ca. 20 ns zu.

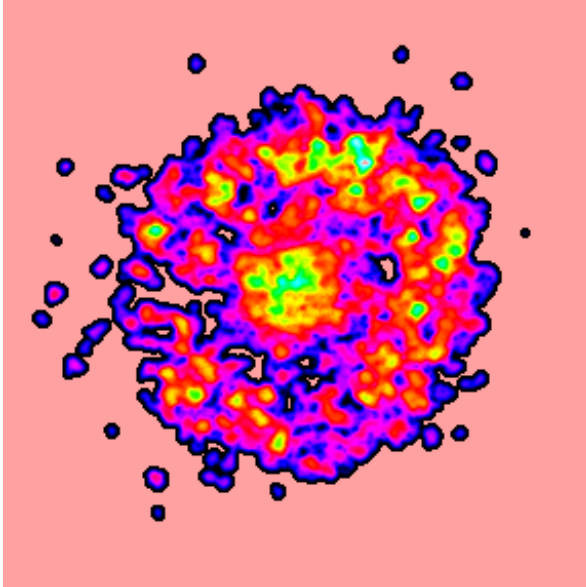
Die Bilder wurden jeweils auf ein Pixelmaximum von 4095 Zählern normiert und in einer einheitlichen Farbtabelle mit 64 Farben dargestellt. Der Farbwert der Hintergrundfarbe entspricht dem Wert maximaler Intensität oder einer Zählrate von Null.

Farbtabelle : Werte 0-63

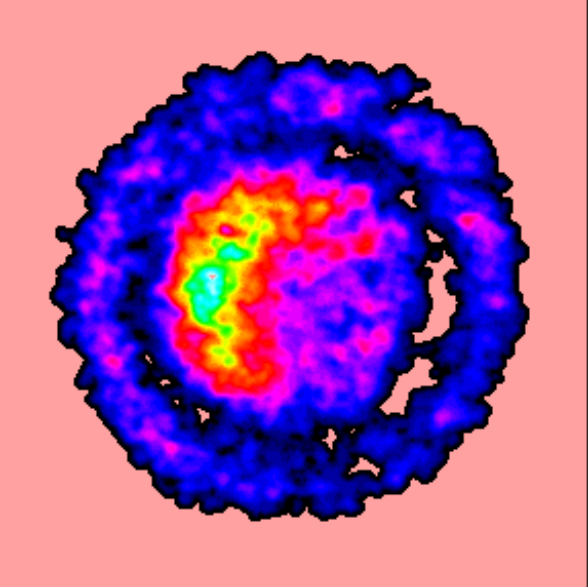


Zeitscheiben 0° gemessen (100Volt)

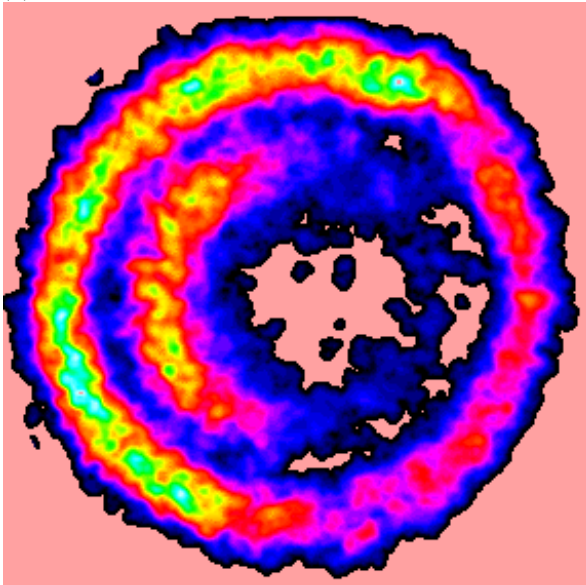
(1)



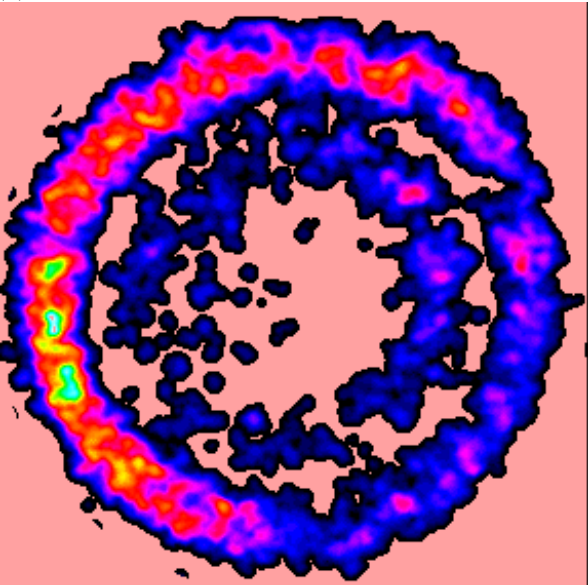
(2)



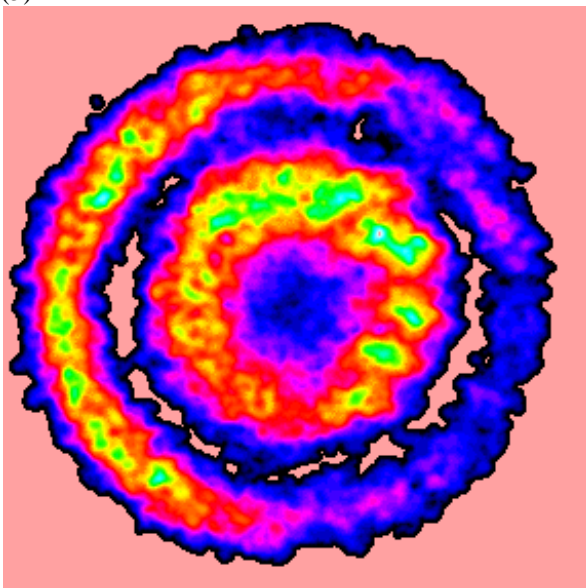
(3)



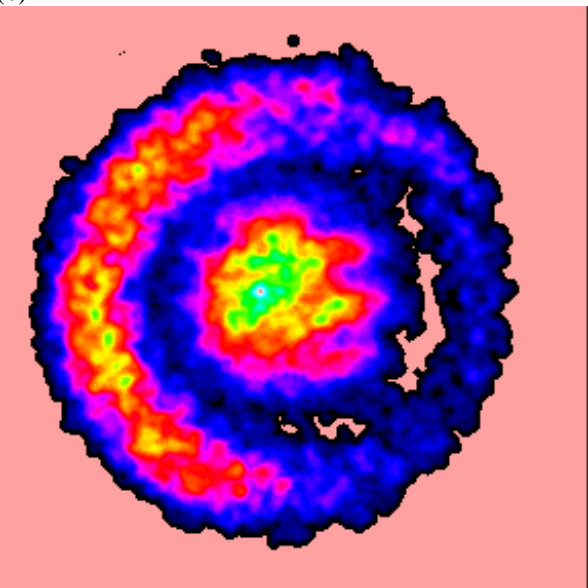
(4)



(5)

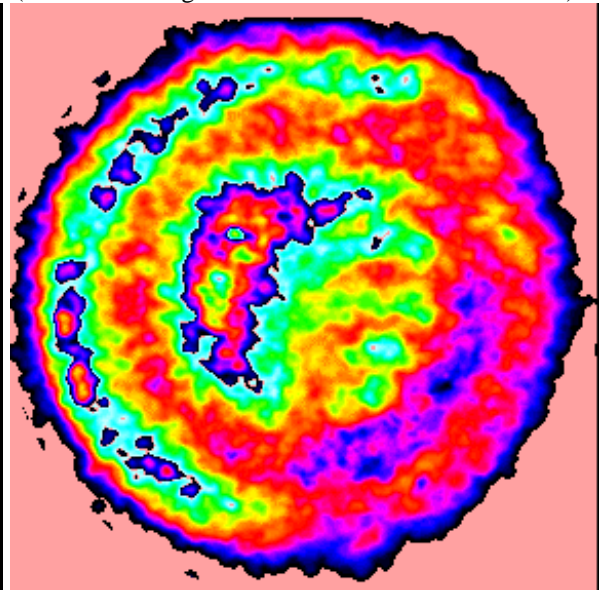
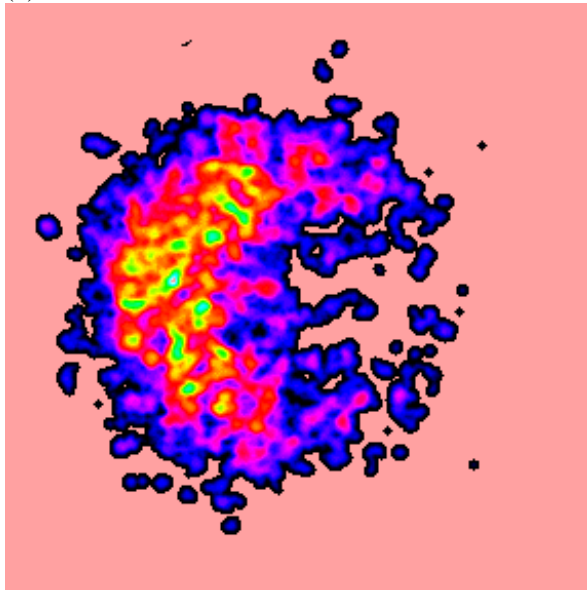


(6)



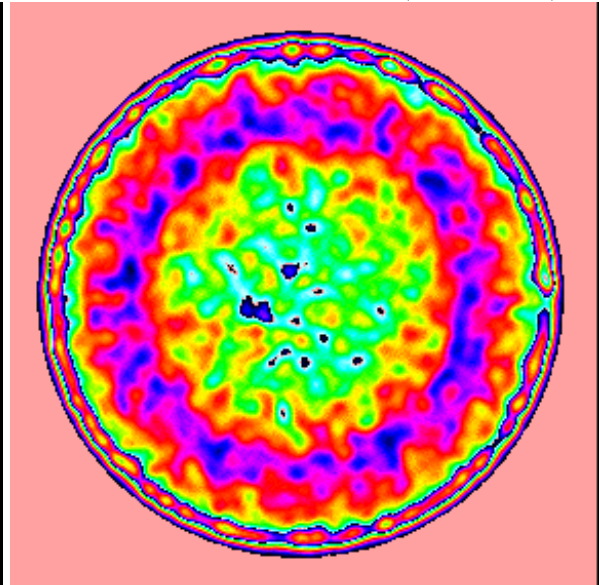
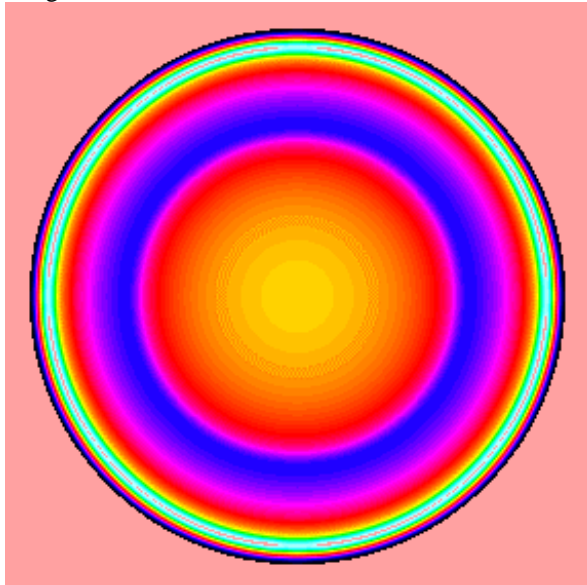
(7)

(Totale aus der gewichten Summe der Zeitscheiben)



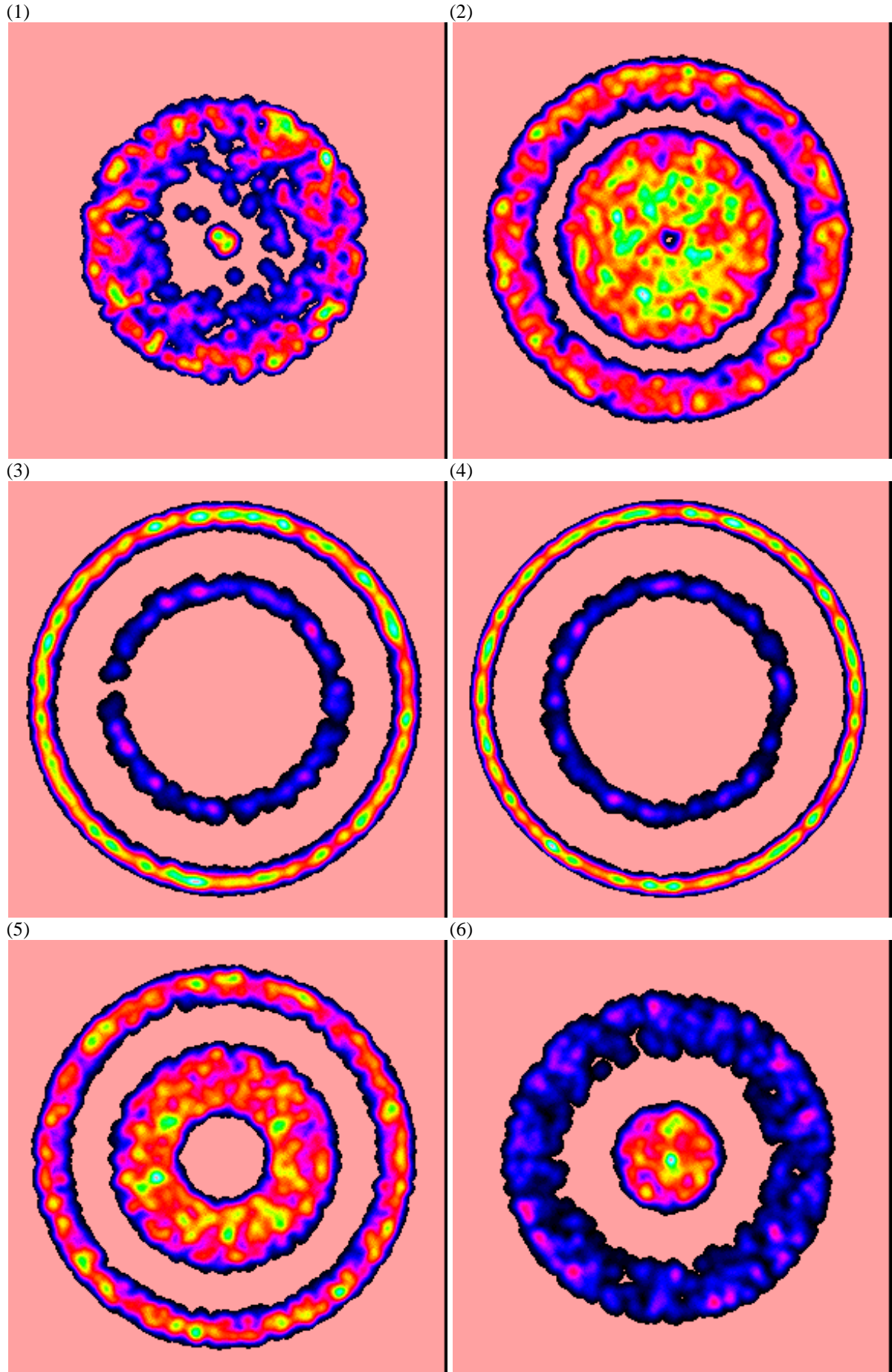
Integrierte Totale 0°

Monte-Carlo-Simulierte Totale 0° (15000 Ionen)

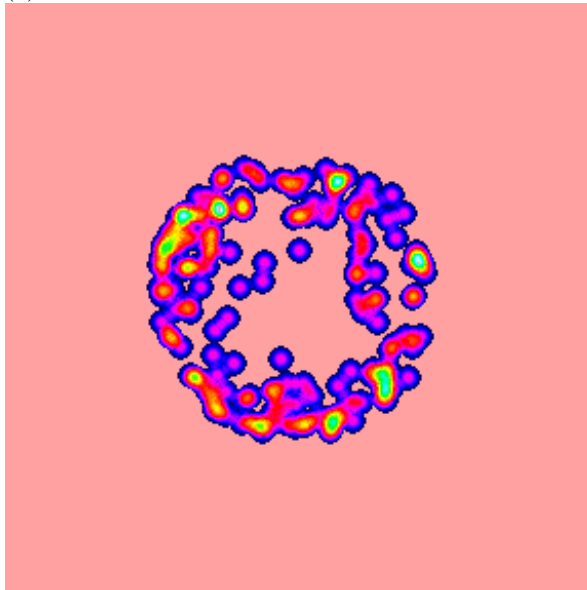


Bei den Bildern der totalen Zeitscheiben wird die Farbtabelle auf Seite 83 zweimal durchlaufen.

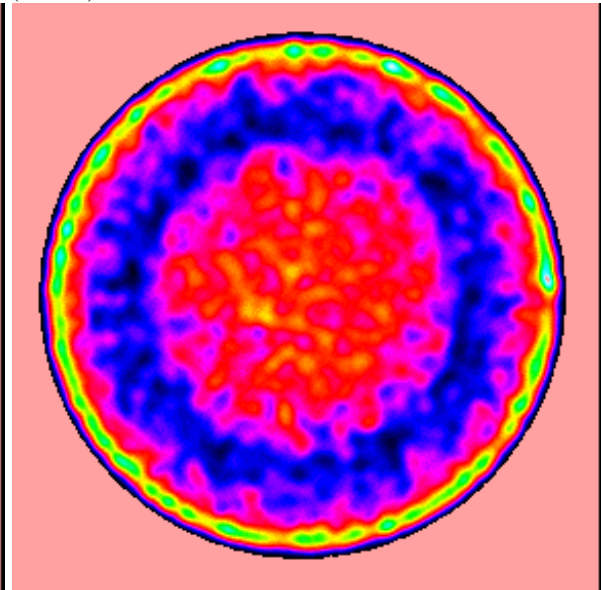
Zeitscheiben 0° für 100 Volt (Monte-Carlo-Simulation mit 15000 Ionen, 0.8mm FWHM)



(7)

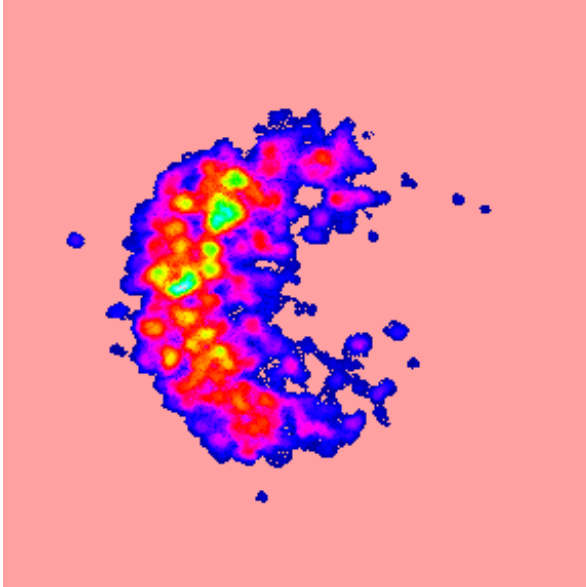


(Totale)

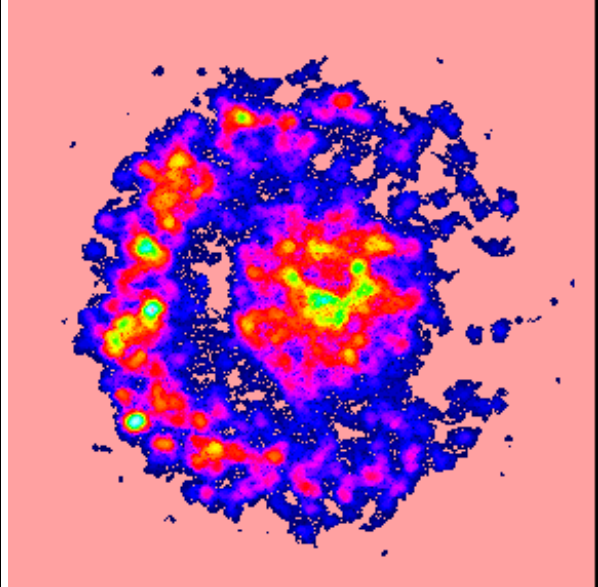


Zeitscheiben 45° gemessen (60 Volt)

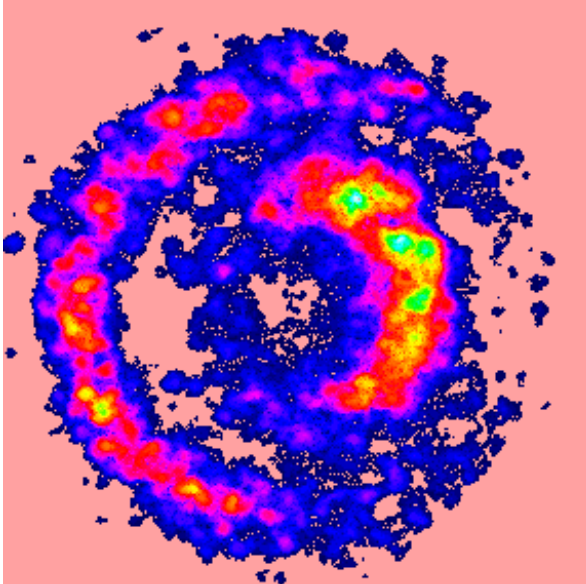
(1)



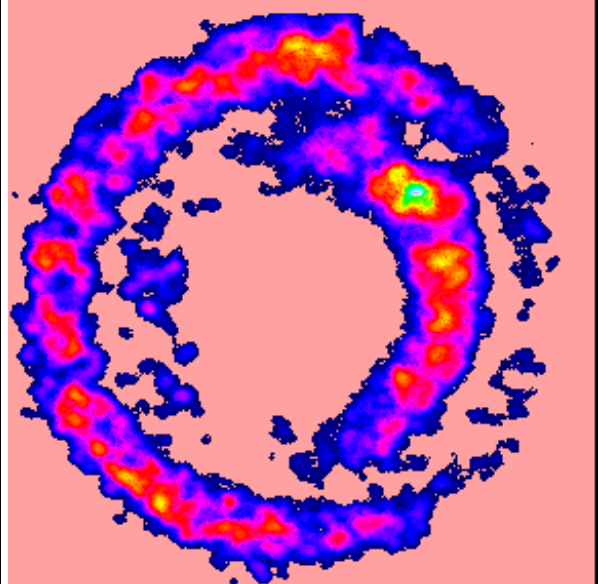
(2)



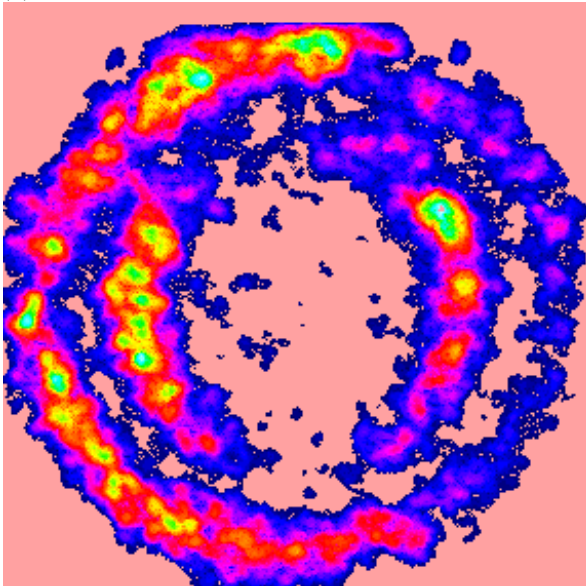
(3)



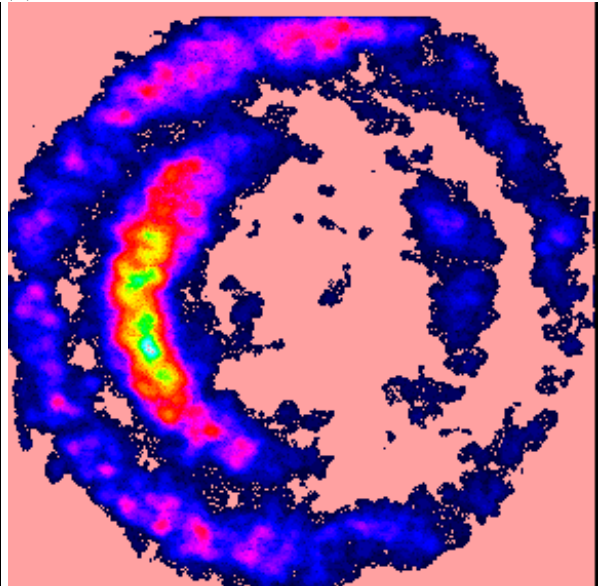
(4)



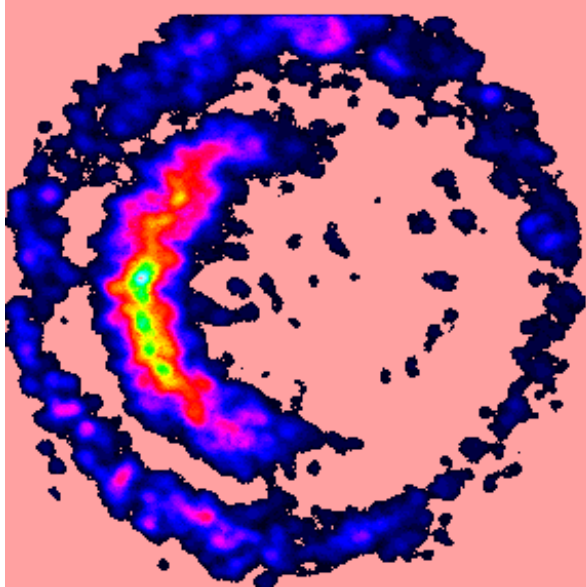
(5)



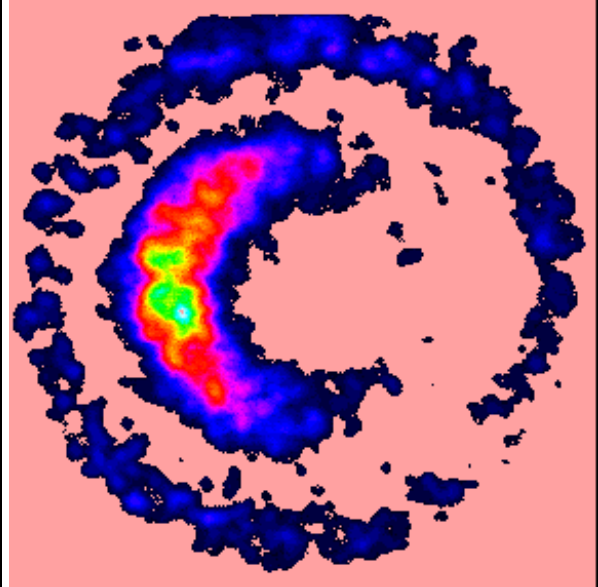
(6)



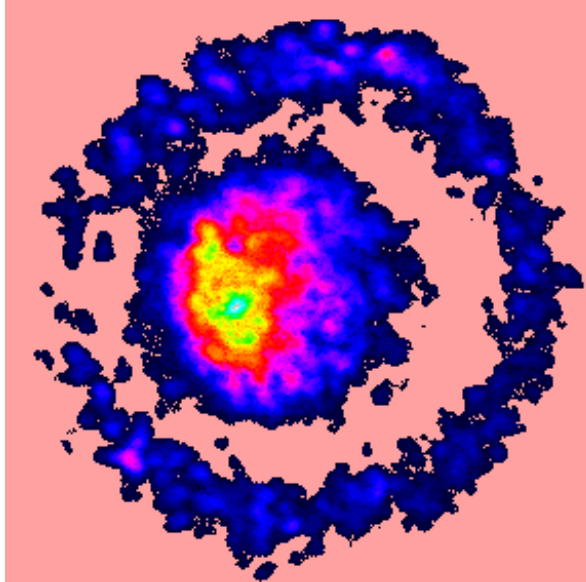
(7)



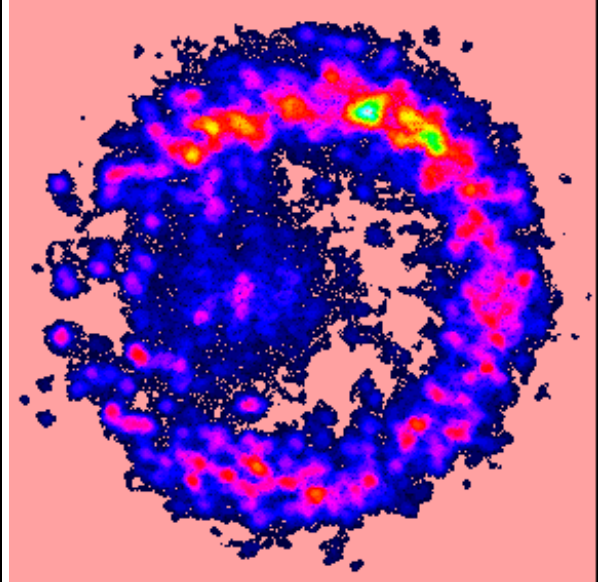
(8)



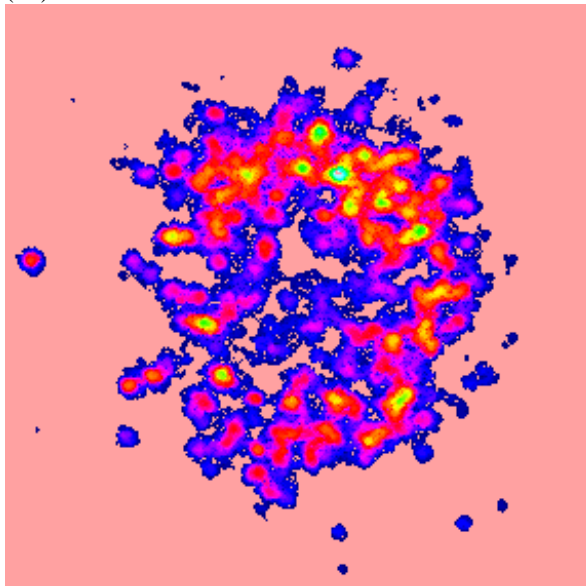
(9)



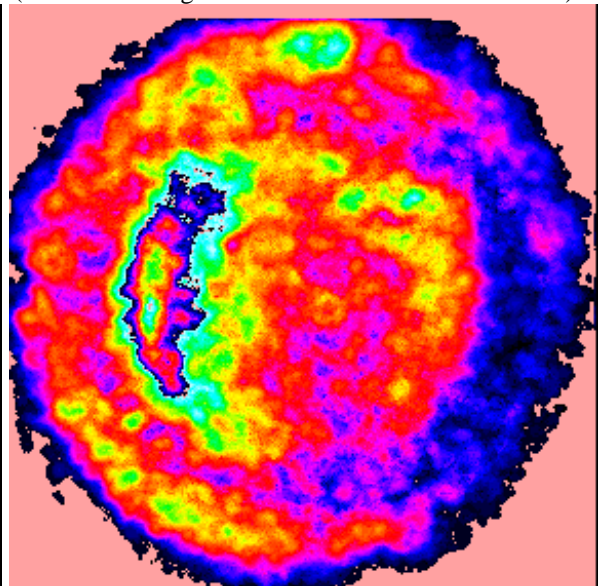
(10)



(11)

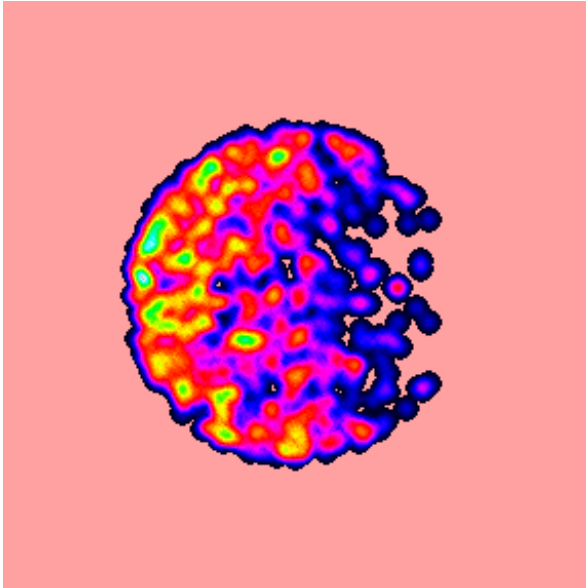


(Totale aus der gewichten Summe der Zeitscheiben)

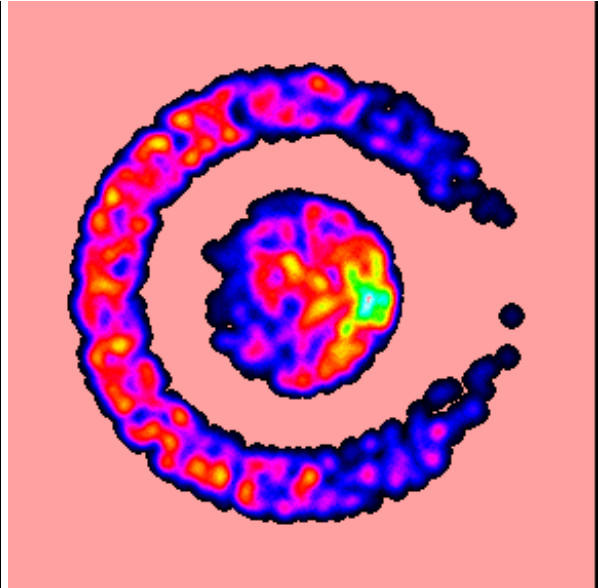


Zeitscheiben 45° für 60 Volt (Monte-Carlo-Simulation mit 15000 Ionen, 0.8mm FWHM)

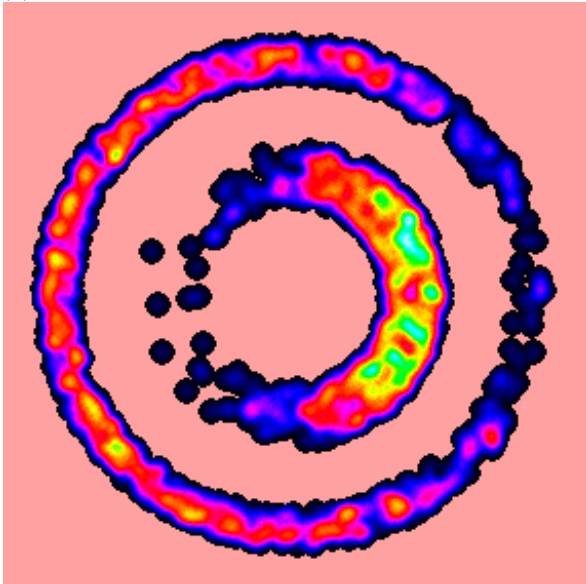
(1)



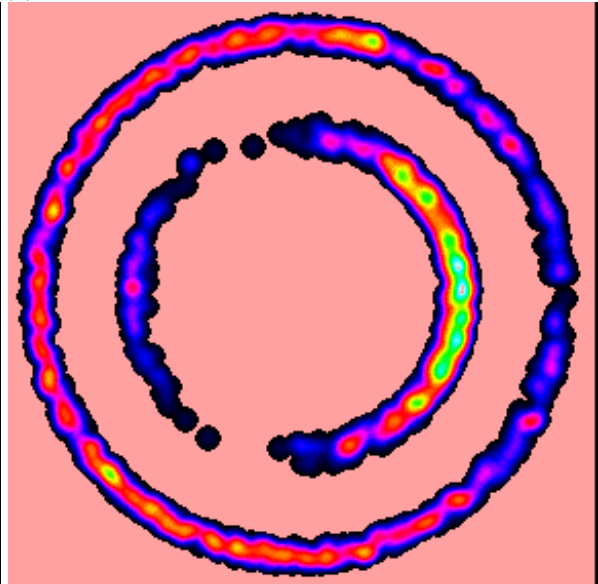
(2)



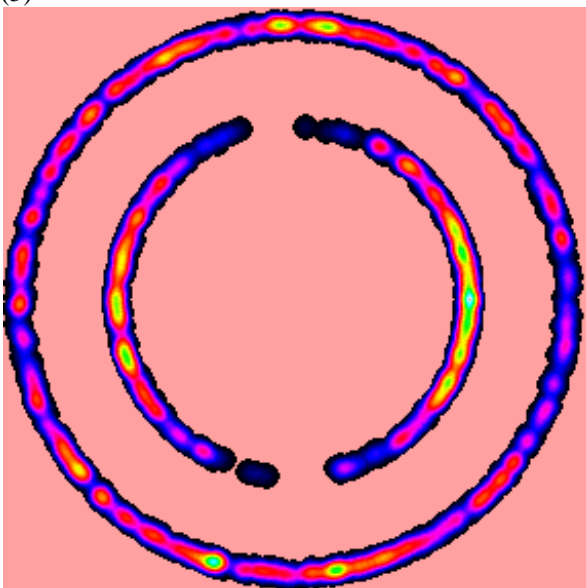
(3)



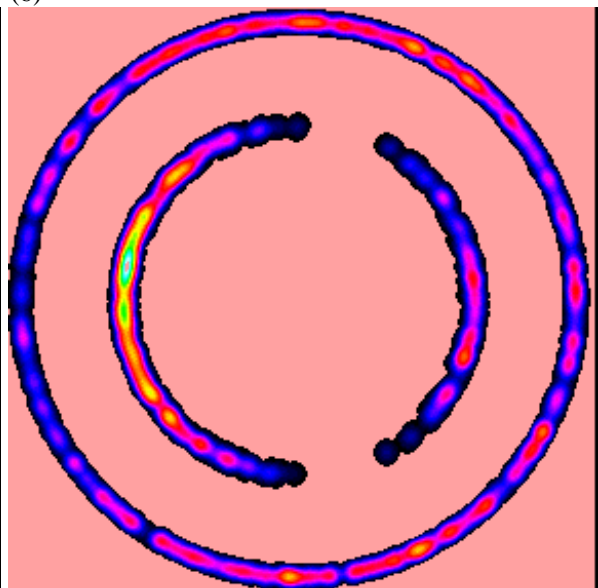
(4)



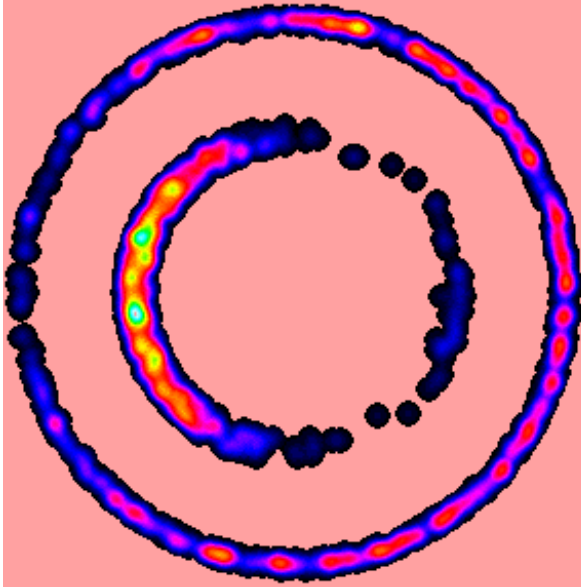
(5)



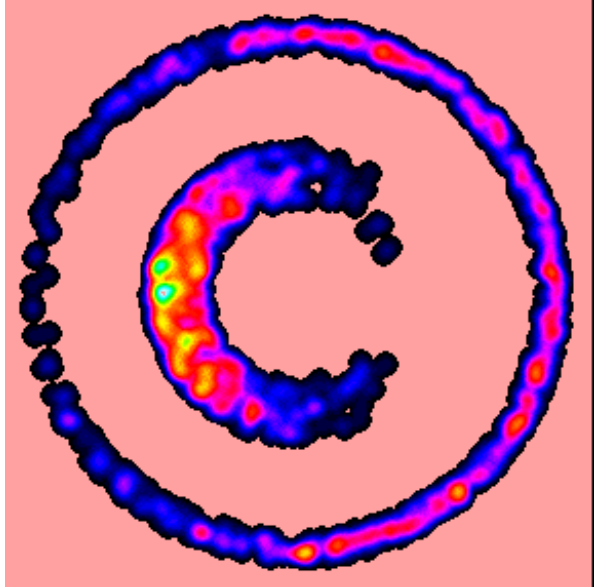
(6)



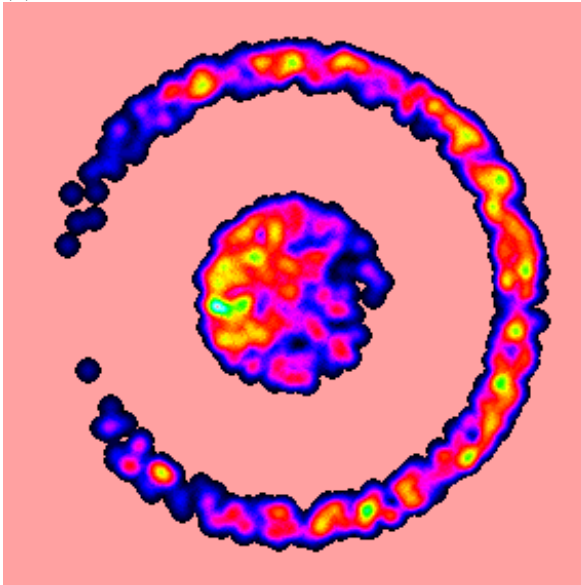
(7)



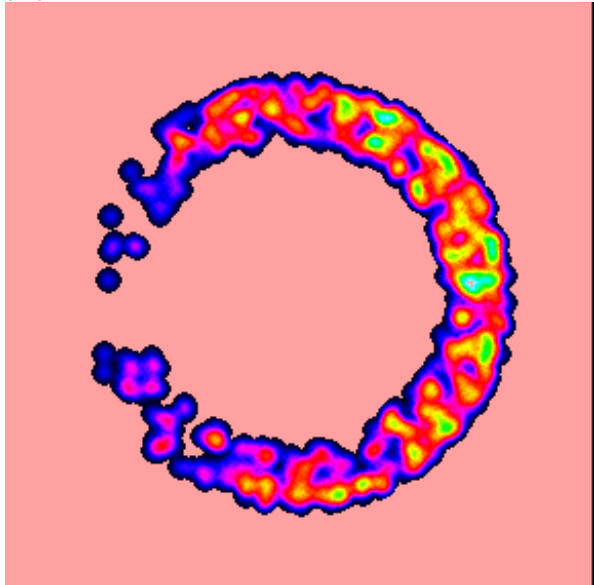
(8)



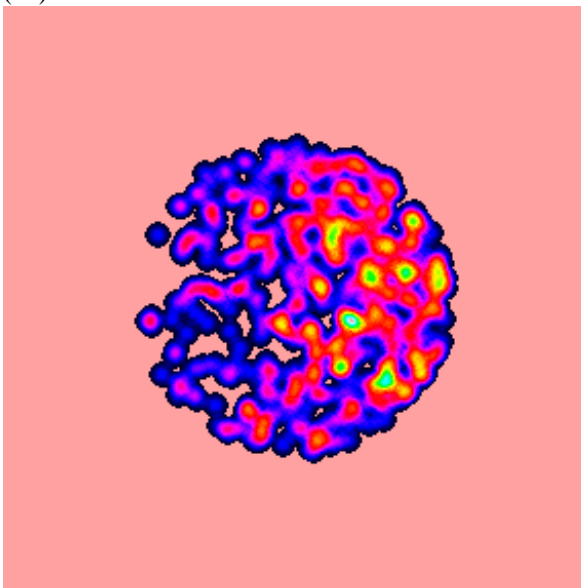
(9)



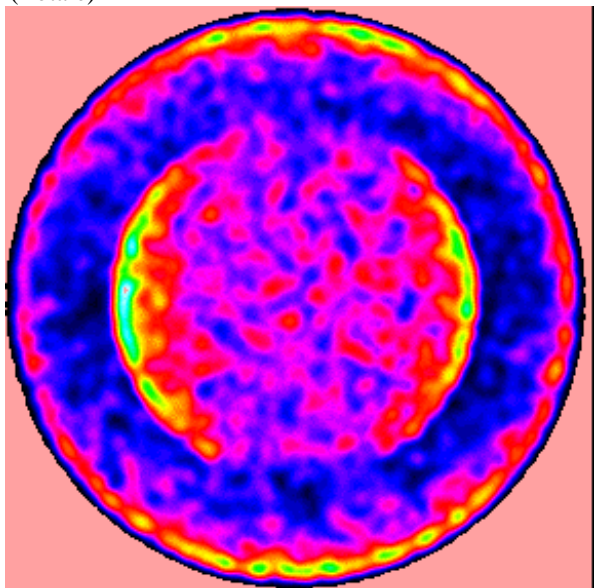
(10)



(11)



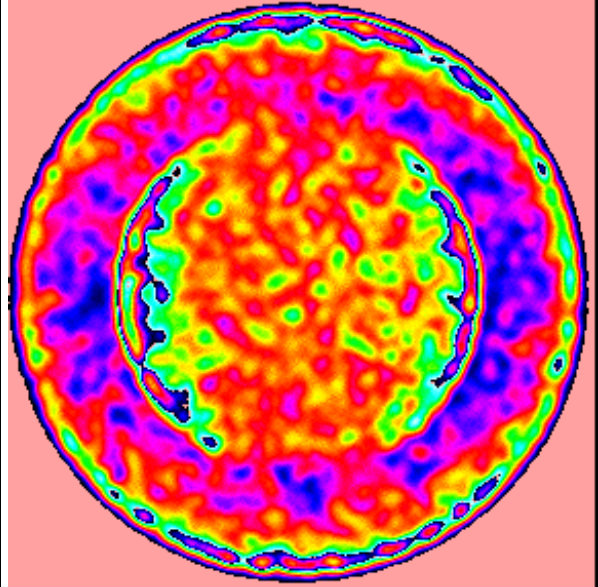
(Totale)



Totale integriert 45°

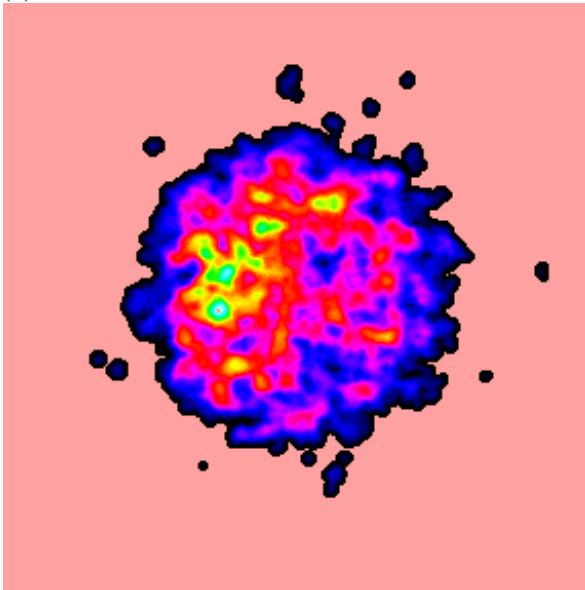


Totale 45° Monte-Carlo-Simulation (15000 Ionen)

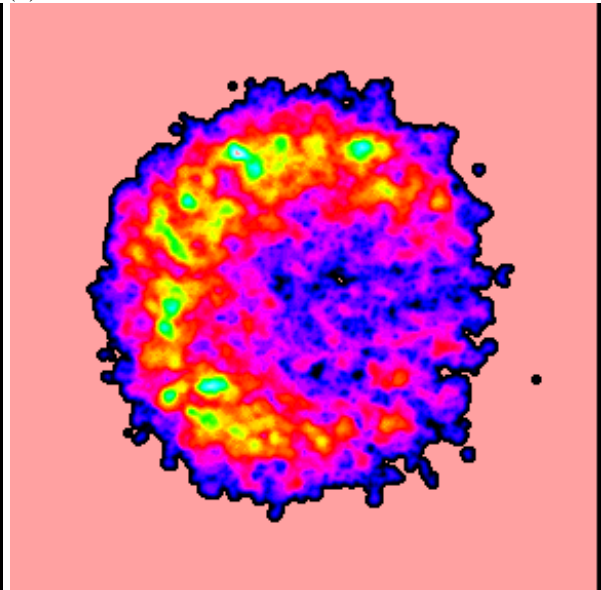


Zeitscheiben 90° gemessen (60 Volt)

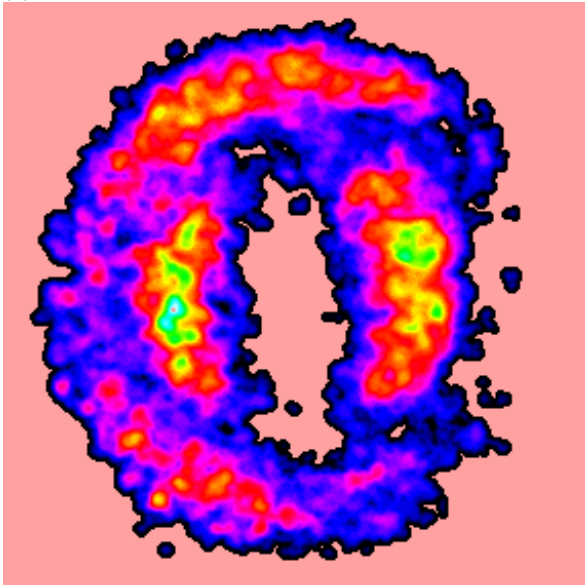
(1)



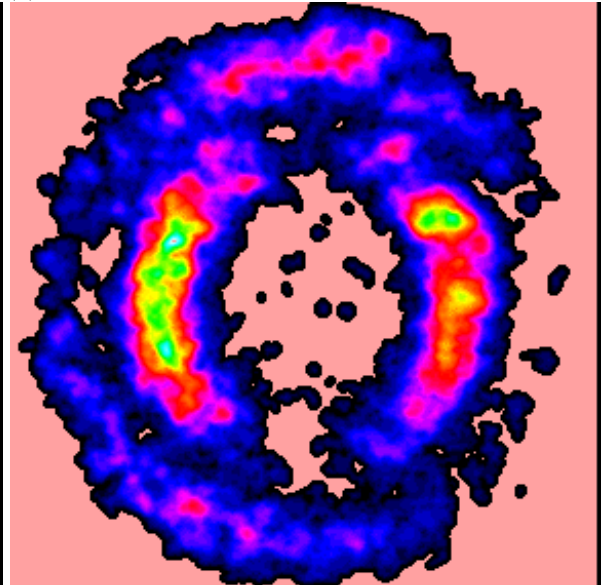
(2)



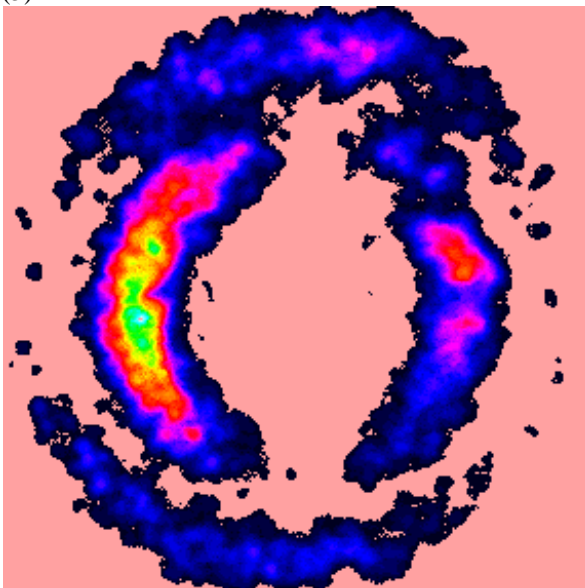
(3)



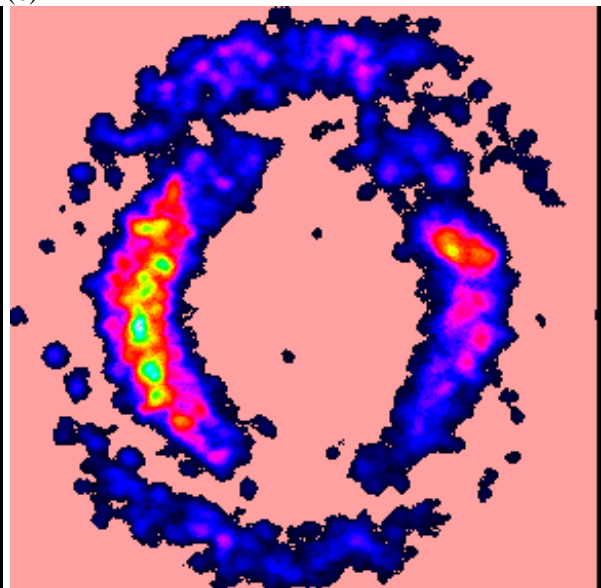
(4)



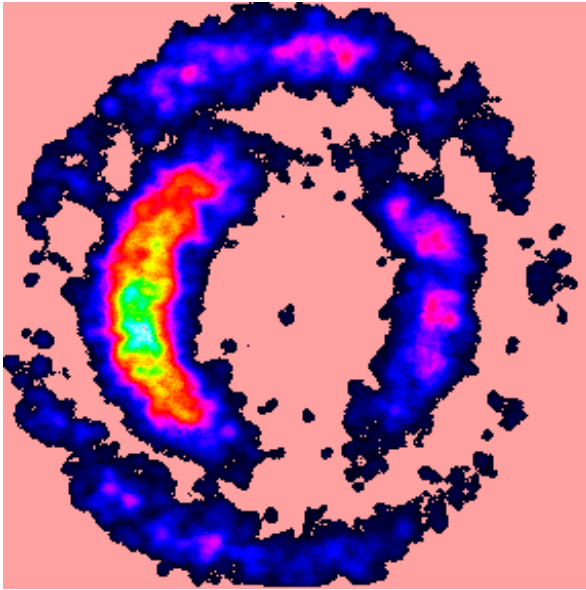
(5)



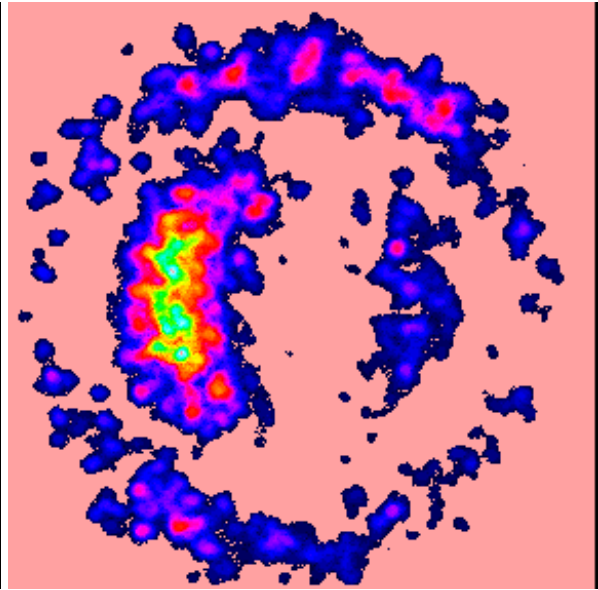
(6)



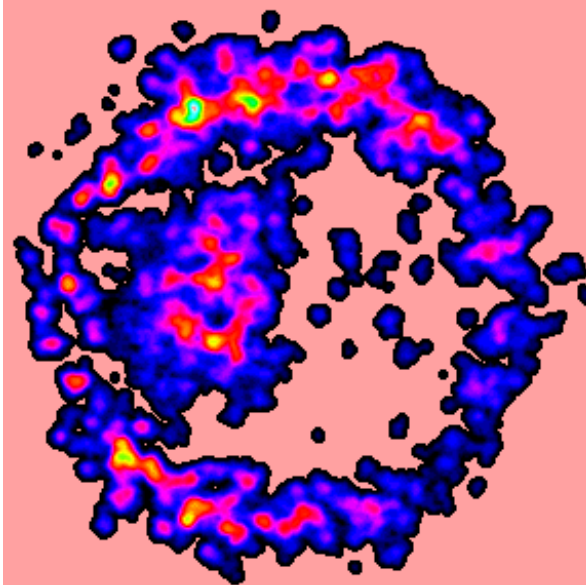
(7)



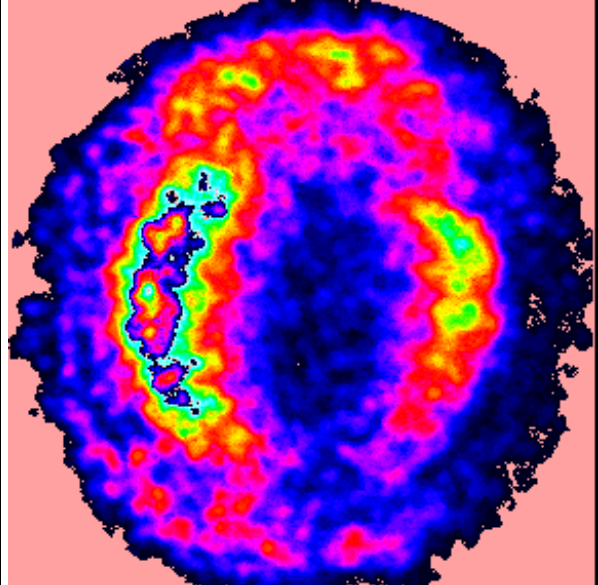
(8) -



(9)

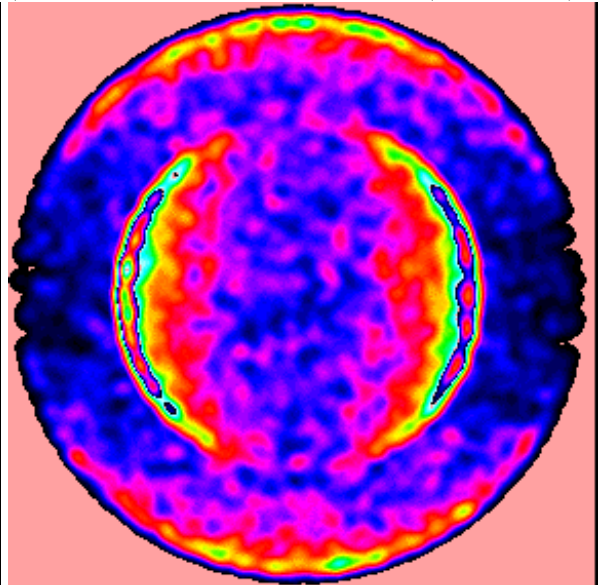
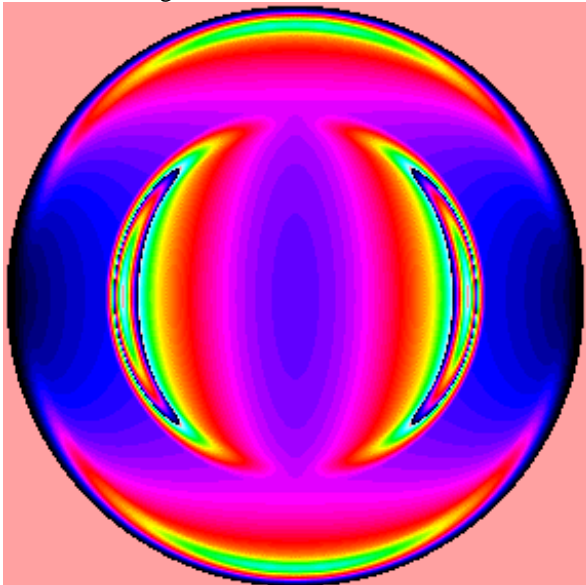


(Totale gemessen) Farbtabelle wird 2 mal durchlaufen!



Totale 90° integriert

(Totale 90° Monte-Carlo-Simulation (15000 Ionen))



Anhang A

Montage des gitterlosen Massenspektrometers

Die folgende Beschreibung bezieht sich auf Abb. 3.2. Der Zusammenbau des FMS erfolgt von der Montageplatte beginnend nach Anbringen der Gewindestangen. Die Keramikrohre, die zur Elektrodenführung und Isolation dienen, sollen erst nach dem Einbau von Elektrode 1 (wegen Bruchgefahr) über die Gewindestangen geführt werden. Die folgenden Elektroden und Keramikabstandshalter werden vorsichtig auf die Keramikstangen gefädelt, wobei darauf zu achten ist, daß diese nicht verkannten.

Da die Keramikisolatoren in ihrer Länge um ± 0.15 mm variieren, werden die insgesamt 20 Isolatoren in 5 Gruppen (4 je Elektrode) mit annähernd gleicher Länge eingeteilt. Bei einem erneutem Zusammenbau sollen die Isolatoren einer jeden Gruppe nicht gemischt werden, da sonst eine exakt parallele Elektrodenanordnung nicht gewährt ist. Bevor die Elektroden über die M3 Muttern endgültig arretiert werden, werden sie mittels eines Justagerohres (\varnothing 10 mm) exakt ausgerichtet. Beim Festziehen der Muttern ist darauf zu achten, daß das Justagerohr stets leicht durch die 10 mm Elektrodenbohrungen geführt werden kann.

Anhang B

Winkelverteilung der H-Atome aus der HJ-Dissoziation

Die Winkelverteilung der Fragmente $F(\Theta, \varphi)$ reduziert sich bei dem linearen HJ-Molekül auf eine eindimensionale Funktion $I(\Theta)$. Nach [28] ist die Winkelverteilung im klassischen Grenzfall unabhängig von der Geschwindigkeit durch :

$$I(\theta) = \frac{1}{4 * \pi} (1 + \beta * P_2(\cos \theta)) \quad \text{B.1}$$

mit dem Legendre Polynom 2. Grades

$$P_2(\cos(\theta)) = 0.5 * (3 * \cos^2 \theta - 1)$$

und dem Asymmetrieparameter

$$\beta = 2 * P_2(\cos \chi) * P_2(\cos \alpha) * g(\omega \tau)$$

mit zwei Legendre Polynomen 2. Grades P_2 und $g(\omega \tau) = \frac{1 + (\omega \tau)^2}{1 + 4(\omega \tau)^2}$

gegeben [29].

χ ist der Winkel zwischen dem Übergangsdipolmoment $\vec{\mu}$ und der Molekülachse. In dem linearen HJ-Molekül kann das Übergangsdipolmoment nur parallel oder senkrecht zur

Molekülachse stehen (sog. paralleler- und senkrechter Übergang). Somit ist $P_2(\cos\chi)$ entweder 1 oder -0.5.

α ist der mittlere Rotationswinkel des Moleküls während des Dissoziationsprozesses. Da die Dissoziation des HJ im Vergleich zur Molekülrotation sehr schnell erfolgt, wird mit $\alpha \approx 0$ $P_2(\cos\alpha) = 1$. In diesem Fall ist die Verteilung der Molekülfragmente relativ zur Polarisationsachse des Lasers ein Abbild der Übergangsmomenten-Verteilung der Molekülzustände vor der Dissoziation. $g(\omega\tau)$ ist nach Jonah [29] eine Funktion der mittleren Lebensdauer τ des angeregten Molekülzustandes relativ zur Rotationsperiodendauer des Moleküls τ_{Rot} ($\omega = 2\pi/\tau_{\text{Rot}}$). Für den Grenzfall $\tau_{\text{Rot}} \ll \tau$ ist $g(\omega\tau) = 0.25$. Im hier Vorliegenden Fall mit $\tau_{\text{Rot}} \gg \tau$ wird $g(\omega\tau) = 1$.

Somit ist für den parallelen Übergang $\beta = 2$ und für den senkrechten Übergang $\beta = -1$. Allgemein kann β beliebige Werte zwischen -1 und 2 annehmen, wobei mit zunehmenden β die Verteilung immer stärker parallel zum \vec{E} -Vektor des Feldes ausgerichtet wird.

Bei der Photodissoziation von HJ tragen drei instabile Molekülzustände gemäß der Drehimpulsauswahlregeln $\Delta\Omega = 0, +1, -1$ bei [30]. Im Falle starker LS-Kopplung besitzt für linear polarisiertes Laserlicht der Übergang mit $\Delta\Omega = 0$ ein paralleles Dipolmoment und die beiden anderen möglichen Übergänge ein senkrechtes Dipolmoment. In Abhängigkeit von $\Delta\Omega$ und β ergeben sich folgende Winkelverteilungen und Molekülzustände [31] :

$$(\Delta\Omega = 0, \beta = +2) \quad I(\Theta) = 3/4 * \pi \cos^2 \Theta \quad \text{Zustand : } {}^3\Pi_0^+ \quad (a)$$

$$(\Delta\Omega = 1, \beta = -1) \quad I(\Theta) = 3/8 * \pi \sin^2 \Theta \quad \text{Zustand : } {}^1\Pi_1, {}^3\Pi_1 \quad (b)$$

Aus der Feinstrukturaufspaltung des Jods resultieren für $\lambda = 266$ nm zwei Zerfallskanäle mit den H-Atom-Geschwindigkeiten von 11230 m/s und 17461 m/s. Aus der Drehimpulserhaltung folgt, daß für $(\Delta\Omega = 1, -1)$ Jod in den $J(P_{3/2})$ und für $(\Delta\Omega = 0)$ in den $J(P_{1/2})$ Feinstukturterm übergeht. Somit ist jeder Geschwindigkeitsgruppe eindeutig eine feste Winkelverteilung relativ zur Polarisationsrichtung des Dissoziationslasers zugeordnet.

Gemessene Absorptionsspektren der einzelnen oben aufgeführten Molekülzustände von HJ im Bereich von 280 nm bis 193 nm zeigen [32], wie sich das Verhältnis der beiden Zerfallskanäle mit der Dissoziationswellenlänge ändert. Bei einer Wellenlänge von 266 nm, dissoziieren die HJ-Moleküle mit einer Wahrscheinlichkeit von ca. 0.64 in den Kanal (a) [33].

Abb. B.1 ($\beta = -1$)

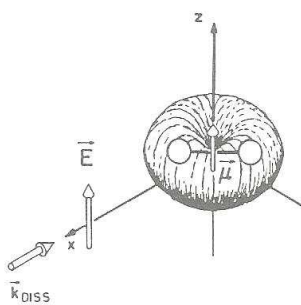


Abb. B.2 ($\beta = +2$)

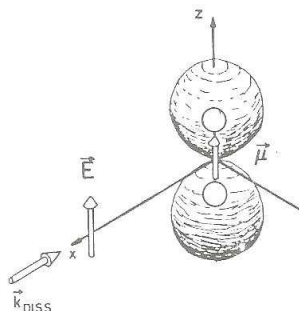


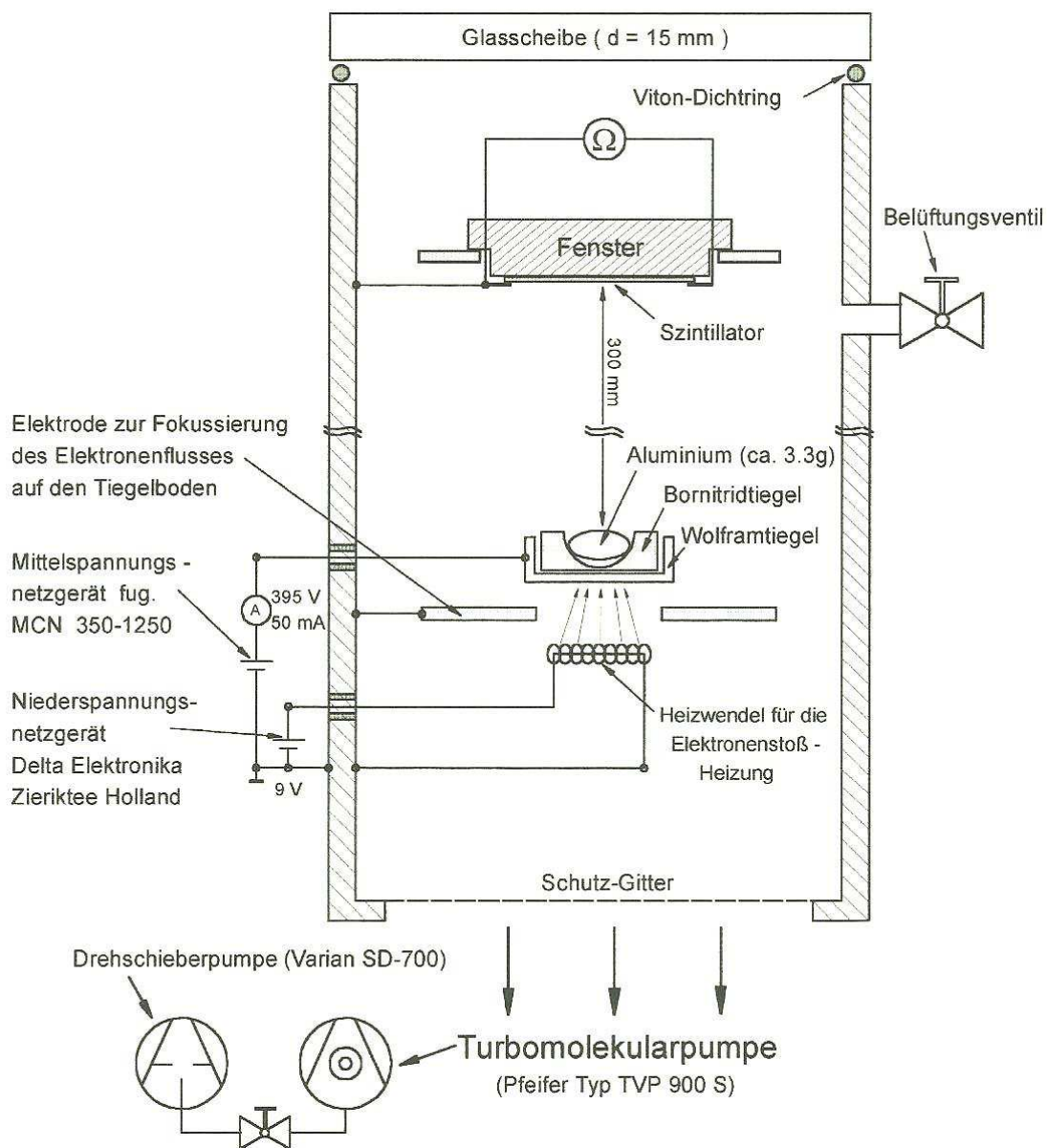
Abbildung B.1 (B.2) zeigt die Winkelverteilung für die Dissoziation mit linear polarisiertem Licht für den senkrechten Übergang (parallelen Übergang) (\vec{k}_{DISS} := Wellenvektor des Dissoziationslasers).

Anhang C

Aufbau der Aluminiumbedampfungskammer

Eine ca. 40 cm hohe Vakuumkammer (Material Al) wurde direkt mit einem 150 mm O-Ring ohne Verschraubung auf den Ansaugflansch einer horizontal gelagerten wassergekühlten Turbomolekularpumpe (Pfeifer Blazers Typ TVP 900 S , 0.37 kW) gestellt. Nach ca. 3 Stunden wurde ein Enddruck von bis zu $6 \cdot 10^{-6}$ mbar erreicht.

Abb. C.1 (schematisch) gibt einen Überblick über d. Aufbau und die elektrische Beschaltung.



Kleben und Bedampfen des Szintillators

a) Kleben

Der benutze Phosphor (Typ P47, Fa. Riedel de Haehn) mit einer Abklingzeit von 90 % auf 10% in ca. 50 ns gehört zu den schnellsten Phosphoren. Eine noch kürzere Abklingzeit wurde mit dem im Experiment benutzen Plastik-Szintillator (Typ Za. 236, Fa Zinsser Analytic) erzielt. Mit einer geschätzten Quanteneffizienz von ca. 5 Photonen je 0.100 keV Elektron und einer Abklingzeit von 100 % auf 10 % in 1.9 ns schien dieser Oszillator geeignet.

Es wurden verschiedene Klebstoffe getestet, wobei der Szintillator nach dem Antrocknen eintrübte (bei Silvac) oder durch kleine Gasbläschen die Klebung unbrauchbar wurde. Ein Silikonklebstoff (Fa. Toshiba Silicone TSE 399) erwies sich als geeignet. Dieser Klebstoff härtet nach ca. 5 Stunden nur am Kleberand aus. Um ihn auf Vakuumbeständigkeit zu prüfen, wurde ein ca. 2 cm² großes Bruchstück des Szintillators auf eine Glasplatte geklebt und 24 Stunden später in die oben beschriebene Bedampfungskammer gelegt. Es wurde unverändert ein Enddruck von ca. $5 \cdot 10^{-6}$ mbar erreicht. Nach diesen Vortest wurde die Klebeprobe in die Vakuumkammer des HJ-Dissoziations-Experimentes gelegt. Sie lies sich auf einen typischen Enddruck von ca. $2 \cdot 10^{-8}$ mbar pumpen wobei die Klebung homogen und transparent blieb.

Es wurde eine runde Scheibe des brüchigen Szintillators (40 mm Ø) mit einem Stanzring herausgetrennt und ein bemessener Tropfen des Silikonklebers in die Mitte einer Quarzglasscheibe (Supasil 2, Fa Heraeus Quarzglas) aufgetragen. Der Szintillator wurde langsam mit optischem Papier auf die Quarzplatte gedrückt, so daß der Tropfen gleichmäßig bis zum Szintillatorrand zerfloß. Klebstoffspuren konnten mit Methanol von der Szintillator-Oberfläche entfernt werden (die Szintillatoberfläche ist sehr kratzempfindlich).

b) Bedampfen

Der Plastiksintillator muß mit einer leitenden Schicht bedampft werden, weil sonst lokale statische Aufladungen die Elektronen unkontrolliert abbremsen und umlenken würden. Eine 1:1 Abbildung aller Elektronen von der MCP auf die Szintillatoroberfläche wäre nicht möglich. Die Bedampfung des Szintillators erfolgte in der oben abgebildeten Bedampfanlage in einen Abstand von ca. 30 cm, bei einen Druck von ca. $6 \cdot 10^{-6}$ mbar. Hierzu wurde eine Aluminiumkugel in einem vorher ausgeheizten Bornitrid-Tiegel (s. Abb. B1), der in einem Wolframtiegel gehalten wurde, über eine Elektronenstoßquelle durch eine schrittweise Erhöhung der Elektronenstoßspannung bis zur Weißglut erhitzt ($I_{\text{end}} = 50\text{mA}$, $V_{\text{end}} = 395\text{ Volt}$, Dauer ca. 40 Min.). Das nichtleitende Bornitrit wurde hierbei über Wärmestrahlung von dem Wolframtiegel erhitzt. Direktes Verdampfen des Al in dem Wolframtiegel führte zur Bildung einer spröden Al-Wolfram-Legierung, wodurch dieser unbrauchbar wurde. Wurde der Tiegel zu rasch erhitzt, explodierte dieser vermutlich durch anfangs in dem porösen Bornitrid noch vorhandene Wasserspuren.

Die Verdampfung des Aluminiums setzte schlagartig ein. Während der ca. 30 sek. dauernden Al-Verdampfung sank der Druck auf ca. $1 \cdot 10^{-6}$ mbar. In mehreren Testreihen hat sich eine Aluminiummasse von ca. 3.1g für die erwünschte Schichtdicke als geeignet erwiesen. Die Schichtdickenbestimmung erfolgte über einen Vergleich der Lichttransmission von mit Aluminium bedampften Testgläsern bekannter Schichtdicke. Einer Transmission vom 12 % entsprach nach Vergleich mit den Testgläsern einer Schichtdicke von ca. 500 nm. Der

Schirmwiderstand betrug ca. 20Ω . Während der Bedampfung wurde der Widerstand der aufgedampften Aluminiumschicht über zwei fest gewählte Kontaktpunkte kontrolliert. Unter der Annahme, daß der abgetastete Widerstand proportional zur Schichtdicke zunimmt, ergab sich eine Schichtdicke von ca. 30 nm bei einem gemessenen Schirmwiderstand von ca. 360Ω . Für 5000 keV Elektronen werden im Aluminium nach ca. 7 nm 63 % der Elektronen absorbiert. Nach dem Beerschen Gesetz werden somit ca. 86 % der Elektronen vor Erreichen der Szintillatortoberfläche absorbiert.

Bei der ersten kontrollierten Bedampfung wurde der Plastiksintillator extrem inhomogen bedampft. Die Al-Schicht wurde mit methanolgetränktem optischem Papier unter vorsichtigem Reiben abgetragen. Eine erneute Bedampfung mit den gleichen apparativen Parametern führte zu einer optisch (fast) homogenen Schicht.

Die 0.5 mm hohe Szintillatorkante wurde mit Silberlack (Nr.530042) leitend mit einem zuvor auf dem Quarzfenster aufgetragenen ca. 7 mm breiten Silberlack-Kontaktring verbunden.

Anhang D

Aufbau des im Experiment benutzten Nahfokus MCP-Bildverstärkers.

Der Nahfokusbildverstärker setzt sich aus den folgenden Komponenten zusammen, die schematisch in Abb. D.1 abgebildet sind. In Abbildung D.2 findet sich eine maßstabgetreue Darstellung des Bildverstärkers.

Abb. D.1

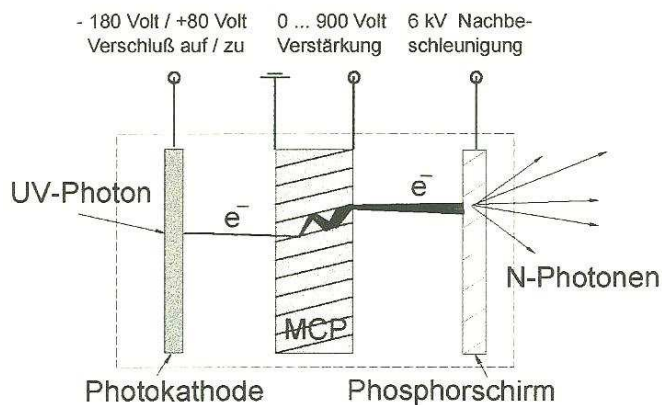
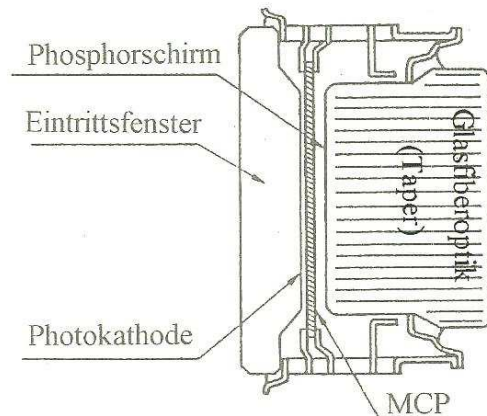


Abb. D.2



1. Photokathode

Die Photokathode besteht aus einer dünnen Schicht mit hoher Quantenausbeute (bis zu 20 %). Je nach Material (Mischung verschiedener Alkalimetalle) und Schichtdicke variiert der obere Spektralbereich von 1200 bis 650 nm. Die Quantenausbeute ist über den Quotienten der erzeugten Photoelektronen und den eingehenden Photonen definiert.

An der Photokathode liegt eine Spannung von ca. -180 V bis +80V an. Nur bei negativen Spannungen können die Elektronen zum nachgeschalteten MCP-Verstärker beschleunigt werden. Die Photokathode bildet in Verbindung mit einem Pulsgenerator, der in ca. 5 ns 200 Volt schaltet, einen entsprechend schnellen elektronischen Verschluß mit einem Öffnungs-

verhältnis von ca. $1:10^7$. Die kapazitive Last der Photokathode beiträgt ca. 100 pF. Der aktive Durchmesser liegt bei ca. 18 mm.

2. Mikrokanalplatte (MCP)

Die MCP ist ein Feld von 10^6 bis 10^7 parallel angeordneten Minatur-Photomultipliern. Jeder Multiplier wird aus einem ca. 500 μm langen und 10 μm dicken Kanal gebildet, der aus einer leitend beschichteten Glaskapillare besteht. Die Funktion einer Dynodenkette übernimmt die mit einem Halbleiter beschichtete Mikrokanalwandung. Die eintreffenden Elektronen lösen am MCP-Eingang Sekundärelektronen aus. Diese lösen auf dem Weg durch einen Mikrokanal über Wandstöße eine Elektronenlawine aus (Sekundärelektronenvervielfachung).

Die Elektronen werden um den Faktor 1000 bis 20000 vervielfacht. Der Verstärkungsfaktor hängt hauptsächlich von dem Verhältnis Kanallänge zu Kanaldurchmesser α und dem angelegten Potential V ab. Mit :

α = Länge / Durchmesser eines Kanals (α liegt zwischen 40 u. 80)

G = Gain-Faktor (abhängig von α und dem Material der Mikrokanalwandung)

ergibt sich für die Verstärkung g einer Einzel-MCP : $g = \exp(G \cdot \alpha)$

Für den Gain-Faktor G ergibt sich nach Schagen [34] in guter Übereinstimmung mit experimentellen Daten folgende Relation :

V = MCP-Spannung

V_0 = Startenergie eines Sekundärelektrons ca. 1 eV

k = Materialkonstante

$$G = \left(\frac{k * V}{2 \alpha V_0^{1/2}} \right)^{\frac{4 V_0 \alpha^2}{V}}$$

3. Phosphorschirm

Die die freigesetzten Elektronen werden über ein Potential von ca. 6 kV auf einen Phosphorschirm beschleunigt, der hierdurch zum Leuchten angeregt wird. Meist wird ein Phosphor vom Typ P43 oder P20, die zu den Phosphoren mit dem höchsten Wirkungsgrad gehören, eingesetzt.

(P43 spektraler Emissionsbereich 370 - 680 nm, Leuchtdichteabfall auf 10 % in 1 ms

P20 spektraler Emissionsbereich 400 - 700 nm, Leuchtdichteabfall auf 10 % in $10^{-4} * 10^3 \mu\text{s}$ aus Datenblatt der Firma PCO).

Die Bildverstärkerkomponenten (s. Abb. D.1) sind in einer Hochvakuumröhre versiegelt. Die kompakte Bauweise gewährt homogene elektrische Beschleunigungsfelder, so daß keine zusätzlichen elektrooptischen Elektroden erforderlich sind (vergl. Prinzipschaltung mit maßstabsgetreuer Darstellung Abb. D.2). Bei zu hoher Beleuchtung kommt es in den MCP-Kanälen zu einem Sättigungseffekt, der die Verstärkung stark herabsetzt (Warnung: Im Bildverstärker können bei zu hohen Lichtintensitäten (z. B. direkte Laserreflexe) lokale Einbrennungen auf der Photokathode entstehen.)

CCD-Kamerasystem - Kamerasystem

Die CCD-Kamerasystem setzt sich aus den Komponenten Bildverstärker, Taper, CCD-Sensor und Steuerungselektronik zusammen. Die optische Kopplung zwischen Phosphorschirm und CCD-Sensor erfolgt über ein Linsensystem oder eine Glasfaseroptikplatte (Taper) mit einer integralen Transmission von 60 % - 80 %. Letztere erlaubt eine kompakte Bauweise. Bei der im Experiment eingesetzten CCD-Kamera wurden sog. reduzierende Glasfaseroptiken (tapered fibers) verwandt, um so das in der Auflösung begrenzte Phosphorschirmbild mit einer der Pixeldichte des CCD-Chips angepaßten Ortsauflösung zu übertragen. Auf die Grenzfläche zwischen Taper und Bildverstärker und der Grenzfläche von Taper und CCD-Chip wird zur Anpassung des Brechungsindex Immersionsöl gegeben. Die resultierende Lichtverstärkung für das im Experiment verwandte CCD-Kamerasystem lag, je nach der Bildverstärker-Spannung, zwischen 5 und 10.

Spektrale Empfindlichkeit des Bildverstärkers

Der untere detektierbare Wellenlängenbereich wird durch das Eingangsfenstermaterial bestimmt: MgF₂ 120 nm, Quarzglas 180 nm, Faseroptik 350 nm.

Die obere Wellenlängenbereichsgrenze hängt im wesentlichen von den Photokathoden-Materialien ab: S1(Ag-0-Cs) 1200 nm, S20(Multialkali) 800 nm, Bi (Bialkali) 650 nm. Weitere Informationen zu CCD-Detektorsystemen können aus der Diplomarbeit von F. Borman [35] entnommen werden.

Funktionsprinzip des CCD-Chips (Charge Coupled Device-Chip)

Der CCD-Chip ist ein optischer Detektor mit einer hohen Signaldynamik und Linearität von bis zu 4 Größenordnungen. Auf dem im Experiment verwandten CCD-Chip (Thomson TH7863) ist eine Matrixstruktur von 286×384 mit je 22.5×22.5 Quadratmikrometern großen Pixeleinheiten integriert.

Im wesentlichen werden sogenannte Interline-Transfer und Frame-Transfer-Chips eingesetzt. Beim (Interline-Transfer-Chip) enthält jede Pixeleinheit eine lichtempfindliche Sensorzelle und zwei lichtunempfindliche Phasenelemente. Bei dem (Frame-Transfer-Chip) sind die Phasenelementzellen selbst lichtempfindlich. Die vertikale örtliche Auflösung ist bei diesem Chip-Typ optimal (die Sensorfläche wird nicht durch die abgedunkelten Phasenelemente unterbrochen).

Im folgenden wird die Funktionsweise des Frame-Transfer-Chip-Typs, zu dem der im Experiment eingesetzte Chip gehört, skizziert.

Das einfallende optische Bild setzt proportional zur lokalen Lichtintensität und der Belichtungszeit über den Inneren Fotoeffekt (Elektronen-Loch-Paarzeugung) in den lichtempfindlichen Sensorzellen jeder CCD-Pixeleinheit Ladungen frei. Diese werden in den Phasenelementzellen in einer Potentialmulde auf Abruf zwischengespeichert. Jeweils vier Phasenelementzellen einer Zellenpalte bilden eine sog. 4-Phasen-Schiebe-Registerzelle.

Die Phasenelemente werden elektronisch so angesteuert, daß sie für das Ladungspaket abwechselnd eine Ladungssenke oder Barriere bilden. Es resultiert eine Potentialwanderwelle

in der die Ladungspakete, ohne mit Nachbarkpaketen zu mischen, fast verlustfrei durch den CCD-Chip transportiert werden.

Die Schieberegisterzellen in einer CCD-Spalte bilden ein vertikales Schieberegister. Sämtliche Schieberegister bilden so zeilenweise eine zweidimensionale Matrix, in der die Bildinformation als Ladungsmuster gespeichert ist. Diese Matrix wird als paralleles Register bezeichnet.

Die Chipfläche des Frame-Transfer-Chips hat mit einem separaten Belichtungsblock und einem abgedunkelten Schieberegister (Phasenzellenanordnung analog zum Belichtungsblock) ca. die doppelte Größe eines Interline-Transfer-Chips. Das Auslesen eines Bildes aus dem abgedunkelten Schieberegister erfolgt zeilenweise in drei Schritten (s. Abb. D.3 - D.5).

1. Sämtliche Ladungspakete werden durch vertikales Schieben in den abgedunkelten Schieberegisterbereich übernommen (Übernahmedauer ca. 500 μ s). In dieser Zeit darf der Frame-Transfer-Chip nicht belichtet werden (s. Abb. D.3).
2. Übernahme einer Bildzeile in ein serielles Register, indem die Ladungen in jedem Schieberegister vertikal um eine Pixeleinheit weiter geschoben werden (s. Abb. D.4).
3. Horizontales serielles Auslesen einer Bildzeile aus dem seriellen Register in eine Signalaufbereitungsstufe (ca. 64 μ s je Zeile). Hierbei werden die Ladungspakete einzeln ausgelesen u. proportional z. Ladungspaketgröße als Analogsignal verstärkt (s. Abb. D.5).

Abb. D.3

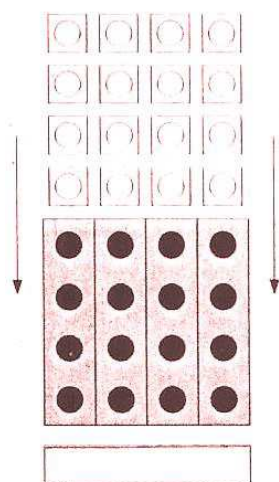


Abb. D.4

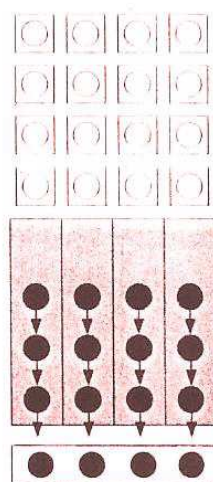
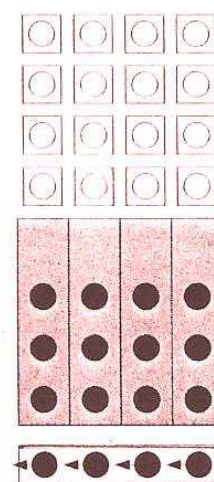


Abb. D.5



Während die abgedunkelten Schieberegister ausgelesen werden, können in dem Belichtungsblock neue Ladungen aufintegriert werden. Schritte 1 bis 3 erfolgen mit einer festgelegten Folge periodisch wechselnder Gate-Potentiale, über eine mit einer quarzstabilisierten Taktfrequenz gesteuerten zentralen Prozeßeinheit.

Das ausgelesene Analogsignal wird im Experimentrechner (PC, 486-CPU 33 MHz) mittels einer Analog / Digital (A/D)-Wandlerkarte für die weitere Bildverarbeitung digitalisiert.

Anhang E

Umbau: Gitterloses Massenspektrometer als Reflektron

a) Massenspektrometerumbau zum Reflektron (Beispiel nicht Gegenstand der Dipl. Arbeit)

Hier wird kurz die „Möglichkeit“ vorgestellt, wie das im Teil 1 beschriebene FMS zu einem **Reflektron** umgebaut werden könnte. Unter Berücksichtigung der im Anschluss skizzierten Theorie und der „Simion- Simulations- Ergebnisse“ hat sich die hier vorgestellte Anordnung für das FMS (s. Kapitel 2.3) als theoretisch geeignet heraus gestellt.

Das FMS wird hierbei als „gitterlose“ Abzugseinheit eingesetzt und mit einer „Reflektoreinheit“ kombiniert. Abzugseinheit und Reflektoreinheit müssen aufeinander abgestimmt sein.

Abb. E.1 FMS als „gitterlose“ Abzugs- Einheit

(Simion- Simulation)

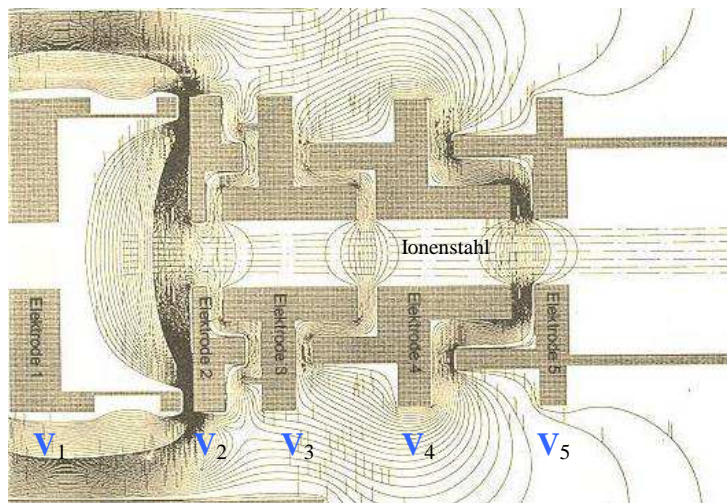
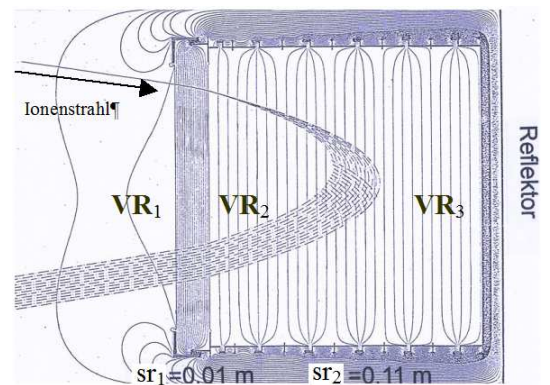


Abb. E.2 „Reflektor – Einheit“

(Simion- Simulation)



Berechnete Potentiale: Driftstrecke $D_R := 1,35$ m

Abzugseinheit:

Elektroden-**Abzugs**-Spannungen V_1 bis V_5 (in Volt):

$V_1 := 1800 - 2500$ (Feinjustage Auflösung $\Delta m/m$)

$V_2 := 500$

$V_3 := 0$

$V_4 := 500 - 700$ (Fokussierung: Ionen-Strahl)

$V_5 := 0$

Reflektor:

Elektroden-**Brems**-Spannungen VR_1 bis VR_3 (in Volt):

$VR_1 := -1054$

$VR_2 := -830$ bis -870 (Feinjustage Auflösung $\Delta m/m$)

$VR_3 := 0$

Reflektor:

Durchmesser: 0,12 m

Gitterabstände:

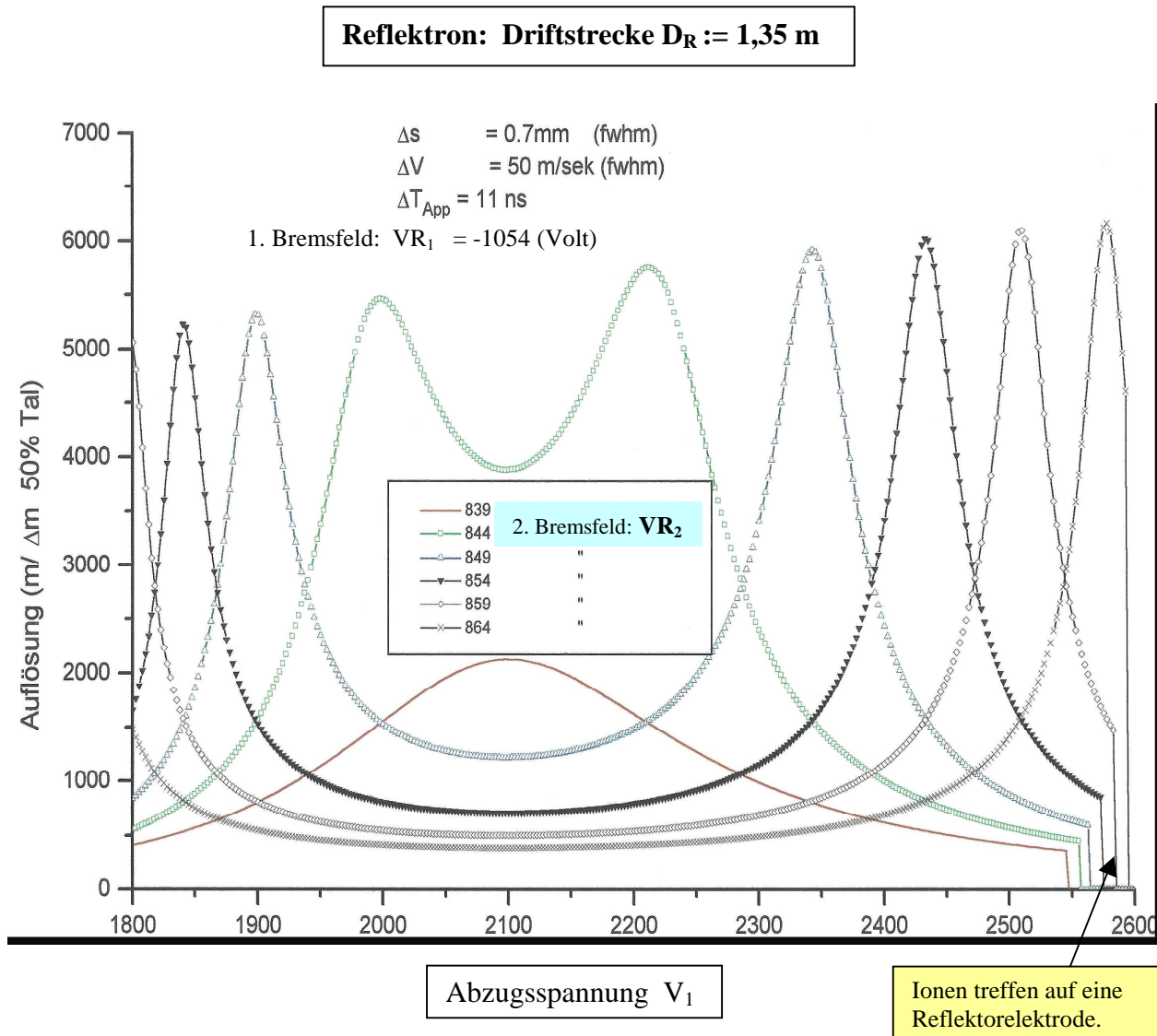
$sr_1 = 0,01$ m

$sr_2 = 0,11$ m

Neigung: $8,5^\circ$ (zur Ionenstrahl-Achse)

Abb. E.3 Abschätzung der Massenauflösung $m/\Delta m$ abhängig von den Elektroden Spannungen V_1 und VR_2

Hier wird das Auflösungsverhalten des Reflektrons in Abhängigkeit von der **Eindringtiefe** der Ionen in den **zweiten** Reflektorfeldbereich aufgezeigt. Für die Reflektor- Brems-Spannung VR_2 werden verschiedene fixe Werte eingesetzt. Die Abzugsspannung V_1 wird zwischen 1800 bis 2600 Volt variiert. Das 1.te Bremsfeld VR_1 ist konstant **minus** 1054 Volt.



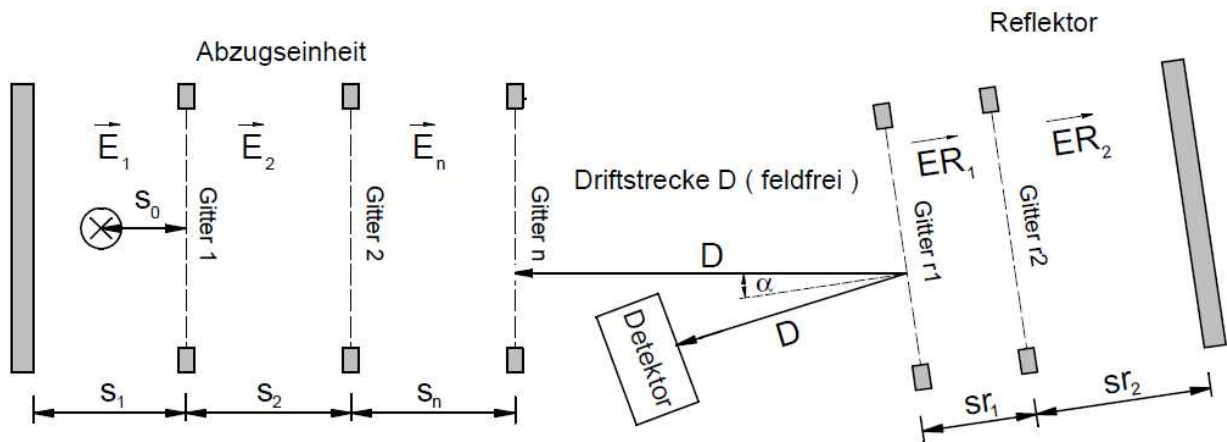
Abschätzung der Auflösung erfolgte analog zu (1.13 Seite 13 und Abb. 1.3 Seite 14).

Beim Reflektron gibt es ab einer gewissen Eindringtiefe **zwei** Werte für die Abzugsspannung V_1 , bei der die Auflösung $m/\Delta m$ maximiert wird. Die absolute Auflösung nimmt mit zunehmender Eindringtiefe in den zweiten Reflektorteil zu.

Werden die Potentiale so gewählt, daß die Ionen erst unmittelbar vor der Endelektrode **ER₃** des Reflektors reflektiert werden, können die Ionen durch eine geringe Variation des Reflektorpotentials **selektiv** oberhalb einer bestimmten kinetischen Energie **neutralisiert** werden. Auf diese Weise kann die Breite der Zeitverschmierung durch die “turn-around-time“ verkleinert werden.

b) Theorie Funktionsprinzip Reflektron

Abb. E.4 n-Stufen Reflektron (mit Gittern) (Näherung für die gitterlose Abzugseinheit)



In Analogie zu dem in Teil 1 beschriebenen FMS werden beim Reflektron die Flugzeiten von Ionen mit „einheitlicher“ kinetischer Energie gemessen. Die Ionenmasse kann dann eindeutig über die Flugzeit berechnet werden.

Hierzu werden in einem Reflektron Ionen z.B. mit Elektronestoßionisation (im ideal Fall) zur Zeit t_0 am Ort s_0 erzeugt und durch elektrostatische Felder auf die selbe kinetische Energie (bei einheitlicher Ionenladung) beschleunigt, bevor sie in einen elektrostatischen Reflektor gelangen. Die Eindringtiefe der Ionen in den Reflektor hängt nur von der kinetischen Energie der Ionen ab.

Die Ionenflugzeit nimmt dabei proportional zum Masse-Ladungs-Verhältnis $\sqrt{m/q}$ zu.

Im allgemeinen besteht ein Reflektron aus einem starken homogenen Abzugsfeld, gefolgt von einem homogenen Nachbeschleunigungsfeld. Nach einer feldfreien Driftstrecke treffen die Ionen senkrecht, oder unter einem **Winkel α** , auf einen elektrostatischen Reflektor. Dort verlieren die Ionen in einem starken homogenen elektrischen Feld auf kurze Distanz einen großen Teil ihrer kinetischen Energie (ca. 30 bis 80%), bevor sie in einem darauf folgenden schwachen elektrischen Feld, nach einer Eindringtiefe von meist mehreren Zentimetern, reflektiert werden [5]. Nach Verlassen des Reflektors werden sie, nach einer weiteren Driftstrecke über einen Detektor nachgewiesen. Die homogenen Feldabschnitte werden durch Gitter getrennt.

Die Gesamtflugzeit T_{ges} für ein Reflektron mit n -Beschleunigungsstufen ergibt sich aus der Summe der Flugzeiten T_i in den einzelnen Beschleunigungsabschnitten, der Flugzeit in der Driftstrecke T_{Drift} vor dem Eindringen in den Reflektor und nach Verlassen des Reflektors bis zum Detektor und der Verweildauer innerhalb des Reflektors T_{Ref} .

$$T_{\text{ges}} = T_1 + T_2 + T_i \dots + T_n + T_{\text{Drift}} + T_{\text{Ref}}$$

Wie beim FMS ist die Ionenflugzeit nur bei punktförmigen Startvolumen und einheitlicher kinetischer Startenergie eindeutig durch das Masse-Ladungsverhältnis (m/q) bestimmt.

Bei einem Durchmesser Δs des Ionisations-Volumens dV , erreichen die Ionen mit einer Energieunschärfe ΔU ($\Delta U = \Delta s E_1 q$) an Kinetischer Energie den Reflektor. Beim Reflektron haben, wegen des in Relation zum Abzugsfeld schwächeren homogenen folgenden Nachbeschleunigungsfeldes, die energiereicheren und somit schnelleren Ionen die langsameren Ionen, die im Abzugsfeld eine um Δs kürzere Flugstrecke haben, bereits innerhalb des Bremsfeldes überholt.

Somit nimmt die Flugzeit für ein Ion bis zum Reflektor eindeutig mit steigender Energie, für eine feste Masse m und Ladung q , ab.

Weil das Ion mit zunehmender Energie tiefer in das Reflektorpotential eindringen kann und somit eine längere Aufenthaltsdauer innerhalb des Reflektors hat, andererseits aber die Flugzeit in der Driftstrecke mit steigender Energie abnimmt, ist es bei einer geeigneten Wahl der Potentiale im Reflektor möglich, die Flugzeitdifferenz für Ionen mit **konstantem** m/q Verhältnis und unterschiedlicher kinetischer Energie zu minimieren.

Die Flugzeitverbreiterung durch die "turn-around-time" T_{Tum} ist im Vergleich zum FMS wegen des stärkeren Abzugsfeldes kleiner, kann aber wie beim FMS nicht explizit minimalisiert werden, weil ein Ion, das im Punkt s_0 mit einem festen Geschwindigkeitsbetrag startet unabhängig seiner Startrichtung auf die gleiche kinetische Energie beschleunigt wird, mittels des Reflektors aber nur Flugzeitkorrekturen zwischen Ionen unterschiedlicher Energie möglich sind.

c) Bestimmung der Flugzeitfunktion $T(s,v,m)$ im Reflektron

Analog zur Flugzeitbestimmung im FMS wird die Flugzeit als Summe über die jeweiligen Beschleunigungszeiten T_i in den homogenen Feldabschnitten nach (1.4 und 1.5 Seite 7) bestimmt. Zusätzlich muß die Flugzeit in dem zweistufigen statischen Reflektor berechnet werden. Die Flugzeit in dem 2. Reflektorteil ist gleich der "turn-around -time" für Ionen mit entsprechender kinetischer Energie. Tritt das Ion unter dem Winkel α relativ zur Normalen des ebenen Gitters in den Reflektor ein, ist nur die Gewindigkeitskomponente $v_p = v \cdot \cos(\alpha)$ parallel zum elektrischen Feld für die Flugzeit relevant.

Mit:

ER_1 : Feldstärke im 1. Reflektorteil (Ionen werden stark abgebremst)

ER_2 : Feldstärke im 2. Reflektorteil (Ionen werden reflektiert)

sr_1 : Gitterabstand im 1. Reflektorteil

sr_2 : Gitterabstand im 2. Reflektorteil

U_n : Ionenenergie vor dem Reflektor (analog zu 1.4 definiert!)

E_i : Feldstärke im i-ten „Abzugeinheits-Bereich“

und UR_1 : Gesamtenergie des Ions direkt nach dem Passieren des 1. Reflektorteils

$$UR_1 = U_n - sr_1 ER_1 q$$

ergibt sich die Flugzeit im **Reflektor** T_{Ref} aus:

$$T_{\text{Ref}} = \frac{\sqrt{2m}}{q} * \left[\frac{1}{ER_1} \cdot (\sqrt{UR_1} - \sqrt{U_n}) - \frac{1}{ER_2} \cdot (\sqrt{UR_1}) \right] \cdot 2 \cdot \cos(\alpha) \quad (\text{mit } ER_1 < 0 \text{ u. } ER_2 < 0)$$

Die Flugzeit T_1 in der Abzugeinheit ist (analog zu 1.4 Seite 7):

$$T_1 = \frac{\sqrt{2m}}{q \cdot E_1} * \left(\sqrt{U_0 + s_0 E_1 q} \pm \sqrt{U_0} \right) \quad (\text{das positive Vorzeichen steht bei } v_z < 0)$$

Die weiteren Flugzeiten $T_2 \dots T_i \dots T_n$ berechnen sich analog zum FMS:

$$T_i = \frac{\sqrt{2m}}{q \cdot E_i} * \left(\sqrt{U_i} - \sqrt{U_{(i-1)}} \right) \quad (\text{für } E_i \neq 0)$$

$$T_i = \sqrt{2m} * \frac{s_i}{2\sqrt{U_{(i-1)}}} \quad (\text{für } E_i = 0)$$

und

$$T_{\text{Drift}} = \sqrt{2m} * \frac{D}{2\sqrt{U_n}} \quad (D := \text{freie Driftstrecke})$$

Die gesamte Flugzeit T_{ges} ist (in guter Näherung) proportional zu $\sqrt{m/q}$ (analog zu 1.5 Seite 8) und ergibt sich hier aus folgender Summe:

$$T_{\text{ges}} = T_1 + T_2 + T_3 \dots T_n + T_{\text{Drift}} + T_{\text{Ref}}$$

d) Raumbfokussierung im Reflektron

Die Gesamtflugzeit T_{ges} ist eine Funktion von s_0 und v .

($s_0 :=$ Abstand zum ersten Abzugsgitter)

wegen: $U_0 = \frac{1}{2} m v_z^2$ U_0 : kin. Energie des Ions für die Translation || zur z- Achse

und $U_1 = U_0 + s_0 E_1 q$ U_1 : kin. Energie des Ions für die Translation || zur z-Achse hinter dem 1. (Gitter/ Abzugsfeldabschnitt)

Die Raumbfokussierungsbedingung f. d. Reflektron ist analog zum FMS (1.8 Seite 9)

über : $\frac{\delta T_{\text{ges}}(s_0, v)}{\delta s_0} = 0$ (a.4.1) definiert.

Die **feldfreie Driftstrecke D_R** , für die die **Raumbfokussierungsbedingung** erfüllt ist, ergibt sich als Funktion der Elektrodenabstände s_i und den Potentialdifferenzen V_i zwischen den Elektroden des n-Stufen -Reflektrons durch Auflösen von (a.4.1) nach ($D := D_R$) zu:

$$D_R = \frac{2}{q} \cdot (U_n)^{\frac{3}{2}} * \left[\frac{1}{E_1 \sqrt{U_1}} + \sum_{i=2}^n \frac{1}{E_i} \cdot \left(\frac{1}{\sqrt{U_i}} - \frac{1}{\sqrt{U_{i-1}}} \right) + \frac{2 \cos(\alpha)}{E R_1} \cdot \left(\frac{1}{\sqrt{U R_1}} - \frac{1}{\sqrt{U_n}} \right) - \frac{2 \cos(\alpha)}{E R_2 \sqrt{U R_1}} \right]$$

mit $U_0 \cdot q = V_0$ $\frac{U_1}{q} = (V_0 + V_1 \cdot \frac{s_0}{s_1})$ $\frac{U_i}{q} = (V_0 + V_1 \cdot \frac{s_0}{s_1} + \sum_{j=2}^i V_j)$

und $\frac{U R_1}{q} = (V_0 + V_1 \cdot \frac{s_0}{s_1} + \sum_{j=2}^n V_j - V R_1)$

kann D_R zu folgendem Ausdruck umgeformt werden:

$$D_R = 2 \cdot \left(\frac{U_n}{q} \right)^{\frac{3}{2}} * \left[\frac{s_1}{V_1 \sqrt{V_0 + \frac{V_1 s_0}{s_1}}} + \sum_{i=2}^n \frac{s_i}{V_i} \cdot \left(\frac{1}{\sqrt{\frac{U_i}{q}}} - \frac{1}{\sqrt{\frac{U_{i-1}}{q}}} \right) + \left(\frac{s r_1}{VR_1} \cdot \left(\frac{1}{\sqrt{\frac{UR_1}{q}}} - \frac{1}{\sqrt{\frac{U_n}{q}}} \right) - \frac{s r_2}{VR_2} \cdot \frac{1}{\sqrt{\frac{UR_1}{q}}} \right) \cdot 2 \cos(\alpha) \right]$$

e) Allgemeine Hinweise zum Reflektronbetrieb

Es sinnvoll die Ionen unmittelbar hinter dem möglichst hohen Abzugsfeld in dem darauf folgenden Feld abzubremsen, um die Driftzeiten in der feldfreien Flugstrecke D zu erhöhen.

Nur wenn die Ionen so viel kinetische Energie besitzen, daß sie nicht bereits im ersten Bremsfeld des Reflektrons reflektiert werden, können sie raumfokussiert werden. Andererseits muß das Bremspotential so hoch gewählt werden, daß die Ionen nicht an der hinteren Reflektorelektrode neutralisiert werden.

Treffen die Ionen unter dem Winkel α auf den Reflektor, so darf der **Parabeldurchmesser** der Ionenflugbahn nicht größer als der Gitter Durchmesser ρ_G des Reflektors werden.

Somit müssen zusätzlich folgende Bedingungen für die Reflexion der Ionen im homogenen n-Stufen-Reflektron erfüllt werden:

1. damit ein Ion mit der Startenergie qV_0 in das zweite Feld des Reflektors gelangen kann und in diesem noch reflektiert wird:

$$\cos(\alpha) \cdot VR_1 < (V_0 + V_1 \cdot \frac{s_0}{s_1} + \sum_{j=2}^n V_j) \leq \cos(\alpha) (VR_1 + VR_2)$$

2. der Parabeldurchmesser der Ionenflugbahn kleiner als der Gitterdurchmesser ρ_G ist

$$\sin(\alpha) \cdot \sqrt{\frac{2U_n}{m}} \cdot T_{ref} < \rho_G$$

T_{ref} := Flugzeit im Reflektor
 U_n := Ionenenergie vor dem Reflektor (s. Seite 109)

Hinweis:

Werden die Potentiale so gewählt, daß die Ionen erst unmittelbar vor der Endelektrode des zweiten Reflektors reflektiert werden, können die Ionen durch eine geringe Variation des Reflektorpotentials **selektiv** oberhalb einer bestimmten kinetischen Energie **neutralisiert** werden. Auf diese Weise kann die z.B. Breite der Zeitverschmierung durch die "turn-around-time" verkleinert werden.

Literaturverzeichnis

- [1] L. Schnieder, W. Meier, K. H. Welge and M. N. R. Ashfold, and C. M. Western., J. Chem. Phys. 92 , 7027 (1990).
- [2] P. Löffler, Dissertation, Bielefeld 1997
- [3] David W.Chandler Paul L. Houston J.Chem. Phys. 87 (2) 1445 (1987)
- [4] Hong Ni, Joseph M. Serafin, and James J. Valentini , J.Chem. Phys. 104 (6), 2259 (1996)
- [5] Jack A. Syage J.Chem. Phys. 105 (3) , 1007 (1996)
- [6] R. Schmiedel, H. Dugan, W. Meier and K.H. Welge, Z. Phys. A -Atoms and Nuclei 304, 137-142 (1982)
- [7] Clear, RD., Riley S.J., Wilson, K.R., J. Chem. Phys. 63, 1340 (1974)
- [8] E. Wrede, Diplomarbeit, Bielefeld (1993)
- [9] K. Seekamp-Rahn, Dissertation Bielefeld (1996)
- [10] W. C. Wiley and I. H. McLaren Rev. Scient. Inst. 26 (12) 1150 (1955)
- [11] George Sanzone Rev. Scient. Inst. 41 (5) (1970)
- [12] U. Boesel, R. Weinkauff and E.W. Schlag Internat. J. Mass Spectrometry and Ion Processes, 112 , (121-166) (1992)
- [13] N. L. Marable and George Sanzone, Internat. J. Mass Spectrometry and Ion Phys. 13 (185-194) (1974)
- [14] J. A. Browder, R.L. Miller, W.A. Thomas and G.Sanzone Internat. J. Mass Spectrometry and Ion Phys. 37 (99-108) (1981)
- [15] K. Walter, U. Boesl and E.W.Schlag Internat. J. Mass Spectrometry 71 (309 -313) (1986)
- [16] D.M. Lubman Laser Focus/Elektro-Optics (6) (110- 115) (1984)
- [17] Harting, E. ,Read; F.H. : Elektrostatische Lenses. Amsterdam : Elsevier 1972
- [18] Heise, F. ,Rang , O. : Experimentelle Untersuchungen an elektrostatischen Elektronenlinsen. Optik 5 (1949) (201 -16)
- [19] J. Großer Teilchenoptik Teubner Stuttgart (1983)
- [20] M.Hesse, H. Meier, B.Zech, Spektroskopische Methoden in der organischen Chemie Georg Thieme Verlag Stuttgart - New York (1984)
- [21] Theofanis N. Kitsopoulos, Mark A. Buntine, David P.Baldwin, Richard N. Zare, David W. Chandler Science Vol. 260 (6) 1605 (1993)

Literaturverzeichnis

- [22] J.B. Anderson, Molecular Beams and Low Density Gas Dynamics, Edit. P.P. Wegener, Dekker Inc., New York 1974
- [23] K. Seekamp-Rahn, Diplomarbeit, Bielefeld (1989)
- [24] E. Wrede, Dissertation, Bielefeld (1997)
- [25] Jens Borkowki Diplomarbeit, Bielefeld (1993)
- [26] David W. Chandler, Maurice H. M. Janssen, Steven Stolte, Robin N. Strickland, John W. Thoman, Jr. and David H. Parker
American Chemical Society 1990 reprinted from J. Physical Chemistry 94 (1990)
- [27] Numerical Recipes in C, W. H. Press, S. A. Teukolsky, W.T Vetterling, B.P. Fannery, Cambridge University Press (1992)
- [28] Busch G.E., Wilson, K. R., J. Chem. Phys. 56, 3638 (1972)
- [29] Jonah, C., J. Chem. Phys. 55, 1915 (1971)
- [30] I. Levy und M. Shapiro, J. Chem. Phys. 89, 2900 (1988)
- [31] W. Maier, Diplomarbeit, Bielefeld (1982)
- [32] G. N. A. van Veen, K. A. Mohamed, T. Baller und A. E. de Vries, Chem. Phys. 80, 113 (1983)
- [33] R. D. Clear, S. J. Riley und K. R. Wilson, J. Chem. Phys. 63, 1340 (1975)
- [34] P. Schagen, Advances in image pick-up and display, vol. 1, Academic Press, New York (1974)
- [35] Diplomarbeit, F. Borman, Bielefeld (1994)

Danksagung

Die vorliegende Diplomarbeit wurde an der Fakultät für Physik der Universität Bielefeld unter der Leitung von Herrn Prof. Dr. P. Andresen angefertigt, dem ich für die erhaltene Unterstützung danke. Besonders möchte ich Herrn Dr. habil. Ludger Schnieder und Herrn Dipl.-Phys. Eckart Wrede für viele hilfreiche Gespräche, die erhaltene Unterstützung, eine sehr gute Zusammenarbeit und das stete Interesse am Fortgang der Arbeit danken.

Weiterhin danke ich allen Mitglieder der Arbeitsgruppe, besonders Frau Britta Niederjohann und Herrn Dipl.-Phys. Peter Löffler, sowie Dr. M. Drescher und allen Mitgliedern der Fakultät für Physik und Chemie für die erhaltene Hilfe.

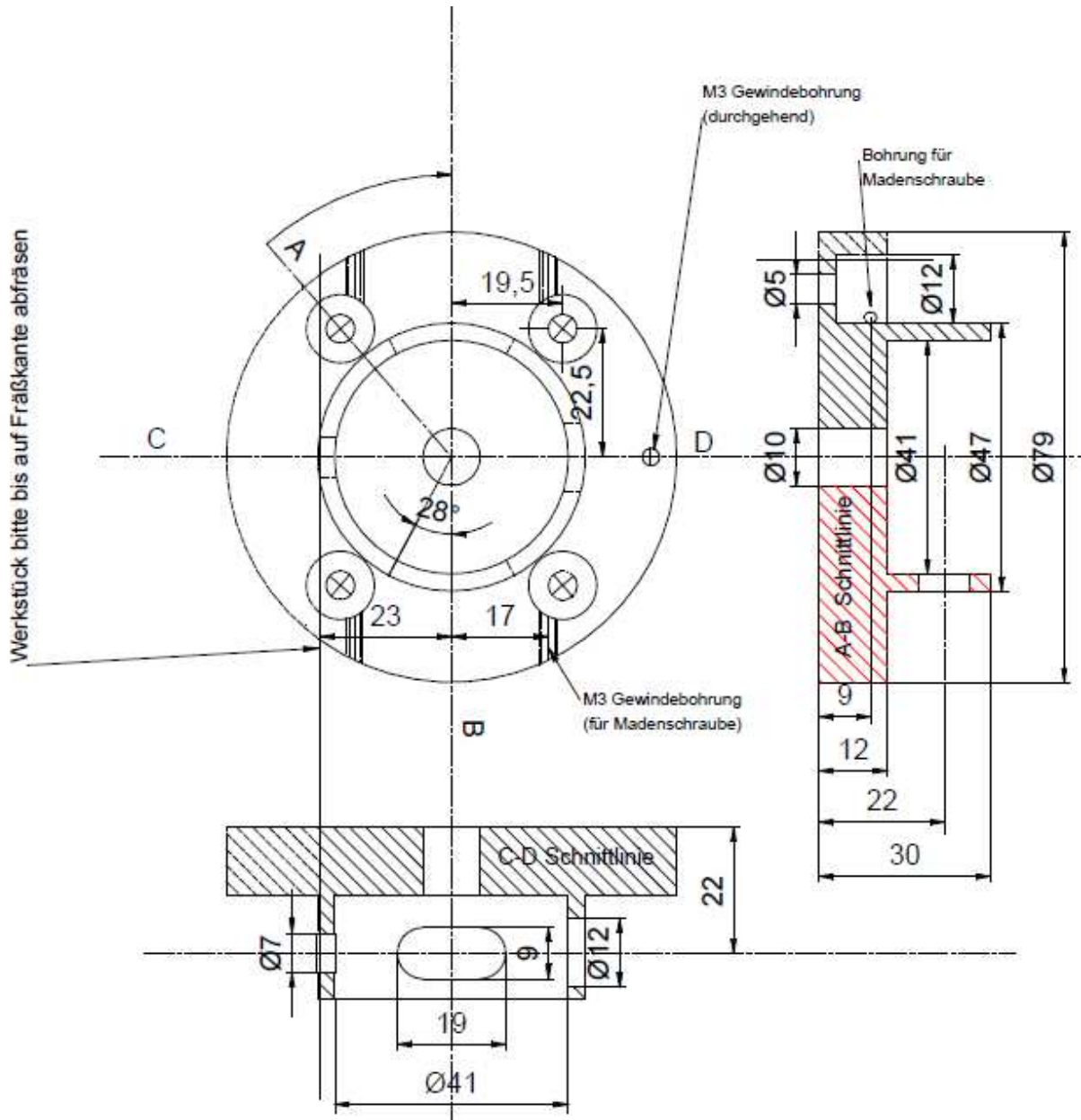
Den Mitarbeitern der technischen Werkstätten möchte ich für die sorgfältige Erledigung der Aufträge danken.

Ich versichere hiermit, daß ich die vorliegende Diplomarbeit selbständig und nur mit den zitierten Hilfsmitteln angefertigt habe.

Konstruktionszeichnungen

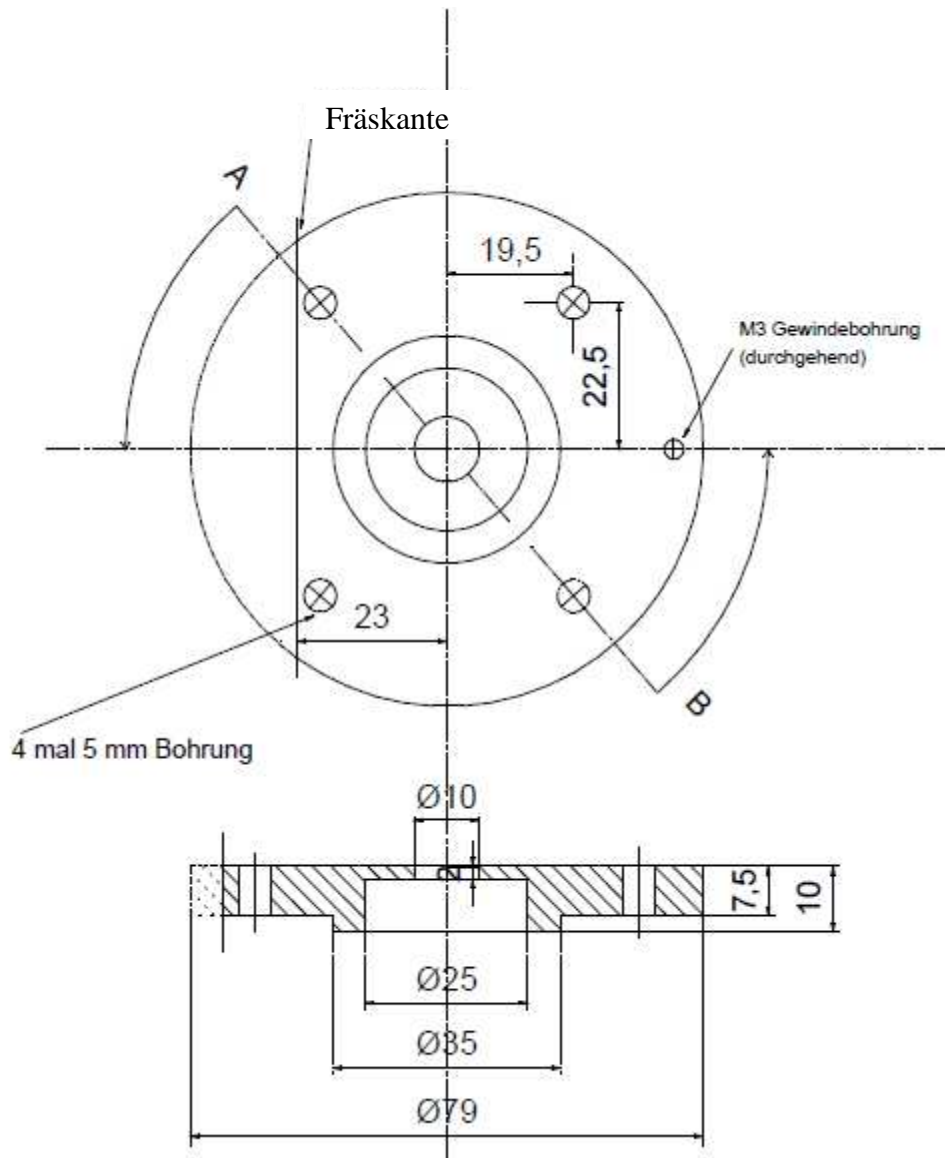
Flugzeitmassenspektrometer (TOF) (Übersicht siehe S. 21)

M 1:1 Elektrode 1



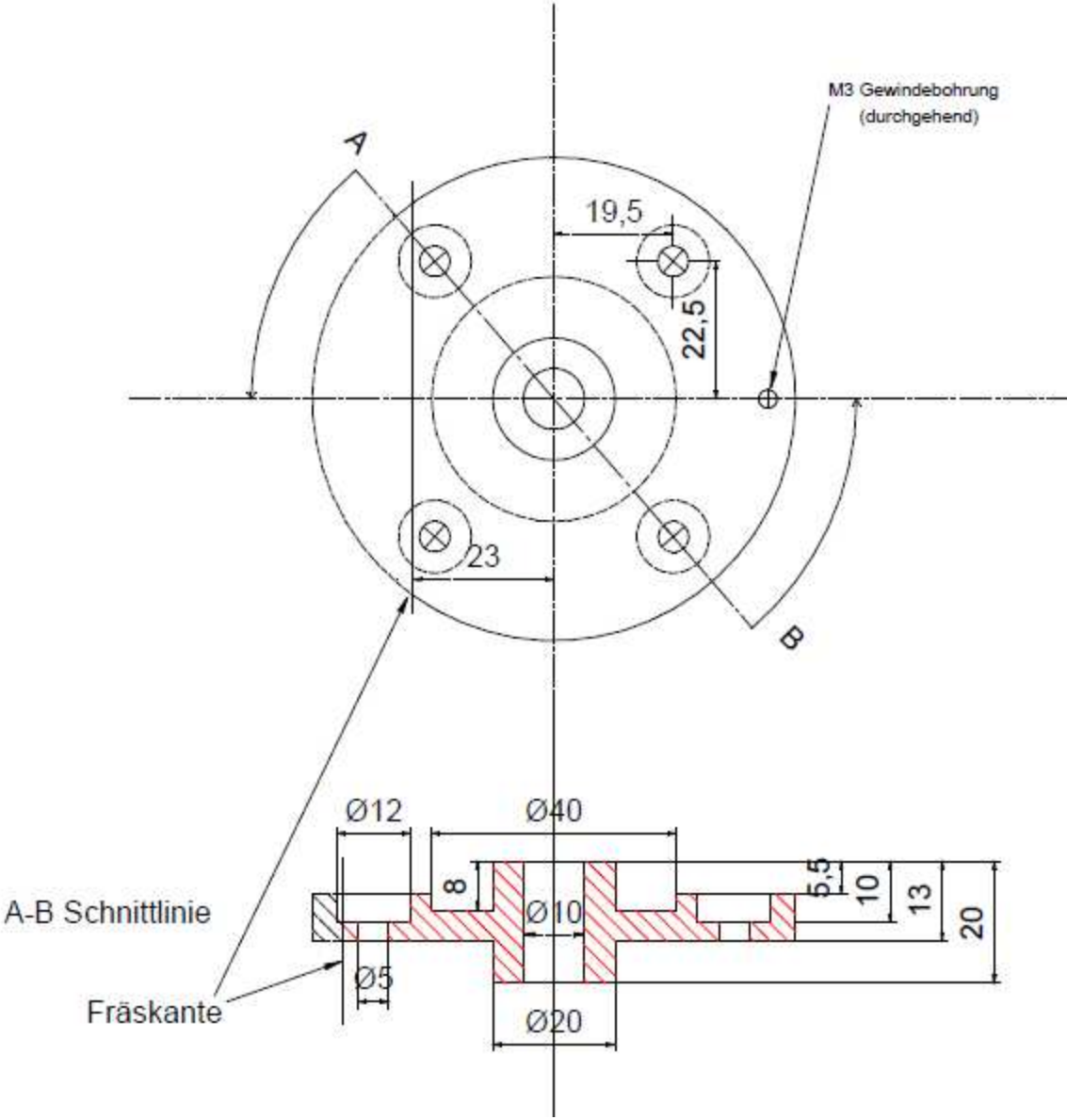
Material: Cu
Stückzahl: 1

M 1:1	Elektrode 2
-------	-------------



Material: Cu Stückzahl: 1

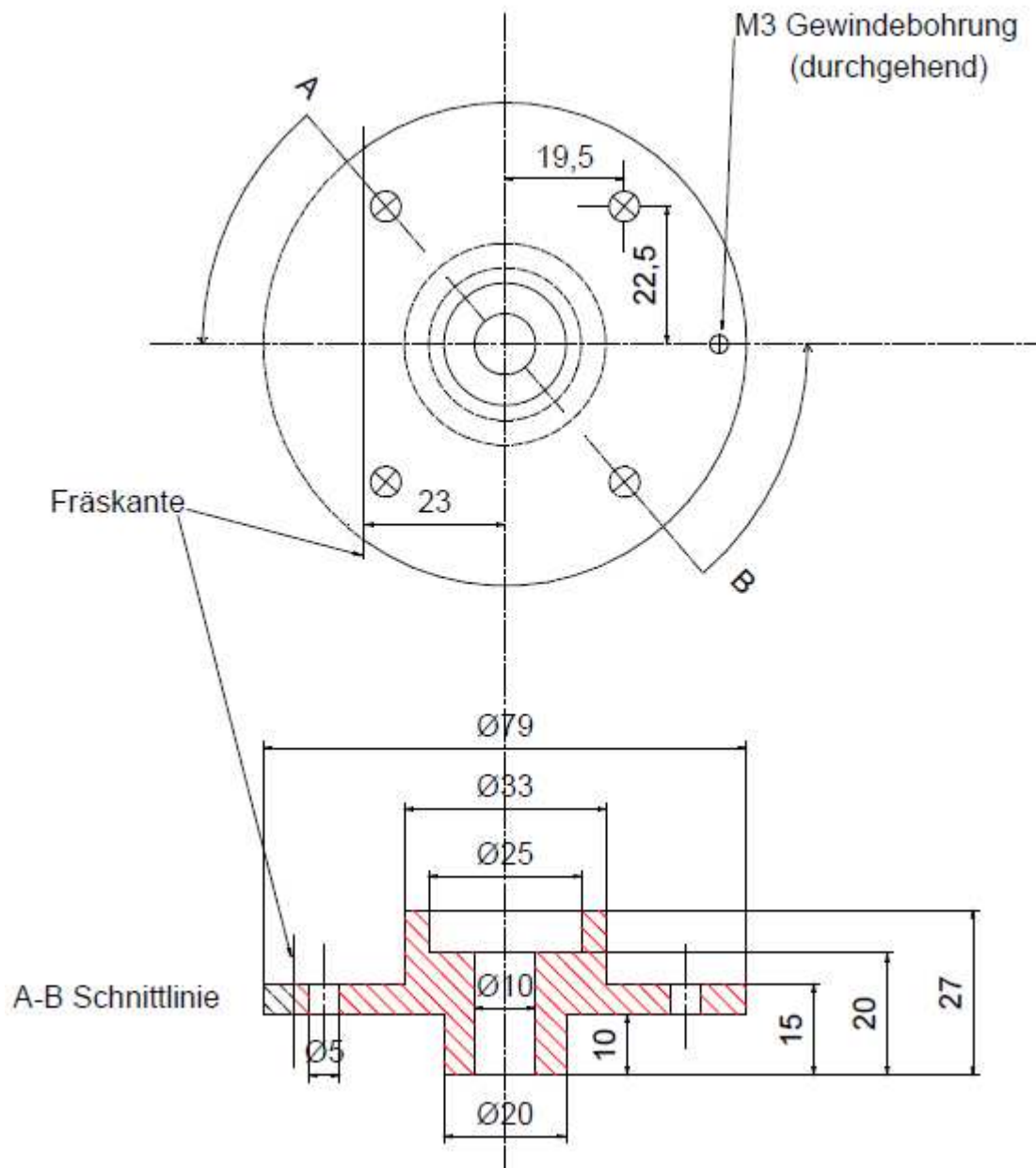
M 1:1 Elektrode 3



Material: Cu
Stückzahl: 1

M 1:1

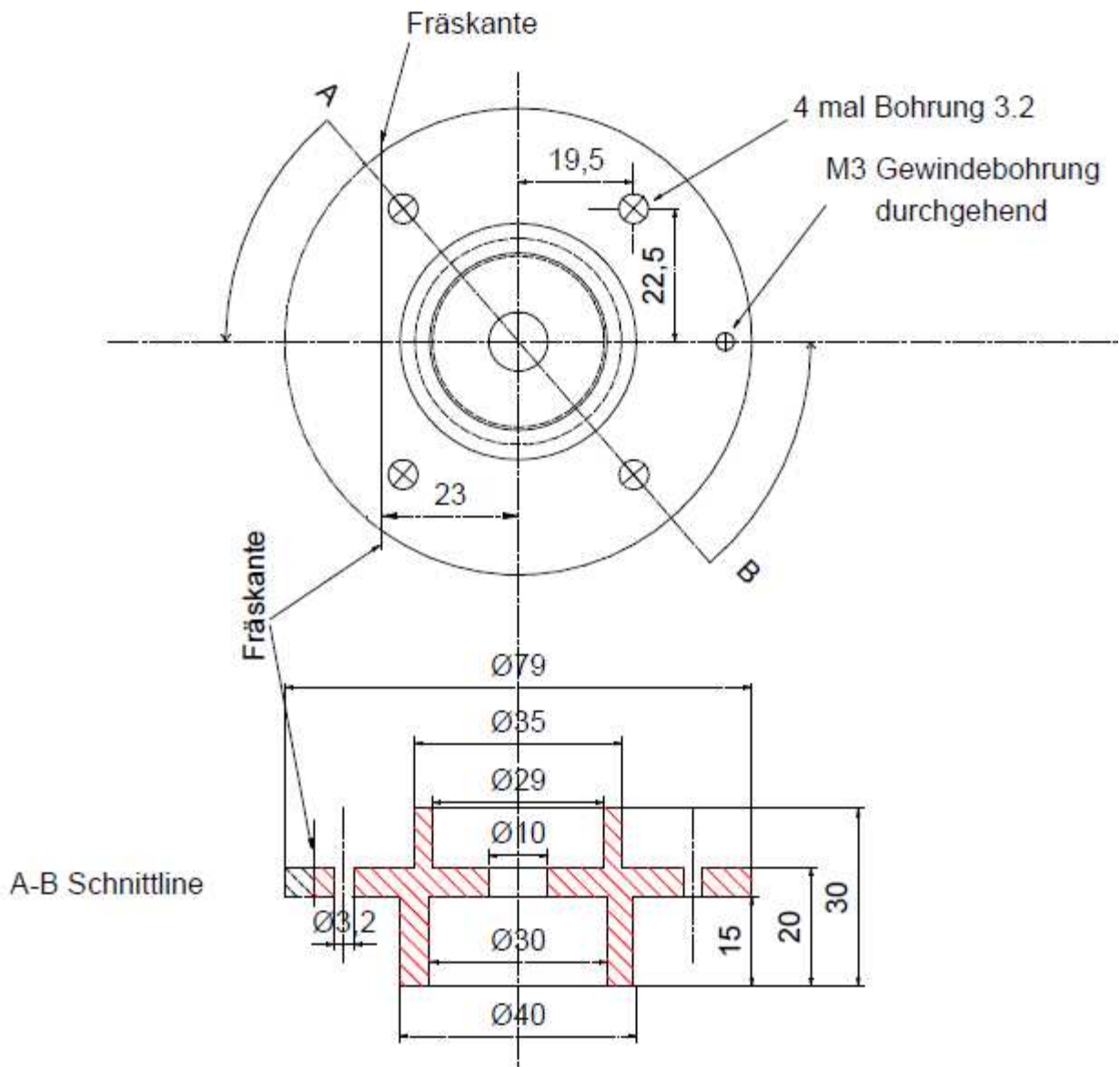
Elektrode 4



Material: Cu
Stückzahl: 1

M 1:1

Elektrode 5

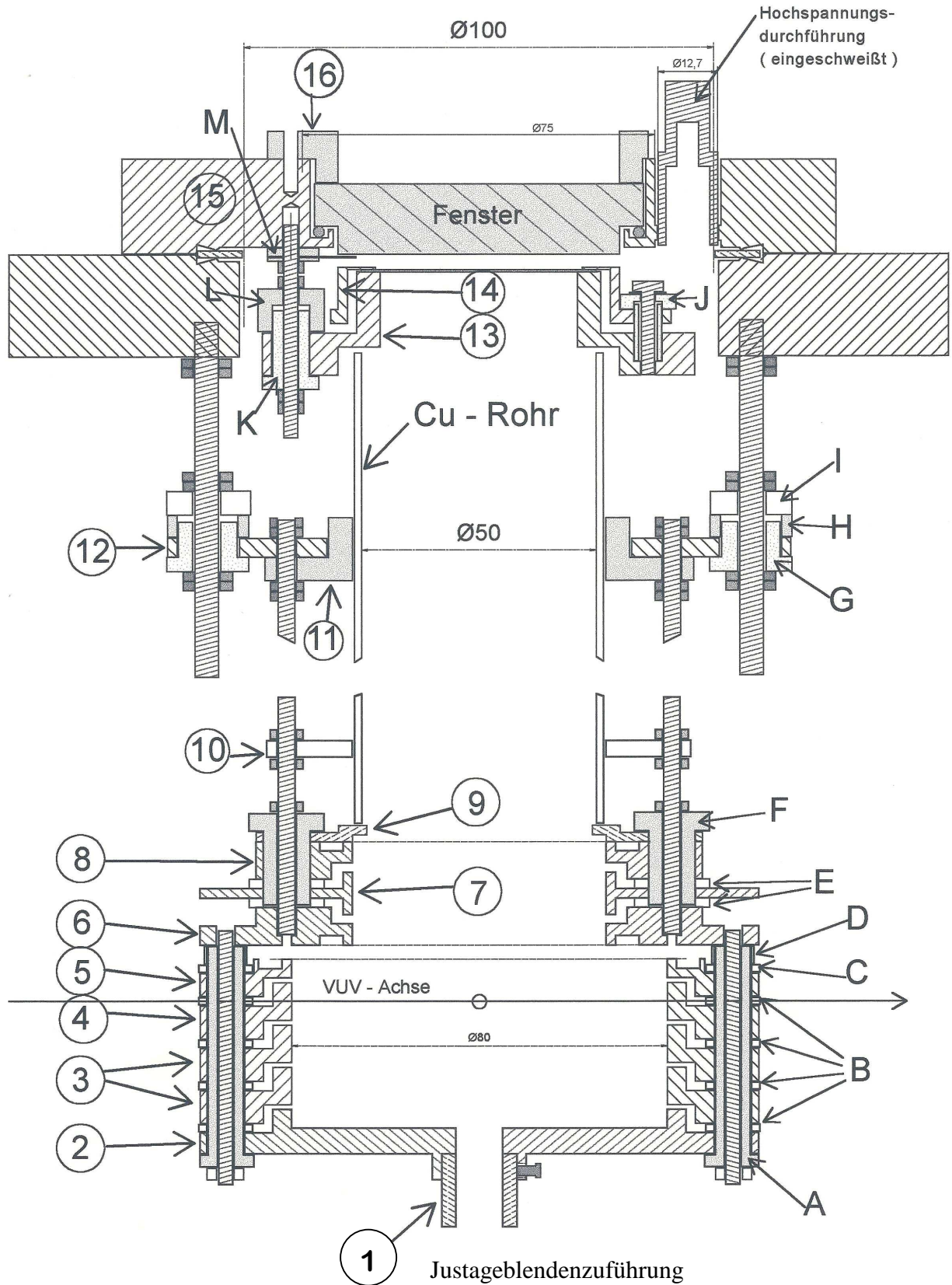


Material: Cu
Stückzahl: 1

Bildgebendes- Flugzeitmassenspektrometer (BFM)

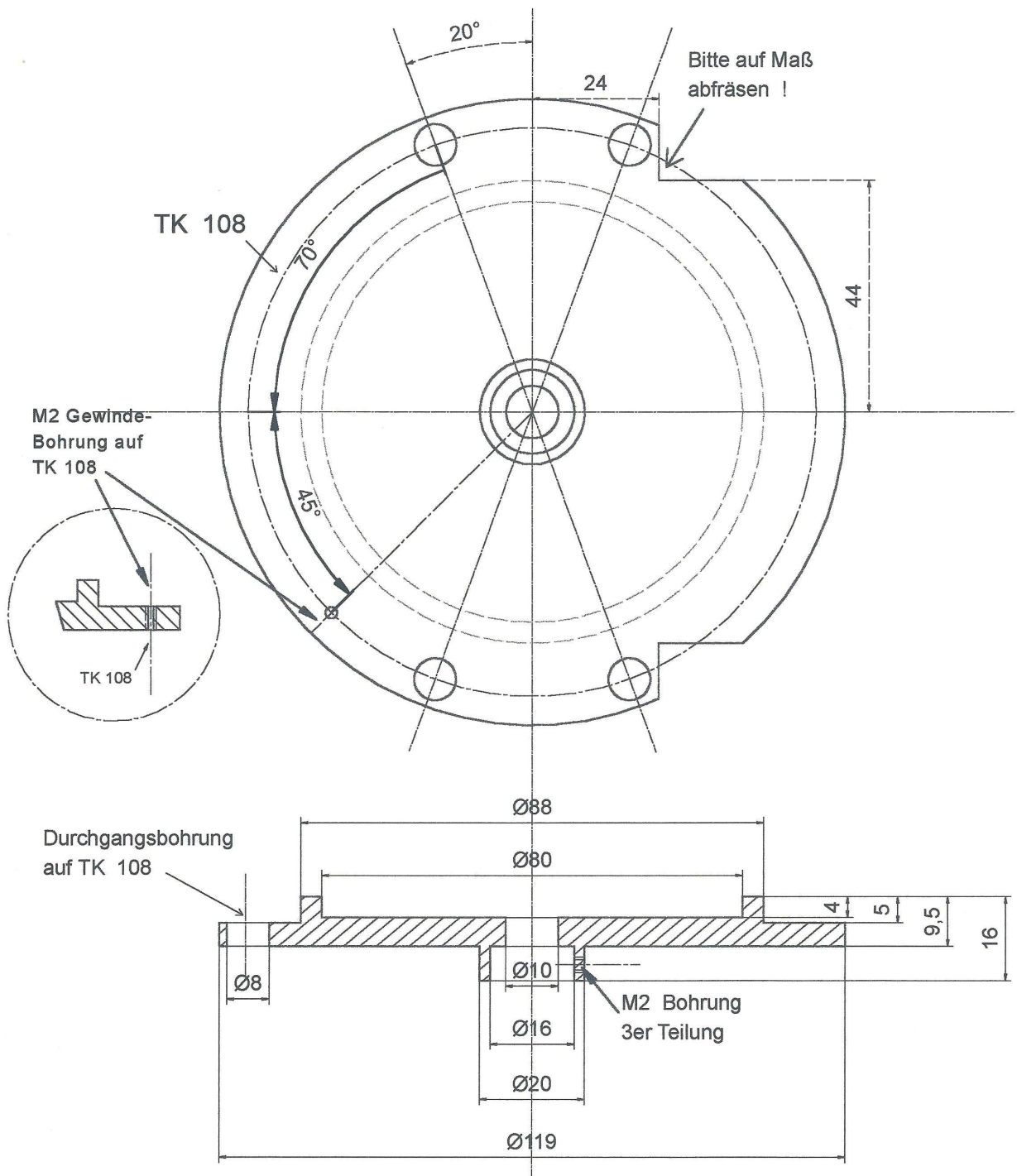
(Pläne nicht maßstabs getreu eingescannt)

Übersicht



M 1:1 Basiselektrode

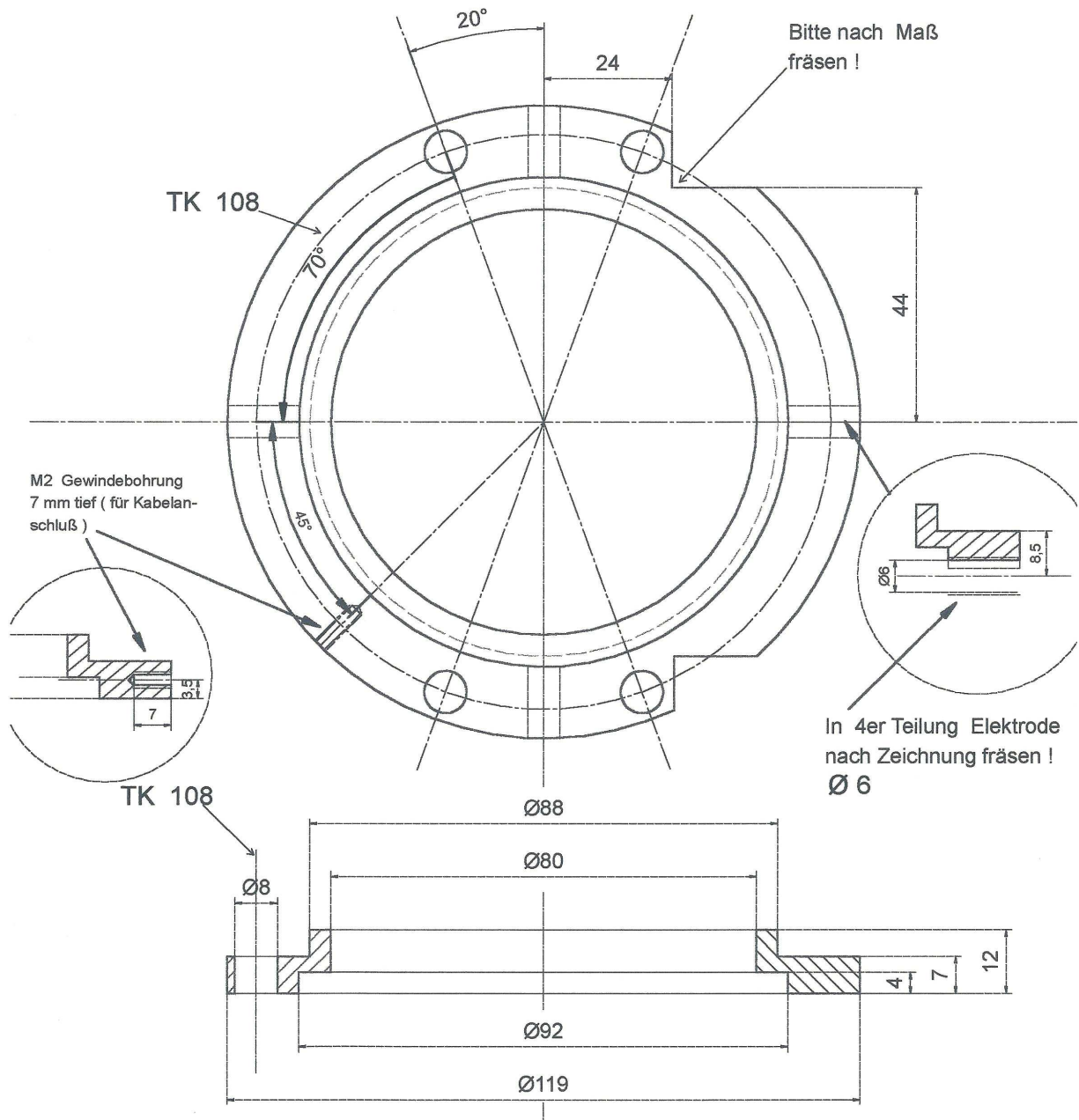
2



Material: Edelstahl
Stückzahl: 1

M 1:1 Ringelektrode

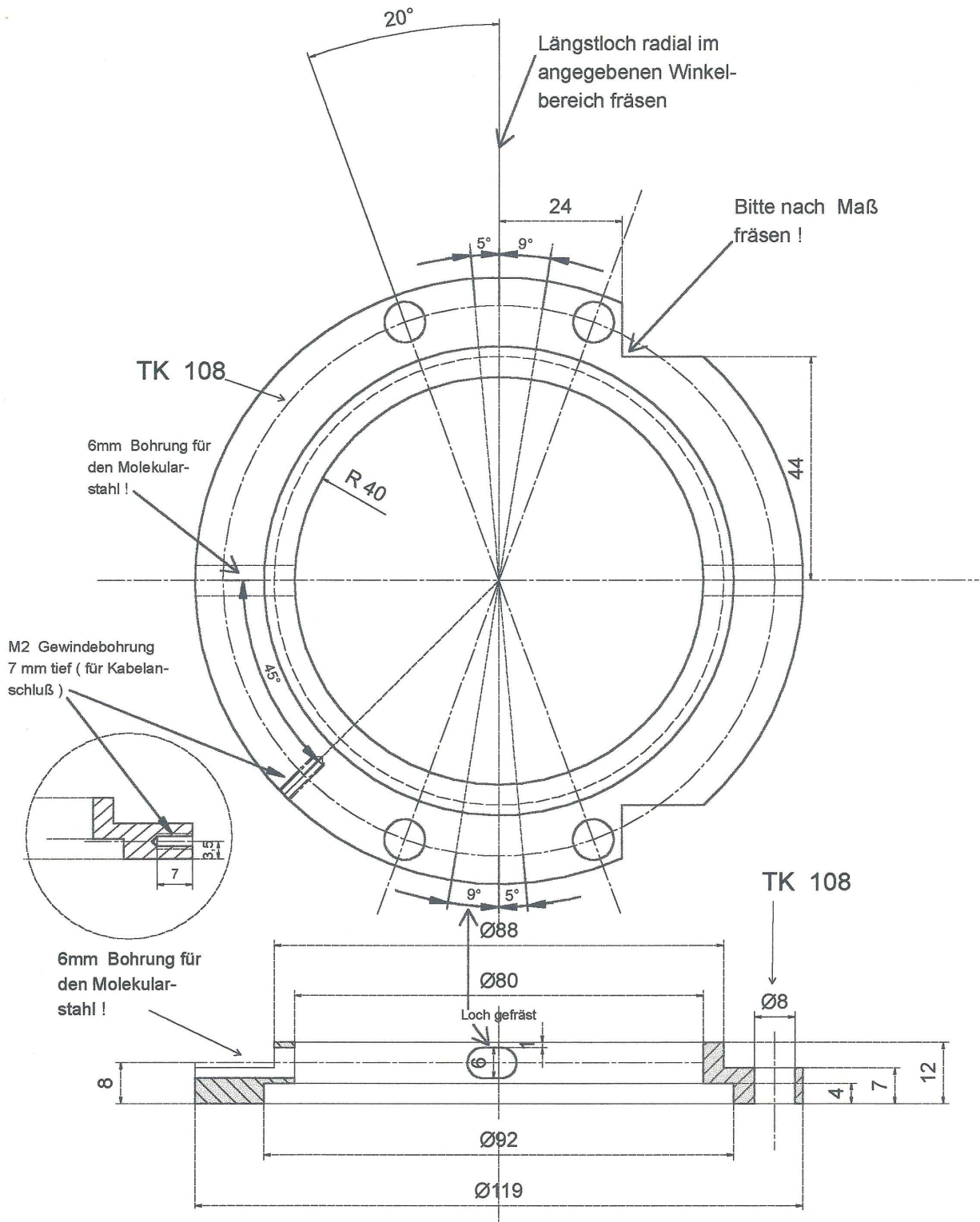
3



Material: Edelstahl
Stückzahl: 1

M 1:1 Ringelektrode 4

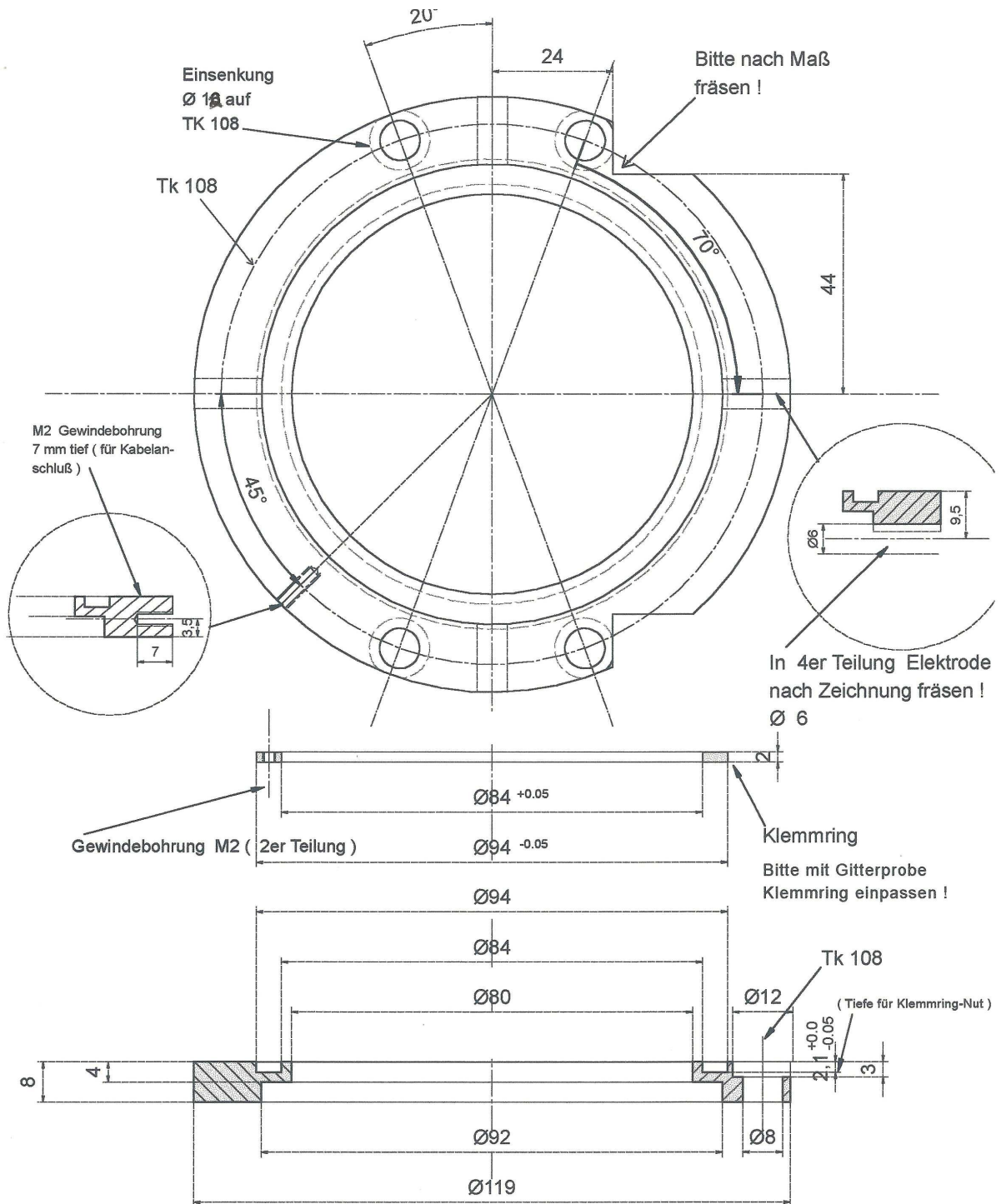
(mit Laser- und Molekularstahlöffnung)



Material: Edelstahl
Stückzahl: 1

M 1:1 Gitterhalteplatte

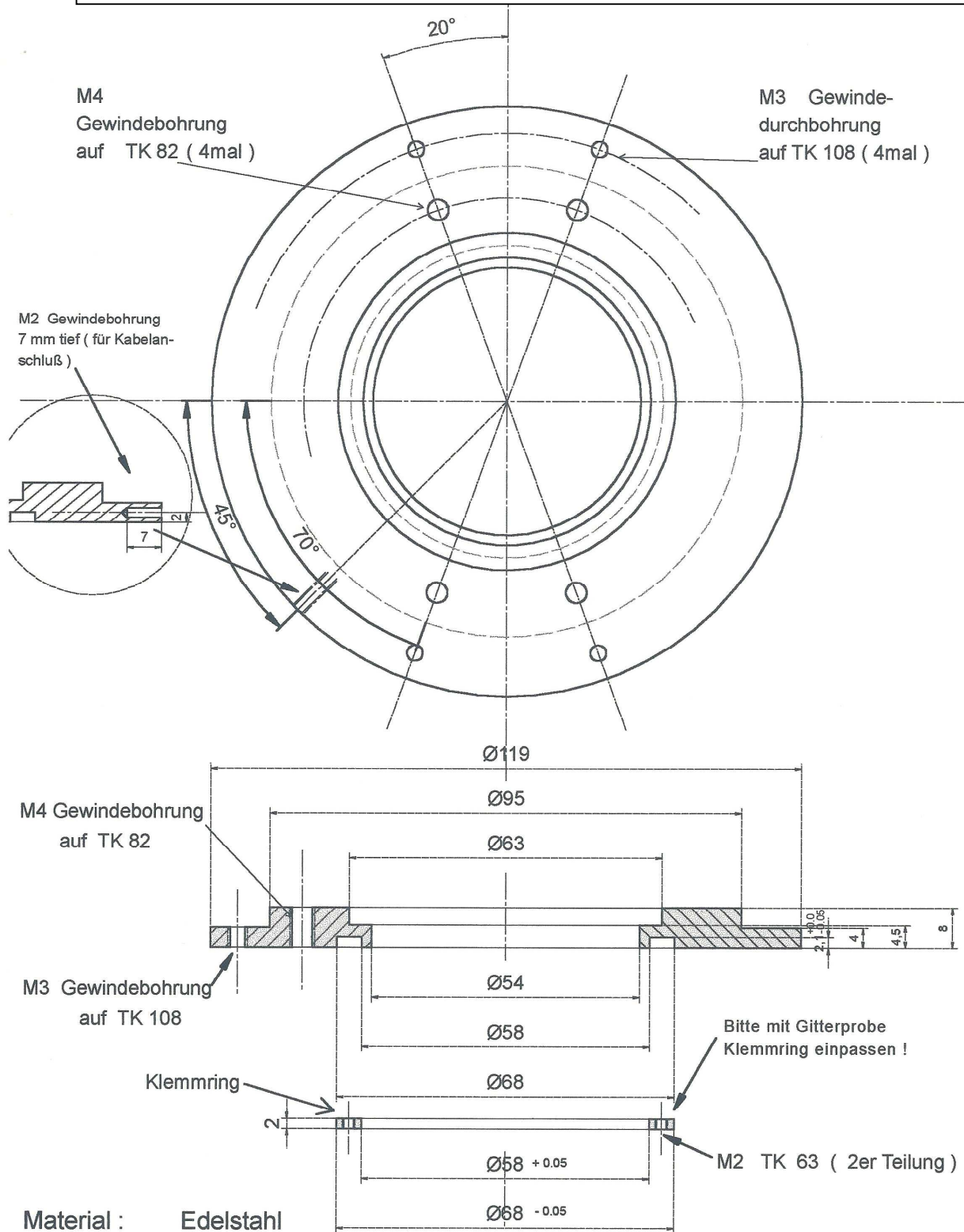
5



Material: Edelstahl
Stückzahl: 1

M 1:1 Gitterhalteplatte (54 mm)

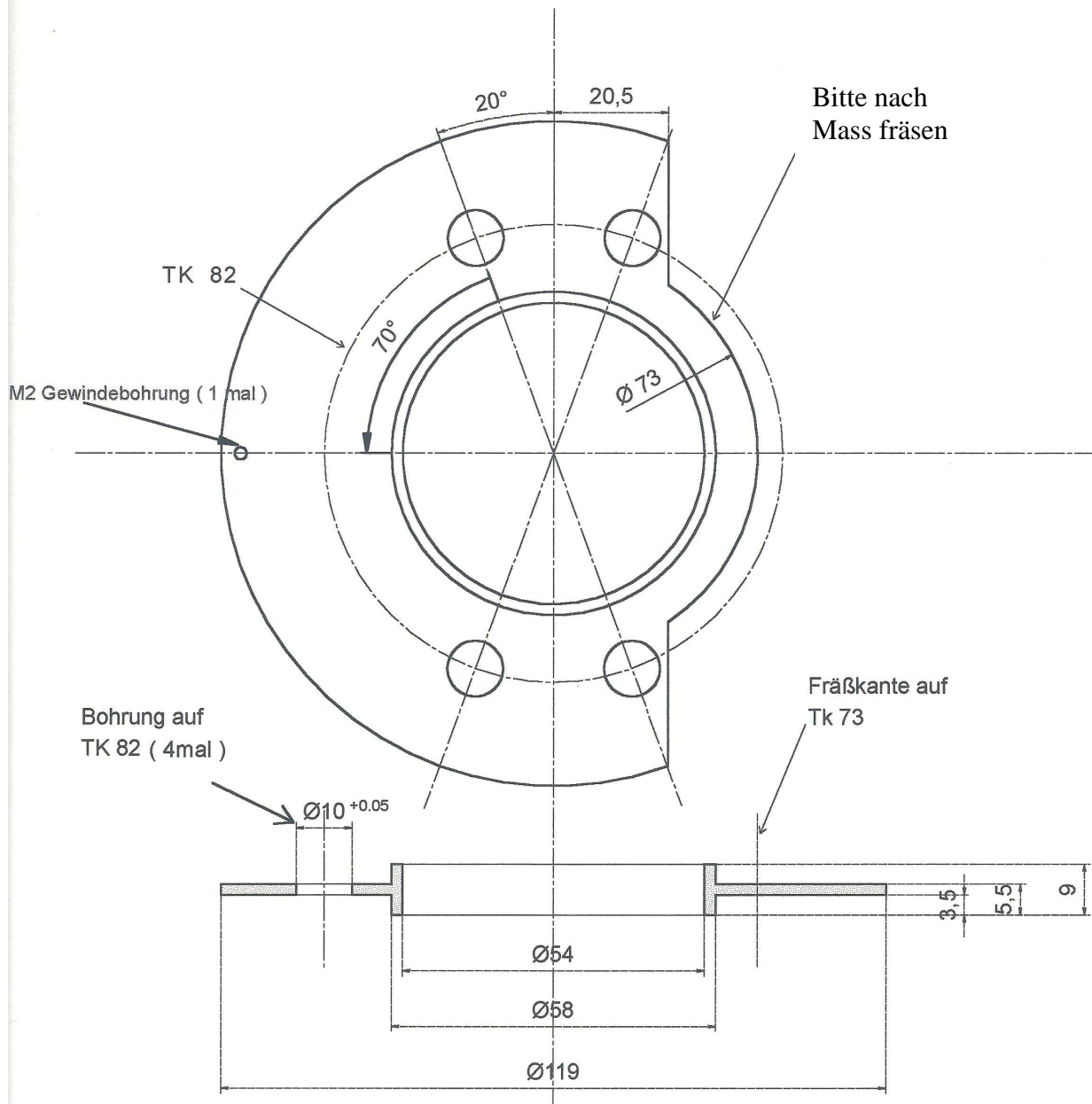
6



Material: Edelstahl
Stückzahl: 1

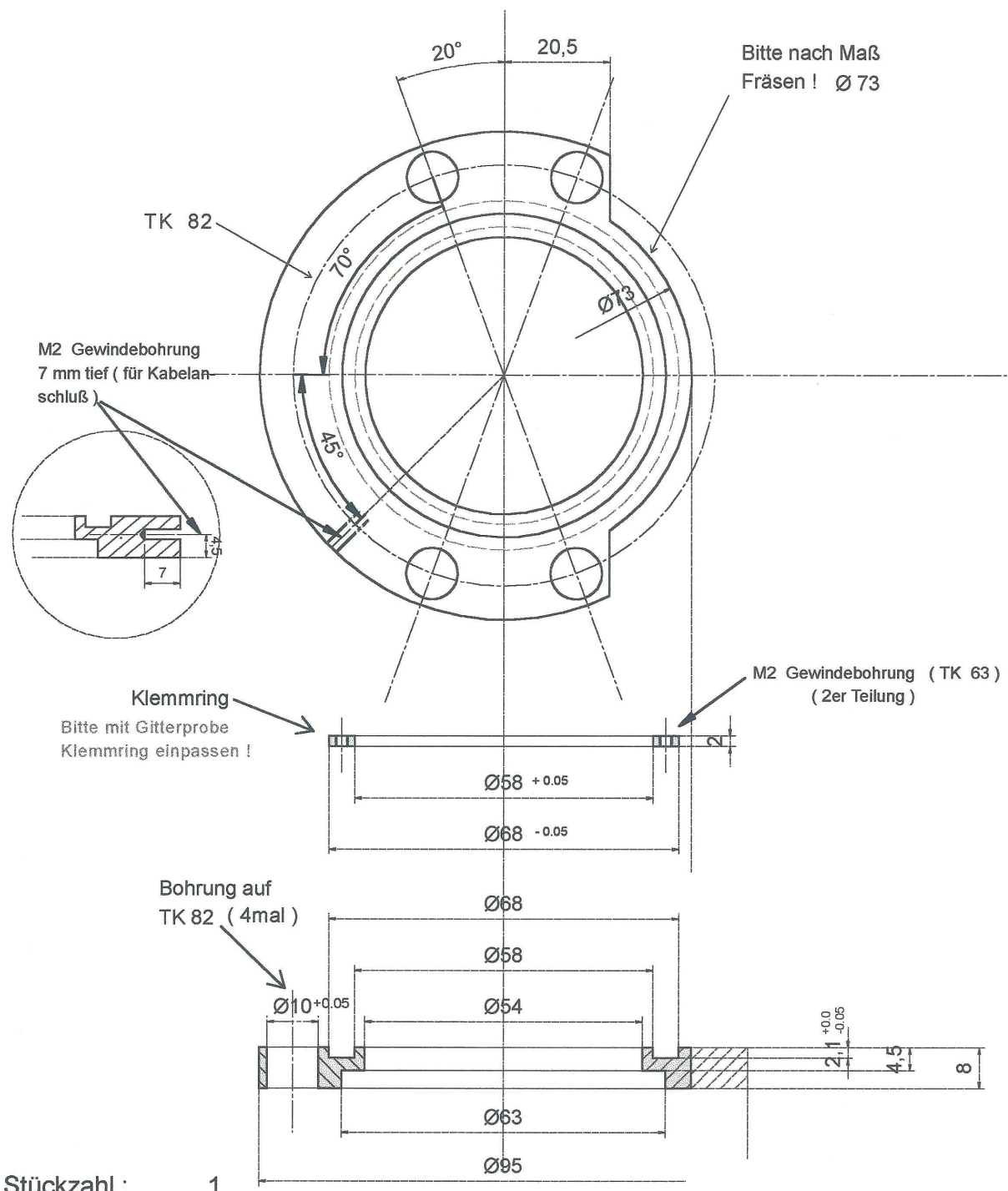
M 1:1 Ringelektrode

7



Material: Edelstahl
Stückzahl: 1

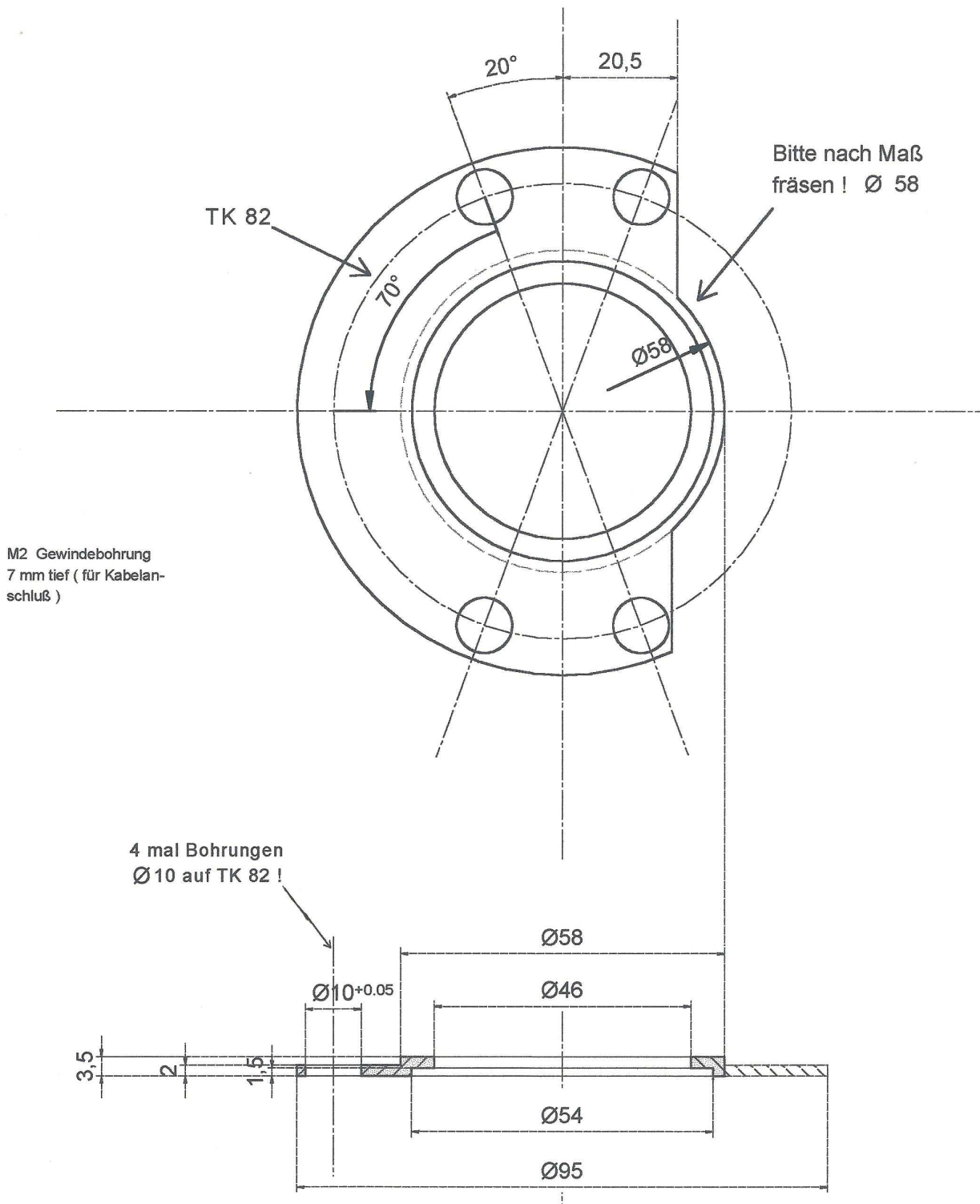
M 1:1 Elektrode (Gitterhalter) 8



Material: Edelstahl
Stückzahl: 1

M 1:1 Übergang Gitterhalter - Flugrohr

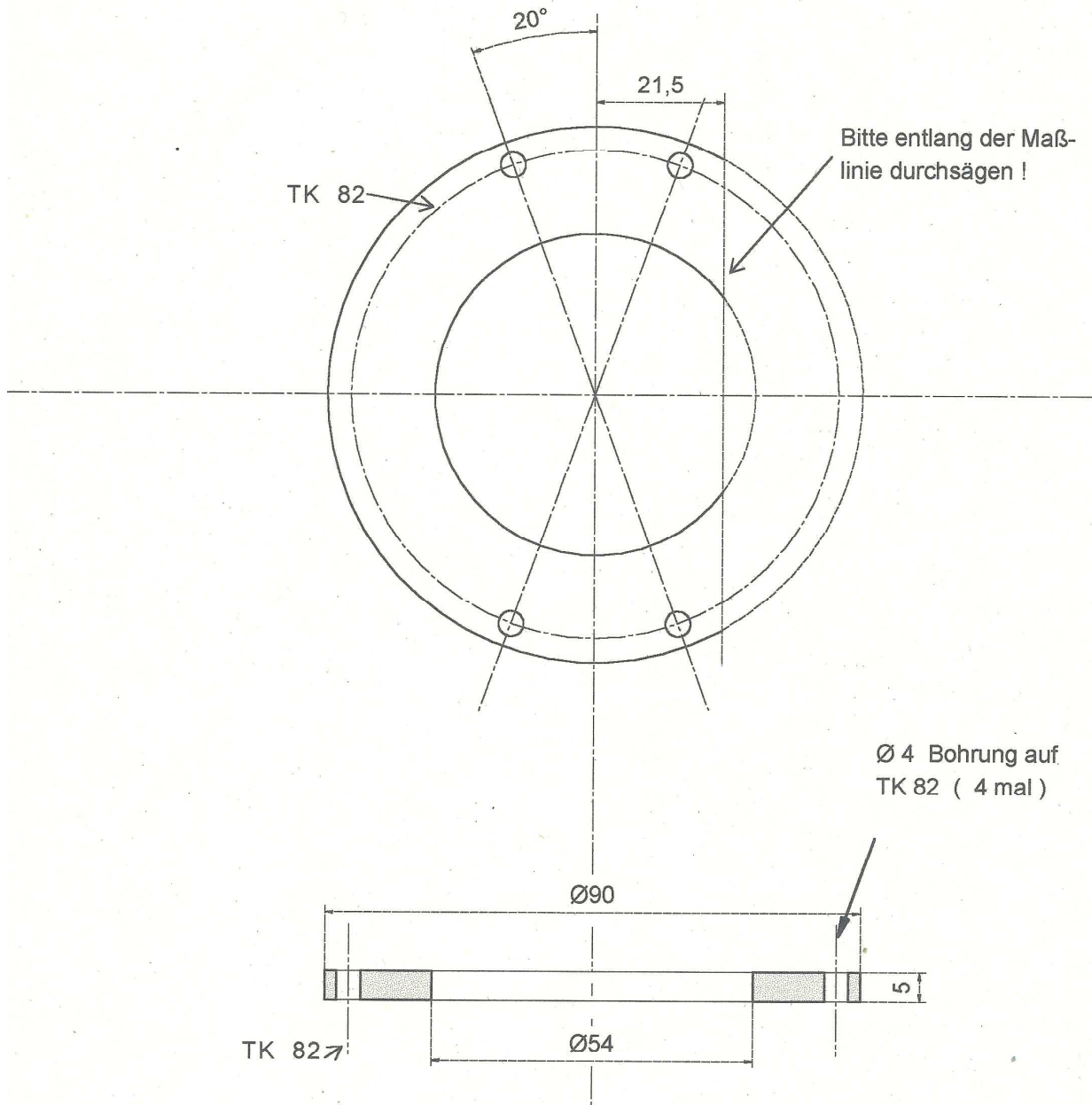
9



Material: Edelstahl
Stückzahl: 1

M 1:1 Flugrohrhalterung

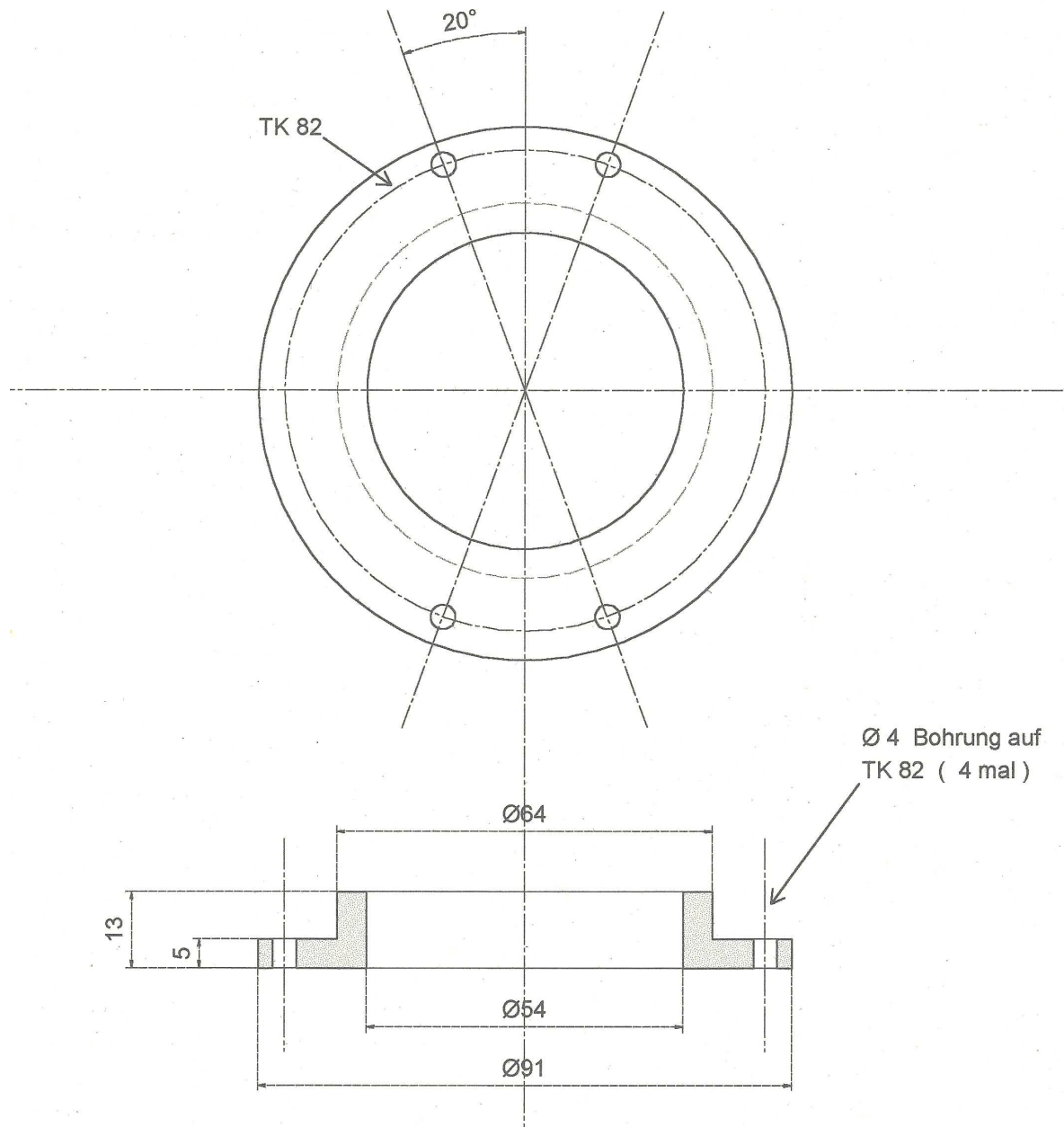
10



Material: Delrin
Stückzahl: 1

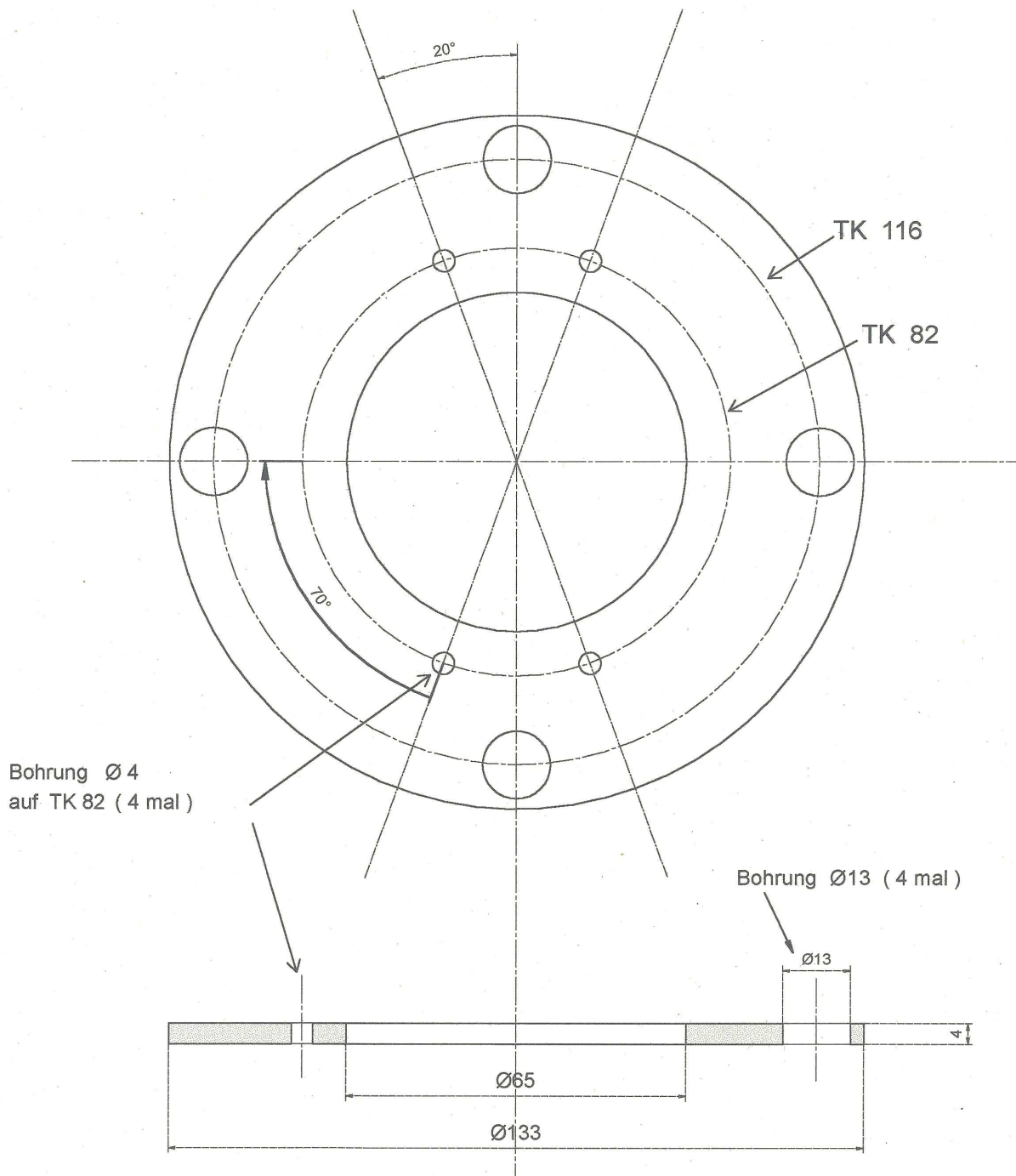
M 1:1 Flugrohrhalterung

11

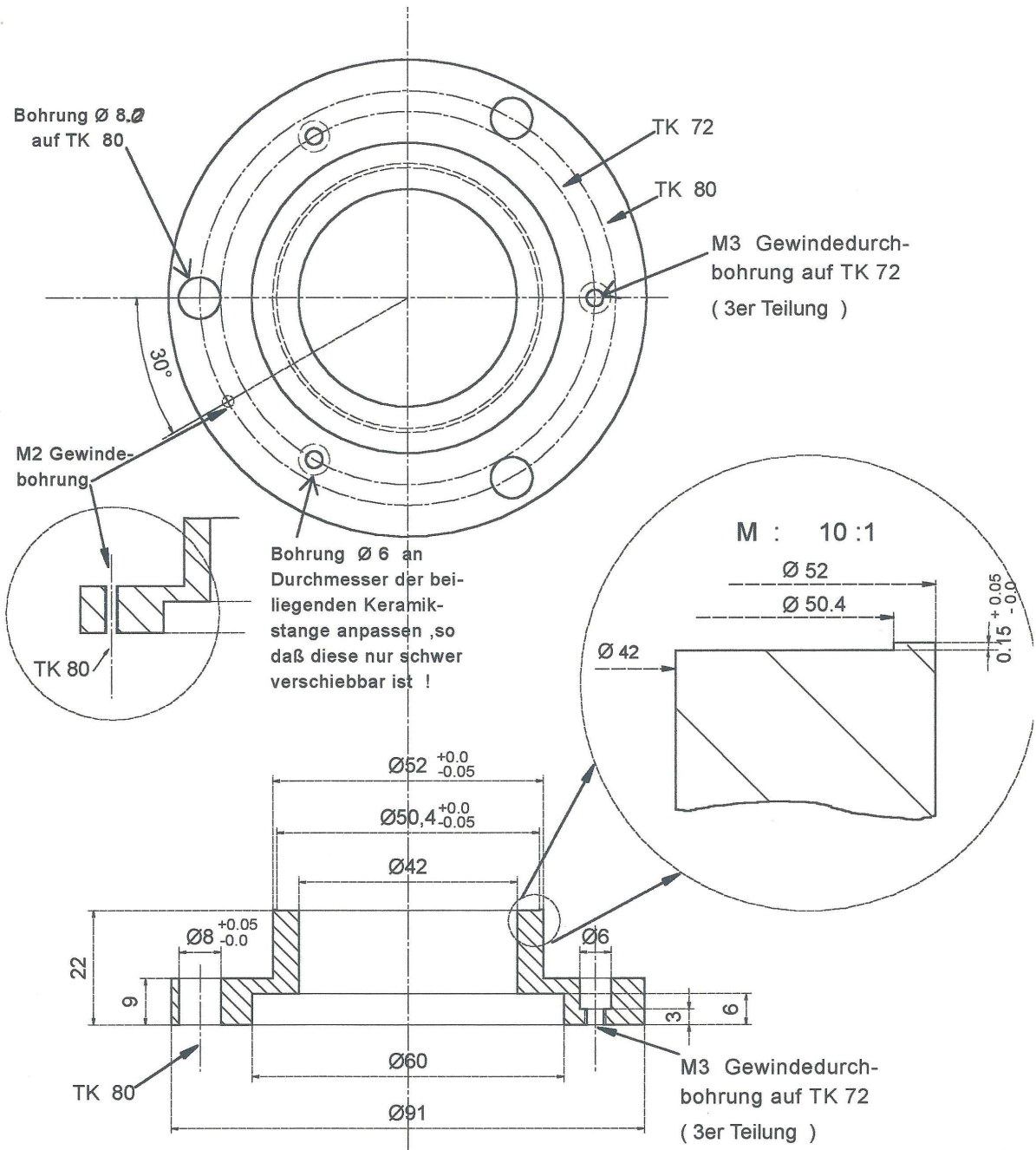


Material: Delrin
Stückzahl: 1

M 1:1 Montageplatte für Reduzierflansch (CF -150) 12



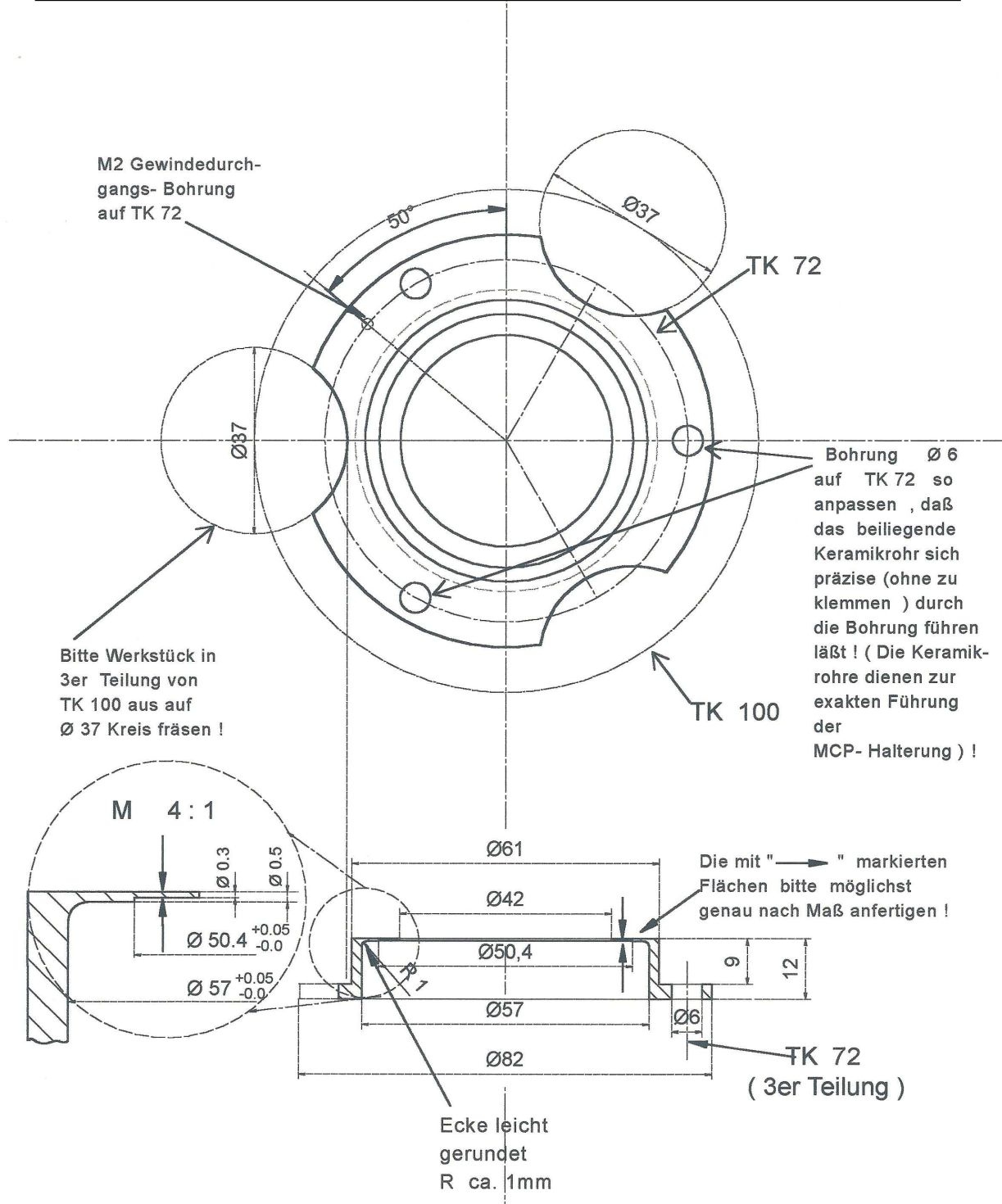
Material: Edelstahl
Stückzahl: 1



Material: Edlstahl
Stückzahl: 1

M 1:1 MCP-Halter (Oberteil)

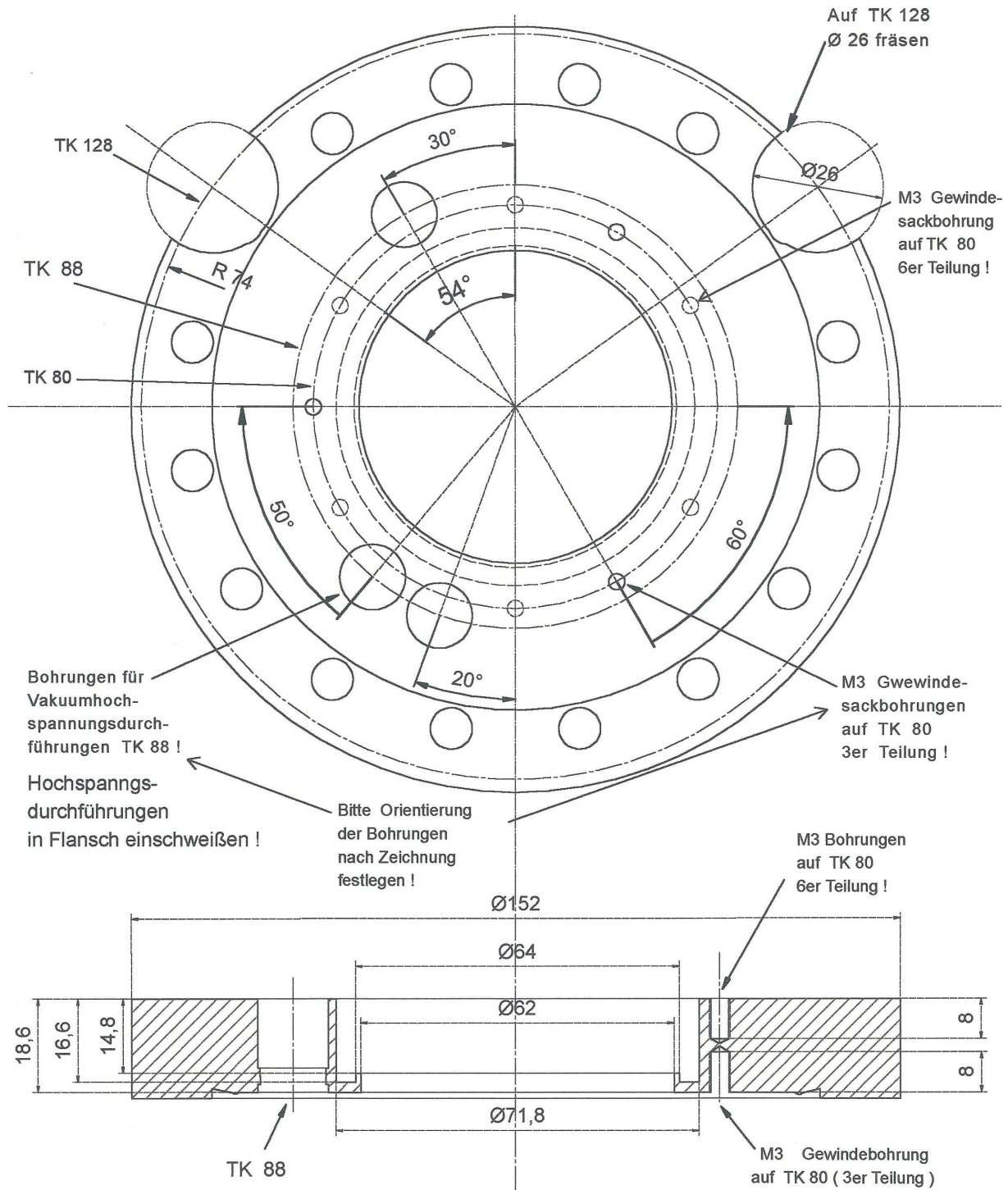
14



Material: Edelstahl
Stückzahl: 1

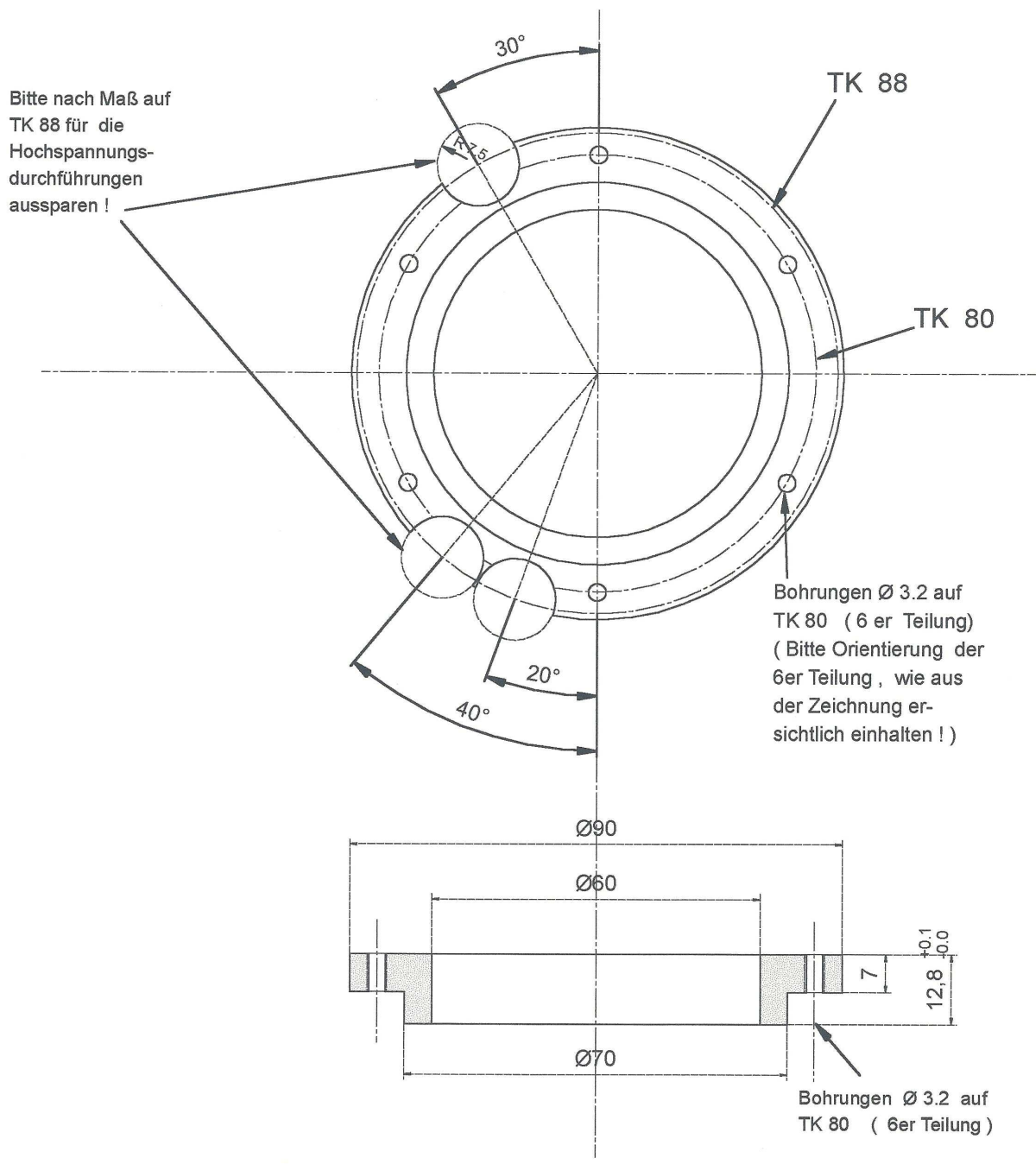
M 1:1 Fensterflansch CF - 100

15

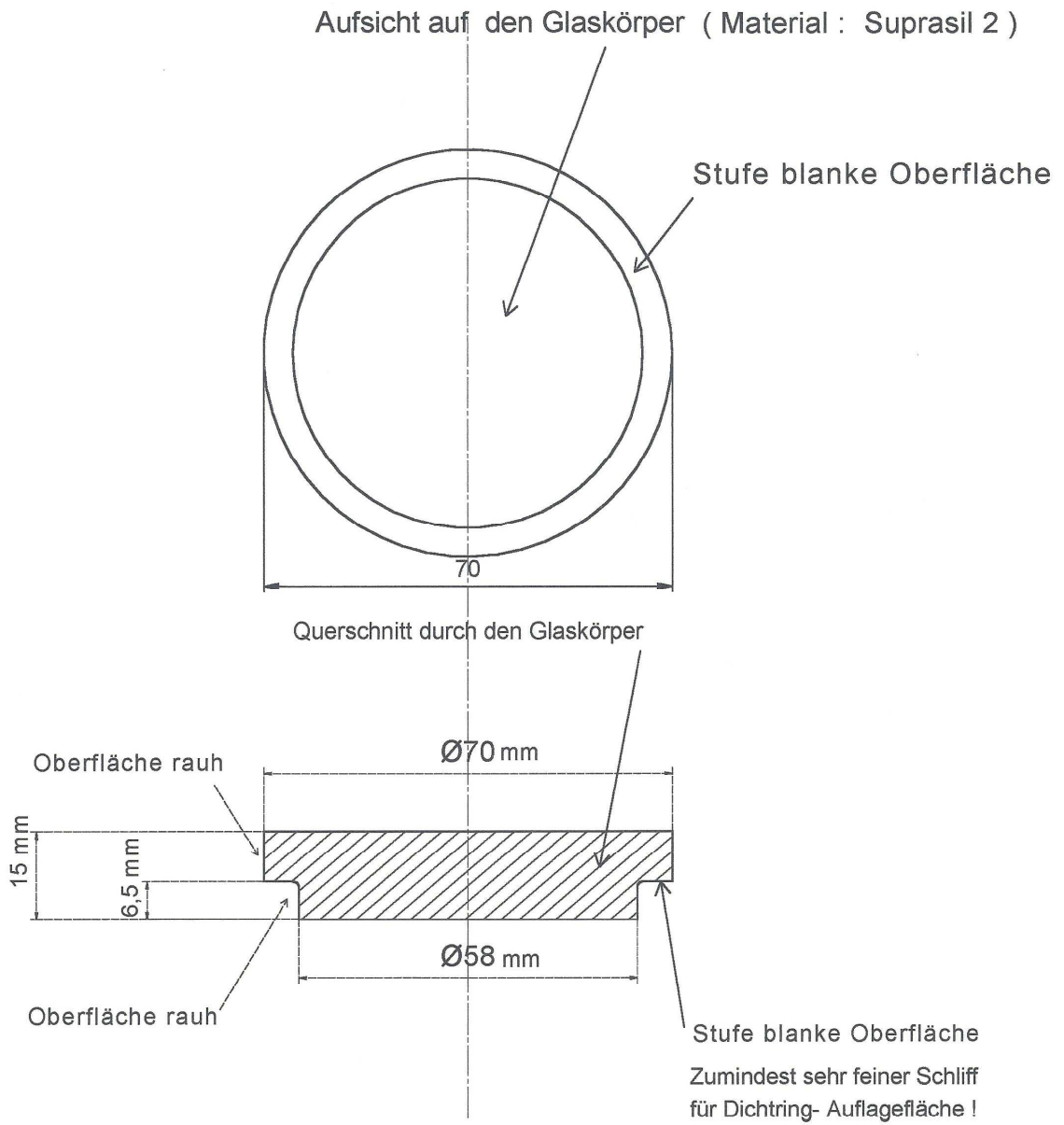


100- CF Flansch und Spannungsdurchführungen mit geliefert!

M 1:1 Fensteranpress- Ring 16

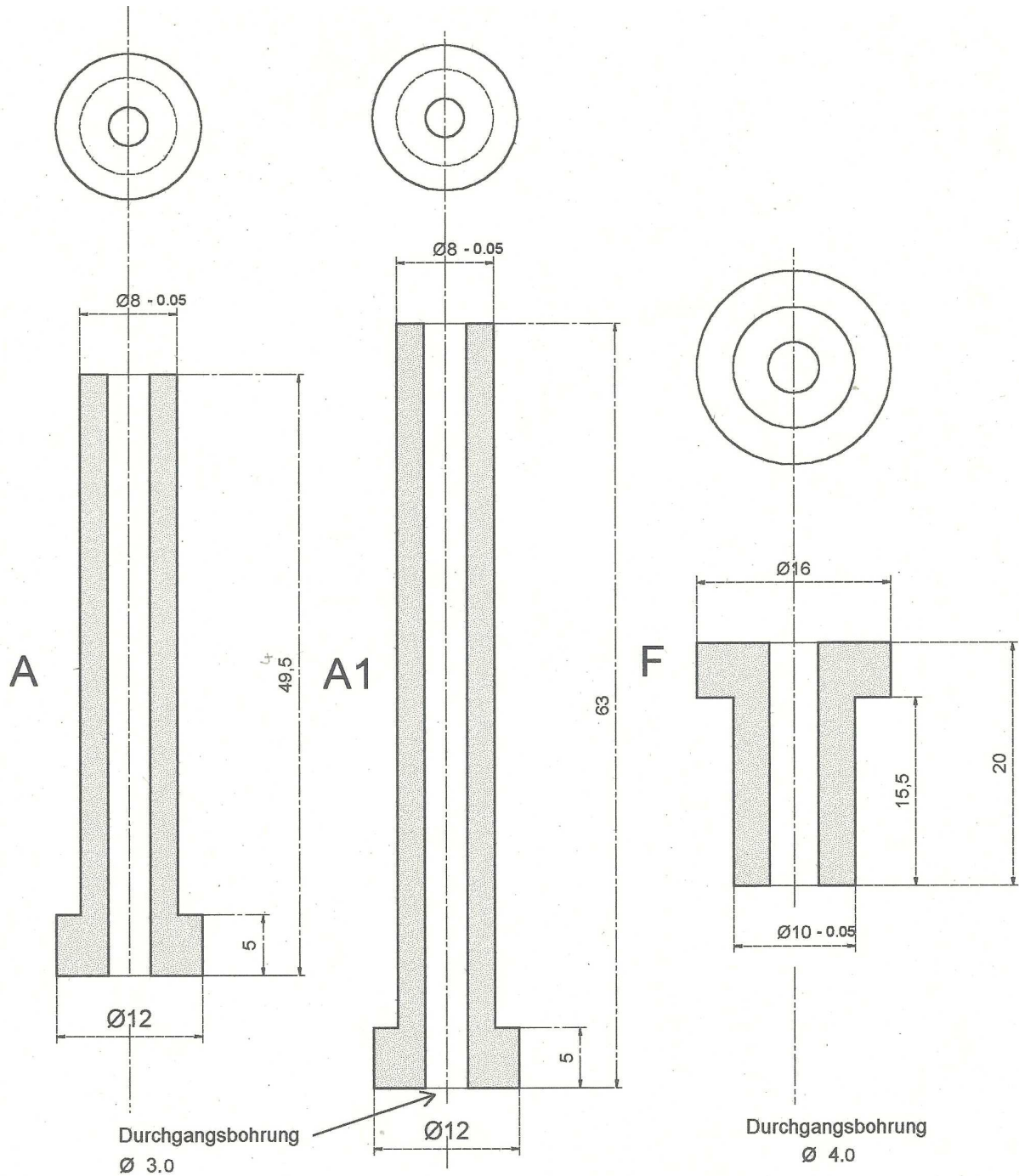


Material: Delrin
Stückzahl: 1



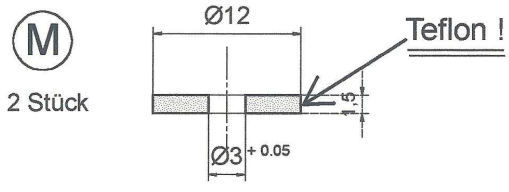
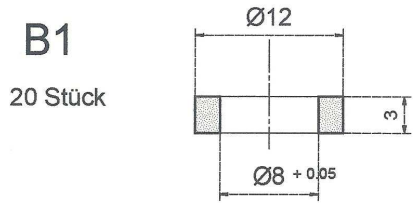
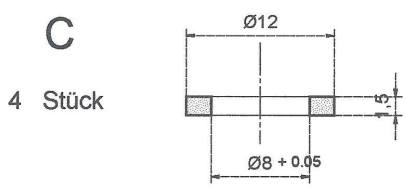
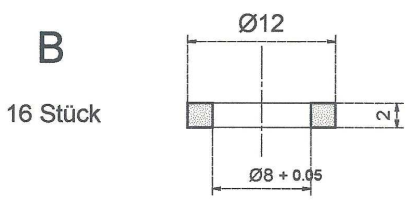
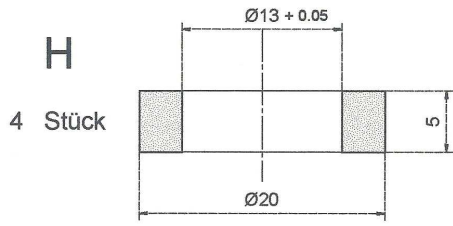
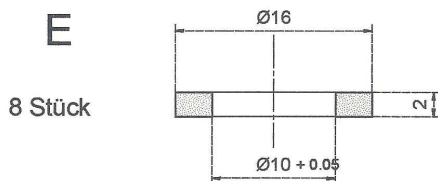
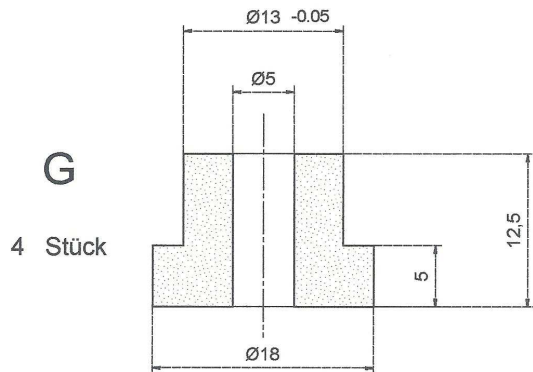
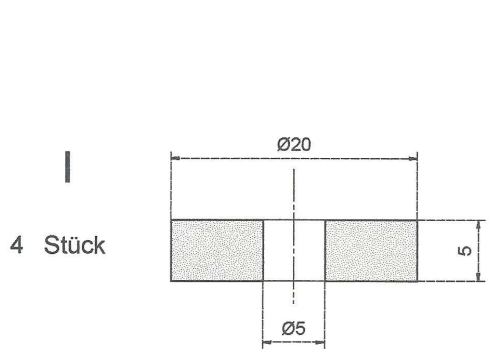
Material: Suprasil 2
Stückzahl: 1

M 2:1 Isolatoren – und Justagehalter



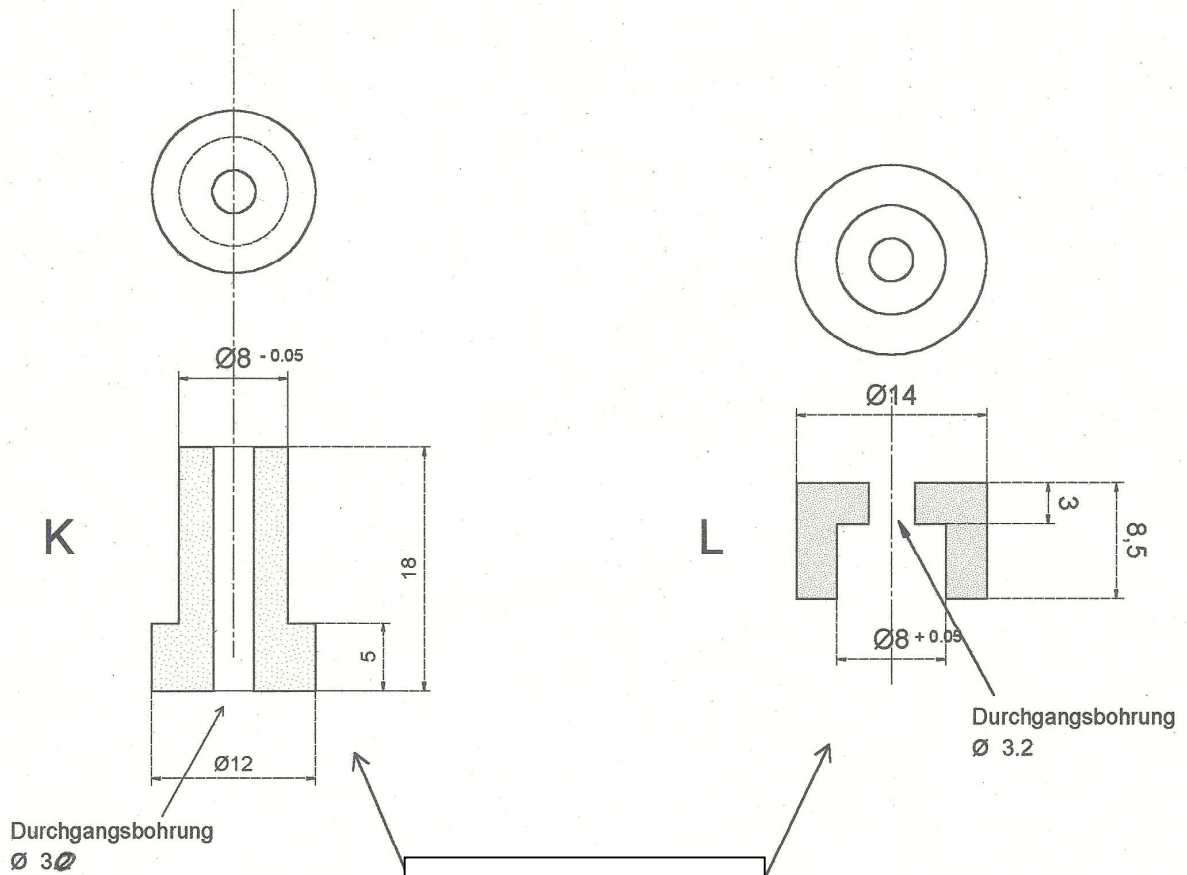
Material: Delrin
Stückzahl: je 4 x

M 2:1 Delrin Isolatoren – und Justagehalter

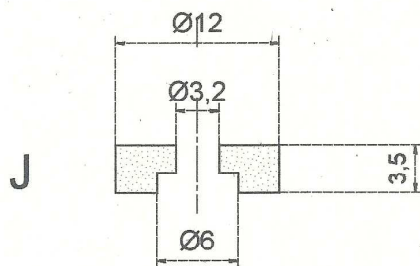


Material: Delrin

M 1:1 Isolatoren – und Justagehalter

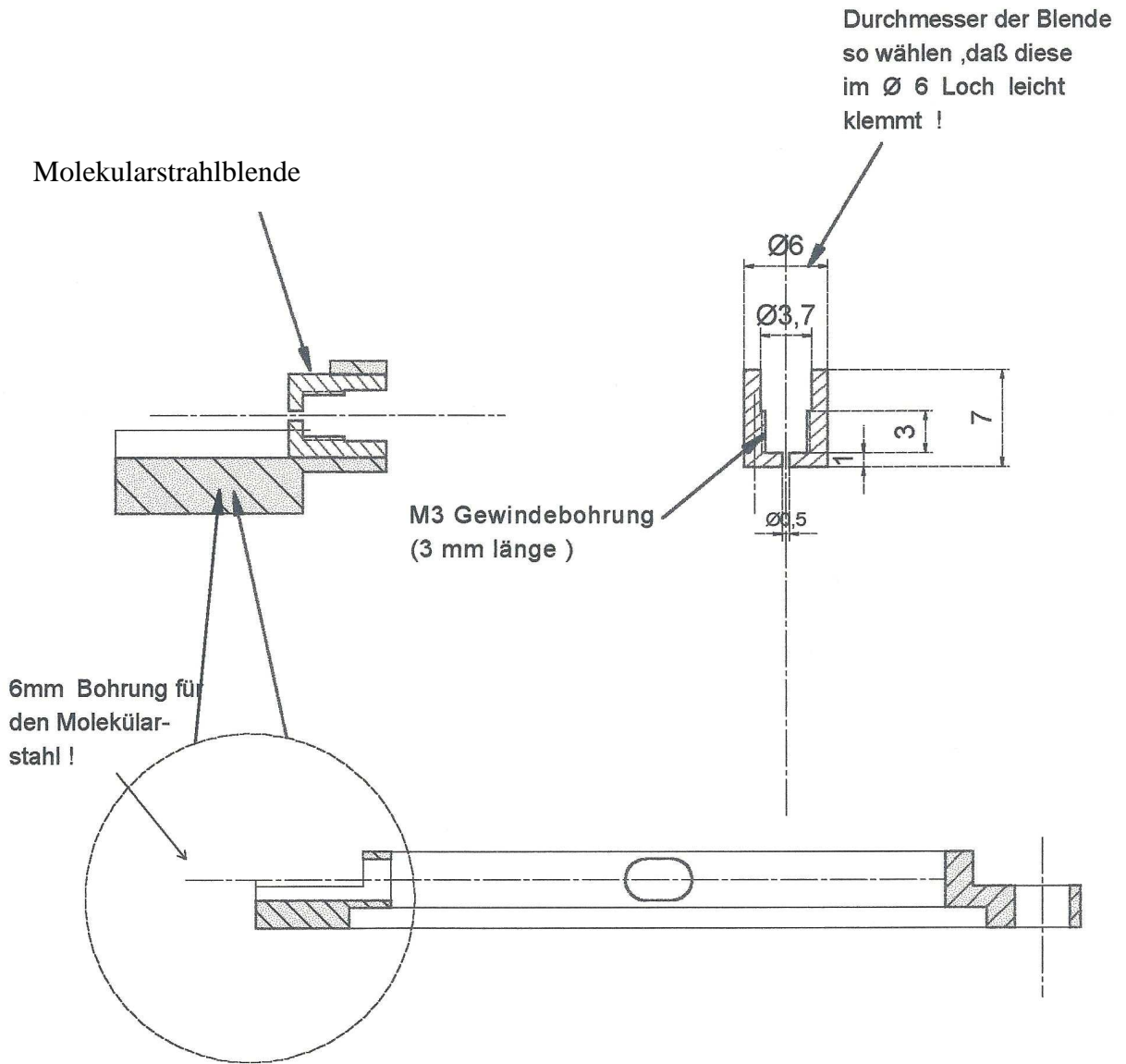


Material: Delrin
Stückzahl: je 4 x



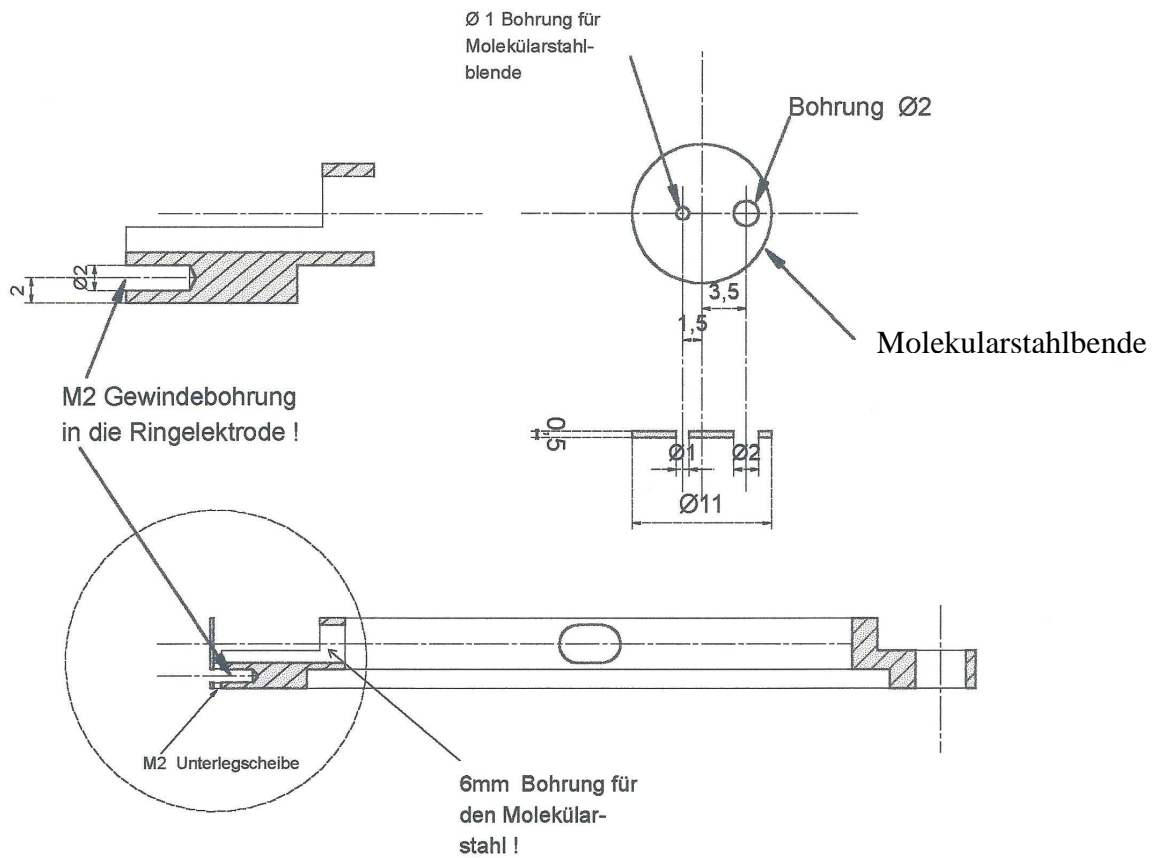
Material: Teflon
Stückzahl: 1

M 2:1 Molekularstrahlblende 1



Material: Edelstahl
Stückzahl: 2

M 2:1 Molekularstahlblende 2



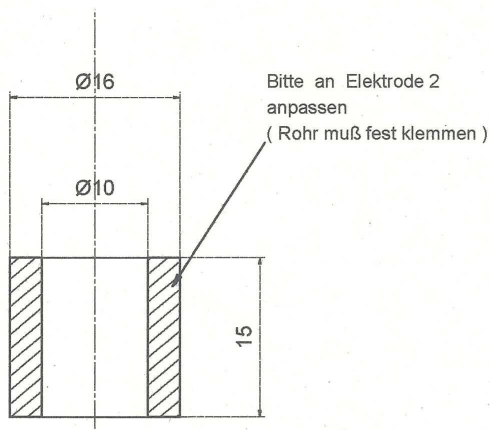
Material: Edelstahl
Stückzahl: 1

M 1:2 Justageblende, Zuführung und Abstandhalter

1

Abschirmrohr
für d. Justageblenden-
zuführung

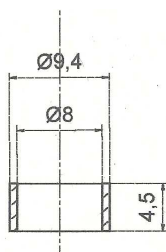
1 Stück



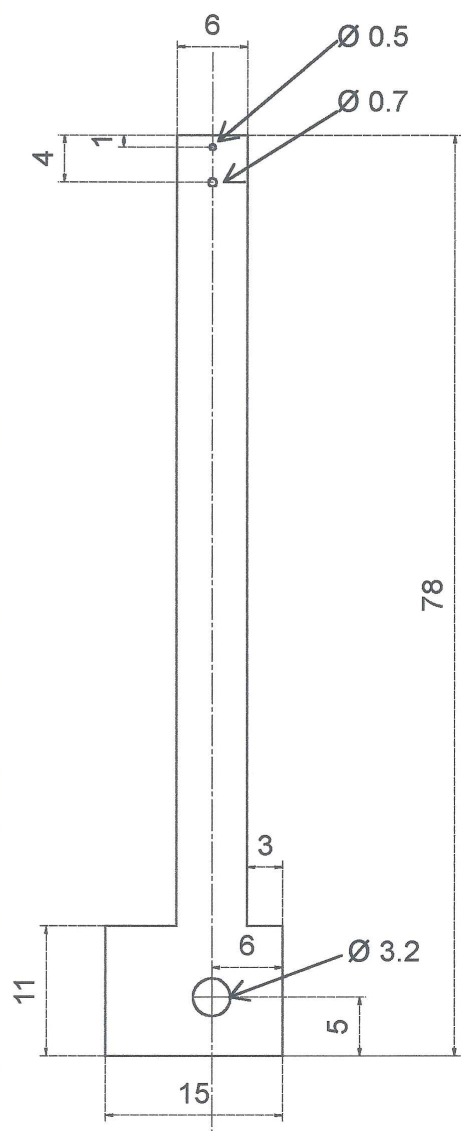
D

Abstandshalter

4 Stück



Justageblende $t = 0,5$



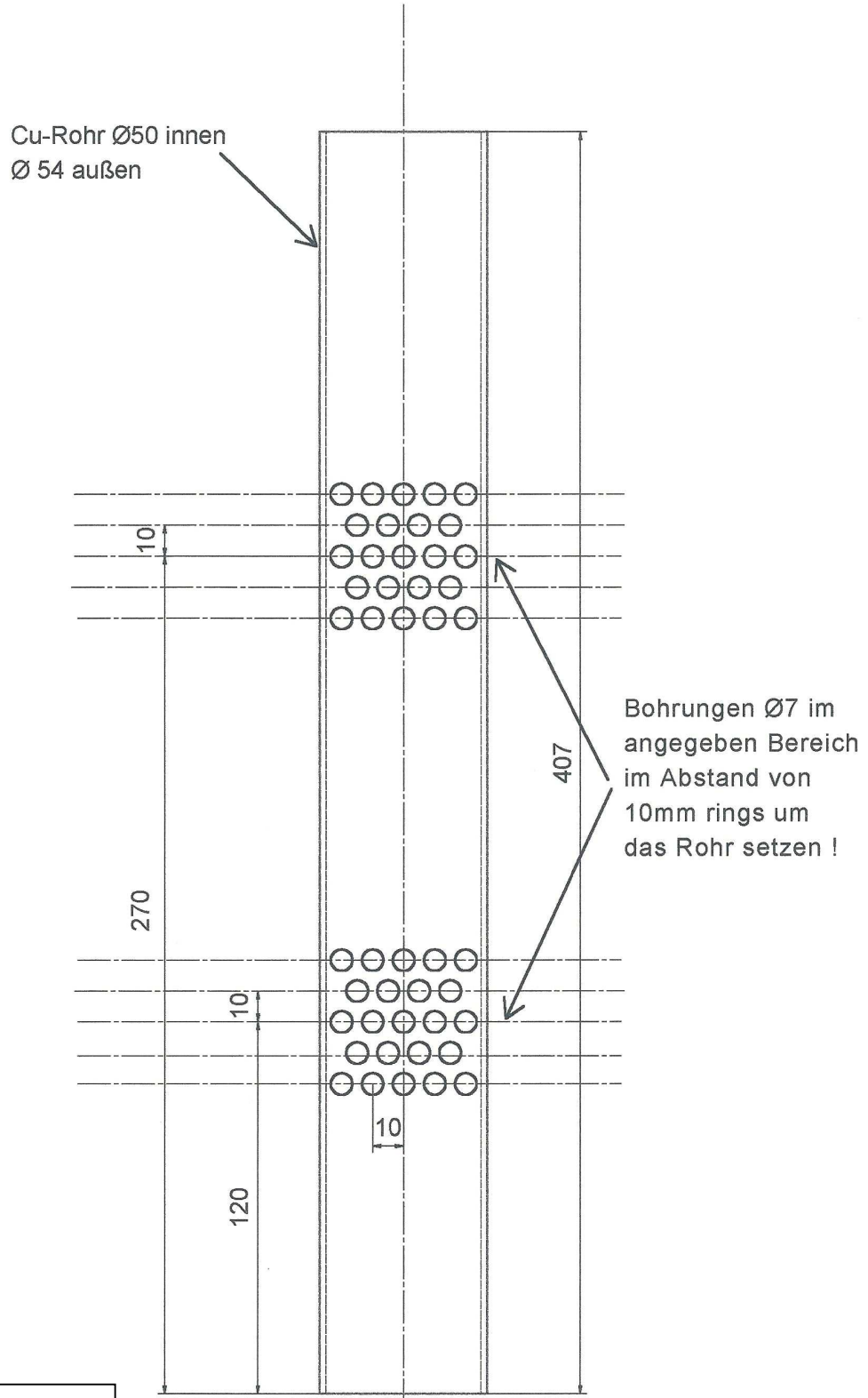
Material: Edelstahl

Siehe:

S. 41 Abb. 6.6

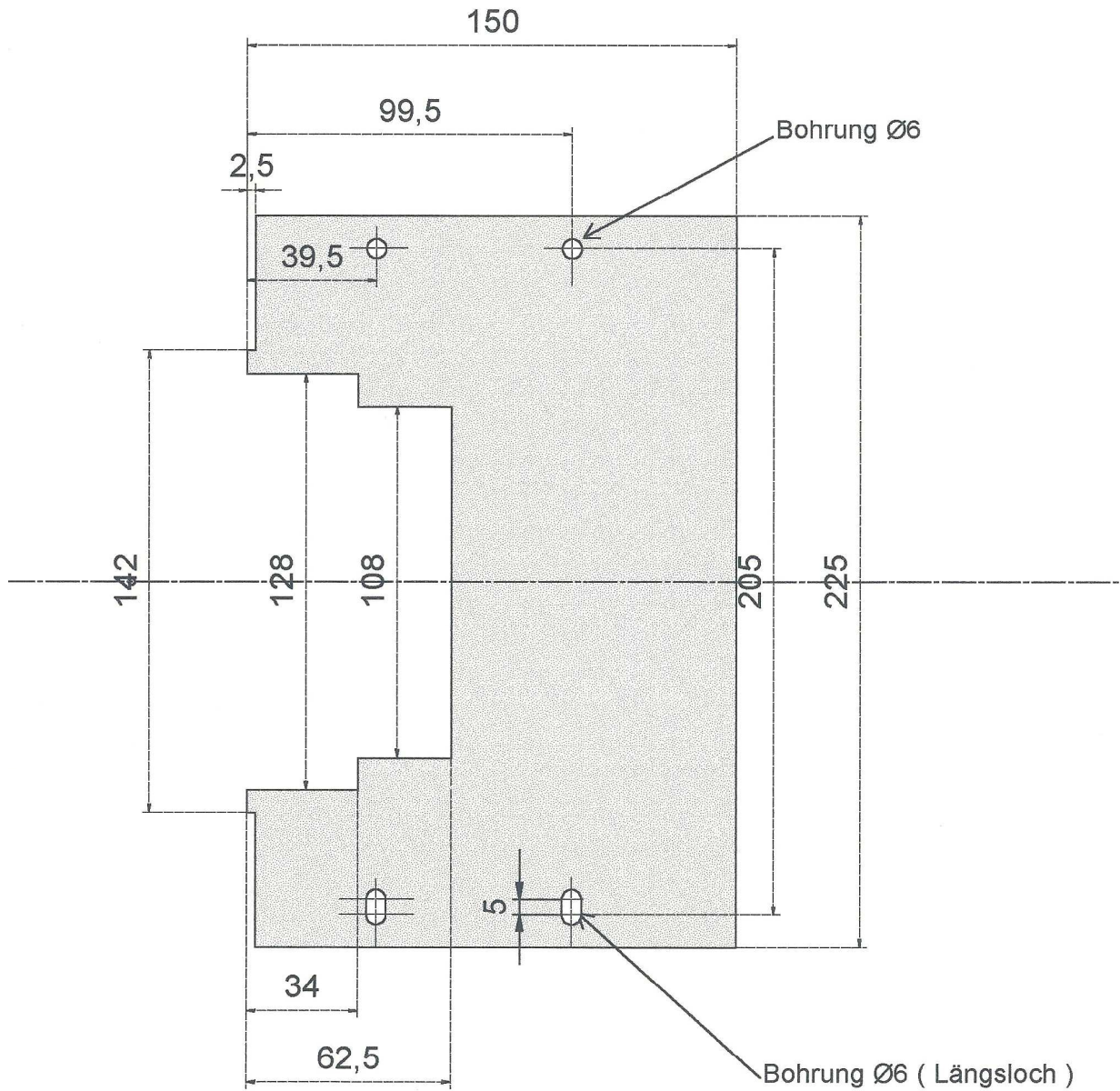
S. 117 Übersicht

M 1:2 Flugrohr



Material: Cu
Stückzahl: 1

M 1:2	Trennblech	t = 0,5
-------	------------	---------

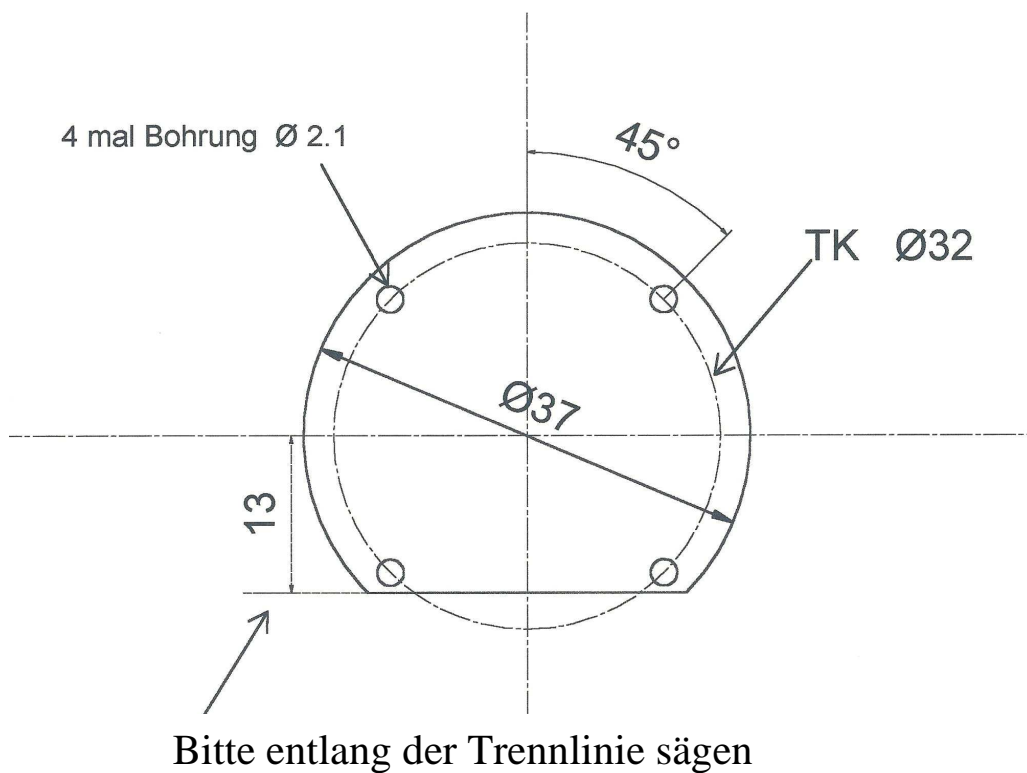


Material: Edelstahl
Stückzahl: 1

M 2:1

Skimmerdeckel

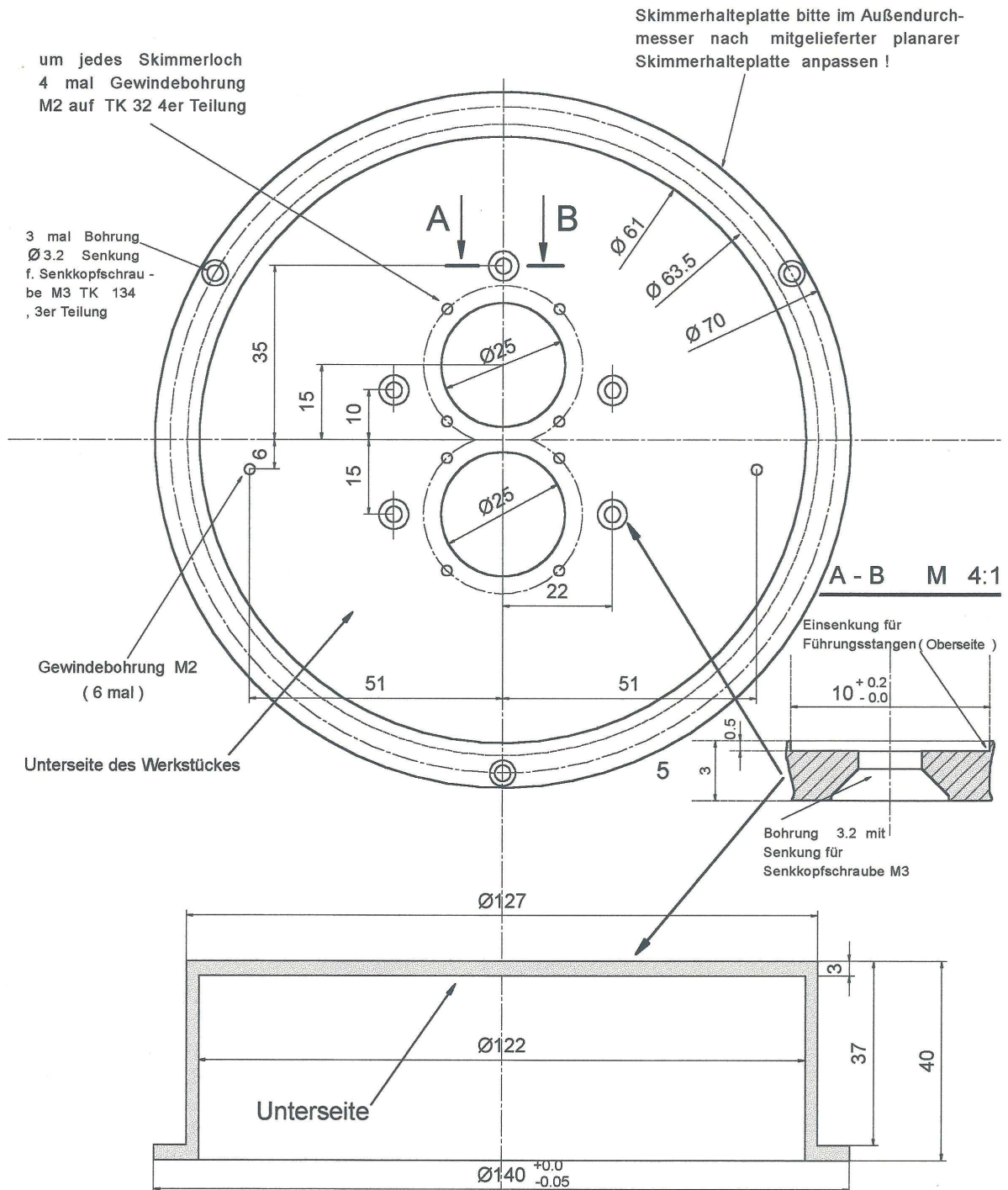
t= 0,5



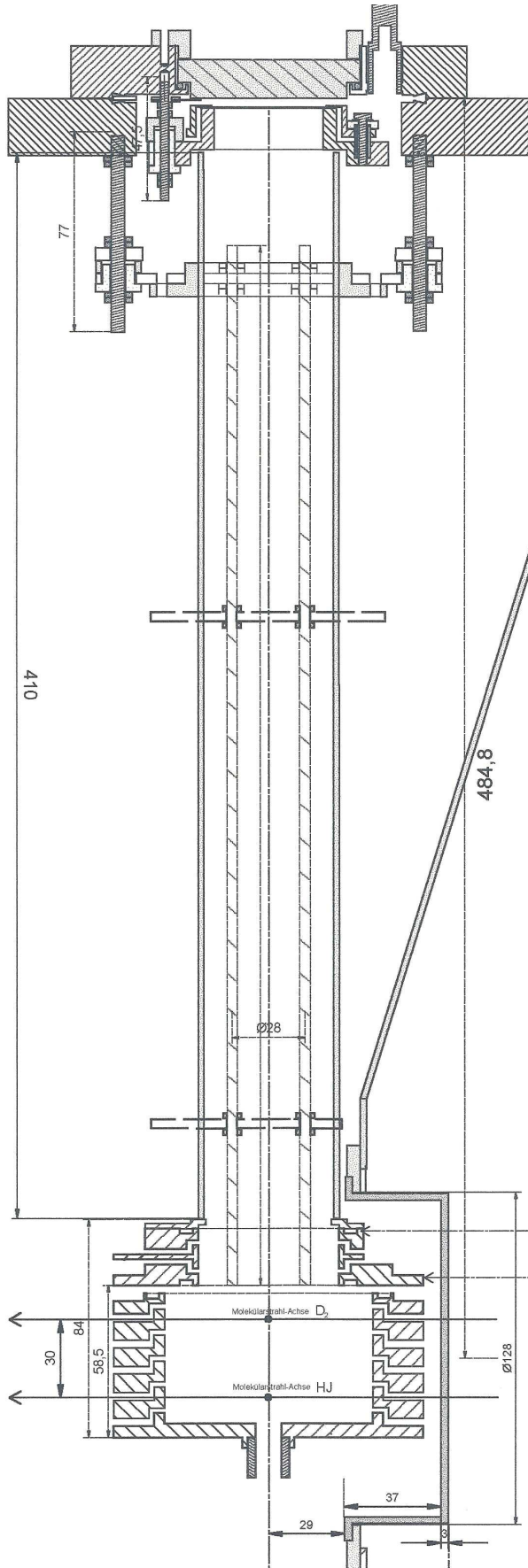
Material: Edelstahl
Stückzahl: 2

M 1:1

Skimmerhalteplatte

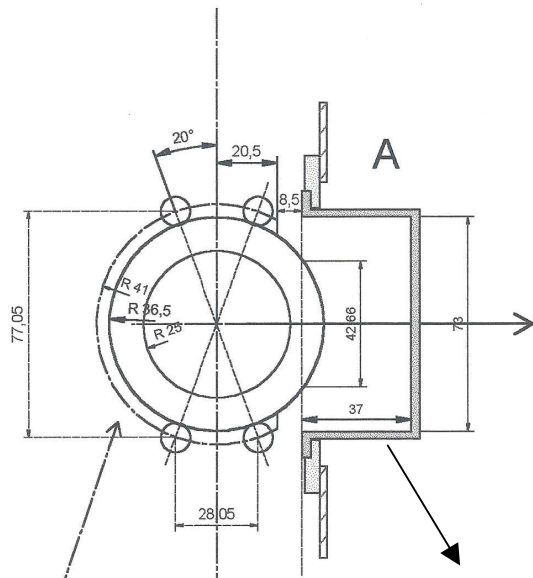


Material: Edelstahl
Stückzahl: 1



Übersichtszeichnung: M 1:2

Wichtig:
Es muss sichergestellt werden, dass das Flugzeitmassenspektrometer nicht mit der **Skimmerhalteplatte** kollidiert.



Skimmerhalteplatte
Ansicht: Schnittlinien A + B

