

**Zerfallsuntersuchungen an Edelgasclustern
und
Aufbau eines Detektors für Strahlung
von 40 bis 120 nm und Charakterisierung durch
Messung elektronenstoßangeregter Fluoreszenz**

Andreas Hans

Diplomarbeit
2. Juli 2013

Durchgeführt an der:

**U N I K A S S E L
V E R S I T Ä T**

Universität Kassel
Fachbereich 10 - Naturwissenschaften
Institut für Physik
Arbeitsgruppe Experimentalphysik IV - Dünne Schichten und Synchrotronstrahlung



Unter Anleitung von Prof. Dr. Arno Ehresmann

Above all, don't fear difficult moments.

The best comes from them.

Rita Levi-Montalcini

INHALTSVERZEICHNIS

1	Einleitung	1
2	Physikalische Grundlagen	3
2.1	Atomphysik	3
2.2	Wechselwirkungen zwischen Licht und Materie	6
2.3	Elektronenstoßanregung	10
3	Aufbau des Detektors und Messung elektronenstoßangeregter Fluoreszenz	12
3.1	Fernfokuselektronenquelle	12
3.2	Detektorsystem	18
3.3	Betrieb	22
3.4	Datenauswertung und Charakterisierung des Detektors	23
4	Auswertung der Edelgasspektren	28
4.1	Helium	30
4.2	Neon	31
4.3	Argon	32
4.4	Krypton	33
4.5	Tabellen der intensivsten Übergänge	34
5	Zerfallsprozesse in schwach gebundenen Atomverbänden	38
5.1	Der Interatomare Coulomb-Zerfall	38
5.2	Formen und Eigenschaften des ICD	41

5.3	Experimentelle Untersuchung und Nachweis	42
5.4	Ausblick	46
6	Ein Experiment zur Fluoreszenz von Edelgasclustern	47
6.1	Physikalischer Hintergrund des Experiments	47
6.2	Erzeugung von Edelgasclustern	48
6.3	Synchrotronstrahlung	49
6.4	Experimenteller Aufbau	50
7	Auswertung der Daten	52
7.1	Atomare Fluoreszenz und Beutler-Fano-Profil	52
7.2	Fluoreszenz von Neon-Clustern	54
7.3	Ladungsausbeute	56
7.4	Vergleich von Fluoreszenz und Ladungsausbeute	59
7.5	Argon	60
7.6	Lebensdauern	64
8	Zusammenfassung und Ausblick	66
	Abbildungsverzeichnis	77

In zahlreichen Gebieten der Naturwissenschaften ist es von Interesse wie Systeme relaxieren, wenn man Energie in ihnen deponiert. Vor einigen Jahren wurde entdeckt, dass Zerfallsprozesse wesentlich davon beeinflusst werden, ob Atome isoliert und in schwach gebundenen Verbänden auftreten. Im zweiten Fall kann die primär deponierte Energie auf einen Bindungspartner übertragen werden. Dieser Prozess wird *Interatomarer Coulomb-Zerfall* genannt (kurz ICD: für *Interatomic Coulombic Decay*). Die übertragene Energie führt in der Regel zur Ionisierung und damit zur Emission langsamer Elektronen. Dies führt zur Frage der Relevanz des ICD in der Biologie, da von langsamen Elektronen eine schädigende Wirkung auf biologisches Erbgut bekannt ist [HBD03, BCH00].

Nach der theoretischen Vorhersage durch Cederbaum et al. in 1997 [CZT97] gelangen einige Jahre später erste experimentelle Nachweise des ICD [MKH03, JCS04]. In der Folgezeit wuchs die Zahl an theoretischen und experimentellen Arbeiten rasch an [Her11]. Die experimentelle Untersuchung beschränkte sich dabei bisher im Wesentlichen auf Ionen- und Elektronenspektrometrie. Bei der Erforschung der biologischen Relevanz des ICD werden diese Methoden an ihre Grenzen stoßen, da mit zunehmender Dichte der Probe Störsignale größer werden und eine Detektion von Ionen und Elektronen zwangsläufig Hochvakuum erfordert. Die Messung von Fluoreszenz ist dagegen auch an sehr dichten Medien und prinzipiell auch an Atmosphäre durchführbar. ICD-Nachweismöglichkeiten durch Fluoreszenzmessungen würden daher eine große Zahl neuer experimenteller Möglichkeiten eröffnen. Im Rahmen dieser Arbeit wurden Experimen-

te zur Fluoreszenz von Edelgasclustern durchgeführt, an denen das Auftreten von ICD bereits nachgewiesen wurde [Her11]. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen sollen als Grundlage für Folgeexperimente dienen, in denen der ICD durch Messung von Fluoreszenz nachgewiesen und untersucht werden soll.

Zum Nachweis von Fluoreszenzphotonen dienen Detektoren verschiedener Art, je nach Wellenlänge der Photonen und Anforderungen des Experiments. Während dieser Arbeit sollte ein Detektor zum positionsauflösenden Nachweis von Photonen der Wellenlängen zwischen 40 und 120 nm aufgebaut und charakterisiert werden. Die Charakterisierung von Detektoren und Erstellung von Fluoreszenzübergangs-Katalogen zur Kalibrierung von Detektor-Spektrometer-Kombinationen erfolgt in der Arbeitsgruppe durch Messung elektronenstoßangeregter Fluoreszenz am Aufbau einer Fernfokuselektronenquelle [KBS12]. Der kontinuierliche Betrieb gestaltete sich zuletzt problematisch, da der als Elektronenquelle dienende Glühdraht kurzlebig und nur mit erheblichem Aufwand austauschbar war [Ozg11]. Zur Erstellung von Fluoreszenz-Katalogen von Edelgasen mit dem aufgebauten Detektor sollten Maßnahmen zur Erhöhung der Zuverlässigkeit dieses Aufbaus entwickelt werden.

2.1 Atomphysik

2.1.1 Das Wasserstoffatom

Bei der Erklärung von Prozessen auf atomarer Größenskala versagt die klassische Physik in vielerlei Hinsicht. Zu Beginn des 20. Jahrhunderts wurde deshalb mit der Quantenmechanik ein neuer Formalismus entwickelt, in dem die Kenntnis über mögliche Zustände in der Wellenfunktion $\Psi(\vec{r},t)$ eines Systems enthalten ist. Die nach Erwin Schrödinger benannte *Schrödingergleichung*

$$\hat{H}\Psi(\vec{r},t) = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\vec{r},t) \quad (2.1)$$

ist grundlegend für die Quantenmechanik und ihre Lösung liefert die möglichen Zustände eines quantenmechanischen Systems [Sch26]. Für das Wasserstoffatom ist

$$\hat{H} = \hat{T} + \hat{V} = -\frac{\hbar^2}{2m_{\text{Elektron}}} \nabla^2 + \hat{V}(\vec{r},t)$$

der *Hamilton-Operator* des Elektrons, der in Korrespondenz zur klassischen Hamilton-Funktion steht und die Entwicklung der Summe aus kinetischer Energie T und potentieller Energie V beschreibt. Für zeitunabhängige Hamilton-Operatoren lässt sich die Zeitabhängigkeit eliminieren.

Daraus folgt die *stationäre* Schrödingergleichung

$$\hat{H}\Psi'(\vec{r}) = E\Psi'(\vec{r}). \quad (2.2)$$

Gleichungen dieser Form sind typisch für den quantenmechanischen Formalismus und aus der Mathematik als Eigenwertproblem bekannt: gesucht sind Eigenfunktionen $\Psi'_n(\vec{r})$ mit Eigenwerten E_n , welche die Gleichung lösen. Im Falle der Wechselwirkung zwischen Elektron und Proton wird das Potential durch das Coulomb-Potential gegeben und ist kugelsymmetrisch. Es bietet sich daher an, die Gleichung 2.2 in Kugelkoordinaten r, θ und φ zu lösen. Die mathematische Lösung des Problems findet sich in z. B. in [Dem05b, MK97] und wird hier nicht im Detail durchgeführt. Die Differentialgleichung lässt sich nach den Koordinaten separieren und es folgt, dass die Lösungsfunktion $\Psi'(r, \theta, \varphi)$ für *jedes* Zentralpotential $V(\vec{r}) = V(r)$ als Produkt dreier Funktionen geschrieben werden kann, die jeweils von nur einer Koordinate abhängen [MK97]:

$$\Psi'(r, \theta, \varphi) = R(r)\Theta(\theta)\Phi(\varphi). \quad (2.3)$$

Außerdem sind die Winkelanteile $\Theta(\theta)$ und $\Phi(\varphi)$ unabhängig von $V(r)$, also für alle Zentralpotentiale gültig. Die Lösungen der Winkelanteile $Y_{lm}(\theta, \varphi) = \Theta(\theta)\Phi(\varphi)$ heißen *Kugelflächenfunktionen* [Fri94]. Die Indizes l und m resultieren aus zwei Separationskonstanten, die bei der mathematischen Lösung der Schrödingergleichung auftreten. Bei der Lösung des Radialanteils tritt ein weiterer Parameter n auf, der die Lösungen indiziert. Es zeigt sich, dass physikalisch sinnvolle Lösungen nur auftreten, wenn die Bedingungen

$$n = 1, 2, 3, \dots \quad (2.4)$$

$$l = 0, 1, 2, 3, \dots, n - 1$$

$$|m| \leq l$$

erfüllt sind. Da n, l und m die möglichen Zustände „quanteln“, werden sie *Quantenzahlen* genannt. Die Lösungsfunktionen $\Psi_{nlm}(r, \theta, \varphi)$ sind die Eigenfunktionen des Systems aus Proton und Elektron. Ihr Betragsquadrat $|\Psi_{nlm}(r, \theta, \varphi)|^2$ ist proportional zur Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektrons. Die Eigenwerte E sind nur abhängig von n [MK97]. Alle E_n sind die Energiewerte (*Energieniveaus*), die das System annehmen kann.

Es gibt noch eine weitere Quantenzahl s , die an dieser Stelle nicht auftaucht. Sie beschreibt eine als *Spin* bezeichnete Teilcheneigenschaft, von der empirisch bekannt ist, dass sie nur genau zwei Zustände annehmen kann (üblicherweise mit $s = \pm 1/2$ bezeichnet). Die theoretische Beschreibung erfolgt im Rahmen der relativistischen Quantentheorie [Sak67]. Der Zustand des Einelektronensystems kann also nun durch Angabe der vier Quantenzahlen n, l, m und s eindeu-

tig beschrieben werden. Für die Eigenschaften, die durch die Quantenzahlen gegeben sind, lassen sich nur schwerlich klassische Analogien finden. Historisch haben sich die Begriffe

$$\begin{aligned} n &: \text{Hauptquantenzahl} \\ l &: \text{Bahndrehimpulsquantenzahl} \\ m &: \text{Magnetquantenzahl} \\ s &: \text{Spinquantenzahl} \end{aligned} \tag{2.5}$$

durchgesetzt. Für n ist außerdem die Bezeichnung *Schale* geläufig. Die Zahlenwerte $0, 1, 2, 3 \dots$ für l werden in der Regel durch s, p, d, f, \dots ersetzt. Ein Elektron, das sich in der zweiten Schale befindet ($n = 2$) und die Bahndrehimpulsquantenzahl $l = 1$ hat, kann also kurz „2p-Elektron“ genannt werden. Energetische Zustände, gekennzeichnet durch n, l und m werden auch „Orbitale“ genannt. Besonders die Bezeichnung von l deutet an, dass sich einige der Eigenschaften mathematisch wie Drehimpulse verhalten. Dies hat weitreichende Konsequenzen. Wird der negativen Ladung des Elektrons ein Drehimpuls zugeschrieben, muss dies unmittelbar auch in *magnetischen* Eigenschaften resultieren. Dies ist tatsächlich der Fall. Im Magnetfeld ändern sich Lagen und Anzahl der Energieniveaus, es entstehen Aufspaltungen von Zuständen (*Zeeman-Effekt*). Darüber hinaus kommt es zur Kopplung der Drehimpulse: sowohl die Bahndrehimpulse und Spins mehrerer Elektronen als auch Bahndrehimpuls und Spin untereinander wechselwirken (*Spin-Bahn-Kopplung*). Das Resultat ist eine Aufspaltung der Energieniveaus in die sogenannte *Feinstruktur*. Auch der Atomkern hat einen Spin. Durch Wechselwirkung der Elektronendrehimpulse mit diesem kommt es zu weiteren Aufspaltungen (*Hyperfeinstruktur*). Das Spektrum der Energiewerte ist im Allgemeinen weit komplexer als durch die Bedingungen 2.4 gegeben [MK97, HW90, Dem05b].

2.1.2 Mehrelektronensysteme

Für alle Atome außer dem Wasserstoff ist es erforderlich zu betrachten, wie sich *mehrere* Elektronen auf die möglichen Energiewerte aufteilen und in welchem Zustand sich das gesamte System befindet. Aus dem *Pauli-Prinzip* folgt, dass jeder durch n, l, m und s gegebene Zustand nur mit einem Elektron besetzt werden kann, also zwei Elektronen sich niemals im gleichen Zustand befinden können [Dem05b]. Die Elektronen füllen die Energieniveaus des Atoms schrittweise mit steigender Energie auf, bis alle verteilt sind. Die energetische Lage der Niveaus steigt zunächst mit steigender Hauptquantenzahl n , die Zustände mit unterschiedlichem l sind *entartet*, d. h. sie liegen bei der gleichen Energie. Für mehr als ein Elektron entstehen Abschirmeffekte der Kernladung. Dies führt dazu, dass mit steigendem l auch die Energie des Zustandes zunimmt. Ab

$n = 3$ gibt es aufgrund unterschiedlicher Aufenthaltswahrscheinlichkeiten in Kernnähe Ausnahmen zu dieser Regel [HW90]. Die Quantenzahlen aller einzelnen Elektronen eines Atoms sind im Allgemeinen weniger interessant als der Gesamtzustand des Systems. Dazu werden neue Quantenzahlen L, S und J eingeführt. Es gibt Regeln, nach denen diese Gesamtquantenzahlen aus den einzelnen besetzten Niveaus bestimmt werden können [HW90]. Das System wird dann durch den Term

$$L_J^{2S+1} \quad (2.6)$$

beschrieben. Die mathematische Behandlung von l und s als Drehimpulse hat zur Folge, dass eine Addition nur vektoriell erfolgen kann. Es werden zwei Kopplungsmechanismen unterschieden. Ist die Kopplung zwischen Bahndrehimpuls \vec{l}_i und Spin \vec{s}_i der *einzelnen* Elektronen klein gegenüber der Kopplung aller Bahndrehimpulse und Spins *verschiedener* Elektronen, tritt *LS-Kopplung* (auch *Russel-Saunders-Kopplung*) auf. Die \vec{l}_i koppeln vektoriell zum Gesamtbahndrehimpuls \vec{L} . Der Betrag $L = |\vec{L}|$ kann dann für zwei Elektronen z. B. die Werte $L = l_1 + l_2, l_1 + l_2 - 1, \dots, l_1 - l_2$ annehmen. Üblicherweise werden die Zustände mit $L = 0, 1, 2, 3, \dots$ wiederum mit den Großbuchstaben S, P, D, F, \dots bezeichnet. Die einzelnen Spins koppeln analog zum Gesamtspin \vec{S} . Schließlich koppeln \vec{L} und \vec{S} zum Gesamtdrehimpuls $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$. Die Kopplung zwischen \vec{l}_i und \vec{s}_i ist proportional zur vierten Potenz der Kernladungszahl eines Atoms [HW90]. Besonders für schwere Atome koppeln daher nicht alle Bahndrehimpulse und Spins zu Gesamtgrößen. Stattdessen koppeln \vec{l}_i und \vec{s}_i eines Elektrons zu dessen Einzel-Gesamtdrehimpuls \vec{j}_i . Die einzelnen \vec{j}_i wiederum setzen sich zum Gesamtdrehimpuls \vec{J} zusammen. Diese Art der Kopplung wird *jj-Kopplung* genannt. Die *Multiplizität* $2S + 1$ ist durch den Gesamtspin S gegeben und gibt an, in wie viele Unterzustände sich ein Zustand mit gegebenem L aufspaltet, d. h. wie viele mögliche Werte der Betrag des Gesamtdrehimpulses durch die vektorielle Addition von \vec{L} und \vec{S} annehmen kann. In der Realität tritt stets eine Mischung beider Kopplungsmechanismen auf, die je nach Eigenschaften des Atoms mehr oder weniger stark ausgeprägt ist. Der Gesamtdrehimpuls voll besetzter Schalen ist gleich null [HW90]. Für konkrete Beispiele müssen daher nur die in nicht abgeschlossenen Schalen befindlichen *Valenzelektronen* berücksichtigt werden.

2.2 Wechselwirkungen zwischen Licht und Materie

Eine grundlegende Methode zur Charakterisierung von Materie jeglicher Art ist die Analyse der von ihr emittierten und absorbierten elektromagnetischen Strahlung. Seit Mitte des 19. Jahrhunderts ist es bekannt, dass jedes Element ein einzigartiges Strahlungsspektrum hat, anhand dessen

es eindeutig identifiziert werden kann [Dem05b]. Mit Entwicklung der Quantenphysik wurde zunehmend der Ursprung dieser Spektren klarer: Atome können Licht emittieren oder absorbieren, wenn sie vom Zustand mit der Energie E_i in einen Zustand der Energie E_k übergehen ($E_i \neq E_k$). Wie in den vorherigen Abschnitten beschrieben, können die energetischen Zustände nur gequantelte Werte annehmen. Es sind daher ausschließlich diskrete Differenzen zwischen ihnen möglich. Die Energiedifferenz der beteiligten Zustände entspricht dabei der Energie des emittierten oder absorbierten Photons, die das Produkt aus dessen Frequenz ν und dem Planckschen Wirkungsquantum h ist:

$$|E_i - E_k| = h\nu \quad (2.7)$$

Gilt dabei $E_i > E_k$, gibt das Atom Energie ab, es emittiert ein Photon. Für $E_k > E_i$ wird das Atom durch Absorption eines Photons angeregt. Ein bestimmter Übergang wird als „Spektrallinie“ bezeichnet. Alle Spektrallinien setzen sich zum *Spektrum* der jeweiligen Materie zusammen.

2.2.1 Emission und Absorption von Strahlung

Die quantentheoretische Betrachtung von Strahlung und ihrer Wechselwirkung mit Materie wurde erstmals 1917 von Albert Einstein formuliert [Ein17]. Er betrachtete drei Prozesse für Übergänge zwischen Zuständen $|i\rangle$ und $|k\rangle$ mit $E_i > E_k$. In einem Strahlungsfeld der spektralen Energiedichte $w(\nu)$ können Atome beim Übergang $|k\rangle \rightarrow |i\rangle$ Photonen absorbieren. Atome, die sich schon im Zustand $|i\rangle$ befinden, können durch die Strahlung zur Relaxation in $|k\rangle$ unter Abstrahlung eines Photons stimuliert werden. Dieser Prozess wird als *stimulierte* oder *induzierte* Emission bezeichnet. Die Relaxation ist auch ohne Strahlungsfeld möglich, dann handelt es sich um *spontane* Emission.

Laut Einstein sind die Wahrscheinlichkeiten für Absorption W_{ki}^{Abs} , induzierte Emission $W_{ik}^{ind.Em}$ und spontane Emission $W_{ik}^{sp.Em}$ pro Zeitintervall dt gegeben durch

$$\begin{aligned} \frac{dW_{ki}^{Abs}}{dt} &= B_{ki}w(\nu) \\ \frac{dW_{ik}^{ind.Em}}{dt} &= B_{ik}w(\nu) \\ \frac{dW_{ik}^{sp.Em}}{dt} &= A_{ik} \end{aligned} \quad (2.8)$$

Die Faktoren B_{ki} , B_{ik} und A_{ik} heißen *Einsteinkoeffizienten* des jeweiligen Prozesses. Die Wahrscheinlichkeiten für Absorption und stimulierte Emission sind proportional zur spektralen Ener-

giedichte, während die der spontanen Emission nur von den Zuständen $|i\rangle$ und $|k\rangle$ abhängt. Aus Überlegungen zum thermischen Gleichgewicht zwischen den beteiligten Zuständen können die Beziehungen

$$B_{ik} = \frac{g_k}{g_i} B_{ki} \quad (2.9)$$

$$A_{ik} = \frac{8\pi h \nu^3}{c^3} B_{ik}$$

hergeleitet werden [Dem10]. $g = 2J + 1$ ist dabei das statistische Gewicht eines Zustands mit Gesamtdrehimpuls J .

In einer intuitiven Herangehensweise zur Bestimmung der Einsteinkoeffizienten wird das sich aus Elementarladung e und Ortsvektor \vec{r} ergebende klassische elektrische Dipolmoment $\vec{p} = e \cdot \vec{r}$ durch den entsprechenden Operator $\hat{p} = e \cdot \hat{r}$ ersetzt [Dem10]. Der quantenmechanische Erwartungswert $M_{ik} = \langle \hat{p} \rangle = e \int \Psi_k^* \vec{r} \Psi_i dV$ ist das *Übergangsdipolmoment*, wobei Ψ_k und Ψ_i die zu den Zuständen $|i\rangle$ und $|k\rangle$ gehörigen Wellenfunktionen sind. Überlegungen zur durchschnittlich abgestrahlten Leistung liefern den Zusammenhang zwischen Einsteinkoeffizient für spontane Emission A_{ik} und Übergangsdipolelement M_{ik}

$$A_{ik} = \frac{2}{3} \frac{\omega_{ik}^3}{\epsilon_0 h c^3} |M_{ik}|^2. \quad (2.10)$$

ω_{ik} ist dabei die Frequenz der Strahlung des Übergangs von $|i\rangle$ nach $|k\rangle$, ϵ_0 die Permittivität des Vakuums, h das Plancksche Wirkungsquantum und c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum. Ähnliche Ausdrücke lassen sich für die Koeffizienten von induzierter Emission und Absorption bestimmen. Werden für alle möglichen Kombinationen von $|i\rangle$ und $|k\rangle$ die Übergangsdipolelemente M_{ik} in eine Matrix eingetragen, entsteht die sogenannte *Übergangsmatrix*. Ihre Einträge geben Auskunft über die Wahrscheinlichkeiten aller möglichen Übergänge. Die einzelnen Übergangsdipolmomente und damit die Übergangswahrscheinlichkeiten können mit Hilfe der zeitabhängigen Störungstheorie berechnet werden [Ste93, Fri94].

2.2.2 Auswahlregeln

Werden die Einträge der Übergangsmatrix explizit berechnet, kann für bestimmte Zustände $|i\rangle, |k\rangle$ der Fall

$$M_{ik} = 0 \quad (2.11)$$

auftreten. Dann ist die Übergangswahrscheinlichkeit ebenfalls gleich null und es handelt sich um einen *verbotenen* Übergang. Durch die quantentheoretische Berechnung ergeben sich *Auswahlregeln*, welche Übergänge erlaubt und verboten sind. Die wichtigsten dieser Regeln lassen sich auch aus einfachen (die Symmetrie betreffenden) intuitiven Überlegungen gewinnen [Dem05b]. Es ist zu berücksichtigen, dass die Zustandsbezeichnungen $|i\rangle$ beziehungsweise $|k\rangle$ jeweils für den kompletten Satz Quantenzahlen stehen, welche die Zustände vollständig beschreiben, d. h. $|i\rangle = |n_i, l_i, m_i, s_i\rangle$. Für Einelektronensysteme ergeben sich die Regeln:

$$\Delta l = l_i - l_k = \pm 1 \quad (2.12)$$

$$\Delta m = m_i - m_k = 0, \pm 1$$

$$\Delta s = s_i - s_k = 0$$

Dabei gilt die Änderung der magnetischen Quantenzahl von ± 1 für Absorption beziehungsweise Emission von zirkular polarisierter Strahlung und die Änderung von null für linear polarisierte Strahlung. Für Mehrelektronensysteme bleiben die Auswahlregeln prinzipiell gültig, d. h. sie lassen sich auf den Gesamtwert der jeweiligen Quantenzahl übertragen. Für den Gesamtdrehimpuls $J = |\vec{J}| = |\vec{L} + \vec{S}|$ folgt zusätzlich

$$\Delta J = 0, \pm 1, \quad \text{aber} \quad J = 0 \not\rightarrow J = 0. \quad (2.13)$$

Die Spinquantenzahl-Auswahlregel ist außerdem nicht mehr streng gültig. $\Delta S = 0$ gilt nur für Systeme mit schwacher Spin-Bahn-Kopplung [HW90]. Wie in Abschnitt 2.1.2 gesehen, ist für schwere Atome mit starker Spin-Bahn-Kopplung die Definition von Gesamtspin und Gesamtdrehimpuls generell problematisch.

Die zu 2.12 und 2.13 führenden Überlegungen gelten zunächst nur für den Fall, dass die Wellenlänge der betrachteten Strahlung sehr viel größer ist als die Ausdehnung des beteiligten Atoms, da für diesen Fall das elektrische Feld als konstant angenähert werden kann (*Dipolnäherung*). Es gibt weitere elektronische Übergänge höherer Ordnung sowie magnetische Übergänge, für die die Auswahlregeln neu formuliert werden müssen [Dem05b].

2.2.3 Fluoreszenz und Lebensdauern

Wie schon erläutert können angeregte Atome durch spontane Emission ein Photon emittieren und dabei in einen niedrigeren Energiezustand übergehen. Im Allgemeinen wird dieser Vorgang als *Lumineszenz* bezeichnet. Wurde die vorherige Anregung durch Photonen ausgelöst, spricht

man von *Fluoreszenz*. Für die Strahlungsemission nach Anregung durch Elektronenstöße ist der Begriff Fluoreszenz ebenso geläufig und wird daher auch in dieser Arbeit verwendet.

Befinden sich N_i Atome in einem Zustand $|i\rangle$, so lässt sich die Anzahl der im Zustand verbleibenden Atome zum Zeitpunkt t durch einen exponentiellen Zerfall beschreiben [Dem05b]:

$$N_i(t) = N_i(t=0) \cdot e^{-A_i t}. \quad (2.14)$$

$A_i = \sum_k A_{ik}$ ist die Summe aller Einsteinkoeffizienten der Übergänge von $|i\rangle$ in die möglichen Endzustände $|k\rangle$. Der Kehrwert $\tau_i = 1/A_i$ beschreibt die *mittlere Lebensdauer* des Zustands $|i\rangle$. Nach Gleichung 2.7 wäre anzunehmen, bei jedem Übergang wird nur Strahlung einer Wellenlänge emittiert (*monochromatische* Strahlung). Dies würde zu infinitesimal schmalen Spektrallinien führen. Tatsächlich wird beobachtet, dass alle Linien eine gewisse Breite aufweisen. Dies kann in der Auflösung der experimentellen Apparatur begründet sein. Aber es gibt auch physikalische Effekte im System selbst, die zu einer Linienverbreiterung führen, von denen die wichtigsten kurz erläutert werden sollen [Dem05b]:

- **Natürliche Linienbreite.** Wegen der quantenmechanischen Unbestimmtheitsrelation (siehe z. B. [HW90]) sind die Energiewerte von Anfangs- und Endzustand nicht beliebig scharf. Ihre Energiebreite hängt mit Lebensdauer der Zustände zusammen. Resultat ist eine Verbreiterung der Linie in ein *Lorentz*-Profil.
- **Doppler-Verbreiterung.** Die emittierenden Atome ruhen nicht, sondern haben eine statistische, temperaturabhängige Geschwindigkeitsverteilung. Der Doppler-Effekt [Dem05a] führt zu einer *gaußförmigen* Linienverbreiterung.
- **Stoßverbreiterung.** Stöße zwischen Atomen eines Licht emittierenden Gases bewirken eine *gaußförmige* Verstärkung des Effekts der natürlichen Linienbreite. Durch Wechselwirkung untereinander beim Stoß verschieben sich Energieniveaus. Dies bewirkt eine Erhöhung oder Verschiebung der Energiebreite. Weiterhin können Stöße die Emission induzieren und somit die Lebensdauer von Zuständen verkürzen, was ebenso zur Linienverbreiterung führt.

2.3 Elektronenstoßanregung

Für im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Ausschnitte der Edelgasspektren fand die Anregung der Gase mittels Elektronenstoß statt. Der experimentelle Aufbau hierfür wird in Kapitel 3 ausführlich beschrieben. Analog zu Abschnitt 2.2.1 handele es sich um eine Anregung von einem Zustand $|i\rangle$ in einen Zustand $|k\rangle$ mit Energien $E_i > E_k$. Für die Anregung durch Photonen muss

dabei die *Resonanzbedingung* 2.7 erfüllt sein, da das Photon bei der Anregung komplett absorbiert wird. Für Elektronenstoßanregung stellt sich die Situation unterschiedlich dar. Wie z. B. [IH10] zeigt, kann ein stoßendes Elektron mit kinetischer Energie T jeden Teilbetrag seiner Energie an das Atom abgeben. Um eine atomare Resonanz anzuregen, muss für den Elektronenstoß also lediglich die Bedingung

$$T \geq |E_i - E_k| \quad (2.15)$$

erfüllt sein. Ein Elektronenstrahl stellt folglich eine *kontinuierliche* Anregungsquelle dar, die alle Übergänge $|i\rangle \rightarrow |k\rangle$ anregt, für die 2.15 gilt. Die Anregung der Übergänge ist nicht gleich wahrscheinlich. Für jede mögliche Anregung gibt es eine Anregungswahrscheinlichkeit-Anregungsenergie-Funktion. Diese Funktion wird *Wirkungsquerschnitt* genannt. Für die Anregung mit Photonen hat der Wirkungsquerschnitt demnach ein sehr scharfes Maximum, wenn die Photonenenergie gleich der Anregungsenergie ist (Resonanzbedingung 2.7), und ist sonst praktisch null. Für die Anregung mit Elektronen dagegen ist er null, bis 2.15 erfüllt ist. Bei dieser Schwelle steigt er typischerweise schnell bis zu einem Maximum an, bevor er sinkt und für sehr hohe Elektronenenergien wiederum gegen null strebt [IH10].

3.1 Fernfokuselektronenquelle

Der Aufbau einer Fernfokuselektronenquelle war vor Beginn der Arbeit vorhanden. Er wurde für frühere Arbeiten zur elektronenstoßangeregten Fluoreszenzspektroskopie verwendet. Eine ausführliche Beschreibung des Aufbaus und der Funktionsweise seiner Komponenten findet sich in früheren Arbeiten [Ozg11, Bur11] und Veröffentlichungen [KBS12]. Hier sollen die wichtigsten Bestandteile skizziert werden. Beim regelmäßigen Betrieb der Elektronenquelle traten in der Vergangenheit immer wieder Probleme auf. Teil dieser Arbeit war u. a. die Untersuchung dieser Probleme und die Entwicklung von Maßnahmen, die einen zuverlässigen Betrieb ermöglichen. Auf der Beschreibung dieser Maßnahmen liegt daher der Schwerpunkt dieses Abschnitts.

3.1.1 Aufbau und Funktionsweise

Der Aufbau der Fernfokuselektronenquelle, wie er früher verwendet wurde, ist in Abbildung 3.1 dargestellt. Aus einem Wolframglühdraht werden Elektronen emittiert, in einer Anordnung aus Wehneltzylindern vorfokussiert und in Richtung einer Anode beschleunigt. Da der Strahlfokus dabei in der Anode liegt, wird dieser mit einer magnetischen Linse, realisiert durch eine Spule,

in die Wechselwirkungskammer projiziert. Durch einen seitlichen Spalt fällt entstehendes Fluoreszenzlicht in einen Monochromator (*McPherson* type 225). Der Monochromator wird ohne Austrittsspalt als Spektrometer verwendet, spektrale Ausschnitte werden mit positionsempfindlichen Detektoren gemessen. Unterhalb der Kammer ist ein Faraday-Cup angebracht, mit dem der transmittierte Elektronenstrom gemessen werden kann. Der turmartige Aufbau der Elektronenquelle mit Anode und magnetischer Linse soll im Folgenden kurz als „Turm“ bezeichnet werden, um ihn von der Stoßkammer und dem Monochromator abzugrenzen.

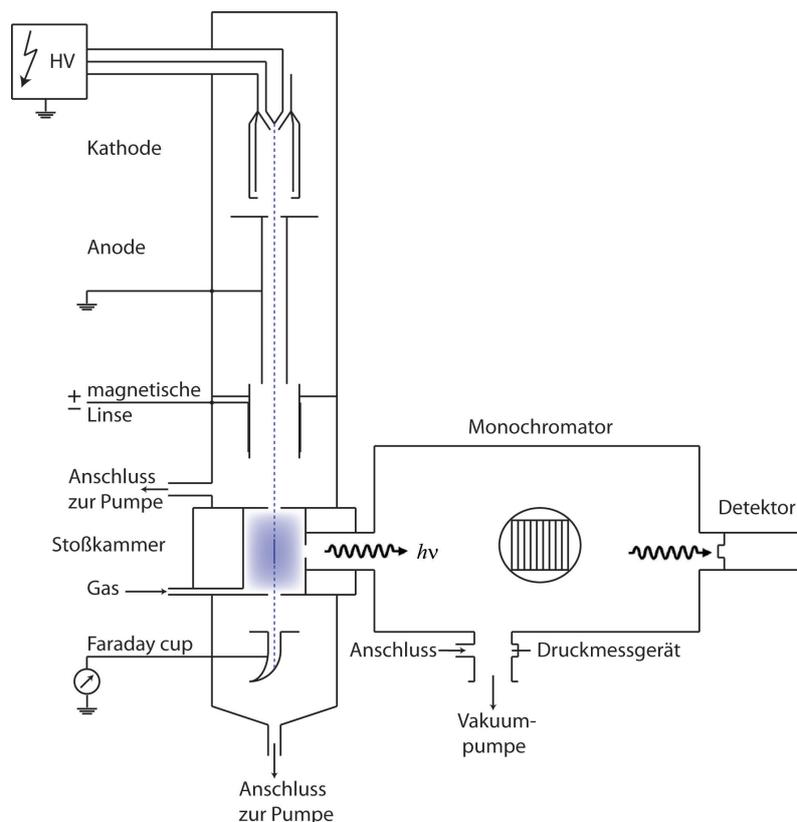


Abb. 3.1: Schematische Darstellung des früher verwendeten Aufbaus der Fernfokuselektronenquelle [Bur11].

Wie in [Bur11] beschrieben, wurden mit diesem Aufbau und geeigneten Betriebsparametern ausreichend hohe Elektronenströme erreicht, die Messungen von Fluoreszenzspektren ermöglichten. Ozga [Ozg11] allerdings beschreibt einige Probleme, die zu nicht reproduzierbaren Messbedingungen führten und somit keinen zufriedenstellenden Betrieb mehr ermöglichten. Die Ursachen dieser Probleme wurden untersucht und konnten teilweise behoben werden, wie in den folgenden Abschnitten erläutert wird.

3.1.2 Drahtspitze

Das Wechseln der Drahtspitze ist aufbaubedingt mit erheblichem Aufwand verbunden. Die Lebensdauer der Spitze ist jedoch durch verschiedene Faktoren begrenzt [Ozg11]. Durch die starke thermische Belastung verlässt die angefertigte Spitze ihre Form; sie bricht oder kontaktiert den inneren Zylinder der Anordnung. Verschiedene Versuche, dies zu verhindern, waren nicht erfolgreich. Eine wie in [Ozg11] beschriebene Markorunterstützung wurde angefertigt, doch auch diese konnte die Verformung nicht verhindern. Die thermische Belastung ist so groß, dass sich der Draht von der Unterstüztung löst und verformt. Um die Belastung der kompletten Drahtspitze durch die hohen Temperaturen zu reduzieren, wurde deshalb der Draht an der vorderen Spitze nach der Formung mit einer Zange stark abgeplattet und damit der Widerstand an dieser Stelle erhöht. Diese Veränderung führt dazu, dass die Spitze bei niedrigerem Strom betrieben werden kann und die zur Elektronenemission nötige Erhitzung nur noch in dem abgeplatteten Spitzenbereich stattfindet. Die entstehende Wärmemenge ist deutlich geringer und kann vom Draht aufgenommen und darüber abtransportiert werden, ohne dass dies seine Stabilität beeinträchtigt. Nach Tests mit verschiedenen Spitzen konnte eine gut funktionierende Form ausgearbeitet werden, wie sie in Abbildung 3.2 zu sehen ist. Zwar gestaltet sich die genaue technische Reproduzierbarkeit der Form noch als Schwierigkeit, aber Spitzen mit Lebensdauern von über 100 Betriebsstunden konnten angefertigt werden.

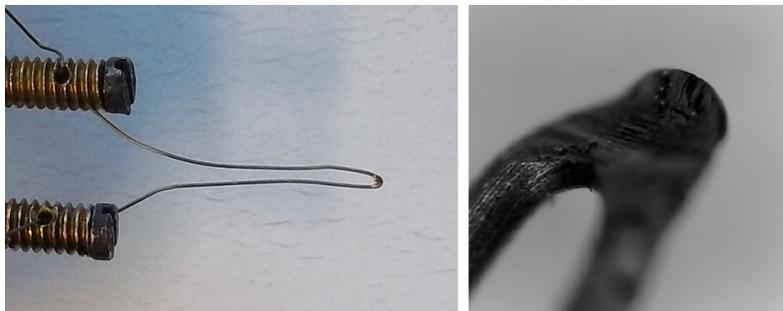


Abb. 3.2: Aufnahmen von abgeplatteten Glühdrahtspitzen. Links: Fotografie des gesamten Drahts in seiner Halterung. Rechts: Mikroskopaufnahme einer Spitze mit 500-facher Vergrößerung.

3.1.3 Druckabhängigkeit der Elektronenemission

Im früheren Aufbau wurde, wie in Abbildung 3.1 ersichtlich, der Bereich oberhalb der Stoßkammer durch eine Wellenschlauchverbindung mit der Vakuumpumpe des Monochromators gepumpt. Der Druck im Turm selbst und seine Auswirkung auf den Elektronenstrom wurden bisher jedoch nicht untersucht. Im Rahmen dieser Untersuchungen wurde deshalb zunächst ein Druckmessge-

rät auf Höhe der Anode angebracht. Es zeigte sich, dass der Druck im Bereich der Elektronenemission auch nach längerem Pumpen um Größenordnungen über dem im Monochromatorvolumen gemessenen Druck liegen kann. Der erreichbare Enddruck im Monochromator liegt in der Größenordnung $1 \cdot 10^{-6}$ mbar. Der Aufbau aus Spule und Anode wirkt wie eine Blende, sodass das Volumen oberhalb der Spule nur schwer durch den darunter befindlichen Schlauch evakuiert werden kann. Um den Einfluss des Drucks auf die Elektronenemission zu untersuchen, wurde zunächst auf dem Turm eine Turbomolekularpumpe im Überkopfbetrieb angebracht, die direkt das Volumen um den Glühdraht evakuiert. Eine direkte Messung des im Faraday-Cup ankommenden Elektronenstroms in Abhängigkeit des Drucks im Emissionsbereich ist nur mit einem magnetfeldfreien Messverfahren möglich, da der Magnet an der Druck messenden Penning-Röhre den Strahl sofort gegen die Außenwand lenkt (siehe dazu auch Abschnitt 3.1.4). Es wurde deshalb der über das Hochspannungsnetzteil abfließende Strom I_{HV} in Abhängigkeit vom Druck p im Emissionsbereich als relatives Maß für die vom Draht emittierte Ladungsmenge aufgenommen. Ein typischer Kurvenverlauf ist in Abbildung 3.3 zu sehen.

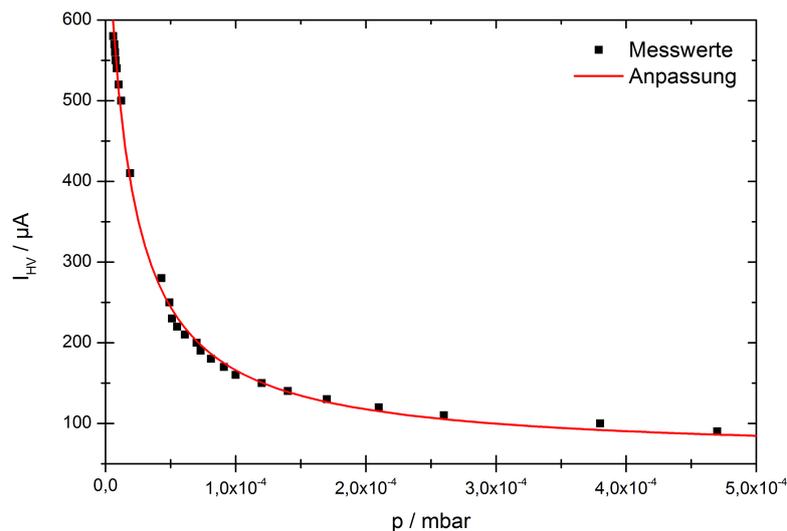


Abb. 3.3: Messung der Elektronenemission aus dem Glühdraht in Abhängigkeit vom herrschenden Druck im Emissionsbereich. Die Daten können im gemessenen Bereich gut durch eine verschobene antiproportionale Funktion angepasst werden: $I_{HV}(p) = \frac{0,0123 \mu\text{A} \cdot \text{mbar}}{p + 1,72 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}} + 60,9 \mu\text{A}$. Bei der Messung verwendete Betriebsparameter: Beschleunigende Hochspannung: $U_{HV} = 3,5 \text{ kV}$, Potential am mittleren Wehneltzylinder $U_{MW} = 218 \text{ V}$, Potential am inneren und äußeren Wehneltzylinder $U_{WA} = 0 \text{ V}$, Drahtstrom $I_D = 1,9 \text{ A}$.

Die Druckabhängigkeit der emittierten Elektronenmenge lässt sich offenbar im gemessenen Druckbereich durch eine Funktion der Form

$$I_{HV}(p) = \frac{A}{p+B} + C \quad (3.1)$$

beschreiben. A , B und C sind dabei Parameter, die von den Betriebsgrößen und der Spitze selbst abhängen. Dies zeigt, dass ein niedriger Druck im Emissionsbereich für das Erreichen hoher Elektronenströme überaus wichtig ist. Mit dem Anbau der Überkopfpumpe direkt oberhalb der Drahtalterung konnte erreicht werden, dass das Vakuum auch hier in der Größenordnung von $1 \cdot 10^{-6}$ mbar liegt.

Das Volumen um die Drahtspitze direkt abzupumpen wird umso wichtiger, wenn zwecks einer Messung Gas in die Stoßkammer eingelassen wird. In diesem Fall verringern zwei Effekte den messbaren Elektronenstrom. Einerseits strömt das Gas in den Turm und verschlechtert die Emissionseigenschaften des Drahtes. Außerdem herrscht auf der gesamten Strecke zwischen Elektronenemission und Faraday-Cup ein deutlich höherer Druck, abhängig vom Messdruck in der Kammer. Durch Stöße mit dem Gas werden Elektronen abgelenkt und gehen für den im Faraday-Cup ankommenden Strom verloren. Der höchste Druck herrscht dabei in der Targetzelle selbst, so dass der höchste Verlust hier auftritt. Die hier stattfindenden Stöße sind allerdings gewollt, weil sie die Fluoreszenz anregen, die gemessen werden soll. Der am Faraday-Cup gemessene Strom ist also nicht zwangsläufig ein Maß für maximale Fluoreszenzhelligkeit vor dem Monochromatorsplatt. In der Regel sollten die Betriebsparameter deshalb nicht auf maximalen Elektronenstrom, sondern auf Zählrate am Detektor optimiert werden.

3.1.4 Magnetfelder

Die Bahn der Elektronen reagiert äußerst empfindlich auf äußere Magnetfelder. Grundsätzlich muss deshalb versucht werden, jede magnetfeldverursachende Komponente von der Anlage fern zu halten. Erforderlich ist selbstverständlich das Magnetfeld der Spule. Dieses ist jedoch radial-symmetrisch und projiziert daher lediglich den Strahlfokus aus der Anode in die Targetkammer. Das Feld der magnetgelagerten Überkopfpumpe zeigte keinen negativen Einfluss auf den Strom. Vermutlich ist es vernachlässigbar schwach oder führt wegen seiner Radialsymmetrie nicht zum Elektronenverlust. Keinesfalls möglich ist der gleichzeitige Betrieb vom Elektronenstrahl und Penning-Druckmessröhre, da der Magnet der Messröhre aus offensichtlichen Gründen sofort zum Strahlverlust führt. Es stellte sich heraus, dass auch andere in Nähe befindlichen Gegenstände mit schwachem Magnetfeld erheblichen Einfluss auf den Elektronenstrahl haben können, wie zum Beispiel herumliegende Werkzeuge. In der Regel ist dieser Einfluss negativ, das heißt er führt zu niedrigerem Strom. In einigen Fällen kann allerdings ein schiefer oder instabiler Strahl auch durch willkürlich verteilte Magneten von außen begradigt und gestärkt werden. Hierbei fehlt jedoch jede Reproduzierbarkeit. Bei keinen schwerwiegenden Problemen mit der Strahlla-

ge sollte deshalb generell jeder magnetfeldverursachende Gegenstand aus der Nähe des Aufbaus entfernt werden.

Wie schon beschrieben, unterliegt die Drahtspitze thermischen Belastungen. Trotz der verbesserten geometrischen Anfertigung sind geringe Positionsschwankungen möglich. Darüber hinaus ist es schon beim Einbau unmöglich, die Spitze *exakt* in der Mitte der zylindersymmetrischen Anordnung zu platzieren. Dies kann dazu führen, dass der Strahl nicht genau auf der Symmetrieachse des Aufbaus liegt. Dadurch kann es vorkommen, dass der Strahl und damit die fluoreszierende Säule in der Stoßkammer nicht vor dem Spalt zwischen Kammer und Monochromator verläuft. Dieses Problem kann in der Regel durch geringe Variation des Spulenstroms (und damit des Strahlfokus) behoben werden. Weiterhin stellte sich heraus, dass zwischen Stoßkammer und Faraday-Cup eine Blende eingebaut war. Bei geringfügig schiefer Strahlage wurde der Strahl abgeschnitten und nicht vom Cup gemessen. Dies konnte fälschlicherweise einen schwachen Strahlstrom suggerieren. Da die Blende keine essentielle Funktion besaß, wurde sie entfernt. Nun kann durch geringe seitliche Verschiebung des Faraday-Cups auch ein leicht schiefer Strahl vollständig aufgenommen werden.

3.1.5 Betriebsparameter

Die verschiedenen Betriebsparameter und ihr Einfluss auf den Elektronenstrom sind in [Bur11] beschrieben. Tabelle 3.1 zeigt einen Überblick über die wichtigsten Betriebsparameter, wie sie bei früheren Arbeiten benutzt wurden und wie sie nach den neueren Untersuchungen empirisch optimiert wurden. Die veränderten Werte der Potentiale der Wehneltzylinder können durch die veränderte Spitzenform erklärt werden. Bemerkenswert ist, dass der Draht nun auch schon bei erheblich geringeren Heizströmen I_D betrieben werden kann, was die Effizienz der neuen Spitzengeometrie zeigt.

Betriebsparameter	[Bur11]	Neu
Beschleunigungshochspannung U_{HV} in kV	3,5	3,5
Spulenstromstärke I_{Spule} in A	1,6-1,7	1,5-1,6
Potential mittlerer Wehneltzylinder U_{WM} in V	160-220	250-350
Potential innerer und äußerer Wehneltzylinder U_{WA} in V	-3	0
Abstand zwischen Anode und Kathode D in mm	2-5	2-5
Drahtstrom I_D in A	$\approx 2,3$	1,6-2,2

Tab. 3.1: Übersicht: Empirisch neu optimierte Einstellungen („Neu“) der wichtigsten Betriebsparameter im Vergleich zu früheren Arbeiten ([Bur11]).

Noch immer ist der erreichbare Elektronenstrom abhängig von der Spitze selbst. Die Spitzen können allerdings so reproduzierbar hergestellt werden, dass mindestens ein Elektronenstrom von $I_e \approx 100 \mu\text{A}$ erreicht wird, was zur Durchführung von Messungen ausreichend ist. Der höchste bisher erreichte stabile Strom lag bei $I_e \approx 500 \mu\text{A}$. Je nach Dauer einer Messung kann der Elektronenstrom driften. Dies kann auf thermische Effekte wie Verformung der Drahtspitze und Erwärmung der Spule zurückgeführt werden. Es empfiehlt sich in jedem Falle, nach Inbetriebnahme vor Beginn der Messung einige Zeit zu warten (0,5-1 Stunde). Bei längeren Messungen kann der Strom durch manuelle Nachregelung der Betriebsparameter bis auf etwa 10 % konstant gehalten werden.

3.2 Detektorsystem

Zum Nachweis von Strahlung im extrem-ultravioletten („EUV“, 10 bis 121 nm) und vakuum-ultravioletten („VUV“, 100 bis 200 nm, [DIN84]) Bereich des Spektrums wurde ein Detektorsystem aufgebaut, wie es prinzipiell in [Kra91] beschrieben wird. In sogenannten Mikrokanalplatten lösen einfallende Photonen die Erzeugung von Elektronenschauern aus. Diese treffen auf eine Keil- und Streifen-Anode, die genauer aus drei Anodenteilen aufgebaut ist. Aus den erhaltenen Signalen der drei Anodenteile lässt sich der Auftreffort des Photons bestimmen.

3.2.1 Mikrokanalplatten

Mikrokanalplatten sind Anordnungen von $10^4 - 10^7$ Miniatur-Elektronenvervielfachern (Kanälen). Üblicherweise, und so auch im Folgenden, werden sie mit ihrer englischen Bezeichnung *Micro-channel plate* oder deren Abkürzung *MCP* benannt. Einen umfassenden Überblick zu Herstellung, Funktionsweise und Eigenschaften gibt [Wiz79]. Die Platte selbst besteht aus einem nichtleitenden Glas; die Kanäle, typischerweise etwa 10 – 100 μm im Durchmesser, sind innen halbleiterbeschichtet. Die Flächen des MCP sind zur Kontaktierung metallisch beschichtet. Zwischen oberer und unterer Kontaktierungsschicht liegt ein elektrischer Widerstand von einigen hundert Megaohm.

Das Funktionsprinzip der einzelnen Kanäle ist folgendes: Ein einfallendes Photon löst aus dem Detektormaterial ein Photoelektron aus. Dieses wird durch die anliegende Spannung (zwischen Kanalober- und -unterseite) beschleunigt. Trifft es auf die Kanalwand, löst es aus dieser (aufgrund seiner gewonnenen Energie) mehrere sekundäre Elektronen aus. Diese werden wiederum beschleunigt und lösen wieder jeweils mehrere Elektronen aus. Dieser Prozess setzt sich fort und endet im lawinenartigen Ausstoß zahlreicher Elektronen aus dem Kanal. In der Regel kann ein Verstärkungsfaktor von bis zu 10^4 pro MCP erreicht werden. Dieser ist abhängig von der angelegten Spannung und von MCP-Eigenschaften wie Verhältnis von Kanallänge l zu

Kanaldurchmesser d . Dieser Quotient $\frac{l}{d}$ liegt zwischen 40 und 100 und bestimmt die Eigenschaften des MCP typischerweise stärker als beide Größen einzeln. Nach einem Ereignis hat der betreffende Kanal wegen der abgeflossenen Ladungen eine Totzeit von etwa 20ms. Aufgrund der großen Kanalanzahl ist die effektive Totzeit des MCP allerdings um Größenordnungen niedriger.

Es gibt einige Quellen für „falsche“ Ereignisse, die sich zum Dunkelrauschen des MCP addieren. Kosmische Strahlung oder Elektronen aus radioaktivem Detektormaterial können vereinzelt dazu beitragen. In der Praxis am bedeutsamsten ist das sogenannte Ionenfeedback: Durch Elektronenstöße ionisierte Restgasatome werden in den Kanälen ebenfalls beschleunigt und lösen beim Auftreffen auf die Kanalwände Sekundärelektronen aus. Um diesen unerwünschten Effekt zu unterdrücken, sind die Kanäle in einem Winkel zwischen 0 und 15° zur Oberflächennormalen angeordnet. Eventuell entstehende Ionen können so nicht zur Oberseite des MCP gelangen. Sie treffen zuvor auf die Kanalwand und lösen höchstens vernachlässigbare Signale mit geringer Amplitude aus.

Noch wirksamer ist die Verwendung von mehreren MCPs hintereinander. Dabei werden die Kanalachsen entgegengesetzt zueinander angeordnet. Häufig werden zwei oder drei MCPs verwendet. Wegen der entstehenden Form der Kanalordnungen werden diese Varianten als *Chevron* (bei zwei MCPs) und *Z-Stack* (bei drei MCPs) bezeichnet. Im Rahmen dieser Arbeit wurde mit einem Aufbau mit zwei MCPs gearbeitet. Genaueres zum detaillierten Aufbau des Detektorsystems folgt in Abschnitt 3.2.3. Ein Aufbau mit mehreren MCPs hat gleichzeitig den Vorteil, dass der Betrag der resultierende Ladungswolke deutlich größer wird. Erst ab einer Verstärkung von etwa 10^8 ist eine Sättigung erreicht. Dann ist die Ladungsdichte im Kanal wegen der gelösten Elektronen so groß, dass eine weitere Vervielfachung unterdrückt wird [Wiz79].

3.2.2 Keil- und Streifen-Anode

Die Keil- und Streifen-Anode besteht aus drei nicht elektrisch leitend verbundenen Anoden, die wie in Abbildung 3.4 angeordnet sind. Ein Anodenteil besteht aus Streifen (in der Abbildung blau, Teil B), die zu einer Richtung hin dünner werden. Ein weiterer Teil besteht aus Keilen gleicher Breite (in der Abbildung rot, Teil A), die zwischen den Streifen verlaufen. Der dritte Teil schließlich, ist die gesamte Fläche zwischen Keilen und Streifen (in der Abbildung grau, Teil C) [YZL12]. Trifft nun der in den MCPs erzeugte Ladungsschauer auf die Anode, verteilt sich der Ladungsbetrag auf die drei Anodenteile (der Schauer muss dazu mindestens so breit sein, dass er sich über alle drei Teile erstreckt). Nimmt man den Aufbau der Anode beispielhaft an wie in Abbildung 3.4, sieht man leicht, wie das Signal auf Anodenteil A umso größer wird, desto weiter oben der Schauer auftritt, da die Keile dort breiter sind als unten. Der Betrag vom

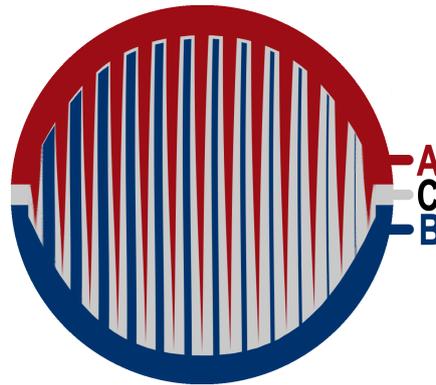


Abb. 3.4: Schema der Keil- und Streifen-Anode [Rei10].

Signal auf Anodenteil B dagegen variiert wegen der unterschiedlichen Streifenbreite mit weiter rechts oder links auftreffendem Schauer. Man kann daher zwei Koordinaten X und Y definieren, die direkt proportional zum Verhältnis der auf A oder B aufgetroffenen Ladungsmenge zum gesamten Ladungsschauer ist:

$$X \propto \frac{A}{A+B+C} \quad (3.2)$$

$$Y \propto \frac{B}{A+B+C}$$

Die Proportionalitätskonstanten sind dabei vom genauen Anodendesign abhängig und müssen experimentell bestimmt werden.

3.2.3 Aufbau

Die zu detektierenden Photonen können direkt Elektronen aus dem MCP-Material auslösen. Für den Aufbau des Detektors kann somit auf eine Photokathode verzichtet werden, man spricht vom „Open-Face-Detector“. Um diesen betriebsfertig aufzubauen, werden an einer Grundplatte, die später am Detektorgehäuse angebracht wird, vier Kunststoff-Gewindestangen befestigt. Auf diese werden nun die einzelnen Detektorteile in Einfassungen aufgesetzt - zunächst die Anode, dann die MCPs, jeweils durch elektrisch isolierende Teile getrennt.

Die Spannungsversorgung der MCPs erfolgt wie in Abbildung 3.5 dargestellt: Mit der Unterseite liegt das MCP in der Vertiefung eines kontaktierbaren Metallringes. Auf der Oberseite befinden sich metallische Ringe, die gleichen Außendurchmesser wie das MCP haben. Durch Federn haben diese wiederum Kontakt zu einem darüberliegenden breiteren Metallring, der von außen kontaktiert werden kann. Diese Art der Kontaktierung soll eine möglichst gleichmäßige Span-

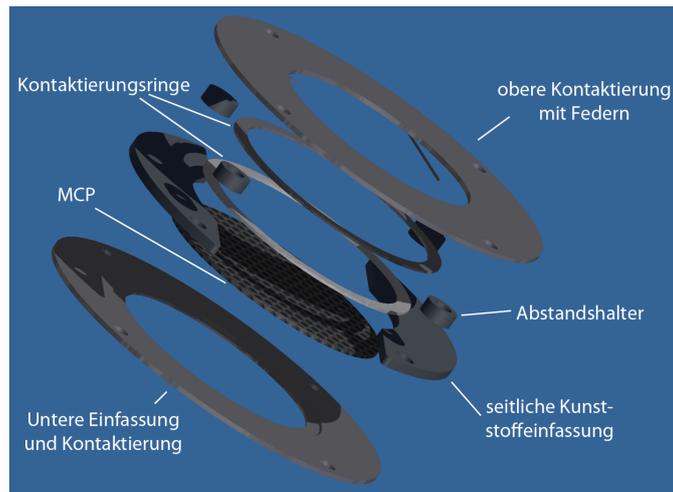


Abb. 3.5: Realisierung einer möglichst gleichmäßigen Spannungsversorgung von MCP-Ober- und -unterseite. Die Unterseite liegt in einer Einfassung mit Aussparung. Auf der Oberseite liegen Ringe aus weichem Metall, die durch Federn von oben kontaktiert werden. Seitlich wird das MCP von Kunststoffeinfassungen gehalten.

nungsversorgung der gesamten MCP-Fläche ermöglichen. Um Restgasionen im Volumen vor dem Detektor fernzuhalten, ist vor den MCPs ein Gitter angebracht, das ebenfalls auf Potential gesetzt werden kann. Der detaillierte Aufbau des Detektors ist in Abbildung 3.6 zu sehen.



Abb. 3.6: Detaillierter Aufbau des Detektors. Vier elektrisch isolierende Kunststoff-Gewindestangen werden an der Grundplatte montiert (links im Bild). Nacheinander werden die einzelnen Komponenten aufgesetzt. Im betriebsfertigen Zustand ist der Detektor einige Zentimeter lang. Der Durchmesser beträgt 79 mm.

Der Detektor wird im Hochvakuum betrieben. Dazu wird die Grundplatte des Aufbaus auf eine Halterung geschraubt. Eine übergestülpte Vakuum-Rohrkomponente ermöglicht die Anbringung am Monochromatorstutzen. Die Halterung ist in Richtung der Detektorachse von außen stufenlos verschiebbar. Der Detektor kann damit so verschoben werden, dass sich das vordere MCP im Monochromatorfokus befindet. In der Halterung befinden sich außerdem Durchführungen für die nötige Kontaktierung der Spannungsversorgung und Signalleitungen (siehe Abschnitte 3.3.1 und 3.3.2). Es wurden zwei Detektoren aufgebaut, die bis auf Anode und MCPs praktisch baugleich sind.

3.3 Betrieb

3.3.1 Spannungsversorgung

Zur Spannungsversorgung sind die Metallringfassungen des Detektors jeweils mit einem Kabel kontaktiert, das zu einer Vakuum-Durchführung führt, die von der Außenseite durch einen BNC-Anschluss erreichbar ist. Das Ionenabstoßgitter wird auf positives Potential zwischen 100 und 200 V gesetzt. Treten beim Betrieb Flächen mit Ereignisraten auf, die sich vom Rauschen abheben und bei Monochromatorgitterdrehung nicht verändern, kann deren Ursache bei Restgasionen liegen. Durch Variation der Gitterspannung lässt sich dieses Störsignal meist unterdrücken. Als Hochspannungsquelle dient ein *Heinzinger* LCU 6000-2 neg. Die ausgegebene Spannung U_D wird mit einem Spannungsteiler auf die Ober- und Unterseiten der MCPs aufgeteilt. Dabei sind die Potentialdifferenzen zwischen Anode und Unterseite des hinteren MCP (U_B) und zwischen Oberseite des hinteren und Unterseite des vorderen MCP (U_Z) in einem gewissen Bereich einstellbar. Die verbleibende Spannung wird zu gleichen Teilen auf die beiden MCPs aufgeteilt. Gegenüber der Anode, die auf Masse liegt, liegen damit an den MCPs folgende Spannungen an:

$$\begin{aligned} U_{MCPvorne,Oberseite} &= U_D \\ U_{MCPvorne,Unterseite} &= \frac{1}{2}(U_D + U_B + U_Z) \\ U_{MCPhinten,Oberseite} &= \frac{1}{2}(U_D + U_B - U_Z) \\ U_{MCPhinten,Unterseite} &= U_B \end{aligned}$$

Für die meistverwendete Kombination aus MCPs ergab eine Gesamtdetektorspannung von $U_D = -2520\text{ V}$ das optimale Signal-zu-Rausch-Verhältnis. Weiterhin erwies sich für den verwendeten Detektoraufbau eine Einstellung von $U_Z = 0\text{ V}$, $U_B \approx -200\text{ V}$ als beste Konfiguration für möglichst schmale und symmetrische Intensitätsverteilungen. Bei diesen Einstellungen lagen also jeweils $U_{MCP} = \frac{1}{2}(U_D - U_B - U_Z) = (-2520\text{ V} + 200\text{ V})/2 = -1160\text{ V}$ Spannung zwischen

Unter- und Oberseite beider MCPs an. Je nach MCP und dessen Widerstand führt dies zu einem Dunkelstrom von typischerweise wenigen Mikroampere.

3.3.2 Signalverarbeitung

Wie die Hochspannungsversorgung sind auch die drei Anodenteile über Drahtverbindungen und Durchführungen nach außen verbunden. Die Signale werden zunächst mit einem *Charge Sensitive Amplifier* vorverstärkt. Anschließend laufen sie durch Hauptverstärker vom Typ *TC 241 Amplifier* der Firma *Tennelec* (immer verwendete Einstellung: Coarse gain = 10, Fine gain = 5). Über einen Konnektorbloc werden sie schließlich zur computergesteuerten Auslesung in eine *NI*-Messkarte geführt. Das Auslesen findet durch das home-built LabView-Programm *Argus* statt. Dort besteht bereits die Möglichkeit der grafischen Darstellung und Aufsummierung von Detektorausschnitten zu Summenspektren. Generell werden für spätere Analysen auch die Rohdaten mitgeschrieben.

3.4 Datenauswertung und Charakterisierung des Detektors

3.4.1 Ortsbestimmung

Wie bereits in Abschnitt 3.2.2 erläutert, lassen sich für die Keil- und Streifen-Anode zwei Koordinaten X und Y definieren, so dass diese proportional zu den Quotienten in den Gleichungen 3.2 sind. Trägt man die Ereignisse ohne Korrekturen als diese einfachen Quotienten auf, ist das Bild in den meisten Fällen stark verzerrt. Durch die Bauart der Anode ist für eine optimal runde Abbildung eine anodenspezifische Kombination der Proportionalitätskonstanten erforderlich. Durch die weitere Signalverarbeitung kann, z. B. durch unterschiedlich verstärkende Vorverstärker, außerdem Versatz oder Verzerrungen auftreten. Es werden deshalb zur Ortsbestimmung zwei lineare Transformationen wie folgt durchgeführt. Aus den Rohsignalen a , b und c werden transformierte Signale A , B und C bestimmt:

$$A = a \cdot A_m + A_b \quad (3.3)$$

$$B = b \cdot B_m + B_b$$

$$C = c \cdot C_m + C_b$$

Bei der Ortsbestimmung werden die erhaltenen Koordinaten ebenfalls linear transformiert:

$$X = \frac{A}{A+B+C} \cdot X_m + X_b \quad (3.4)$$

$$Y = \frac{B}{A+B+C} \cdot Y_m + Y_b$$

Die Parameter $A_m, A_b, B_m, B_b, C_m, C_b, X_m, X_b, Y_m$ und Y_b müssen empirisch für jede Detektorkonfiguration und bei verschiedenen Signalverarbeitungscomponenten bestimmt werden. Abbildung 3.7 zeigt beispielhaft einen Vergleich der erhaltenen Ereigniskordinaten mit und ohne korrigierende Transformationen.

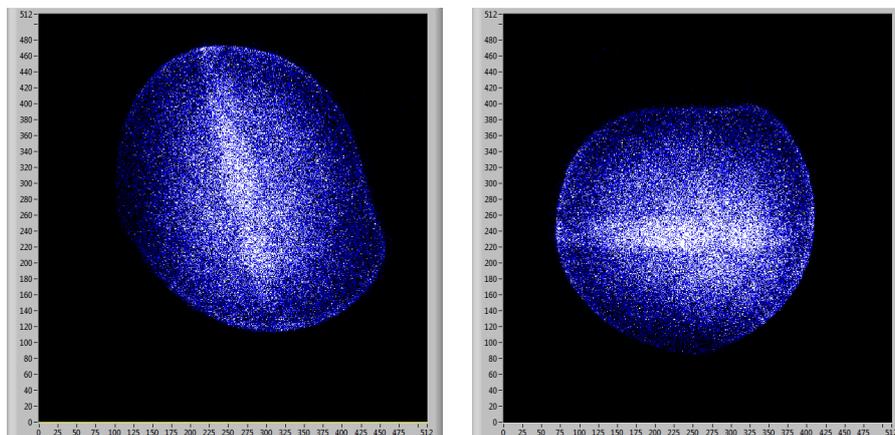


Abb. 3.7: Einfluss von Signalverarbeitungsparametern auf das Detektorbild. Links: Ortsbestimmung durch einfache Quotientenbildung gemäß Gleichung 3.2. Rechts: Ortsbestimmung mit korrigierenden Transformationen 3.3 und 3.4. Parameterwahl: $A_m=1,03$, $A_b = -5$, $B_m = 1,06$, $B_b = 5$, $C_m = 1,36$, $C_b = 5$, $X_m = 1$, $X_b = 0$, $Y_m = 1$ und $Y_b = 0$.

Je nach gewünschter Darstellung können die berechneten Koordinaten weiter modifiziert werden. Die verwendete Software benutzt beispielsweise einen Faktor K , um die Ereignisse auf ein Bild mit 512×512 Kanälen abzubilden. Weiterhin ist zur anschaulicheren Darstellung und Bildung des Summenspektrums eine Drehung um einen Drehwinkel W möglich. Trotz empirischer Optimierung der Parameter kann es vorkommen, dass das Ortsbild der Ereignisse nicht kreisrund ist (Abbildung 3.7). Dies kann verschiedene Ursachen haben. Möglicherweise ist das Bild tatsächlich nicht rund, zum Beispiel durch asymmetrische Spannungsversorgung oder die Geometrie des Strahlengangs. Außerdem können in der Signalaufnahme oder -verarbeitung andere Fehlerquellen auftreten, die hier nicht berücksichtigt wurden, wie etwa ein Übersprechen von Ladungsanteilen zwischen den Anodenteilen. Eine Diskussion weiterer Korrekturmöglichkeiten findet sich in [Kra91].

3.4.2 Messbarer Spektralbereich

Das Detektorsystem wurde konstruiert, um Strahlung aus den extrem-ultravioletten (10 bis 121 nm) und vakuum-ultravioletten (100 bis 200 nm) Bereichen des Spektrums zu detektieren [DIN84]. Da der Detektor ohne Photokathode arbeitet, ist der detektierbare Wellenlängenbereich im Wesentlichen von der dispersiven Photoelektronenausbeute der verwendeten MCPs abhängig, welche unbekannt ist. Für eine Bestimmung dieser Funktionen ist ein aufwendiges Verfahren er-

forderlich, für das man Quellen mit bekannter spektraler Intensitätsfunktion braucht. Ein erster Schritt könnte die Messung von Spektren mit Übergängen bekannter relativer Intensität sein, um die relative Detektionseffizienz bei einigen Wellenlängen festzustellen. Hierbei sind stets auch die in den folgenden Abschnitten beschriebenen lateralen Effekte zu berücksichtigen. Empirisch wurde der messbare Spektralbereich auf etwa 40 bis 120 nm bestimmt. Der energieärmste beobachtete Übergang lag bei 123,6 nm. Über die absoluten Intensitäten von Übergängen kann jedoch keine Aussage getroffen werden.

3.4.3 Laterale Effekte und deren Korrektur

Wegen der begrenzten Detektorfläche wird ein Spektrum gemessen, indem durch Drehung des Monochromatorgitters verschiedene spektrale Ausschnitte auf den Detektor projiziert und diese anschließend aneinandergesetzt werden. Die Kenntnis von lateralen Eigenschaften ist daher von besonderer Bedeutung.

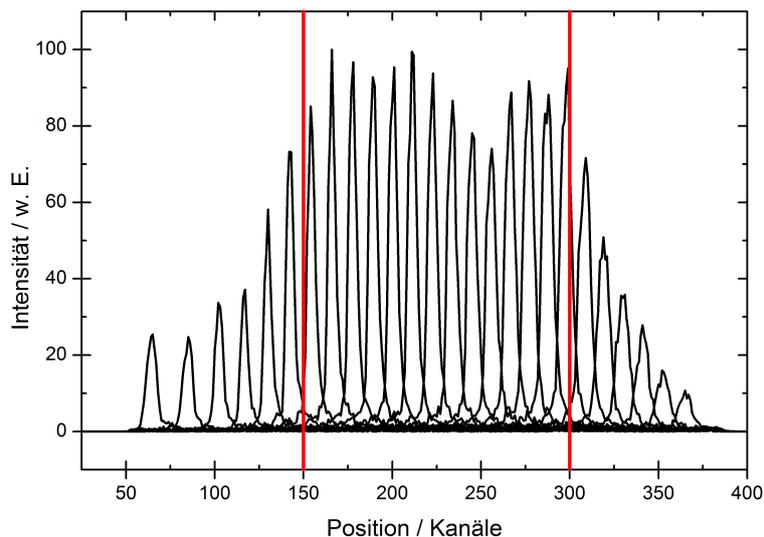


Abb. 3.8: Laterale Photoelektronenausbeute-Funktion einer Detektorkonfiguration. Von Messung zu Messung wurde das Monochromatorgitter (gemäß eigener Skala) so gedreht, dass sich das Spektrum um jeweils $6,25 \text{ \AA}$ verschiebt und die nullte Ordnung entsprechend an anderer Stelle auftritt. In rot sind die Grenzen des zur weiteren Auswertung verwendeten Bereichs eingezeichnet.

Zur Bestimmung der lateralen Photoelektronenausbeute-Funktion wurde die nullte Ordnung eines Spektrums (in diesem Fall das des Heliums) in kleinen Schritten durch Drehen des Monochromatorgitters (2400 Linien/mm) über das Detektorbild geschoben. Abbildung 3.8 zeigt das Ergebnis einer Messung, bei dem der Abstand zweier Maxima gemäß Monochromatorskala jeweils $6,25 \text{ \AA}$ entspricht und die nullte Ordnung drei Minuten lang gemessen wurde. Die Signalverarbeitungsparameter hatten dabei folgende Werte:

$$\begin{array}{llllll}
 A_m = 0,9 & B_m = 0,9 & C_m = 1,4 & X_m = 1,05 & Y_m = 1,03 & W = -72^\circ \\
 A_b = -5 & B_b = 5 & C_b = 5 & X_b = 200 & Y_b = -1300 &
 \end{array}$$

Wie man deutlich sieht, nimmt die Ausbeute zu beiden Rändern hin deutlich ab. In einem mittleren Bereich, etwa von Kanal 150 bis 300, schwankt sie „nur“ noch zu maximal 35%. Für die detaillierte Spektrenauswertung wurde deshalb nur dieser Bereich weiter verwendet.

Abbildung 3.8 ist nicht nur die laterale Photoelektronenausbeute zu entnehmen. Bei genauerer Analyse zeigt sich außerdem, dass die Breite der Maxima variiert und die Maxima nicht über die gesamte Detektorfläche äquidistant liegen. Um dies quantitativ zu untersuchen wurden durch Anpassen einer Gaußfunktion die Maximumpositionen und -halbwertsbreiten (englisch: *Full Width at Half Maximum*, abgekürzt FWHM) bestimmt. Abbildung 3.9 zeigt die Resultate.

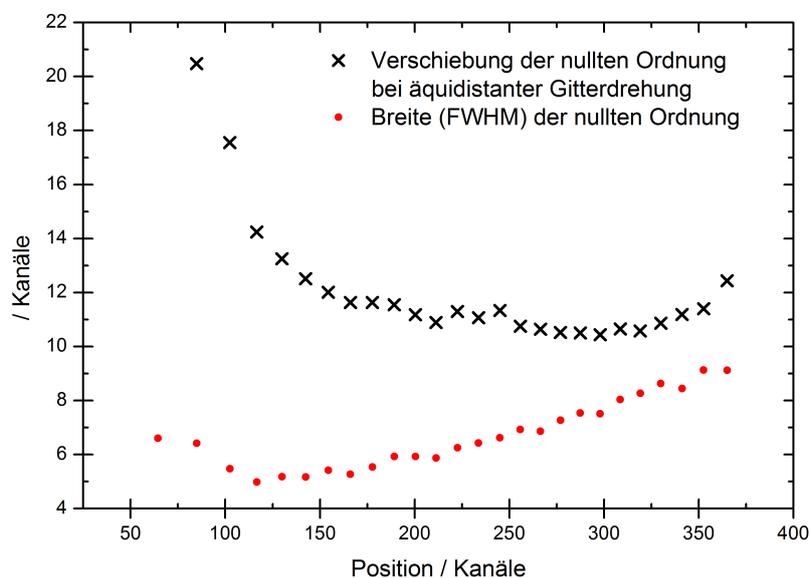


Abb. 3.9: Grafische Darstellung lateraler Eigenschaften. Gezeigt sind die Halbwertsbreite (FWHM) und die Verschiebung der nullten Ordnung bei äquidistanter Drehung des Monochromatorgitters auf verschiedenen Detektorbereichen.

Bei der Addition des Überlapps von Teilspektren führt dies unweigerlich zu Problemen. Häufig tritt dabei der Fall auf, dass Linien addiert werden müssen, die auf verschiedenen Aufnahmen nicht gleiche Abstände haben. Zur Korrektur dieser Tatsache wurde wie folgt vorgegangen: Aus den in Abbildung 3.9 gezeigten Daten wurde eine willkürliche Distanz aus dem mittleren Detektorbereich als Referenz genommen. Die Positionen der nebenstehenden Maxima wurden dann so korrigiert, dass die Abstände gleich der Referenzdistanz sind. Die Bereiche zwischen den Maxima wurden linear interpoliert. Das Resultat ist eine korrigierte Kanalskala. Bestimmt man nun die Maximumpositionen auf der korrigierten Skala neu, liegen diese im später zur Auswertung verwendeten Bereich innerhalb eines geringen Fehlers äquidistant. In Abbildung 3.10 sind die

Maximumabstände auf originaler und korrigierter Skala zum Vergleich dargestellt. Zu beachten ist, dass diese Korrektur nur für die verwendete Detektorkonfiguration gültig ist. Nach jeder Variation der Betriebsparameter oder Drehung des Detektors muss die Charakterisierung und Korrektur neu durchgeführt werden.

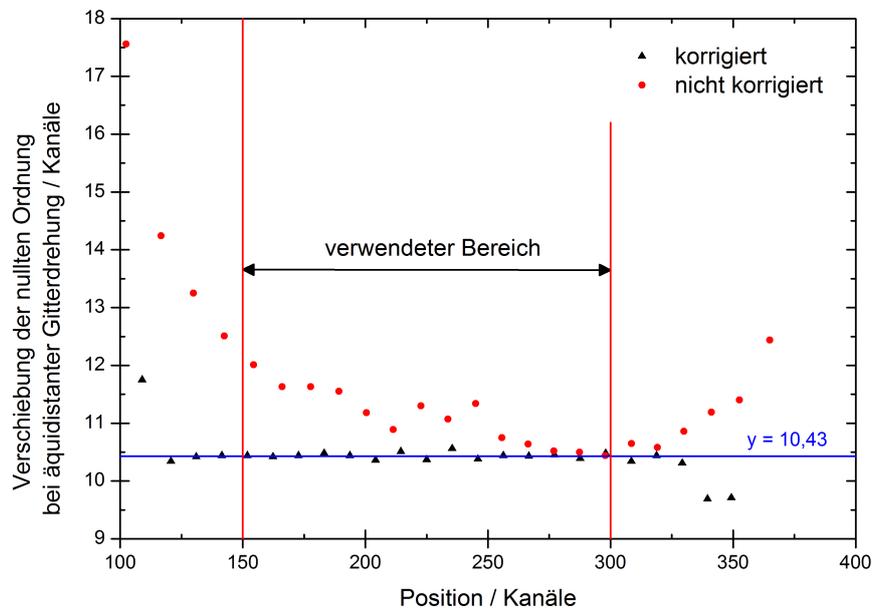


Abb. 3.10: Positionen der nullten Ordnung bei äquidistanten Gitterdrehungen. Aufgetragen mit ursprünglicher Kanalskala (rot) und mit korrigierter Kanalskala (schwarz). Die waagerechte Gerade bei $y = 10,43$ liegt auf dem willkürlich als Korrekturausgangspunkt gewählten Distanzwert.

Auch mit dieser Korrektur ist es möglich, dass beim Zusammensetzen des Spektrums Artefakte wie asymmetrische Maxima oder (im Extremfall) zusätzliche, nicht in den Originalaufnahmen vorhandene, Maxima auftreten. Dies kann zum Beispiel an Intensitätsschwankungen von Messung zu Messung liegen. Eine genaue Reproduzierbarkeit der relativen Intensitäten kann mit dem derzeitigen Aufbau nicht ohne computergestützte Steuerung gewährleistet werden (siehe Kapitel 4). Es ist somit schwierig, die tatsächlichen Fehlerquellen zu identifizieren und zu korrigieren. Um das Auftreten solcher Artefakte zu unterbinden, wurden die Spektren, falls nötig, mit einer Gaußfunktion gefaltet. Die Breite der Funktion wurde dabei so gewählt, dass sicher unechte Maxima (in Einzelaufnahmen nicht auftretend) verschwinden. Dies kann jedoch auch zum „Verlust“ von echten Maxima führen.

Zwecks der Kalibrierung von Spektrometer-Detektor-Kombinationen in Experimenten wurden die elektronenstoßangeregten Fluoreszenzspektren der Edelgase Helium, Neon, Argon und Krypton gemessen. Zur Auswertung werden die aufgenommenen und gemäß Abschnitt 3.4 verarbeiteten und korrigierten Teilspektren mit Überlapp aneinandergesetzt. Die verwendeten Signalverarbeitungsparameter entsprechen den in Abschnitt 3.4.3 angegebenen. Die zur Faltung verwendete Gaußfunktion (vgl. Abschnitt 3.4.3) hat für alle folgenden Auswertungen eine Breite von 2,2 Kanälen (das entspricht etwa 0,12 nm). Eine erste Kalibrierung der Wellenlängenskala kann durch die Stellung des Monochromatorgitters erfolgen. Durch Zuordnung von beobachteten Übergängen zu Literaturwerten kann dann genau kalibriert werden. Für die Kalibrierung verwendete Übergänge sind in Tabellen in Abschnitt 4.5 mit einem Stern (*) gekennzeichnet. Die erreichbare Auflösung des Detektors ist abhängig vom verwendeten Spektrometer/Gitter und den Spannungsversorgungs-Parametern. Erheblichen Einfluss hat auch die Qualität der Korrektur der lateralen Eigenschaften. Bei den hier verwendeten Korrekturen kann eine Auflösung von etwa 0,5 nm in erster Ordnung abgeschätzt werden. Es wurde ein Gitter mit 2400 Linien/mm verwendet. Bei Messungen in zweiter Ordnung verbessert sich die Auflösung um einen Faktor 2. Dies ist anschaulich in Abbildung 4.1 dargestellt, in der die schwarze Kurve einen Ausschnitt des Kryptonspektrums zeigt. Die rote Kurve stellt das um einen Faktor 2 (auf der Abszisse) gestreckte Spektrum dar. Es zeigt sich deutlich, dass die in erster Ordnung gemessenen Strukturen in zweiter Ordnung besser aufgelöst sind. Neben Eigenschaften und Betriebsparametern des Detektors gibt es weitere Einstellungen, die Einfluss auf das Messergebnis haben. Von besonderer Wichtigkeit sind dabei die Parameter im Wechselwirkungsvolumen. Eine genaue Untersuchung dieser Abhängigkeiten war nicht Gegenstand dieser Arbeit. Es stellte sich jedoch bei einigen Messungen heraus, dass vor allem die Intensitäten der beobachteten Übergänge vom Messdruck p und den Eigenschaften des Elektronenstrahls (Beschleunigungsspannung U_{HV} und Intensität

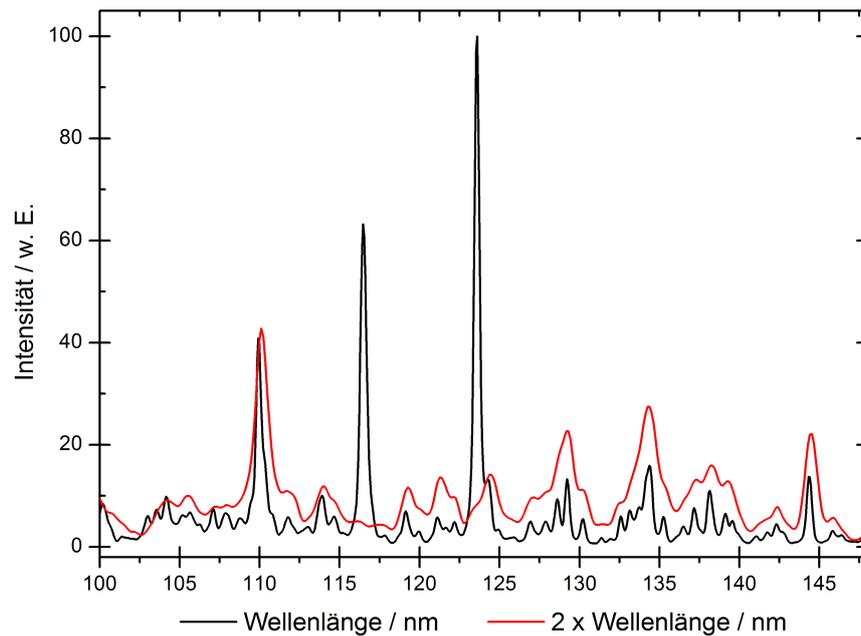


Abb. 4.1: Ausschnitt aus dem Fluoreszenzspektrum des Kryptons. In rot ist die gemessene Intensität in Abhängigkeit der doppelten Wellenlänge dargestellt. Dies ermöglicht einen Vergleich der erreichbaren Auflösung in erster und zweiter Ordnung des Monochromatorgitters.

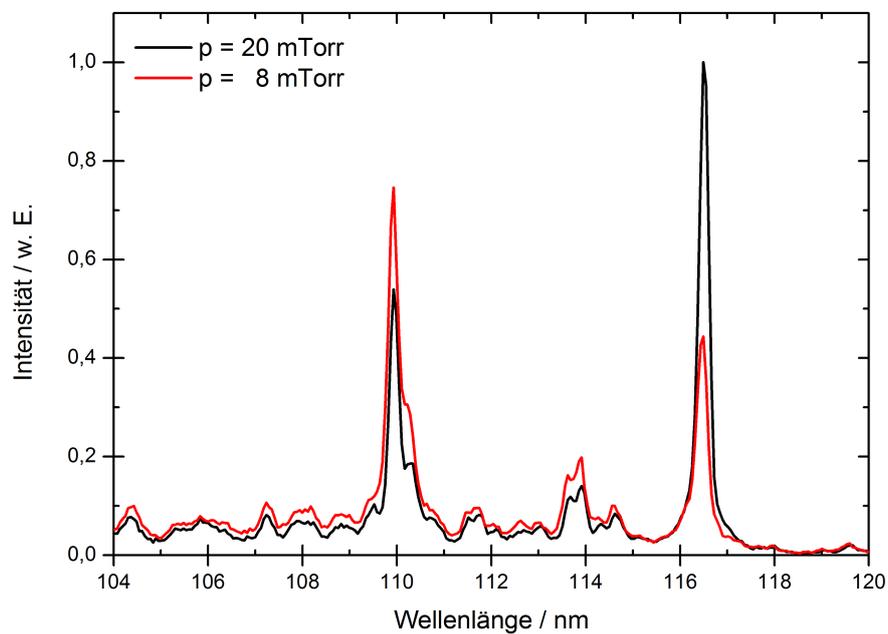


Abb. 4.2: Ausschnitt aus dem Fluoreszenzspektrum des Kryptons für zwei verschiedene Messdrücke in der Stoßkammer. Die Intensitätsverhältnisse von Übergängen können in Abhängigkeit vom Druck stark variieren.

I_e) wesentlich beeinflusst werden. Ein Beispiel ist in Abbildung 4.2 gezeigt, in der ein Ausschnitt des Kryptonspektrums für zwei verschiedene Gasdrücke dargestellt ist. Die relativen Intensitäten von zwei intensiven Strukturen ändern sich signifikant. Die verwendeten Parameter sind bei den entsprechenden Auswertungen angegeben. Alle aufgeführten Intensitäten sind Angaben relativ zum Übergang mit höchster beobachteter Intensität.

4.1 Helium

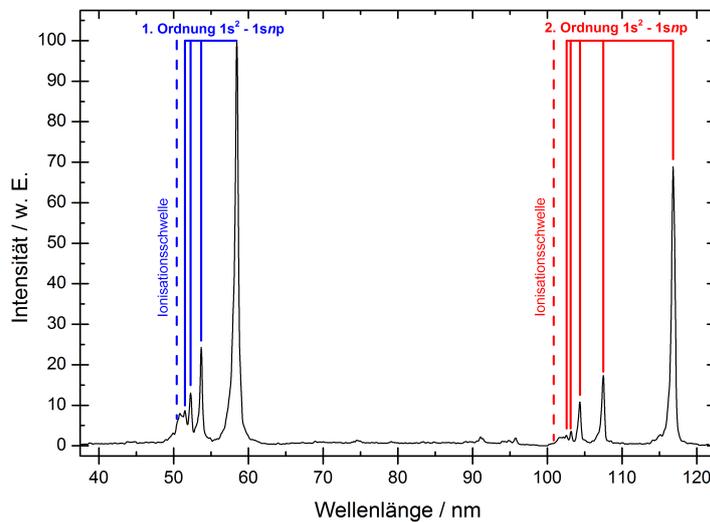


Abb. 4.3: Fluoreszenzspektrum des Heliums im Bereich von 40 bis 120 nm nach Stoßanregung mit 3,5 keV-Elektronen, gemessen bei $p = 0,02$ mbar und $I_e = 95 \mu\text{A}$. Alle Übergänge gehören zur $1s^2$ - $1snp$ -Rydbergserie und sind in Tabelle 4.1 aufgelistet. Farbige Kennzeichnung der Übergänge: Messung in erster (blau) und zweiter (rot) Ordnung des Monochromatorgitters.

Das Spektrum des Heliums im Bereich von 40 bis 120 nm nach Anregung mit 3,5 keV-Elektronen ist in Abbildung 4.3 dargestellt. Die Messung wurde bei $p = 0,02$ mbar und $I_e = 95 \mu\text{A}$ durchgeführt. Es wird nur die $1s^2$ - $1snp$ -Rydbergserie des Heliums beobachtet. In erster Ordnung können Übergänge bis $n = 5$ aufgelöst werden (in der Abbildung blau), in zweiter Ordnung bis $n = 6$ (rot). Die Übergänge sind in Tabelle 4.1, Abschnitt 4.5, aufgelistet. Zur Kalibrierung von Spektrometer-Detektor-Kombinationen eignet sich Helium in den Bereichen der auftretenden Rydbergserie zwischen 50 und 60 nm und zwischen 100 und 120 nm bei Messung in entsprechender Ordnung des Monochromatorgitters.

4.2 Neon

Abbildung 4.4 zeigt das Fluoreszenzspektrum des Neons nach Elektronenstoßanregung, gemessen bei $U_{HV} = 3,5\text{ kV}$, $p = 0,02\text{ mbar}$ und $I_e = 80\text{ }\mu\text{A}$. Die Struktur höchster Intensität liegt bei $73,53\text{ nm}$ und stammt vom $2s^22p^53s \rightarrow 2s^22p^6$ -Übergang im neutralen Neon (Ne I). Alle Intensitäten sind relativ zu diesem Übergang angegeben. Weitere Übergänge der Ne I -

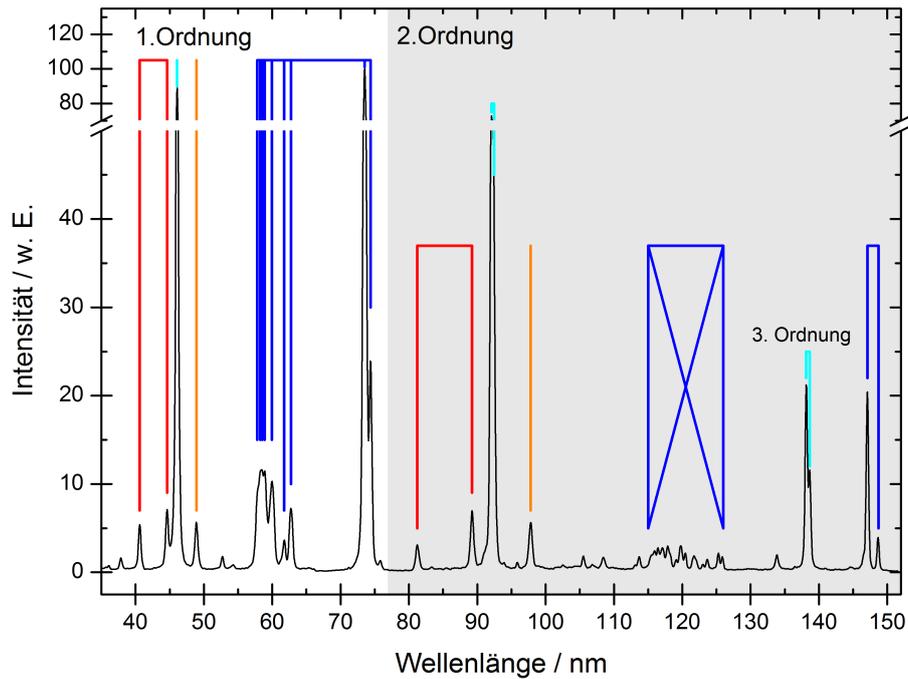


Abb. 4.4: Fluoreszenzspektrum des Neons im Bereich von 40 bis 120 nm nach Stoßanregung mit 3,5 keV-Elektronen, gemessen bei $p = 0,02\text{ mbar}$ und $I_e = 80\text{ }\mu\text{A}$. Farbige Kennzeichnung der Übergänge: Ne I $2s^22p^5ns/d \rightarrow 2s^22p^6$ -Rydbergserie blau, Ne II $2s2p^6 \rightarrow 2s^22p^5$ cyan, weitere Ne II-Übergänge rot, Ne III-Übergänge orange. Im schattierten Bereich oberhalb von 77 nm sind keine Übergänge erster Ordnung mehr zu beobachten.

$2s^22p^5ns/d \rightarrow 2s^22p^6$ -Rydbergserien sind in erster und zweiter Ordnung zu beobachten und in der Abbildung blau gekennzeichnet. Der $2s2p^6 \rightarrow 2s^22p^5$ -Übergang im einfach geladenen Neonion (Ne II) kann in erster, zweiter und dritter Ordnung beobachtet werden (cyan). In rot sind weitere Übergänge im Ne II gekennzeichnet. Orange markiert sind einige dicht liegende Übergänge im Ne III. Im schattierten Bereich oberhalb von 77 nm sind keine Übergänge erster Ordnung mehr zu beobachten, die intensiver als 2 % sind. Die gemessene Fluoreszenzstruktur ermöglicht gute Kalibrierungsmöglichkeiten für Detektor-Spektrometer-Kombinationen für Messungen im Bereich von 40 bis 80 nm in erster Ordnung und bis 150 nm in zweiter Ordnung. Eine detaillierte Übersicht aller beobachteten Strukturen mit Intensitäten größer als 2 % ist in Tabelle 4.2, Abschnitt 4.5, gegeben.

4.3 Argon

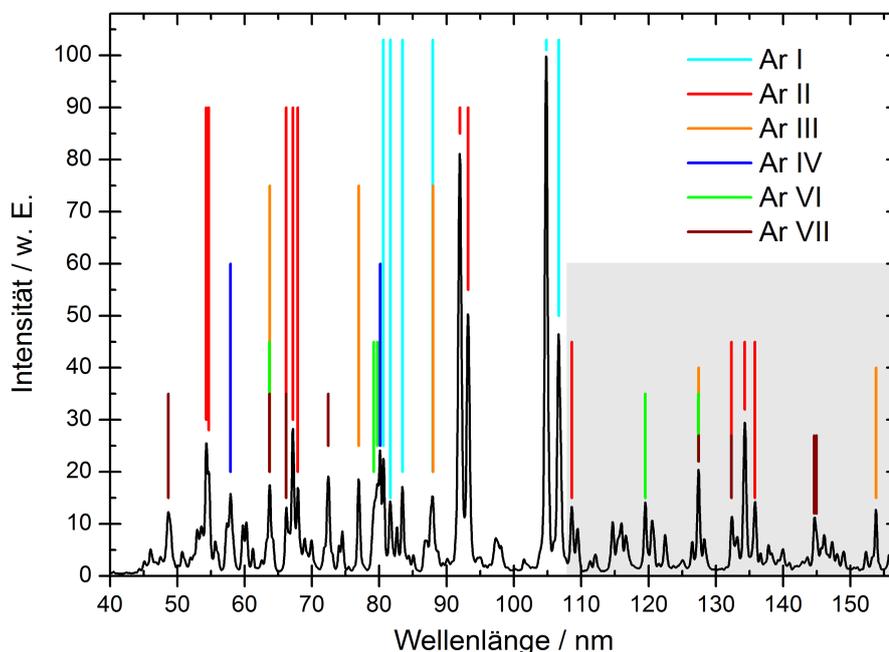


Abb. 4.5: Fluoreszenzspektrum des Argons im Bereich von 40 bis 120 nm nach Stoßanregung mit 3,5 keV-Elektronen, gemessen bei $p = 0,013$ mbar und $I_e = 30 \mu\text{A}$. Farbige Kennzeichnung der Übergänge: Ar I cyan, Ar II rot, Ar III orange, Ar IV blau, Ar VI grün, Ar VII braun. Im schattierten Bereich oberhalb 108 nm liegen keine Strukturen erster Ordnung, die intensiver als 10 % sind.

Mit höherer Ordnungszahl werden die Spektren der Edelgase vielfältiger an Strukturen. In Abbildung 4.5 ist das Argonspektrum nach Anregung mit 3,5 keV-Elektronen gezeigt, gemessen bei $p = 0,013$ mbar und $I_e = 30 \mu\text{A}$. Es können Übergänge von neutralem bis zu sechsfach geladenem Argon beobachtet werden. Die Entstehung mehrfach geladener Ionen kann durch sequentielle Auger-Zerfälle erklärt werden, die nach Innerschalen-Ionisation auftreten. Es ist keine dominierende Rydbergserie zu erkennen, wie es bei Helium und Neon der Fall war. Der Ar I-Übergang $3s^23p^54s \rightarrow 3s^23p^6$ liegt bei 104,8 nm und hat die höchste beobachtete Intensität. Dicht gelegene Übergänge verschieden geladener Ionen überlappen an vielen Stellen, was zu Verbreiterungen und asymmetrischen Strukturen führt. Strukturen mit einer Intensität von mehr als 10 % sind in Abbildung 4.5 farblich dem emittierenden Ion zugeordnet. Im schattierten Bereich oberhalb von 108 nm liegen keine solcher Strukturen, die in erster Ordnung gemessen wurden. In Tabelle 4.3 sind die intensivsten Übergänge mit ihren Details angegeben. An einigen Stellen liegen mögliche Übergänge so dicht, dass Strukturen im Spektrum nicht eindeutig zugeordnet werden können. Dort sind die jeweils möglichen Bereiche angegeben. Das dichte Raster an Übergängen kann im gesamten Bereich für Kalibrierungsmessungen verwendet werden.

4.4 Krypton

Das Spektrum des Kryptons nach Anregung mit 3,5 keV-Elektronen ist reich an Übergängen verschieden geladener Ionen. Die Messung wurde bei $p = 0,027$ mbar und $I_e = 30 \mu\text{A}$ durchgeführt. In Abbildung 4.6 sind alle Übergänge farblich gekennzeichnet, deren Intensität mehr als 10 % der Intensität des intensivsten Übergangs (von Kr I bei 123,58 nm) beträgt. In Tabelle 4.4 sind die Details dieser Übergänge angegeben. Einige der Übergänge sind im schattierten Bereich in zweiter Ordnung markiert. Wie bei Argon liegen die Übergänge von verschiedenen Ionen so dicht, dass nicht immer eine eindeutige Zuordnung möglich ist.

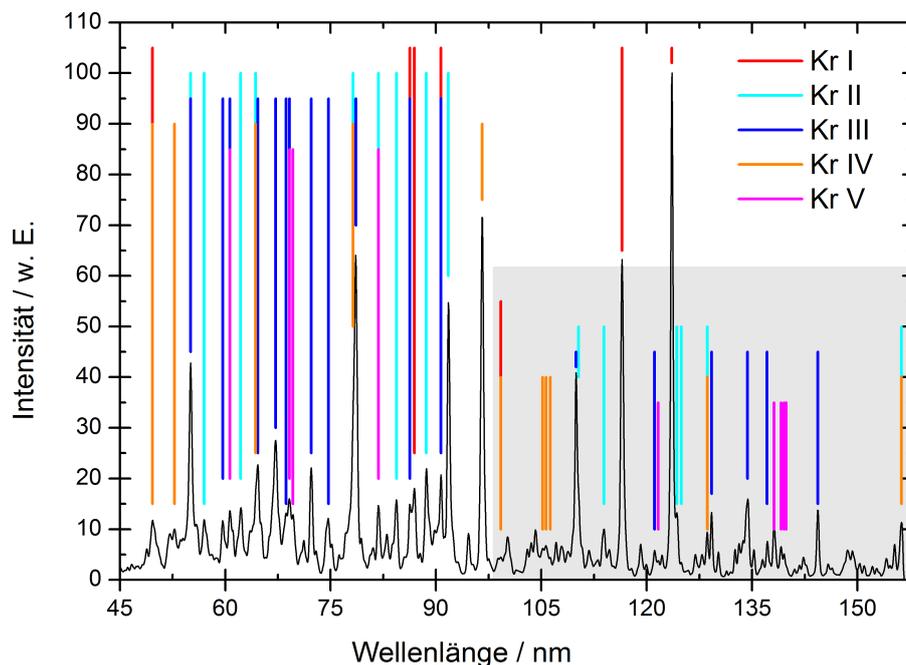


Abb. 4.6: Fluoreszenzspektrum des Kryptons im Bereich von 40 bis etwa 120 nm nach Stoßanregung mit 3,5 keV-Elektronen, gemessen bei $p = 0,027$ mbar und $I_e = 30 \mu\text{A}$. Farbige Kennzeichnung der Übergänge: Kr I rot, Kr II cyan, Kr III blau, Kr IV orange, Kr V magenta. Im schattierten Bereich sind einige Übergänge in zweiter Ordnung farblich zugeordnet.

4.5 Tabellen der intensivsten Übergänge

4.5.1 Helium

Tab. 4.1: Beobachtete Fluoreszenzübergänge des Heliums nach Anregung mit 3,5 keV-Elektronen. Alle Übergänge gehören zur $1s^2-1snp$ -Rydbergserie. Mit einem Stern (*) gekennzeichnete Linien wurden zur Kalibrierung verwendet. Aufgelistet sind die aus den Energieniveaus berechnete Ritz-Wellenlänge (λ_{Ritz}), experimentell beobachtete Wellenlänge (λ_{Exp}), die relative Intensität (r. I.), das emittierende Ion (Ion), Konfiguration, Term und Gesamtdrehimpuls (J) des Ausgangs- (rechts) und Endzustands (links). In zweiter Ordnung gemessene Übergänge sind bei der beobachteten Wellenlänge angegeben.

λ	λ_{Ritz}	λ_{Exp}	r. I.	Ion	Konfiguration	Term	J
51,51	51,562	51,56 [Hop30]	9	I	$1s^2 - 1s 5p$	$^1S - ^1P^o$	0 - 1
52,27*	52,221	52,22 [Hop30]	13	I	$1s^2 - 1s 4p$	$^1S - ^1P^o$	0 - 1
53,69*	53,703	53,70 [Her58]	24	I	$1s^2 - 1s 3p$	$^1S - ^1P^o$	0 - 1
58,44*	58,433	58,43 [Her58]	100	I	$1s^2 - 1s 2p$	$^1S - ^1P^o$	0 - 1
102,56	51,21	51,21 [Hop30]	3	I	$1s^2 - 1s 6p$	$^1S - ^1P^o$	0 - 1
103,18*	51,562	51,56 [Hop30]	4	I	$1s^2 - 1s 5p$	$^1S - ^1P^o$	0 - 1
104,35*	52,221	52,22 [Hop30]	11	I	$1s^2 - 1s 4p$	$^1S - ^1P^o$	0 - 1
107,49*	53,703	53,70 [Her58]	17	I	$1s^2 - 1s 3p$	$^1S - ^1P^o$	0 - 1
116,84*	58,433	58,43 [Her58]	69	I	$1s^2 - 1s 2p$	$^1S - ^1P^o$	0 - 1

4.5.2 Neon

Tab. 4.2: Beobachtete Fluoreszenzübergänge des Neons nach Anregung mit 3,5 keV-Elektronen. Die Wellenlängen λ wurden durch Anpassen von Gaußfunktionen bestimmt. Mit einem Stern (*) gekennzeichnete Linien wurden zur Kalibrierung verwendet. Aufgelistet sind die aus den Energieniveaus berechnete Ritz-Wellenlänge (λ_{Ritz}), experimentell beobachtete Wellenlänge (λ_{Exp}), die relative Intensität (r. I.), das emittierende Ion (Ion), Konfiguration, Term und Gesamtdrehimpuls (J) des Ausgangs- (rechts) und Endzustands (links). In höherer Ordnung gemessene Übergänge sind bei der beobachteten Wellenlänge angegeben. Konnten dicht liegende Übergänge nicht aufgelöst werden, wird keine Ritz-Wellenlänge, sondern nur ein Bereich aufgeführt.

λ	λ_{Ritz}	λ_{Exp}	r. I.	Ion	Konfiguration	Term	J
40,61	40,585	40,59 [KN06]	5	II	$2s^2 2p^5 - 2s^2 2p^4 \ ^1D 3s$	$^2P^o - ^2D$	$\frac{3}{2} - (\frac{5}{2} - \frac{3}{2})$
44,62	44,626	44,63 [KN06]	7	II	$2s^2 2p^5 - 2s^2 2p^4 \ ^3P 3s$	$^2P^o - ^2P$	$(\frac{3}{2} - \frac{1}{2}) - (\frac{3}{2} - \frac{1}{2})$
46,08	46,073	46,07 [KN06]	88	II	$2s^2 2p^5 - 2s 2p^6$	$^2P^o - ^2S$	$\frac{3}{2} - \frac{1}{2}$
48,90		48,89 - 48,96 [BR33]	5	III	$2s^2 2p^4 - 2s 2p^5$	$^3P - ^3P^o$	(1,2) - (0-2)
57,81		57,71 - 57,88 [IUN88]	9	I	$2s^2 2p^6 - 2s^2 2p^5 [8..14][s.d]$	$^1S - ^2[1/2]^o$	0 - 1
58,24		58,25 - 58,31 [IUN88]	11	I	$2s^2 2p^6 - 2s^2 2p^5 [6..8][s.d]$	$^1S - ^2[1/2]^o$	0 - 1
58,53		58,52 - 58,53 [IUN88]	11	I	$2s^2 2p^6 - 2s^2 2p^5 \ ^2P^o 6d$	$^1S - ^2[3/2]^o$	0 - 1
58,90	58,918	58,92 [IUN88]	11	I	$2s^2 2p^6 - 2s^2 2p^5 \ ^2P^o 6s$	$^1S - ^2[1/2]^o$	0 - 1
59,96	60,004	60,00 [BC84]	10	I	$2s^2 2p^6 - 2s^2 2p^5 \ ^2P^o 5s$	$^1S - ^2[1/2]^o$	0 - 1
61,76	61,563	61,56 [BC84]	3	I	$2s^2 2p^6 - 2s^2 2p^5 \ ^2P^o 3d$	$^1S - ^2[3/2]^o$	0 - 1
	61,867	61,87 [BC84]		I	$2s^2 2p^6 - 2s^2 2p^5 \ ^2P^o 3d$	$^1S - ^2[3/2]^o$	0 - 1
62,75	62,682	62,68 [BC84]	7	I	$2s^2 2p^6 - 2s^2 2p^5 \ ^2P^o 4s$	$^1S - ^2[1/2]^o$	0 - 1
73,53	73,59	73,59 [BC84]	100	I	$2s^2 2p^6 - 2s^2 2p^5 \ ^2P^o 3s$	$^1S - ^2[1/2]^o$	0 - 1

λ	λ_{Ritz}	λ_{Exp}	r. I.	Ion	Konfiguration	Term	J
74,39	74,372	74,37 [BC84]	23	I	$2s^2 2p^6 - 2s^2 2p^5 2p^0 3s$	$1S - ^2[3/2]^o$	0 - 1
89,23		44,63 - 44,66 [KN06]	5	II	$2s^2 2p^5 - 2s^2 2p^4 3P 3s$	$2p^o - ^2P$	$(\frac{1}{2} - \frac{1}{2}) - (\frac{3}{2} - \frac{1}{2})$
92,08	46,073	46,07 [KN06]	73	II	$2s^2 2p^5 - 2s 2p^6$	$2p^o - ^2S$	$\frac{3}{2} - \frac{1}{2}$
92,44	46,239	46,24 [KN06]	36	II	$2s^2 2p^5 - 2s 2p^6$	$2p^o - ^2S$	$\frac{1}{2} - \frac{1}{2}$
97,82		48,89 - 48,96 [BR33]	5	III	$2s^2 2p^4 - 2s 2p^5$	$3P - ^3P^o$	(1-2) - (0-2)
138,15	46,073	46,07 [KN06]	20	II	$2s^2 2p^5 - 2s 2p^6$	$2p^o - ^2S$	$\frac{3}{2} - \frac{1}{2}$
138,66	46,239	46,24 [KN06]	10	II	$2s^2 2p^5 - 2s 2p^6$	$2p^o - ^2S$	$\frac{1}{2} - \frac{1}{2}$
147,09	73,59	73,59 [BC84]	20	I	$2s^2 2p^6 - 2s^2 2p^5 2p^o 3s$	$1S - ^2[1/2]^o$	0 - 1
148,74	74,372	74,37 [BC84]	3	I	$2s^2 2p^6 - 2s^2 2p^5 2p^o 3s$	$1S - ^2[3/2]^o$	0 - 1

4.5.3 Argon

Tab. 4.3: Beobachtete Fluoreszenzübergänge des Argons nach Anregung mit 3,5 keV-Elektronen. Die Wellenlängen λ wurden durch Anpassen von Gaußfunktionen bestimmt. Mit einem Stern (*) gekennzeichnete Linien wurden zur Kalibrierung verwendet. Aufgelistet sind die aus den Energieniveaus berechnete Ritz-Wellenlänge (λ_{Ritz}), experimentell beobachtete Wellenlänge (λ_{Exp}), die relative Intensität (r. I.), das emittierende Ion (Ion), Konfiguration, Term und Gesamtdrehimpuls (J) des Ausgangs- (rechts) und Endzustands (links). In zweiter Ordnung gemessene Übergänge sind bei der beobachteten Wellenlänge angegeben. Wenn eine beobachtete Struktur aus vielen dicht liegenden Übergängen besteht, wird keine Ritz-Wellenlänge, sondern nur ein Bereich aufgeführt.

λ	λ_{Ritz}	λ_{Exp}	r. I.	Ion	Konfiguration	Term	J
48,68	48,69	48,69 [TMG97]	12	VII	$3p^2 - 3p 3d$	$3P - ^3D^o$	0 - 1
54,28	54,29	54,29 [Min59]	24	II	$3s^2 3p^5 - 3s^2 3p^4 3P 4d$	$2p^o - ^4D$	$\frac{3}{2} - \frac{1}{2}$
54,68	54,72	54,72 [Min59]	18	II	$3s^2 3p^5 - 3s^2 3p^4 3P 4d$	$2p^o - ^4D$	$\frac{1}{2} - \frac{1}{2}$
57,89	57,9	57,90 [BGR95]	13	IV	$3s 3p^4 - 3s^2 3p^2 3P 4p$	$4P - ^4S^o$	$\frac{1}{2} - \frac{3}{2}$
63,71*	63,69	63,69 [RBG92]	16	VI	$3s^2 3d - 3s 3p 3P^o 3d$	$2D - ^2P^o$	$\frac{5}{2} - \frac{3}{2}$
	63,71	63,71 [PP41]		VII	$3s 3p - 3p^2$	$3P^o - ^3P$	2 - 2
	63,73	63,73 [RSV92, KW96]		III	$3s^2 3p^4 - 3s^2 3p^3 4S^o 3d$	$3P - ^3D^o$	2 - (2-3)
66,19*	66,18	66,18 [BBC05]	12	VII	$3s 3d - 3p 3d$	$3D - ^3D^o$	1 - 1
	66,19	66,19 [Min59]		II	$3s^2 3p^5 - 3s^2 3p^4 3P 3d$	$2p^o - ^2D$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
	66,19	66,19 [TMG97]		VII	$3s 3d - 3p 3d$	$3D - ^3D^o$	2 - 1
67,16	67,19	67,19 [Min59]	27	II	$3s^2 3p^5 - 3s^2 3p^4 1D 4s$	$2p^o - ^2D$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
67,90*	67,92	67,92 [Min59]	15	II	$3s^2 3p^5 - 3s^2 3p^4 3P 3d$	$2p^o - ^4P$	$\frac{3}{2} - \frac{1}{2}$
72,43		72,39 - 72,50 [BBC05]	18	VII	$3s 4p - 3p 4p$	$3P^o - ^3D$	1 - (2-1)
76,95	76,92	76,92 [RSV92]	17	III	$3s^2 3p^4 - 3s 3p^5$	$1D - ^1P^o$	2 - 1
79,18	79,55	79,54 [RBG92]	10	VI	$3s^2 3d - 3s 3p 3P^o 3d$	$2D - ^2F^o$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
79,75	79,58	79,59 [RBG92]	15	VI	$3s^2 3d - 3s 3p 3P^o 3d$	$2D - ^2F^o$	$\frac{5}{2} - \frac{3}{2}$
80,15	80,14	80,14 [RSV92]	17	IV	$3s^2 3p^3 - 3s 3p^4$	$2D^o - ^2D$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
80,63		80,65 [Min73]	21	I			
81,65		81,65 [Min73]	13	I			
83,45		83,44 [Min73]	15	I			
87,96	87,96	87,96 [KW96]	13	III	$3s^2 3p^4 - 3s 3p^5$	$3P - ^3P^o$	1 - 1
	87,99	87,99 [Min73]		I	$3s^2 3p^6 - 3s^2 3p^5 2P^o 5s$	$1S - ^2[3/2]^o$	0 - 1
91,96*	91,98	91,98 [Min71]	78	II	$3s^2 3p^5 - 3s 3p^6$	$2p^o - ^2S$	$\frac{3}{2} - \frac{1}{2}$
93,18*	93,21	93,21 [Min71]	47	II	$3s^2 3p^5 - 3s 3p^6$	$2p^o - ^2S$	$\frac{1}{2} - \frac{1}{2}$
104,80*	104,82	104,82 [Min73]	100	I	$3s^2 3p^6 - 3s^2 3p^5 2P^o 4s$	$1S - ^2[1/2]^o$	0 - 1
106,67*	106,67	106,67 [Min73]	43	I	$3s^2 3p^6 - 3s^2 3p^5 2P^o 4s$	$1S - ^2[3/2]^o$	0 - 1
108,60	54,29	54,29 [Min59]	12	II	$3s^2 3p^5 - 3s^2 3p^4 3P 4d$	$2p^o - ^4D$	$\infty - \infty$
119,52	59,67	59,67 [RBG92]	12	VI	$3s^2 3p - 3s 3p^2$	$2p^o - ^2S$	$\frac{3}{2} - \frac{1}{2}$

λ	λ_{Ritz}	λ_{Exp}	r. I.	Ion	Konfiguration	Term	J
127,43	63,69	63,69 [RBG92]	18	VI	$3s^2 3d - 3s 3p^3 P^o 3d$	$^2D - ^2P^o$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
	63,71	63,71 [PP41]		VII	$3s 3p - 3p^2$	$^3P^o - ^3P$	2 - 2
	63,73	63,73 [RSV92, KW96]		III	$3s^2 3p^4 - 3s^2 3p^3 4S^o 3d$	$^3P - ^3D^o$	2 - (2-3)
132,38	66,18	66,18 [BBC05]	11	VII	$3s 3d - 3p 3d$	$^3D - ^3D^o$	1 - 1
	66,19	66,19 [Min59]		II	$3s^2 3p^5 - 3s^2 3p^4 3P 3d$	$^2P^o - ^2D$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
	66,19	66,19 [TMG97]		VII	$3s 3d - 3p 3d$	$^3D - ^3D^o$	2 - 1
134,31	67,19	67,19 [Min59]	27	II	$3s^2 3p^5 - 3s^2 3p^4 1D 4s$	$^2P^o - ^2D$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
135,82	67,92	67,92 [Min59]	13	II	$3s^2 3p^5 - 3s^2 3p^4 3P 3d$	$^2P^o - ^4P$	$\frac{3}{2} - \frac{1}{2}$
144,63	72,39	72,39 [BBC05]	7	VII	$3s 4p - 3p 4p$	$^3P^o - ^3D$	1 - 2
144,95	72,5	72,50 [BBC05]	5	VII	$3s 4p - 3p 4p$	$^3P^o - ^3D$	0 - 1
153,80	76,92	76,92 [RSV92]	11	III	$3s^2 3p^4 - 3s 3p^5$	$^1D - ^1P^o$	2 - 1

4.5.4 Krypton

Tab. 4.4: Beobachtete Fluoreszenzübergänge des Kryptons nach Anregung mit 3,5 keV-Elektronen. Die Wellenlängen λ wurden durch Anpassen von Gaußfunktionen bestimmt. Mit einem Stern (*) gekennzeichnete Linien wurden zur Kalibrierung verwendet. Aufgelistet sind die aus den Energieniveaus berechnete Ritz-Wellenlänge (λ_{Ritz}), experimentell beobachtete Wellenlänge (λ_{Exp}), die relative Intensität (r. I.), das emittierende Ion (Ion), Konfiguration, Term und Gesamtdrehimpuls (J) des Ausgangs- (rechts) und Endzustands (links). Nur in erster Ordnung beobachtete Übergänge sind angegeben.

λ	λ_{Ritz}	λ_{Exp}	r. I.	Ion	Konfiguration	Term	J
49,64	49,61	49,61 [CM72]	12	I	$4s^2 4p^6 - 4s 4p^6 5p$	$^1S - (^{1/2}, ^{3/2})^o$	0 - 1
	49,62	49,62 [PRB96]		VI	$4s 4p^2 - 4s 4p^3 P^o 4d$	$^2D - ^2D^o$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
	49,65	49,65 [FB80]		IV	$4s^2 4p^3 - 4s^2 4p^2 3P 4d$	$^4S^o - ^4P$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
	49,68	49,68 [FB80]		IV	$4s^2 4p^3 - 4s^2 4p^2 3P 4d$	$^2D^o - ^2F$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
52,77	52,81	52,81 [BRR00]	10	IV	$4s^2 4p^3 - 4s^2 4p^2 3P 5s$	$^2D^o - ^4P$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
55,07	55,05	55,05 [RGB98]	43	III	$4s^2 4p^4 - 4s^2 4p^3 2P^o 4d$	$^1D - ^1F^o$	2 - 3
	55,13	55,13 [MSP69]		II	$4s^2 4p^5 - 4s^2 4p^4 3P 8s$	$^2P^o - ^4P$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
57,00*	57	57,00 [MSP69]	12	II	$4s^2 4p^5 - 4s^2 4p^4 3P 6d$	$^2P^o - ^4D$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
59,64	59,6	59,60 [PRB96]	12	VI	$4s^2 5s - 4s 4p^1 P^o 5s$	$^2S - ^2P^o$	$\frac{1}{2} - \frac{3}{2}$
	59,64	59,64 [MSP69]		III	$4s^2 4p^4 - 4s^2 4p^3 2P^o 4d$	$^3P - ^3P^o$	0 - 1
	59,66	59,66 [MSP69]		III	$4s^2 4p^4 - 4s^2 4p^3 2P^o 5s$	$^1D - ^1P^o$	2 - 1
	59,67	59,67 [PRB96]		VI	$4s 4p^2 - 4p^3$	$^4P - ^4S^o$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
	60,66	60,65 [MSP69]		14	III	$4s^2 4p^4 - 4s^2 4p^3 2D^o 4d$	$^3P - ^3D^o$
60,67	60,67	60,67 [PRB96]	14	VI	$4s 4p^2 - 4p^3$	$^4P - ^2D^o$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
	60,67	60,67 [TMP93]		V	$4s 4p^3 - 4p^4$	$^3P^o - ^3P$	2 - 2
	62,21	62,19 [MSP69]		14	II	$4s^2 4p^5 - 4s^2 4p^4 1D 4d$	$^2P^o - ^2S$
64,34	64,34	64,34 [MSP69]	15	II	$4s^2 4p^5 - 4s^2 4p^4 1D 4d$	$^2P^o - ^2S$	$\frac{1}{2} - \frac{1}{2}$
	64,35	64,35 [BRR00]		IV	$4s^2 4p^3 - 4s^2 4p^2 3P 4d$	$^2D^o - ^4F$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
64,66*	64,64	64,64 [MSP69]	22	III	$4s^2 4p^4 - 4s^2 4p^3 2D^o 4d$	$^3P - ^3F^o$	2 - 3
67,17	67,11	67,11 [Boy35]	27	III	$4s^2 4p^4 - 4s^2 4p^3 2D^o 4d$	$^3P - ^3F^o$	1 - 2
	67,12	67,12 [MSP69]		III	$4s^2 4p^4 - 4s^2 4p^3 2D^o 5s$	$^1D - ^3D^o$	2 - 2
	67,23	67,23 [MSP69]		III	$4s^2 4p^4 - 4s^2 4p^3 4S^o 4d$	$^3P - ^3D^o$	2 - 3
68,67	68,63	68,63 [MSP69]	12	III	$4s^2 4p^4 - 4s^2 4p^3 4S^o 5s$	$^3P - ^5S^o$	2 - 2
	68,68	68,68 [Chu02]		VII	$4s 4d - 4s 5p$	$^3D - ^3P^o$	1 - 2
69,15	69,18	69,18 [TPP89]	16	V	$4s^2 4p^2 - 4s 4p^3$	$^3P - ^3P^o$	1 - 1
	69,19	69,19 [MSP69]		III	$4s^2 4p^4 - 4s^2 4p^3 4S^o 4d$	$^3P - ^3D^o$	1 - 1
69,64	69,61	69,61 [TPP89]	11	V	$4s^2 4p^2 - 4s 4p^3$	$^1D - ^1D^o$	2 - 2
	72,23*	72,21		72,20 [Boy35]	22	III	$4s^2 4p^4 - 4s^2 4p^3 4S^o 4d$

λ	λ_{Ritz}	λ_{Exp}	r. I.	Ion	Konfiguration	Term	J
	72,21	72,21 [BRR88]		III	$4s^2 4p^4 - 4s^2 4p^3 4s^0 4d$	$3P - 5D^0$	2 - 2
74,71	74,67	74,67 [MSP69]	11	III	$4s^2 4p^4 - 4s^2 4p^3 4s^0 4d$	$3P - 5D^0$	1 - 1
	74,68	74,68 [Boy35]		III	$4s^2 4p^4 - 4s^2 4p^3 4s^0 4d$	$3P - 5D^0$	1 - 0
78,20	78,21	78,21 [MSP69]	28	II	$4s^2 4p^5 - 4s^2 4p^4 1D 5s$	$2P^0 - 2D$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
	78,22	78,22 [BRR00]		IV	$4s 4p^4 - 4s^2 4p^2 3P 5p$	$4P - 4S^0$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
78,59*	78,6	78,60 [MSP69]	63	III	$4s^2 4p^4 - 4s 4p^5$	$1D - 1P^0$	2 - 1
81,83	81,81	81,81 [MSP69]	14	II	$4s^2 4p^5 - 4s^2 4p^4 1D 5s$	$2P^0 - 2D$	$\frac{1}{2} - \frac{3}{2}$
	81,84	81,84 [TPP89]		V	$4s^2 4p^2 - 4s 4p^3$	$3P - 3D^0$	2 - 2
84,39*	84,41	84,41 [MSP69]	15	II	$4s^2 4p^5 - 4s^2 4p^4 3P 5s$	$2P^0 - 2P$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
86,29	86,26	86,26 [MSP69]	14	III	$4s^2 4p^4 - 4s 4p^5$	$3P - 3P^0$	2 - 2
	86,28	86,28 [YT79]		I	$4s^2 4p^6 - 4s^2 4p^5 2P^0 8d$	$1S - 2[3/2]^0$	0 - 1
86,92*	86,94	86,94 [YT79]	17	I	$4s^2 4p^6 - 4s^2 4p^5 2P^0 7d$	$1S - 2[3/2]^0$	0 - 1
88,64	88,63	88,63 [MSP69]	20	II	$4s^2 4p^5 - 4s^2 4p^4 3P 5s$	$2P^0 - 4P$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
90,72	90,67	90,67 [YT79]	19	I	$4s^2 4p^6 - 4s^2 4p^5 2P^0 8d$	$1S - 2[1/2]^0$	0 - 1
	90,71	90,71 [AAH84]		III	$4s 4p^5 - 4p^6$	$1P^0 - 1S$	1 - 0
91,78*	91,74	91,74 [MSP69]	54	II	$4s^2 4p^5 - 4s 4p^6$	$2P^0 - 2S$	$\frac{3}{2} - \frac{1}{2}$
96,57	96,59	96,59 [BRR00]	70	IV	$4s 4p^4 - 4s^2 4p^2 3P 5p$	$2D - 2P^0$	$\frac{3}{2} - \frac{3}{2}$
116,49*	116,49	116,49 [YT79]	62	I	$4s^2 4p^6 - 4s^2 4p^5 2P^0 5s$	$1S - 2[1/2]^0$	0 - 1
123,58*	123,58	123,58 [YT79]	100	I	$4s^2 4p^6 - 4s^2 4p^5 2P^0 5s$	$1S - 2[3/2]^0$	0 - 1

Im Unterschied zu stark gebundenen Molekülen behalten Atome in schwach gebundenen Systemen qualitativ ihre Energiestruktur. Erst in den beiden vergangenen Jahrzehnten wurde klar, dass dies einen bisher unberücksichtigten Zerfallskanal öffnet, den *Interatomaren Coulomb-Zerfall*. Trotz der noch jungen Forschung zu diesem Thema ist bereits eine gewaltige Anzahl theoretischer und experimenteller Arbeiten entstanden. Dieses Kapitel soll einen Einblick über die Entwicklung von theoretischer Vorhersage über die ersten experimentellen Nachweise zu zukunftsweisenden Experimenten geben.

5.1 Der Interatomare Coulomb-Zerfall

Für die Atom- und Molekülphysik ist es von essentieller Bedeutung und Gegenstand intensiver Forschung, wie angeregte physikalische Systeme zerfallen, d. h. wie sie die in ihnen deponierte Energie wieder abgeben. Für den Fall eines angeregten Atoms sind zunächst zwei Prozesse bekannt: Zerfall durch die Emission eines Photons (Lumineszenz bzw. Fluoreszenz, vgl. Abschnitt 2.2.3) oder Elektrons (Auger-Zerfall). Für den Auger-Zerfall muss dabei die im Atom deponierte Energie mindestens so groß sein wie die Bindungsenergie des am schwächsten gebundenen Elektrons:

$$E(\text{angeregtes Atom}) - E(\text{Grundzustand}) \geq \text{niedrigste Bindungsenergie} \quad (5.1)$$

Schwächer angeregte Atome zerfallen daher durch Photonenemission. Durch Fluoreszenz zerfallende Zustände haben Lebensdauern in der Größenordnung einiger Nanosekunden. Nur Femto-

sekunden leben dagegen Zustände, die durch Emission eines Auger-Elektrons zerfallen. Sobald die Bedingung 5.1 erfüllt ist wird deshalb der Auger-Prozess dominieren. Erst für sehr hohe Rydbergzustände [LPH00] oder bei Anregung der innersten Schalen schwerer Elemente kommt es wieder zum Zerfall durch Emission von Photonen [Aza74]. Zu beachten ist, dass die Lagen von Energieniveaus und Ionisationspotentialen (IP) sich nach der Anregung deutlich von denen im Grundzustand unterscheiden können. Wurde das Atom z. B. bei der ursprünglichen Anregung ionisiert, sind die verbleibenden Elektronen stärker gebunden und die Schwelle für eine weitere Ionisation (Doppelionisationspotential, DIP) ist deutlich größer als das einfache IP. Ist ein Atom

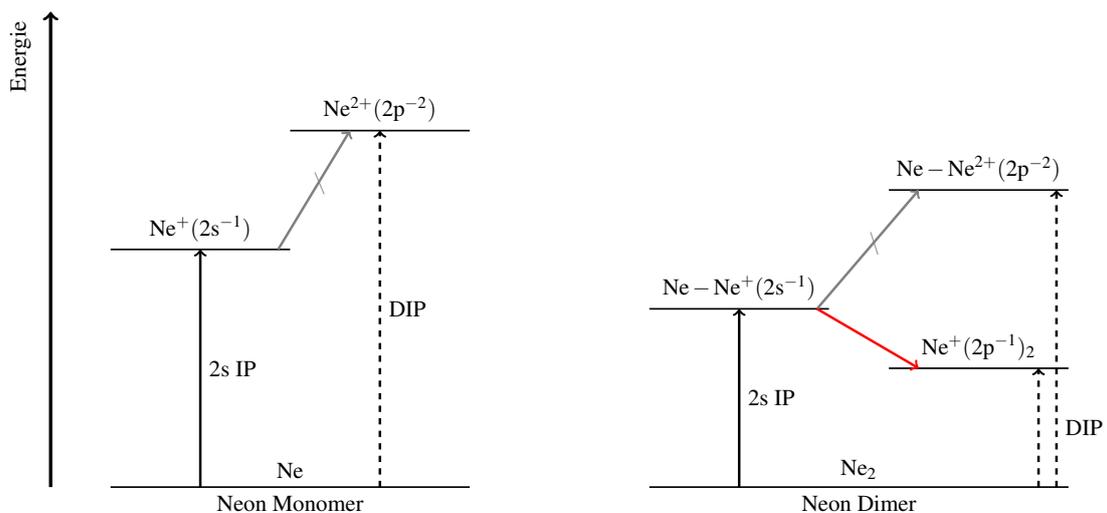


Abb. 5.1: Auswahl einiger energetischer Lagen von Zuständen des Neon-Monomers und Neon-Dimers. Im Dimer liegt ein doppelt ionisierter Zustand energetisch niedriger als der einfach 2s-ionisierte Zustand. Dies ermöglicht einen neuartigen Zerfall (roter Pfeil), bei dem Energie zwischen den Clusterbestandteilen transferiert wird.

in einem Molekül gebunden, verändert sich diese Argumentation unwesentlich. Statt der atomaren Zustände müssen die des Gesamtsystems Molekül betrachtet werden [Dem03]. 1997 zeigten L. Cederbaum et al. [CZT97], dass sich die Situation völlig verschieden darstellen kann, wenn es sich bei den betrachteten Systemen um sogenannte *Multimere* von Atomen oder Molekülen handelt. In diesen sind die einzelnen Bestandteile (Atome, Moleküle) nur sehr schwach gebunden, wie es bei Van-der-Waals-Bindungen oder Wasserstoffbrückenbindungen der Fall ist [Dem03]. Ist die genaue Anzahl der gebundenen Einheiten von Interesse, wird die Silbe „Multi“ durch das entsprechende griechische Zahlpräfix ersetzt (Mono-mer, Di-mer, Tri-mer, ...). In der Literatur und auch im Folgenden wird als Synonym für Multimer häufig der geläufigere englische Begriff *Cluster* verwendet. Die elektronische Struktur der einzelnen Bestandteile bleibt darin qualitativ erhalten. Die schwache Bindung bedingt lediglich eine Verschiebung der einzelnen Energieniveaus, was zur Änderung von Bindungsenergien und Resonanzen führt. Die Stärke der Verschiebung ist abhängig von der Anzahl der nächsten Bindungspartner, weshalb in großen Clustern

Energieniveaus für Atome an der Clusteroberfläche und im Clustervolumen aufgespalten sind. Da die Ionisation eines Clusterbestandteils nur geringe Auswirkungen auf die Bindungspartner hat, liegt das DIP eines Clusters deutlich unter dem seiner Einzelteile. Dies eröffnet für das Sys-

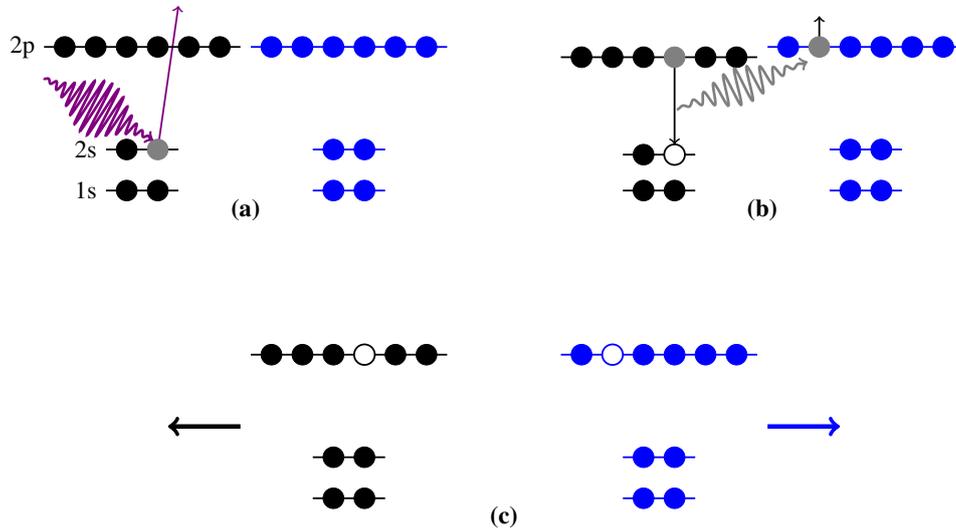
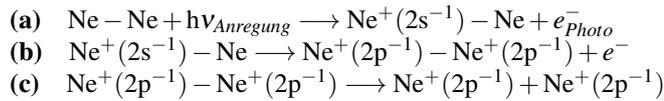


Abb. 5.2: Interatomarer Zerfall nach 2s-Ionisation im Neon-Dimer.



tem einen neuartigen Zerfallskanal: ist die in einem Teil deponierte Energie nicht ausreichend für eine doppelte Ionisation desselben, kann die Energie auf *benachbarte* Teile übertragen werden und diese ionisieren. Das Prinzip ist in Abbildung 5.1 am Beispiel von Neon skizziert. Die doppelte Ionisation kann im Dimer auf beide Atome aufgeteilt werden. Dieser Zustand liegt daher deutlich unterhalb des DIP *eines* Atoms und kann durch Zerfall eines einfach 2s-ionisierten Zustandes erreicht werden (roter Pfeil). Bei den theoretisch zuerst betrachteten Systemen handelte es sich um Fluorwasserstoff- und Wassercluster [CZT97]. Wenig später wurde der Effekt auch für zahlreiche andere Systeme vorhergesagt. Als Musterbeispiel für theoretische und später auch experimentelle Untersuchungen kristallisierten sich Edelgascluster heraus, insbesondere das Neon-Dimer Ne_2 . Anhand dessen soll der Prozess einmal schrittweise anschaulich erklärt werden.

In Abbildung 5.2 ist der Ablauf schematisch skizziert. Beim Neonatom sind im Grundzustand die Energieniveaus 1s, 2s und 2p voll besetzt. Durch Photoionisation wird ein Elektron aus dem 2s-Niveau gelöst, man spricht von einem 2s-Loch (Abbildung 5.2 (a)). Das 2s-IP liegt für Neon-Atome bei 48,48 eV. Beim nun möglichen 2p \rightarrow 2s-Zerfall werden 26,84 eV frei [JCS04]. Dies genügt nicht, um das Atom ein zweites Mal zu ionisieren, denn das DIP liegt bei 40,96 eV [KRR13]. Im Dimer reicht die Energie aber aus, um den Bindungspartner ebenfalls einfach zu ionisieren

[MSZ01]. Die im einen Neonatom deponierte Energie wird also auf den Nachbar übertragen und reicht dort für die Ionisation (Abbildung 5.2 (b)). Anschließend trennt sich die Bindung, da sich beide Bestandteile aufgrund ihrer Ladung abstoßen („Coulomb-Explosion“, Abbildung 5.2 (c)). Als Bezeichnung für diesen Zerfallsprozess hat sich *Interatomarer* (oder *Intermolekularer*) *Coulomb-Zerfall* durchgesetzt, wobei häufig nur das Akronym der englischen Bezeichnung *ICD* (für *Interatomic Coulombic Decay*) verwendet wird.

5.2 Formen und Eigenschaften des ICD

Das im vorherigen Abschnitt beschriebene Beispiel des Neon-Dimers ist nur eines von zahlreichen physikalischen Systemen, in denen der ICD eine Rolle spielt. Bereits vor der ersten experimentellen Bestätigung mehrten sich die theoretischen Vorhersagen für mögliche Systeme rasant. Einen Überblick über die bisherige theoretische Arbeit zum Thema gibt [ADK11]. Essentielle Voraussetzung für den Prozess ist das Vorhandensein eines Elektronenloches, d. h. ein fehlendes Elektron in einem Energieniveau. In der Regel liegt dieses in einer der inneren Valenzschalen (alle von der 2s-Schale bis zur zweitäußersten), jedoch können auch Innerschalen-(1s)-Löcher durch ICD zerfallen.

Die Photoionisation ist der theoretisch und experimentell am häufigsten untersuchte locherzeugende Prozess. Prinzipiell kann ein solches Loch aber auch auf anderem Wege entstehen. So ist die Entstehung eines durch den ICD zerfallenden Zustands nicht als direkte Anregung, sondern als Sekundärprozess möglich, etwa als Folge von Auger-Zerfällen. Eine weitere Möglichkeit ist die resonante Anregung des Systems, man spricht dann vom *resonanten ICD*, kurz *rICD*. Hierauf liegt der experimentelle Schwerpunkt dieser Arbeit. Nach resonanter Anregung ist die betreffende Clustereinheit noch neutral. Deshalb wird der ICD in der Regel mit einfacher Autoionisation konkurrieren, da nicht das DIP aufgebracht werden muss. Je nach angeregter Resonanz gibt es also ein bestimmtes Wahrscheinlichkeitsverhältnis von Autoionisation zu ICD. Nach stattgefundenem ICD ist außerdem nur einer der Clusterbestandteile ionisiert, nämlich der, der das ICD-Elektron emittiert hat. Nicht zwangsläufig erfolgt anschließend der Bindungsbruch durch Coulomb-Explosion. Jedoch kann eine hohe resonante Anregung wie eine lokale Ladung wirken, sodass ebenfalls eine Fragmentation stattfindet.

Nicht lange nach der Entdeckung der Möglichkeit eines ICD-artigen Zerfalls wurden dessen Eigenschaften und mögliche Erscheinungsformen -zunächst theoretisch- intensiv untersucht. Man fand heraus, dass der Prozess in der zeitlichen Größenordnung von Femtosekunden stattfindet [SZC01]. Die genaue Dauer ist dabei vom System, dem Abstand der gebundenen Partner und der Anzahl der benachbarten Einheiten abhängig. Damit ist der Zerfall eindeutig dominierend gegenüber strahlenden Abregungen wie der Fluoreszenz und konkurrenzfähig zu anderen strahlungsfreien Autoionisationsprozessen.

Der ICD-Mechanismus kann durch die Detektion typischer Zerfallsprodukte nachgewiesen werden. In den meisten bisherigen Experimenten ist dies mindestens ein Elektron, das sogenannte ICD-Elektron. Es entsteht, wenn transferierte Energie eine Clustereinheit ionisiert. Die Energie dieses Elektrons ist charakteristisch für einen bestimmten ICD-Prozess in einem bestimmten System. Sie hängt nur von den beteiligten Übergängen und Ionisationspotentialen ab, nicht aber von einer möglichen Variation der Anregungsenergie. Das ICD-Elektron aus dem Beispiel in Abschnitt 5.1 wird immer gleich schnell sein, unabhängig von der anregenden Photonenenergie. Weitere Zerfallsprodukte sind geladene Clusterfragmente, die bei der Ladungstrennung nach stattgefundenem ICD entstehen. Sie sind von Ionen, die durch andere Prozesse entstehen, durch ihre Energie zu unterscheiden. Die vorherige kinetische Energie der Cluster ist vernachlässigbar klein gegenüber ihrem Energiegewinn aus der Coulomb-Explosion. So entstandene Fragmente haben deswegen praktisch entgegengesetzte Flugrichtungen. Die Summe der kinetischen Energien von ICD-Elektron und der beiden energetischen Ionen ist für jeden ICD-Prozess eine charakteristische Konstante [JCS04].

5.3 Experimentelle Untersuchung und Nachweis

Wenige Jahre nach der theoretischen Vorhersage des ICD wurden erste Experimente zum Nachweis durchgeführt. Nach der ersten experimentellen Beobachtung stieg das Interesse und die Anzahl der Experimente schnell an. Es stellte sich heraus, dass der ICD kein exotischer Prozess ist, der nur in wenig speziellen Systemen möglich ist, sondern dass es sich um einen fundamentalen physikalischen Mechanismus handelt. Dieser Abschnitt wird einige wichtige Experimente und Ergebnisse bisheriger Arbeiten aufgreifen. Einen ausführlicheren Überblick über die ersten Jahre der experimentellen Forschung zum ICD findet sich in [Her11].

5.3.1 Erste Experimente

Den ersten experimentellen Hinweis fanden Marburger et al. 2003 mittels Elektronenspektroskopie [MKH03]. Nach Anregung von Neonclustern mit Synchrotronstrahlung oberhalb der Neon 2s-Ionisationsschwelle traten verstärkt Elektronen mit Energien um 1,2 eV auf, die dem in Abschnitt 5.1 beschriebenen Prozess zugeschrieben wurden. Öhrwall et al. [OTL04] fanden heraus, dass sich die Lebensdauer einer 2s-Vakanz in Neonclustern im Vergleich zum atomaren Fall dramatisch reduziert. Zudem konnten der unterschiedlichen Effizienz des ICD für Atome auf der Clusteroberfläche und im Clustervolumen zwei verschiedene Lebensdauern angeregter Zustände zugeordnet werden.

Eindeutig nachgewiesen wurde der ICD kurze Zeit später in Neon-Dimeren [JCS04]. Jahnke et al. detektierten dazu zwei energetische, sich in entgegengesetzte Richtungen bewegende Ne^+ -Ionen und ein Elektron in Koinzidenz. Der Begriff „Koinzidenz“ bedeutet in diesem Fall, dass

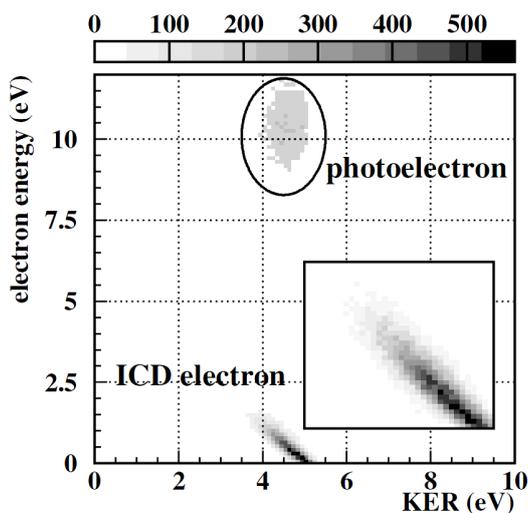


Abb. 5.3: Messung von zwei Ionen und einem Elektron in Koinzidenz: Trägt man die Ereignisse entsprechend der Summe der kinetischen Energien beider Ionen (englisch *Kinetic Energy Release*, KER) und der Elektronenenergie auf, zeigen sich zwei Strukturen. Die Struktur mit Elektronenenergien um 10 eV stammt von der Messung zweier Ionen und dem 2s-Photoelektron. Die im Ausschnitt vergrößerte diagonale Struktur resultiert aus der Detektion von zwei Ionen und dem ICD-Elektron und beweist das Auftreten des ICD-Prozesses [JCS04].

die Teilchen im selben Prozess entstanden sind und mit höchstens flugzeitbedingter Verzögerung detektiert werden. In Abbildung 5.3 ist das Hauptergebnis dieses Experiments zu sehen.

Dargestellt ist die Häufigkeit von Ion-Ion-Elektron Koinzidenzereignissen. Die Summe der Energien der beiden Ionen ist als KER (für englisch: *Kinetic Energy Release*) auf der horizontalen Achse aufgetragen, die Elektronenenergie auf der vertikalen Achse. Ereignisse mit einer Elektronenenergie um 10 eV gehören zur Detektion des 2s-Photoelektrons zusammen mit zwei energetischen Ionen (die Anregungsenergie betrug 58,8 eV und lag damit etwa 10 eV über der Ionisationsschwelle). Die Struktur bei kleinen Elektronenenergien resultiert aus der koinzidenten Detektion der beiden Ionen und dem ICD-Elektron. Die Diagonalität der Struktur ist ein eindeutiger Beweis für ICD: die Summe der kinetischen Energien eines langsamen Elektrons und zwei sich entgegengesetzt bewegender Ionen ergibt einen konstanten Wert (vgl. Abschnitt 5.2).

5.3.2 ICD in Edelgasen und gemischten Clustern

Wegen der verhältnismäßig einfachen Erzeugung und Handhabung (siehe auch Abschnitt 6.2) standen bei der experimentellen Erforschung des ICD zunächst die Edelgascluster im Fokus. Nach dem Neon wurden auch in Argonclustern Hinweise auf ICD gefunden [BFM05, MLS06]. Schließlich konnte der Prozess in den Dimeren aller anderen Edelgase nachgewiesen werden [LAH07, HJK10]. Der Auger-Zerfall stellte sich neben der direkten Photoionisation als weitere Quelle für Zustände heraus, die durch ICD zerfallen [MLS06, UFL08]. Die bis da-

hin untersuchten Systeme waren stets Cluster einer Atomsorte. Bald konnte auch in gemischten Edelgasclustern, bestehend aus Atomen verschiedener Edelgase, ICD beobachtet werden [OSF11, AMF11].

5.3.3 Resonanter ICD

Von besonderer Wichtigkeit für diese Arbeit ist die in Abschnitt 5.2 bereits erwähnte resonante Form des ICD, da diese experimentell untersucht wurde. Auf zwei wichtige Arbeiten zum resonanten ICD in Neonclustern soll deshalb näher eingegangen werden. Die ersten Hinweise auf rICD unterhalb der Neon $2s$ -Ionisationsschwelle fanden Barth et al. in Neonclustern mit durchschnittlicher Atomanzahl von $\langle N \rangle = 70$ [BJM05]. Beim Messen der Elektronenspektren für in $0,2$ eV-Schritten variierte anregende Photonenenergie traten für zwei Energien große Verstärkungen langsamer Elektronen auf. Diese Energien lagen bei $47,1$ eV und $47,5$ eV und wurden von den Autoren als die verschobene $2s \rightarrow 3p$ Resonanz für Atome an der Clusteroberfläche und im Volumen interpretiert. Die atomare $2s \rightarrow 3p$ -Resonanz liegt bei $45,55$ eV [KRR13].

Eine detailliertere Untersuchung erfolgte durch Aoto et al. [AIH06] durch Messung energetischer Neonionen nach resonanter Anregung der $2s \rightarrow np$ -Resonanzen ($n = 3, 4, 5, \dots$) in Neon-Dimeren. Das Resultat ist in Abbildung 5.4 dargestellt. Man sieht im linken Teil die Ionenausbeute an

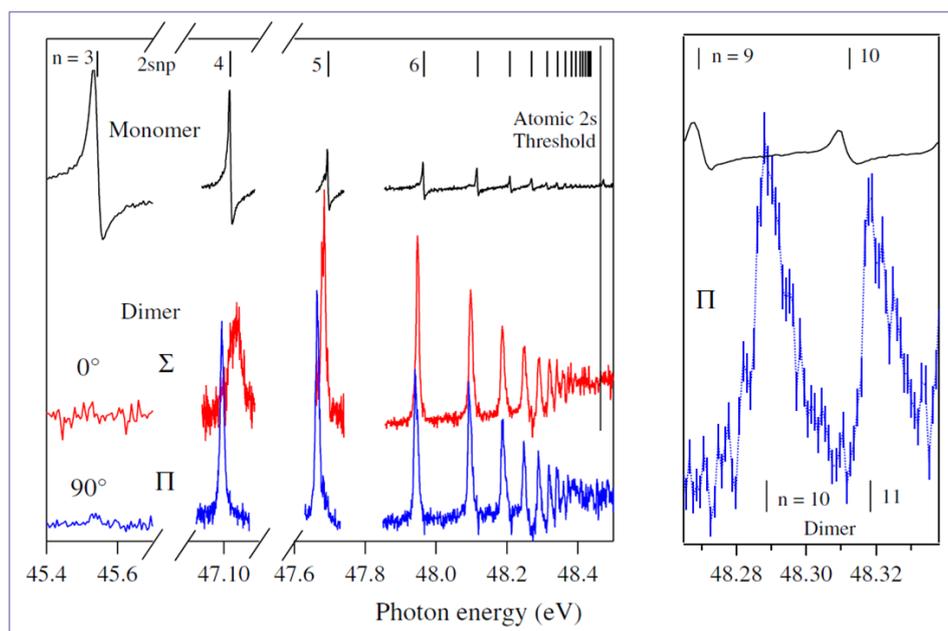


Abb. 5.4: Resonanter ICD in Neon-Dimeren. Links: Ionenausbeute nach resonanter Anregung von Monomeren (schwarz) im Vergleich zur Ausbeute energetischer Ionen, gemessen im Winkel von 0° (rot, Σ) und 90° (blau, Π) bezüglich des elektrischen Feldvektors der linear polarisierten anregenden Synchrotronstrahlung. Rechts: Die Resonanzen sind im Dimer um durchschnittlich 24 meV zu niedrigeren Energien verschoben [AIH06].

Monomeren (schwarz) im Vergleich zur Ausbeute energetischer Ionen nach Dimer-Anregung, gemessen im Winkel von 0° (rot, Σ) und 90° (blau, Π) bezüglich des elektrischen Feldvektors der linear polarisierten anregenden Synchrotronstrahlung. Im rechten Teil ist deutlich sichtbar, dass die Resonanzen im Dimer im Vergleich zum Atom (Monomer) leicht zu niedrigeren Energien verschoben sind. Als mittlere Verschiebung werden 24 meV angegeben. Für das Fehlen der $2s \rightarrow 3p$ -Resonanz bei Dimeren werden verschiedene Gründe angeführt. Die clusterbedingte Resonanzverschiebung könne deutlich größer als bei den folgenden Resonanzen sein und damit außerhalb des gemessenen Energiebereichs liegen. Weiterhin sei denkbar, dass die Autoionisation für diesen Zustand über den ICD dominiert.

Die beiden Ergebnisse von [BJM05] und [AIH06] unterscheiden sich bemerkenswert. Während in [BJM05] eine Verschiebung der $2s \rightarrow 3p$ -Resonanz um 1,55 eV (Oberfläche) beziehungsweise 1,95 eV (Volumen) zu *höheren* Energien beobachtet wird, tritt diese bei [AIH06] nicht auf. Dort wird stattdessen die durchschnittliche Verschiebung der übrigen $2s \rightarrow np$ -Resonanzen um 24 meV zu *niedrigeren* Energien gemessen. Ein wesentlicher experimenteller Unterschied bestand in der mittleren Clustergröße ($\langle N \rangle = 70$ im Vergleich zu Dimeren). Hier stellt sich ein Problem bei der experimentellen Untersuchung des rICD heraus: die genauen Lagen der Resonanzen in Abhängigkeit der Clustergröße sind bisher nicht bekannt.

5.3.4 ICD in Wasser und Lösungen

Wegen seiner einzigartigen Bedeutung in der Natur rückte bald auch Wasser (H_2O) in den Blickpunkt der ICD-Forschung, an dem die Möglichkeit intermolekularer Energieübertragung als erstes vorhergesagt wurde [CZT97]. In Flüssigkeiten beziehungsweise sehr großen Molekülclustern gestaltet sich der Nachweis des ICD jedoch erheblich schwieriger als in den Edelgasclustern. Inelastische Streuung im Cluster und eine deutlich höhere Anzahl möglicher zu ionisierender Zustände verursachen eine enorme Verbreiterung des charakteristischen ICD-Signals langsamer Elektronen [Her11, MC06].

Die Identifizierung der ICD-Elektronen durch einfache Elektronenspektroskopie wird dadurch nahezu unmöglich. Hier gelang deshalb die erste Beobachtung in Koinzidenzexperimenten. Wenn der ICD durch Photoionisation hervorgerufen wird, können ICD-Elektronen selektiert werden, wenn man sie in Koinzidenz mit den bei der Anregung entstehenden Photoelektronen detektiert, deren Energie bekannt ist. Der Untergrund von Elektronen aus anderen Quellen verschwindet damit. Mucke et al. [MBB10] sahen so für ICD-Prozesse typische Elektronenpaare. Jahnke et al. [JSH10] betrachteten Wasser-*Dimere*, und verhinderten damit im Wesentlichen Elektronenstreuung im Cluster. Durch Vier-Teilchen-Koinzidenzmessung konnte der ICD im Wasser eindeutig nachgewiesen werden. Zwei Wasser-Ionen, das Photoelektron und das ICD-Elektron aus demselben Prozess wurden gemessen.

Der Aufbau eines sogenannten „Liquid Jet“-Experiments, bei dem ein mikrometerdicker Flüssigkeitsstrahl direkt ins Vakuum geschossen wird [WF06], ermöglichte erstmals auch Untersuchungen an Flüssigkeiten und Lösungen. Nach dem ICD-Prozess zwischen Wassermolekülen wurden Hinweise auf einen Energieübertrag von gelösten Ionen auf die umgebenden Wassermoleküle beobachtet [AOF08, PBB09].

5.4 Ausblick

Es hat sich herausgestellt, dass der Interatomare Coulomb-Zerfall ein fundamentaler physikalischer Mechanismus ist. Von besonderem Interesse ist seine Bedeutung für natürliche chemische und biologische Prozesse, denn in der Natur treten Atome und Moleküle in der Regel nicht isoliert, sondern im unmittelbaren Umfeld weiterer auf. Große Aufmerksamkeit richtet sich auf die typischerweise entstehenden langsamen Elektronen, deren erbgutschädigende Wirkung in biologisch relevanten Molekülen bekannt ist [HBD03, BCH00]. Der Nachweis des ICD mittels Detektion von Elektronen und Ionen ist nur im Hochvakuum möglich, wodurch Experimente an Flüssigkeiten und biologischen Proben stark eingeschränkt werden. Die Messung sichtbarer und ultravioletter Fluoreszenz könnte eine Vielzahl neuer experimenteller Möglichkeiten auf diesem Gebiet eröffnen.

Nach dem Überblick über die bisherige Forschung zum ICD im vorherigen Kapitel soll zu Beginn dieses Kapitels zunächst der konkrete physikalische Hintergrund des durchgeführten Experiments und dessen Zusammenhang zum ICD erläutert werden. In weiteren Abschnitten wird auf experimentelle Schwerpunkte wie Synchrotronstrahlung und Clustererzeugung und den experimentellen Aufbau eingegangen.

6.1 Physikalischer Hintergrund des Experiments

Wie schon erläutert, kann die Fluoreszenzspektroskopie als Nachweismethode für den Interatomaren Coulomb-Zerfall neue experimentelle Möglichkeiten erschließen. In diesem Experiment sollten daher erste Schritte zur Messung von Fluoreszenz an ICD-ermöglichenden Systemen erfolgen. Als solche Systeme wurden Cluster der Edelgase Neon und Argon ausgewählt. Der überwiegende Teil des Experiments befasste sich mit Fluoreszenz von Neon nach $2s \rightarrow np$ -Anregung. Zusätzlich wurden einige Messungen an Argon im Bereich der $2p \rightarrow nl$ -Anregungen durchgeführt. Am konkreten Beispiel des Neon-Dimers ist der Ablauf des rICD in Abbildung 6.1 skizziert. Nach resonanter Anregung ($2s \rightarrow 3p$) (Abbildung 6.1 (a)) wird ein Neonatom praktisch immer durch einen Auger-Zerfall relaxieren (siehe Abschnitt 5.1). Daher wird keine Fluoreszenz nach dieser Anregung sichtbar sein. Im Cluster dagegen ist der rICD zur Autoionisation konkurrenzfähig. Entscheidend für Fluoreszenzbeobachtungen ist, dass es sich um einen sogenannten „spectator“-Auger-Prozess handelt. Dies bedeutet, dass das angeregte Elektron selbst nicht am Prozess teilnimmt, nur das erzeugte Loch in seinem ursprünglichen Niveau ist beteiligt (Abbildung 6.1 (b)). Nach stattgefundenem ICD befindet sich das primär angeregte Atom immer noch in einem angeregten Zustand. Da die verbleibende deponierte Energie nach dem Übertrag durch den ICD aber nicht mehr für einen Auger-Zerfall ausreicht, kann eine Relaxation nur durch Emis-

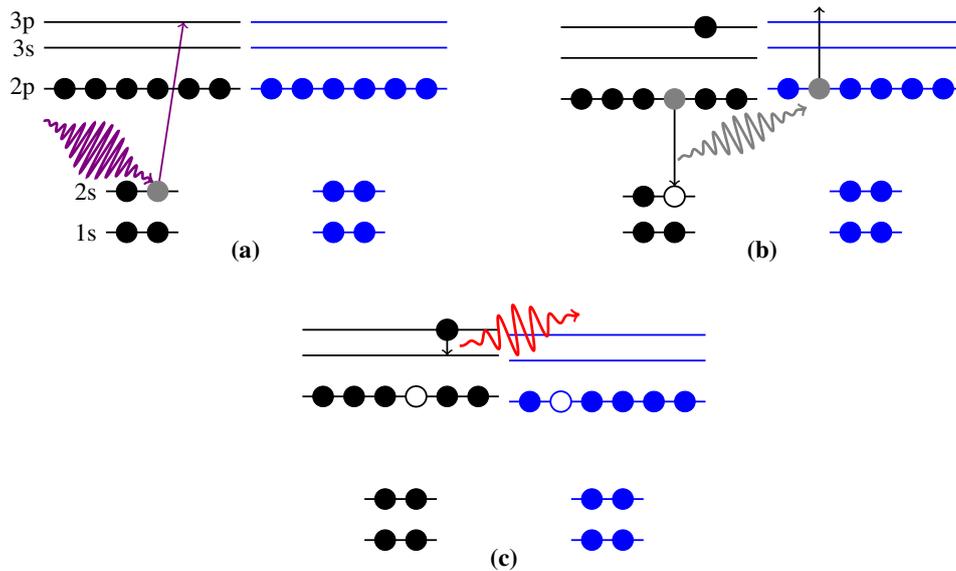
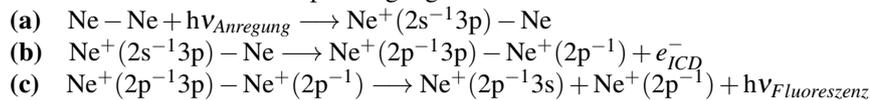


Abb. 6.1: Resonanter ICD nach $2s \rightarrow 3p$ -Anregung im Neon-Dimer.



sion eines Fluoreszenzphotons stattfinden (Abbildung 6.1 (c)).

Analog ist der Prozess für die Anregungen $2s \rightarrow 4p$ und $2s \rightarrow 5p$ möglich. Das Verhältnis von Auger-Zerfall zu ICD wird sich für höhere Anregungen zugunsten des ICD ändern [DK12]. Anschließend sind die Fluoreszenzübergänge $4p \rightarrow 3s$ und $5p \rightarrow 3s$ (je nach vorheriger Anregung) zu beobachten. Der Energietransfer des rICD sollte also in Clustern das Auftreten bestimmter Fluoreszenzübergänge hervorrufen, die im Atom vom dominierenden Auger-Zerfall unterdrückt werden.

6.2 Erzeugung von Edelgasclustern

Die Forschung an und mit Strahlen kondensierter Materie begann in den 1950er Jahren [BBH56]. Zur Erzeugung von Clustern verschiedenster Art setzte sich schließlich die Methode des Überschallgasstrahles durch [BMP88]. Wegen der englischen Bezeichnung *supersonic jet* hat sich auch die Kurzform „Jet“ eingebürgert. Dabei wird das entsprechende Gas durch eine Düse direkt ins Vakuum expandiert. Durch statistische Stöße zwischen Atomen bilden sich Cluster wenn die Summe der kinetischen Energien aller Stoßpartner kleiner als die Bindungsenergie ist. Alternativ kann, z. B. bei einem Dreiteilchenstoß, Energie auf ein später nicht gebundenes Teilchen übertragen werden. Durch Variation der Bedingungen im Gasreservoir kann die Wahrscheinlichkeit für clusterbildende Stöße beeinflusst werden [HO72]. Höherer Druck p führt zu einer höheren

Teilchendichte und somit zu höherer Stoßwahrscheinlichkeit. Umso niedriger die Temperatur T des Gases ist, desto weniger Energie haben die Teilchen im Mittel und umso wahrscheinlicher ist es, dass zwei Teilchen nach einem Stoß gebunden sind. Form und Durchmesser d der Düse haben ebenfalls Einfluss auf die Clusterbildung.

Üblicherweise wird aus den verschiedenen experimentellen Bedingungen eine mittlere Clustergröße $\langle N \rangle$ bestimmt, um die die wahren Clustergrößen streuen. Es gibt dazu semiempirische Berechnungsmethoden, um $\langle N \rangle$ aus p , T und d zu berechnen [Hag92, BK96]. Auch die Art des verwendeten Gases muss darin berücksichtigt werden. In [Jah05] findet sich eine Übersicht dieser Berechnungen für alle Edelgase. Die experimentelle Überprüfung dieser semiempirischen Größenbestimmungsmethoden für alle Gase ist jedoch schwierig und kaum oder gar nicht durchgeführt. Um keine falschen Kenntnisse über genaue Clustergrößen im Experiment zu suggerieren, werden im Folgenden daher stets die tatsächlich verwendeten Gasreservoir-Parameter angegeben und es wird auf eine Clustergrößenbestimmung verzichtet.

Zur Erzeugung der Edelgascluster im Experiment wurde apparatives Equipment von der Arbeitsgruppe Reinhard Dörner, Johann-Wolfgang-Goethe-Universität Frankfurt am Main, zur Verfügung gestellt. Die verwendete Düse hatte einen Durchmesser von $60 \mu\text{m}$, kein Skimmer wurde benutzt. Die Düse selbst und ihre Zuleitung konnten mit flüssigem Stickstoff bis auf 78 K abgekühlt werden. Ein regelbarer Heizdraht ermöglichte die Einstellung beliebiger Temperaturen zwischen Raumtemperatur und 78 K . Der Gasdruck in der Zuleitung war am Druckminderer der Gasflasche zwischen Atmosphärendruck und 8 bar regelbar.

6.3 Synchrotronstrahlung

Das Experiment wurde am Strahlrohr BW3 der Synchrotronstrahlungsquelle DORIS (**Doppel-Ring-Speicher**) am Deutschen Elektronen-Synchrotron DESY in Hamburg durchgeführt. Zur Erzeugung von Synchrotronstrahlung macht man sich den Effekt zu Nutze, dass beschleunigte Ladungen Strahlung emittieren [Jac06]. Die erste Beobachtung an einem Synchrotron in 1947 gab dieser Strahlung ihren Namen [Pol83]. Für Details zur Physik in Beschleunigeranlagen und Synchrotronstrahlungsquellen sei auf [Wil96] verwiesen.

DORIS ist eine Synchrotronstrahlungsquelle der dritten Generation. Dies bedeutet, gespeicherte geladene Teilchen werden durch periodische magnetische Strukturen, sogenannte Wiggler oder Undulatoren, auf eine oszillierende Bahn gebracht und damit gezielt die Emission von Synchrotronstrahlung ausgelöst. Die Teilchen werden in Paketen, den sogenannten Bunches, im Ring gespeichert. Verschiedene Betriebsmodi bezüglich der Anzahl der Bunches und ihrer Abstände sind möglich. Relativistische Effekte bewirken im Laborsystem eine Abstrahlung in hohem Maße in Flugrichtung der Teilchen, wodurch hohe Intensitäten erreicht werden können. Eigenschaften wie Energie, Bandbreite, Polarisation und Intensität der Strahlung können durch Größe

der magnetischen Strukturen, Stärke des Magnetfeldes, Teilcheneigenschaften und durch weitere Elemente im Strahlrohr beeinflusst werden [Jac06].

Das Strahlrohr BW3 steht für von Nutzern aufgebaute Experimente zur Verfügung und deckt einen Photonenenergiebereich von 15 bis 2000 eV ab. Es wurde 1992 in Betrieb genommen. Technische Daten und Eigenschaften werden ausführlich in [Mö93] und [LBB94] behandelt. Während des Experiments wurde der Speicherring im Modus von 10 Bunches mit Abständen von 96 ns betrieben. Überwiegend wurden Photonenenergien zwischen 45 und 50 eV verwendet. Im Handbuch des Strahlrohres [BW3] findet sich eine Faustformel zur Bestimmung der Bandbreite ΔE bei gegebener Photonenenergie E in Elektronenvolt (eV) und Austrittsspaltbreite s des Strahlrohr-Monochromators in Millimetern:

$$\Delta E = \frac{2,16 \cdot 10^{-4}}{\text{mm}\sqrt{\text{eV}}} \cdot E^{1,5} \cdot s \quad (6.1)$$

Wenn nicht abweichend erwähnt, wurden die Messungen bei einer Spaltbreite von 100 μm durchgeführt. Dies ergibt bei 45 eV eine ungefähre Bandbreite von 7 meV.

6.4 Experimenteller Aufbau

Das experimentelle Prinzip zu Untersuchungen von synchrotronstrahlungsinduzierter Lumineszenz von Clustern wird in [KJS93] beschrieben: Der Clusterstrahl wird in einer Wechselwirkungszone mit dem Synchrotronlicht überlagert. Entstehende Strahlung, Teilchen und Fragmente werden mit verschiedenen Detektoren rund um die Wechselwirkungszone gemessen. Der in diesem Experiment verwendete Aufbau ist in Abbildung 6.2 skizziert. In der Targetkammer höhenverstellbar montiert befand sich ein Parabolspiegel. Durch zwei seitliche Bohrungen verlief der Synchrotronstrahl. In eine Aussparung an der Unterseite wurde die Gasjet-Düse geführt, sodass sich der Jet in der Mitte des Spiegels mit dem Synchrotronstrahl kreuzte. Auftretendes Fluoreszenzlicht wurde vom Parabolspiegel in Richtung eines seitlichen Fensterflansches parallelisiert. Ein „EMX Series Precision Manipulator“ ermöglichte die dreidimensionale Justage der Gaszuleitung mit Düse. Die Kammer wurde durch eine unterhalb montierte „HiPace 2300“-Turbomolekularpumpe der Firma *Pfeiffer* evakuiert.

Elektrisch isolierende Montage des Parabolspiegels ermöglichte eine Messung des Ladungsaufkommens. Dabei wurde kein Potential angelegt, sodass sich alle auftreffenden Ladungssorten zur Messung einer gesamten Ladungsausbeute addieren. Die Detektion der Fluoreszenz erfolgte an Atmosphäre mit einem MCP-Detektor der Firma *RoentDek* mit bialkali-beschichteter Photokathode, empfindlich für Strahlung mit Wellenlängen zwischen 120 und 700 nm. Technische Details und Funktionsweise sind in [Kni12] beschrieben. Das verwendete Fenster aus Quarzglas ist für

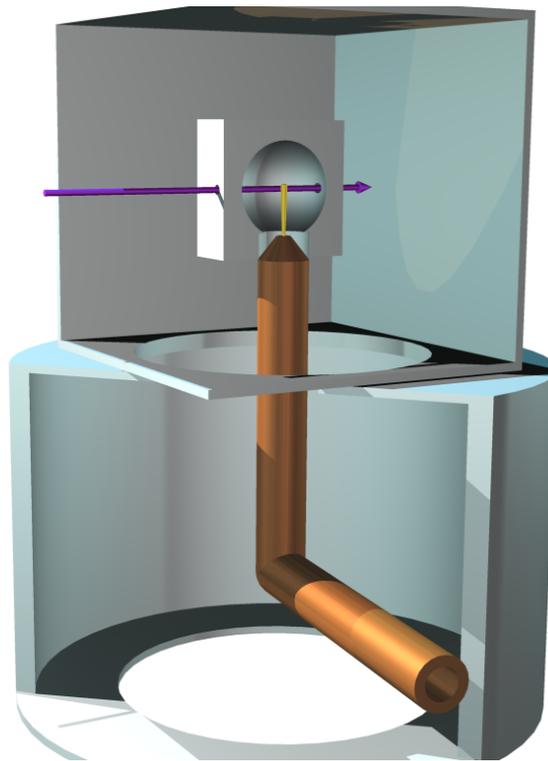


Abb. 6.2: Skizze des verwendeten Versuchsaufbaus: In der Mitte eines Parabolspiegels werden Synchrotronlicht (violett) und Überschallgasstrahl (gelb) überlagert. Auftretende Fluoreszenz wird vom Spiegel parallel in Richtung eines Fensterflansches (nicht im Bild) geworfen.

Strahlung mit Wellenlängen unterhalb von 180 nm undurchlässig. Der messbare Spektralbereich ist durch die unterhalb von etwa 250 nm einsetzende Absorption von molekularem Sauerstoff begrenzt [Huf69]. Direkte Montage des Detektors vor dem Fensterflansch der Targetkammer ermöglicht also die Messung der integrierten Fluoreszenzausbeute im Bereich von 250 bis 700 nm. Für Messung dispergierter Fluoreszenz wurde ein 30 cm-Czerny-Turner-Monochromator mit einem 600 Linien/mm-Gitter an den Fensterflansch gebracht und als Spektrometer verwendet. Mit einer Linse wurde das Fluoreszenzlicht auf dessen Eintrittsspalt fokussiert. In diesem Fall wurde der Detektor hinter dem Austrittsspalt des Monochromators montiert. Zwar ermöglicht der Detektor eine Ortsauflösung der Ereignisse, die durch Linsen- und Monochromatorjustage bedingte Auflösung war jedoch zu niedrig, um einzelne Spektrallinien aufzulösen. Die Auflösung des Gesamtsystems war somit durch die Breite der Detektorfläche bestimmt. Bei kompletter Ausleuchtung sind dies etwa 20 nm. Zur Minimierung des Rauschsignals wurde der Detektor auf ca. -20°C gekühlt und durch mehrlagige Abschirmung gegen Streulicht geschützt. Die Signalweiterleitung und -verarbeitung erfolgte über in der Arbeitsgruppe standardmäßig eingesetzte elektronische Verarbeitungsbauteile und selbst erstellte LabView-Software [Sch13].

7.1 Atomare Fluoreszenz und Beutler-Fano-Profil

Gemäß den Überlegungen in Abschnitt 6.1 wird in Neonclustern durch ICD die Öffnung eines fluoreszierenden Zerfallskanals nach resonanter $2s \rightarrow np$ -Anregung erwartet. Als Referenz dienen Messungen am atomaren Neon. Zunächst wurde daher auftretende Fluoreszenz im Bereich der atomaren Resonanzen gemessen. Tabelle 7.1 gibt die Anregungsenergien der im Experiment untersuchten Resonanzen von $n = 3$ bis $n = 5$ an.

Atomare Neon-Resonanz	Anregungsenergie
$2s \rightarrow 3p$	45,547 eV
$2s \rightarrow 4p$	47,123 eV
$2s \rightarrow 5p$	47,693 eV

Tab. 7.1: Anregungsenergien der untersten drei $2s \rightarrow np$ -Resonanzen im atomaren Neon [KRR13].

Durch schrittweises Durchfahren („scannen“) der anregenden Photonenenergie E und Messung der Fluoreszenzausbeute (zunächst undispergiert) erhält man die Fluoreszenz-Anregungs-Funktion. Schwankungen in der Intensität des Synchrotronstrahls liegen in den untersuchten Energiebereichen (meist deutlich) unter 5%. Da dies kleiner ist als die statistischen Schwankungen in den Fluoreszenzmessungen wurde hierfür keine Korrektur durchgeführt. Abbildung 7.1 zeigt die relevanten Ausschnitte des untersuchten Bereichs. Auftretende Fluoreszenz an den Stellen der atomaren Resonanzen steht im direkten Widerspruch zur Argumentation in Abschnitt 6.1. Demnach sollten die angeregten Zustände durch Autoionisation zerfallen. Das Auftreten der Resonanzen in der Fluoreszenz-Anregungs-Funktion lässt sich nur durch Sekundäreffekte wie Elektronenstoßanregung erklären. Die Ionisationsenergie für Neon-2p-Elektronen beträgt 21,56 eV. Es entstehen freie Photoelektronen der Energie $E_{\text{Photoelektron}} = E - 21,56 \text{ eV}$, die

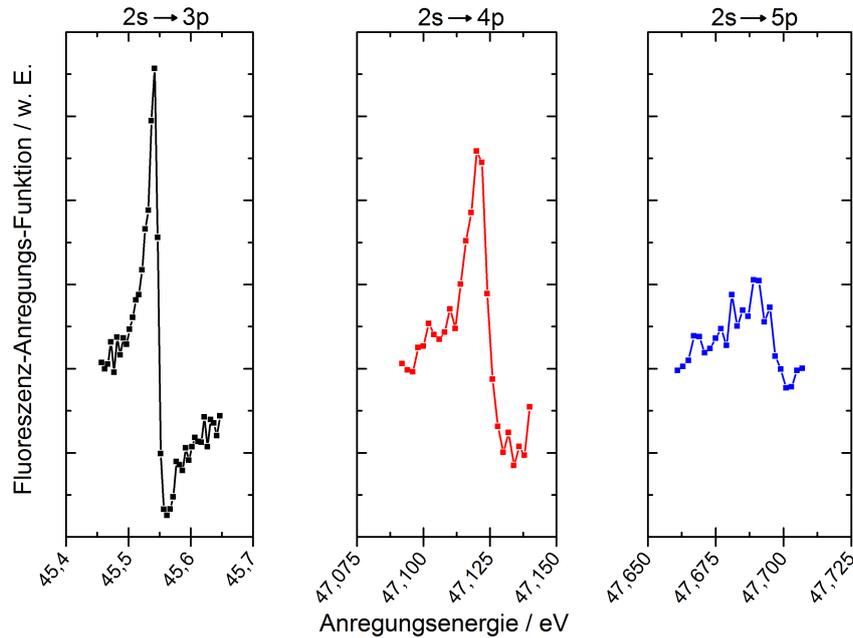


Abb. 7.1: Fluoreszenz-Anregungs-Funktionen der atomaren $2s \rightarrow np$ -Resonanzen im Neon. Einstellungen im Gasreservoir: 300 K, 4 bar.

durch Stöße neutrale Atome in fluoreszierende Zustände anregen können. Auch der neben den Resonanzen vorhandene erhebliche Signaluntergrund (siehe Abbildung 7.3) ist auf solche Prozesse zurückzuführen.

Die gemessenen Kurven zeigen ein charakteristisches asymmetrisches Profil, das Beutler-Fano-Profil genannt wird. Theoretische Betrachtungen lieferten Fano [Fan61] und Shore [Sho67]. Die Asymmetrie ist das Resultat der Interferenz zweier bei dieser Messung nicht unterscheidbarer Prozesse: einem Ionisationskontinuum (der direkten $2p$ -Ionisation) und einem diskreten Zustand (resonante Anregung mit folgender Autoionisation). Mathematisch lässt sich das Beutler-Fano-Profil durch

$$f(\varepsilon) = A \cdot \frac{(q + \varepsilon)^2}{1 + \varepsilon^2} + B \quad (7.1)$$

beschreiben. A und B sind die relativen Querschnitte des Kontinuums, die mit dem diskreten Zustand interferieren (A) bzw. nicht interferieren (B). Weit neben der Resonanz (für $\varepsilon \rightarrow \pm\infty$) gilt dann $f(\varepsilon \rightarrow \pm\infty) = A + B$. Die Variable ε ist mit der Anregungsenergie E durch die Position der Resonanz E_R und deren Breite Γ_R über den Zusammenhang $\varepsilon = \frac{2(E - E_R)}{\Gamma_R}$ gegeben. q heißt *Fano-Parameter* und ist ein Maß für die Stärke der Wechselwirkung zwischen diskretem Zustand und Kontinuum (für $q = 0$ ist der Verlauf wieder symmetrisch). Durch Anpassen der

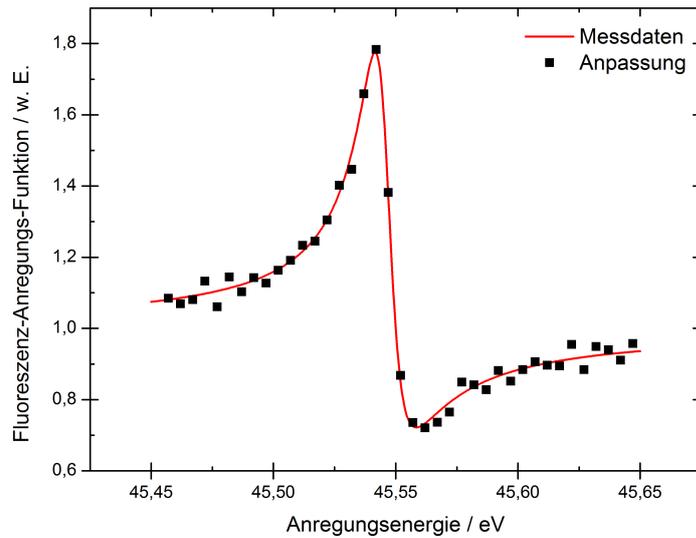


Abb. 7.2: Anpassung eines Beutler-Fano-Profiles (Gleichung 7.1) an die Fluoreszenz-Anregungs-Funktion bei Anregungsenergien um die $2s \rightarrow 3p$ -Resonanz (Abbildung 7.1 links). Die Daten wurden auf $f(\varepsilon \rightarrow \pm\infty) = A + B = 1$ normiert. Die Anpassungsparameter lauten: $A = 0,278$, $B = 0,722$, $q = -1,67$, $\Gamma_R = 0,015 \text{ eV}$ und $E_R = 45,546 \text{ eV}$.

gemessenen Kurven an eine Funktion der Form 7.1 wurden die Energieskalen mittels der Werte aus Tabelle 7.1 kalibriert. Beispielhaft ist die Anpassung für die $2s \rightarrow 3p$ -Resonanz in Abbildung 7.2 dargestellt. Die Messdaten wurden so normiert, dass $f(\varepsilon \rightarrow \pm\infty) = A + B = 1$. Die erhaltenen Parameter stimmen gut mit früheren experimentellen Ergebnissen überein [CME67].

Bei einigen Messungen können die Daten deutlich besser angepasst werden, wenn Randbereiche der Messungen nicht verwendet werden. Dies deutet darauf hin, dass der große Wirkungsquerschnitt der Resonanz zu einer Unterdrückung der untergrunderzeugenden Prozesse führt.

7.2 Fluoreszenz von Neon-Clustern

7.2.1 Undispersierte Fluoreszenzausbeute

Wegen der ungenau bekannten Clustergrößen und der Unklarheit über die Verschiebung der Resonanzen in Abhängigkeit von der Clustergröße (vergleiche Abschnitt 5.3.3) wurden für verschiedene Parameter (Temperatur und Druck des Gasreservoirs) die Bereiche um die atomaren Resonanzen gescannt. Es konnten neben den atomaren Resonanzen keine weiteren signifikanten Strukturen beobachtet werden. Eine beobachtete Erhöhung der Signalzählrate an den Stellen der atomaren Resonanzen ist nach Normierung bezüglich des Signaluntergrundes nicht signifikant und lässt sich als Resultat höherer Targetdichte im Wechselwirkungsvolumen

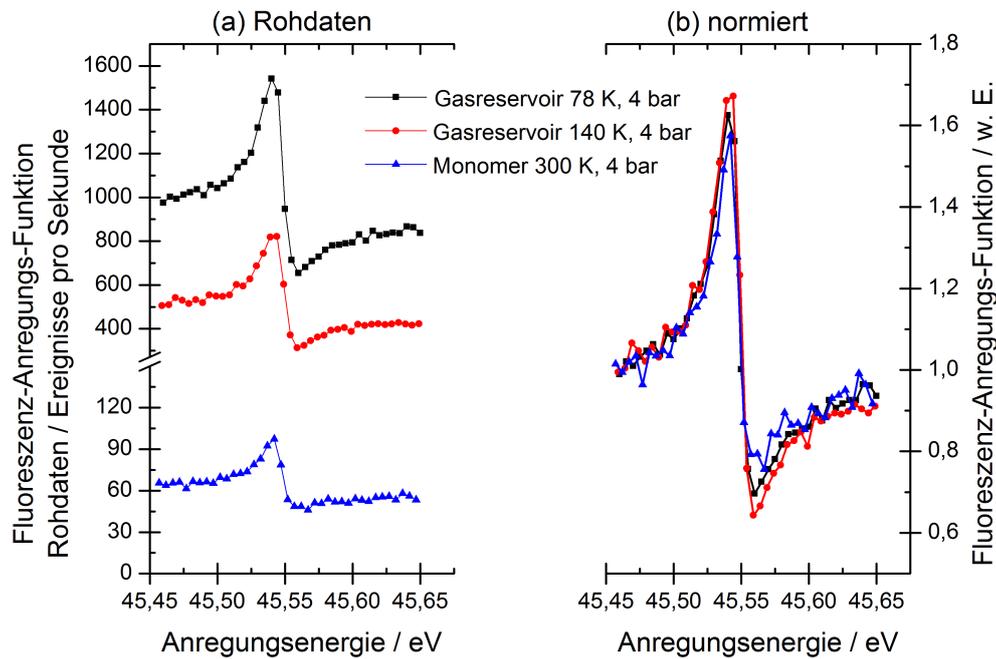


Abb. 7.3: Fluoreszenz-Anregungs-Funktionen der $2s \rightarrow 3p$ -Resonanz im Neon für einige Gasreservoir-Parameter. (a) Rohdaten und (b) auf den Signaluntergrund normiert.

erklären. In Abbildung 7.3 ist die Fluoreszenz-Anregungs-Funktion der $2s \rightarrow 3p$ -Resonanz für verschiedene Reservoir-Parameter zu sehen. Nach Normierung auf den Signalhintergrund sind nur geringfügige Intensitätsunterschiede feststellbar.

Eine genaue Analyse weiterer Messungen und der höheren Resonanzen zeigt aber keinen konsistenten und signifikanten Trend. Ohnehin werden die Resonanzen nicht an den Stellen der atomaren Resonanzen erwartet (Abschnitt 5.3.3). Für das Fehlen der Clusterresonanzen kommen verschiedene Gründe in Frage, die in den folgenden Abschnitten diskutiert werden.

7.2.2 Dispergierte Fluoreszenzausbeute

Zur differenzierteren Untersuchung wurde das auftretende Fluoreszenzlicht mit dem in Abschnitt 6.4 beschriebenen Aufbau dispergiert. In Tabelle 7.2 sind die Gitterstellungen nach den jeweiligen Anregungen und erwarteten Fluoreszenzzerfällen angegeben.

Anregung	Erwarteter Fluoreszenzübergang im Cluster	Gitterstellung / Å
2s→3p	3p→3s	6150
2s→4p	4p→3s	3495
2s→5p	5p→3s	3050

Tab. 7.2: Erwartete Fluoreszenzübergänge nach resonanter Anregung im Neoncluster und entsprechend gewählte Gitterstellungen.

Wiederum durch Scannen der Anregungsenergie bei einer festen Gitterstellung erhält man die Fluoreszenz-Anregungs-Funktion für den jeweiligen spektralen Ausschnitt. Die Auswertung bringt das gleiche Ergebnis wie bei den undispergierten Messungen. Auch hier führt die höhere Targetdichte bei niedrigerer Temperatur und höherem Druck im Gasreservoir zur Erhöhung der Zählrate. Nach Normierung bleibt allerdings keine Struktur, die sich für Cluster signifikant von atomarer Fluoreszenz unterscheidet. Wegen der niedrigen Auflösung (vergleiche Abschnitt 6.4) können keine einzelnen Übergänge, sondern nur spektrale Ausschnitte bei den jeweiligen Gitterstellungen ausgewertet werden. Vermutlich werden in jedem dieser Ausschnitte so viele Übergänge durch Sekundärprozesse angeregt, dass aus den dispergierten Messungen keine weiterführenden Informationen zu erhalten sind.

7.3 Ladungsausbeute

Wie in Abbildung 7.4 dargestellt, sind die atomaren Resonanzen auch in der auf den Spiegel auftreffenden Ladungsmenge eindeutig zu identifizieren. Da kein Potential an den Spiegel angelegt wurde, ist ein Versatz von Messung zu Messung möglich und der absolute Versatz der Kurven nicht aussagekräftig. Lediglich der relative Verlauf kann zur Auswertung herangezogen werden. Aus dem spiegelbildlichen Verlauf im Vergleich zur Fluoreszenz-Anregungs-Kurve lässt sich schließen, dass für atomares Gas überwiegend Elektronen auf den Spiegel treffen. Dies ist z. B. dann der Fall, wenn der größte Teil des Gasjets am Spiegel vorbei zielt, während entstehende Elektronen eine isotrope Richtungsverteilung haben. Im Maximum der Resonanz hat die Ladungsmenge dann ein Minimum, weil negative Ladungen gemessen werden. Die Kalibrierung der Anregungsenergie wurde wiederum durch Anpassen der Kurven an die Funktion 7.1 vorgenommen.

Werden die Bedingungen im Gasreservoir so verändert, dass sich auch Cluster im Gasjet befinden, erscheint eine zweite Resonanz. Sie ist im Vergleich zur atomaren Resonanz zu niedrigeren Anregungsenergien verschoben und überwiegt für immer größere Cluster. In Abbildung 7.5 ist die Ladungsausbeute der 2s→3p-Resonanz für einige Gasreservoir-Parameter aufgetragen. Diese

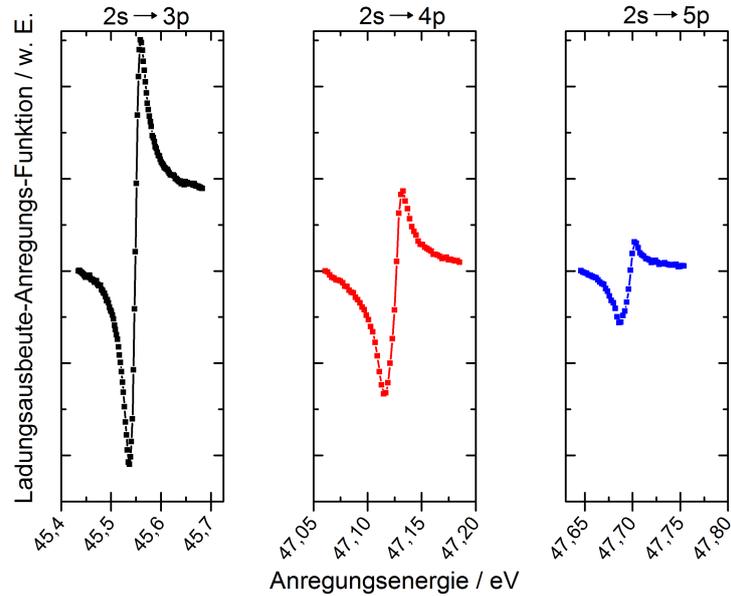


Abb. 7.4: Ladungsausbeute-Anregungs-Funktionen der ersten drei $2s \rightarrow np$ -Resonanzen im Neon. Gasreservoir-Parameter: 300 K, 7,7 bar.

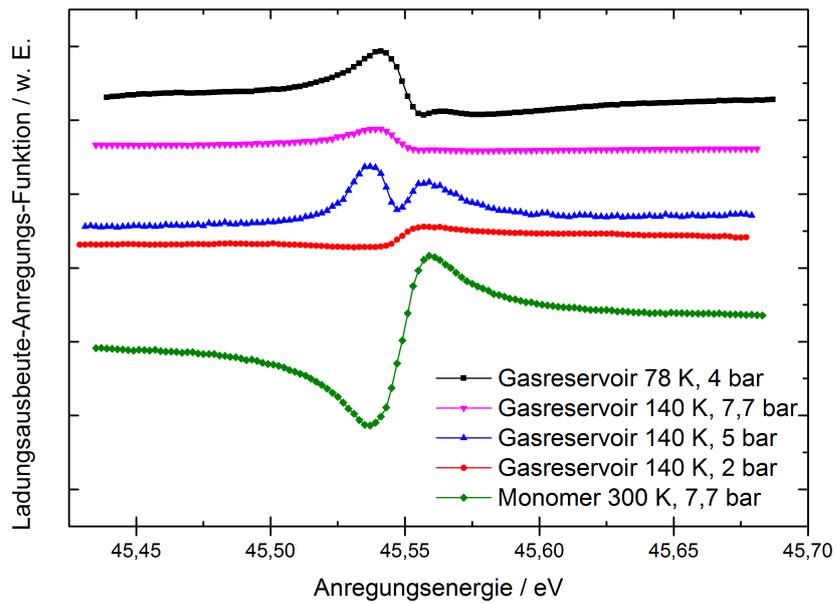


Abb. 7.5: Ladungsausbeute-Anregungs-Funktion der $2s \rightarrow 3p$ -Resonanz für einige Gasreservoir-Parameter. Zur besseren Übersichtlichkeit wurden die Kurven mit willkürlichem Versatz dargestellt.

Kurven können durch Addition zweier Beutler-Fano-Profile angepasst werden:

$$f(E) = f_1(E) + f_2(E) + B = A_1 \cdot \frac{\left(q + \frac{2(E-E_R)}{\Gamma_1}\right)^2}{1 + \left(\frac{2(E-E_R)}{\Gamma_1}\right)^2} + A_2 \cdot \frac{\left(p + \frac{2(E-E_R+w)}{\Gamma_2}\right)^2}{1 + \left(\frac{2(E-E_R+w)}{\Gamma_2}\right)^2} + B \quad (7.2)$$

p ist der Fano-Parameter der zweiten Resonanz und w die Verschiebung der beiden Resonanzen gegeneinander. Am Beispiel der Messung der $2s \rightarrow 3p$ -Resonanz bei 140 K und 5 bar im

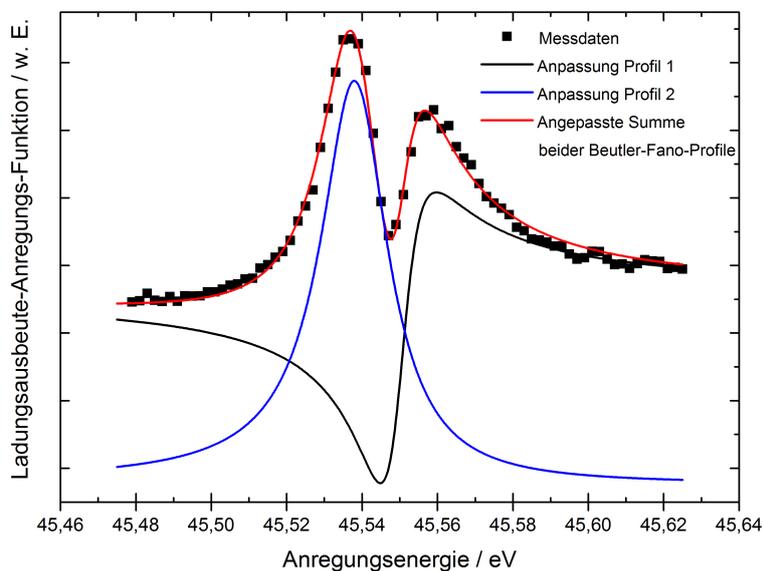


Abb. 7.6: Ladungsausbeute-Anregungs-Funktion der $2s \rightarrow 3p$ -Resonanz für die Gasreservoir-Parameter 140 K und 5 bar. Dargestellt sind $f_1(E) + B$ (schwarz), $f_2(E) + B$ (blau) und $f(E) = f_1(E) + f_2(E) + B$. Die Anpassung wurde mit der Summenfunktion 7.2 durchgeführt. Die Anpassungsparameter sind $A_1 = 11,3$, $q = 0,73$, $E_R = 45,55 \text{ eV}$, $\Gamma_1 = 0,0071 \text{ eV}$, $A_2 = 0,026$, $p = -30,1$, $\Gamma_2 = 0,0108 \text{ eV}$ und $w = 0,0117 \text{ eV}$.

Gasreservoir ist die Anpassung in Abbildung 7.6 durchgeführt. Dargestellt sind sowohl die Anpassungsfunktion 7.2 als auch die beiden beitragenden Funktionen einzeln. Betrachtet man die Entwicklung der zweiten Resonanz in Abbildung 7.5, ist bemerkenswert, dass diese mit umgekehrtem Vorzeichen zur atomaren Resonanz auftritt. Eine mögliche Ursache liegt in den stattfindenden physikalischen Prozessen, wenn diese in Clustern zur Entstehung energetischer Ionen führen. „Energetisch“ bedeutet in diesem Zusammenhang, dass die Ionen zusätzlich zu ihrer statistischen thermischen Energie durch physikalische Ursachen wie Coulombabstoßung weitere Energie gewinnen. Für Zerfälle durch ICD ist dies tatsächlich der Fall, allerdings ist der erwartete Effekt deutlich geringer als hier beobachtet. Außerdem unterscheidet sich die Geometrie des Jets für Cluster und Atome und auch für Atome bei unterschiedlichen Temperaturen, da die Clusterquelle ohne Skimmer aufgebaut wurde [Hag81]. Dadurch ist nicht gewährleistet, dass das Verhältnis aus entstehenden und tatsächlich detektierten Ionen immer gleich ist. Dies gilt sowohl für eine bestimmte Clustergröße (inklusive Monomere) als auch für das Verhältnis von Ionen verschiedener Clustergrößen. Wird die Düse bei der Clustererzeugung enormen Temperaturunterschieden ausgesetzt, kann sich der Anteil atomarer Ionen ändern, der auf den Spiegel trifft. Es besteht zusätzlich die Möglichkeit, dass sich nicht

das Vorzeichen der auftreffenden Ladung ändert, sondern die Form der Resonanz selbst. Dies wird in Abbildung 7.6 deutlich. Beide Beutler-Fano-Profile haben das gleiche Vorzeichen. Die Fano-Parameter unterscheiden sich jedoch erheblich im Betrag und haben entgegengesetztes Vorzeichen. Der resultierende Verlauf beider Resonanzen unterscheidet sich deutlich in Form und Stärke der Asymmetrie. Hier zeigt sich aber kein konsistenter Trend für verschiedene Gasreservoir-Parameter und die verschiedenen Resonanzen. Einige Messkurven können sogar bei Wahl unterschiedlicher Startwerte durch mehrere Parameterkombinationen konvergierend angepasst werden. Weiterhin sollten die Parameter der reinen atomaren Kurve (bis auf die Amplitude) mit denen des atomaren Anteils im gemischten Jet übereinstimmen. Dies ist nicht der Fall. Eine feste Wahl der Parameter führt zu erheblich schlechteren Anpassungen.

Die Anpassung der Kurven ergibt für die $2s \rightarrow 3p$ -Resonanz eine mittlere Verschiebung von 12 ± 2 meV. Für beide höheren Resonanzen konvergiert die Anpassung nicht für alle Messkurven und schwankt zwischen 7 und 15 meV mit Ungenauigkeiten von 10 bis 50 %. Die Schwankungen folgen keinem Trend und sind vermutlich Resultat der schlechteren Statistik. Verglichen mit den Ergebnissen anderer Arbeiten (Abschnitt 5.3.3) können qualitativ eher die Resultate von Aoto et al. bestätigt werden [AIH06], wenngleich wesentliche Unterschiede auftauchen. Eine verschobene $2s \rightarrow 3p$ -Resonanz konnte dort in energetischen Ionen nicht beobachtet werden, was diese als Grund für den Vorzeichenwechsel unwahrscheinlich macht. Unklar ist, warum die gemessene Verschiebung etwa um einen Faktor 2 abweicht. Außerdem ist bemerkenswert, dass keine unterschiedlichen Verschiebungen in Abhängigkeit der Gasreservoir-Parameter festgestellt werden können. Nur für ein Gemisch aus Atomen und sehr kleinen Clustern (überwiegend Dimere) wäre dies der Fall. Allerdings liegt der Clusteranteil insgesamt in solch einem Gemisch maximal im Bereich weniger Prozent. Das wachsende Verhältnis von Cluster- zu atomarer Resonanz in Abbildung 7.5 spricht eher für einen höheren Kondensationsgrad.

7.4 Vergleich von Fluoreszenz und Ladungsausbeute

Bei einer Gegenüberstellung von Fluoreszenz- und Ladungsausbeute-Anregungs-Funktionen ist ein wesentlicher Unterschied festzustellen. Während in der Fluoreszenz stets nur eine Resonanz erkennbar ist, tritt in allen Ladungsausbeute-Anregungs-Funktionen eine je nach Clusterbedingungen mehr oder weniger stark ausgeprägte zweite Resonanz auf. Da die auftretende Fluoreszenz durch Sekundärprozesse erklärt wird, gibt es für eine Abwesenheit von Fluoreszenzzerfällen in der Clusterresonanz keine physikalische Grundlage. Eine genaue mathematische Analyse der angepassten Funktionen zeigt jedoch folgendes: Addiert man zwei Beutler-Fano-Profile, leicht gegeneinander verschoben, mit *gleichem* Vorzeichen, ist die Summe optisch kaum von einem einzelnen Beutler-Fano-Profil unterscheidbar. Dies ist in Abbildung 7.7 dargestellt. Im linken

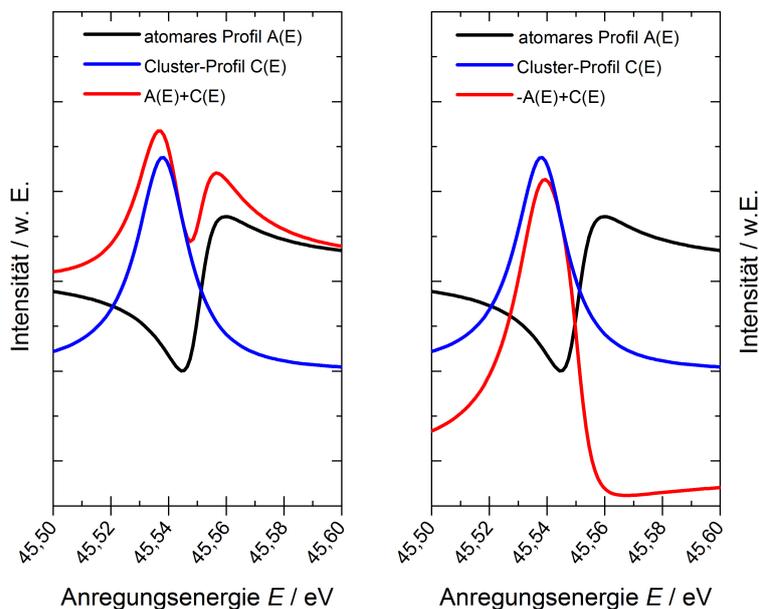


Abb. 7.7: Addition der beiden durch Anpassen der Messkurve der $2s \rightarrow 3p$ -Resonanz erhaltenen Beutler-Fano-Profile für die Gasreservoir-Parameter 140 K und 5 bar. Links: Addition wie durch die Anpassung gegeben. Rechts: Addition mit umgekehrtem Vorzeichen des atomaren Anteils; in diesem Fall ist die resultierende Funktion kaum von einem einzelnen Beutler-Fano-Profil zu unterscheiden.

Teil der Abbildung wurden beide Anteile wie durch die Anpassung gegeben addiert und es resultiert die gemessene Kurve. Im rechten Teil wurde dagegen der atomare Anteil mit umgekehrtem Vorzeichen zum Clusteranteil addiert. In diesem Fall sind der Summe beide Bestandteile nicht anzusehen. Da die atomare Fluoreszenz-Anregungs-Funktion mit umgekehrtem Vorzeichen zur Ladungsausbeute verläuft, könnten in den Messkurven der Fluoreszenz für Monomer-Cluster-Gemische durchaus beide Resonanzen enthalten sein. Theoretisch äußert sich dies in den Anpassungsparametern der Fluoreszenz-Anregungs-Funktion, beispielsweise durch Verschiebungen oder Verbreiterungen. Die detaillierte Auswertung zeigt jedoch, dass die Statistik der Messwerte nicht ausreicht um etwaige Tendenzen signifikant und konsistent festzustellen. Denkbar ist auch, dass sich das Verhältnis der interferierenden bzw. nicht interferierenden Querschnitte A und B für Fluoreszenz und Ladung unterscheidet. Auch in diesem Fall könnte ein unterschiedlicher Verlauf in den Messungen der beiden Größen erklärt werden.

7.5 Argon

In Argon reicht die Energie einer $3s \rightarrow np$ -Anregung nicht für interatomare Prozesse aus [LAH07]. Jedoch können für Anregungen der $2p$ -Schale Effekte erwartet werden. Hierfür

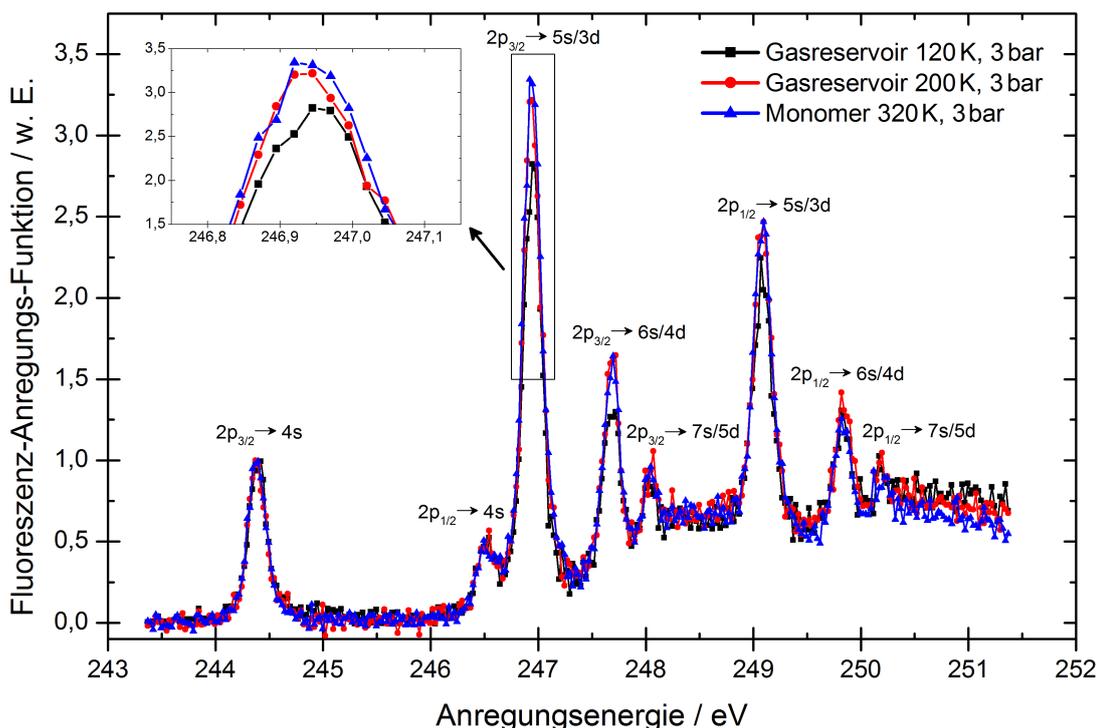


Abb. 7.8: Fluoreszenz-Anregungs-Funktionen der $2p \rightarrow nl$ -Resonanzen im Argon für einige Gasreservoir-Parameter. Die Messkurven sind auf die $2p_{3/2} \rightarrow 4s$ -Resonanz normiert.

wurde der Bereich 243-251 eV gescannt, in dem die atomaren $2p \rightarrow nl$ -Rydbergserien liegen [KTR77, SKN96]. Abbildung 7.8 zeigt die Fluoreszenz-Anregungs-Funktion für einige Gasreservoir-Parameter. Die Energieskala wurde anhand der atomaren $2p_{3/2} \rightarrow 4s$ -Resonanz bei 244,39 eV gemäß [KTR77] kalibriert. Dass überhaupt atomare Fluoreszenz gemessen werden kann, ist auf sogenannte „Shake-up“-Prozesse zurückzuführen [AAP88]. Bei diesen finden während eines ionisierenden Auger-Zerfalls simultan Anregungen in höhere Zustände statt, die dann fluoreszierend zerfallen. Die Fluoreszenz von Argon-Clustern im entsprechenden Anregungsbereich wurde von Rühl et al. [RHJ93] und Bradeanu et al. [BFM05] untersucht. Oberhalb der Cluster-Ionisationsschwelle wurden breite fluoreszierende Strukturen beobachtet. Von den $2p_{3/2} \rightarrow 4s/3d$ -Clusterresonanzen wurde kein Beitrag zur Fluoreszenz gemessen, was auf exzitatorische Endzustände zurückgeführt wurde. Kimura et al. [KFT13] und O’Keeffe et al. [ORB13] zeigten dagegen kürzlich, dass Auger-Endzustände in Clustern nach resonanter $2p_{3/2} \rightarrow 4s/3d$ -Anregung durch ICD und somit strahlungslos zerfallen. Das Nichtauftreten dieser Resonanzen in der Fluoreszenz-Anregungs-Funktion kann also als Indiz für ICD-Zerfälle gewertet werden. Das Auftreten von Fluoreszenz oberhalb von Cluster-Ionisationsschwellen kann bei diesen Messungen ab ≈ 250 eV nur erahnt werden. Ein Grund hierfür könnte die auch in [BFM05] beschriebene

Schwäche gegenüber der atomaren Fluoreszenz sein. Weiterhin liegt der überwiegende Teil der Strahlung außerhalb des an Luft detektierbaren Bereichs (vergleiche die spektrale Messung in [RHH93]). Hierauf deutet auch die Tatsache hin, dass die Resonanzen oberhalb der $2p_{3/2} \rightarrow 4s$ -Resonanz im Vergleich bei Messungen mit reinem Monomer-Jet stärker ausgeprägt sind (siehe vergrößerter Ausschnitt in Abbildung 7.8; die Kurven sind auf die $2p_{3/2} \rightarrow 4s$ -Resonanz normiert). Unter diesen Resonanzen können im Gegensatz zur $2p_{3/2} \rightarrow 4s$ -Resonanz breite, nicht im beobachteten Spektralbereich zerfallende Strukturen liegen. In jedem Falle kann festgestellt werden, dass die in Atomen auftretende Fluoreszenz in Clustern unterdrückt wird, sei es durch strahlungslose Zerfälle oder Fluoreszenz in anderen Spektralbereichen.

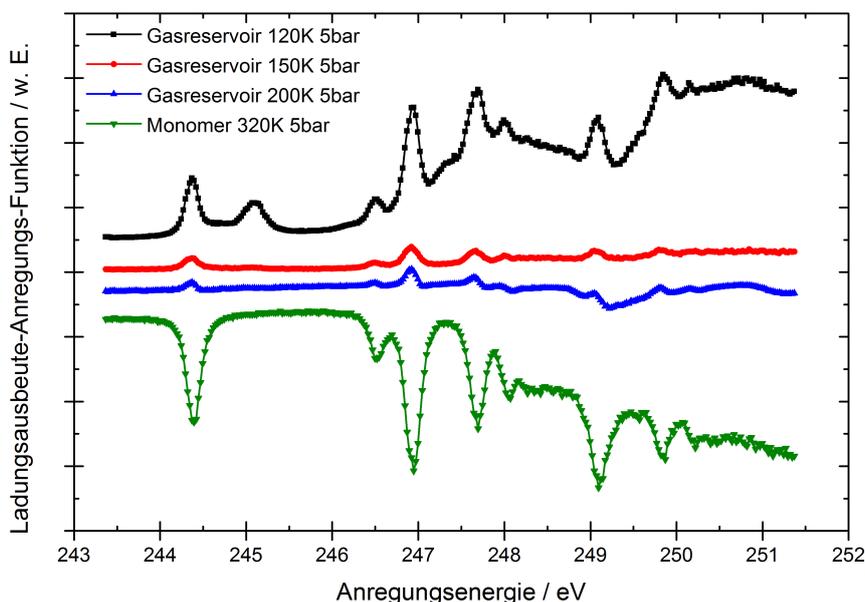


Abb. 7.9: Ladungsausbeute-Anregungs-Funktionen der $2p \rightarrow nl$ -Resonanzen im Argon für einige Gasreservoir-Parameter. Zur übersichtlicheren Darstellung sind die Kurven mit willkürlichem Versatz abgebildet.

In den Ladungsausbeute-Anregungs-Funktionen ist die Bildung von Clustern bei den Messungen mit niedrigen Gasreservoir-Temperaturen erkennbar (Abbildung 7.9). Deutlich zeigt sich die charakteristische zu höheren Energien verschobene $2p_{3/2} \rightarrow 4s$ -Resonanz [RHH93, BFF95].

Wie bei Neon ist auch hier ein Vorzeichenwechsel zu beobachten. Dies deutet eindeutig auf eine systematische, temperaturabhängige Ursache hin. Durch Differenzbildung der (auf die atomare $2p_{3/2} \rightarrow 4s$ -Resonanz normierten) Messungen bei 120 K und 320 K lassen sich die von Bradeanu et al. [BFM05] beobachteten verbreiterten und verschobenen Resonanzstrukturen der Cluster um 248 bzw. 250 eV qualitativ rekonstruieren, wie Abbildung 7.10 zeigt. Auch die Unterscheidung der Oberflächen- und Volumenanteile in der $2p_{3/2} \rightarrow 4s$ -Clusterresonanz ist möglich. Durch

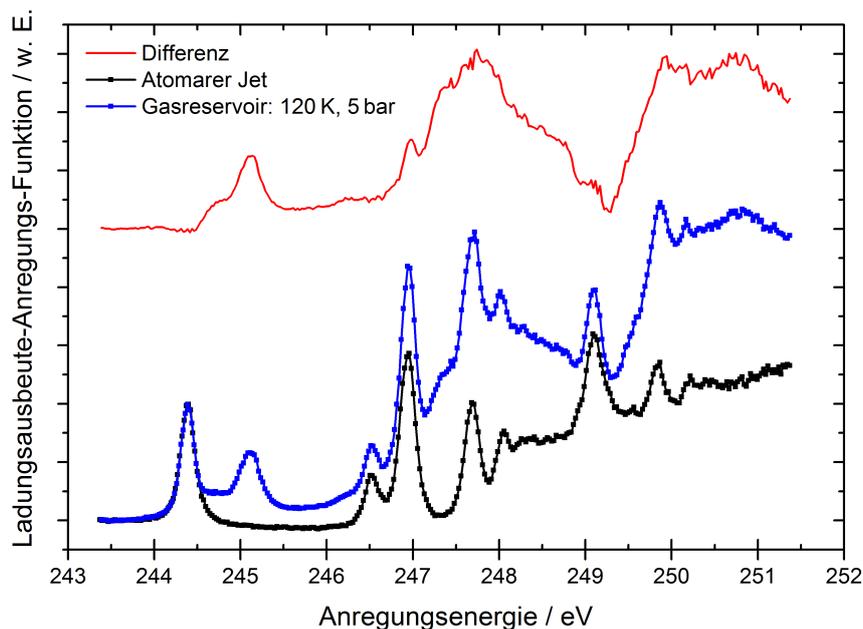


Abb. 7.10: Ladungsausbeute-Anregungs-Funktionen der $2p \rightarrow nl$ -Resonanzen im Argon für Monomere (320 K, 5 bar) und ein Monomer-Cluster-Gemisch (120 K, 5 bar) und deren Differenz. Die gemessenen Kurven wurden auf die atomare $2p_{3/2} \rightarrow 4s$ -Resonanz normiert. Zur übersichtlicheren Darstellung ist die Differenz mit willkürlichem Versatz abgebildet.

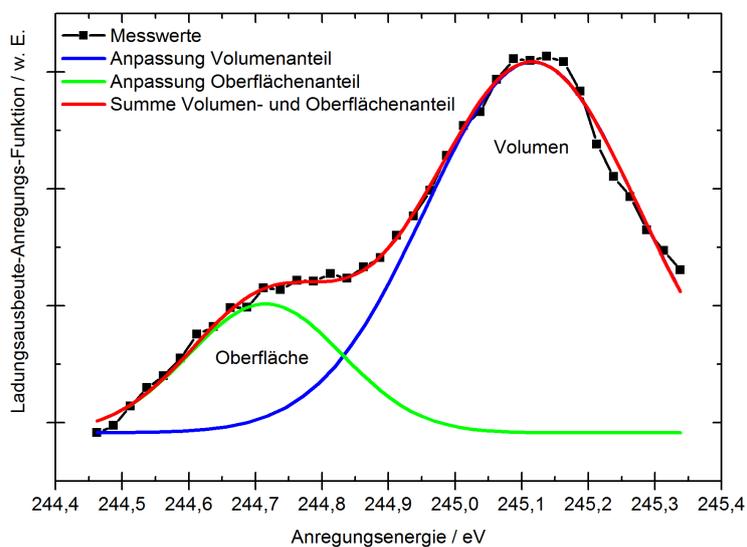


Abb. 7.11: Anpassung von zwei Gauß-Funktionen an die $2p_{3/2} \rightarrow 4s$ -Clusterresonanz. Die Anteile von Atomen an der Oberfläche (grün) und im Clustervolumen (blau) liegen 33 bzw. 73 meV von der atomaren Position entfernt. Die Summe beider Anteile (rot) ergibt die gemessene Kurve.

Anpassen von Gaußkurven wurden die Positionen zu 244,72 eV (Oberfläche) und 245,12 eV (Volumen) bestimmt (Abbildung 7.11), was eine Verschiebung von 33 bzw. 73 meV zur ato-

maren Position bedeutet. Gemäß [BK96] kann die mittlere Clustergröße bei dieser Messung auf $\langle N \rangle \approx 1250$ abgeschätzt werden. Form und Verschiebung der Clusterresonanz stimmen gut mit Ergebnissen in [RHH93] und [BFF95] überein. Für die gemessenen Temperaturen über 120 K ist die Clusterresonanz nicht oder nur sehr schwach ausgeprägt, wie alle Strukturen im Bereich des Vorzeichenwechsels. Dies lässt den Schluss zu, dass sich für eine bestimmte Wahl der Bedingungen im Gasreservoir die auf den Spiegel auftreffenden positiven und negativen Ladungen gerade ausgleichen. Bemerkenswert ist, dass bei Argon auch die atomaren Maxima ihr Vorzeichen wechseln. Dies spricht für eine deutlich unterschiedliche Geometrie des Jets für Neon und Argon. Die Ursache der Vorzeichenwechsel ist aus den vorhandenen Daten letztlich nicht eindeutig festzustellen. Zwar sind für einzelne Messungen die erläuterten Gründe denkbar. Eine konsistente Erklärung für alle Ergebnisse lässt sich jedoch ohne weitere Untersuchungen nicht finden.

7.6 Lebensdauern

Zur Bestimmung von Lebensdauern wurde während der Messungen an Neon von allen Ereignissen der zeitliche Abstand t zum Bunchmarker gemessen. Nach Aufstellen eines Histogramms der Ereignisse in Abhängigkeit von t kann durch Anpassen eines exponentiellen Zerfalls wie in Abschnitt 2.2.3 beschrieben die Lebensdauer τ berechnet werden. Zum Erhalt ausreichender Statistik wurden zehnmündige Messungen an fünf charakteristischen Punkten der Resonanzen bei den in Tabelle 7.2 angegebenen Gitterstellungen durchgeführt: im Hintergrund links, im Anstieg, im Maximum, im Minimum und im Hintergrund rechts. In den Lebensdauern können keine signifikanten Unterschiede an den einzelnen Positionen festgestellt werden. Zur weiteren Auswertung wurden daher die Histogramme der einzelnen Punkte addiert und die Lebensdauern bestimmt.

Primäre Anregung	Einstellungen Gasreservoir	τ / ns
2s→3p	atomar (300 K, 2,1 bar)	24,3 ± 0,9
	Atom-Cluster-Gemisch (78 K, 2,1 bar)	26,6 ± 0,8
2s→4p	atomar (300 K, 2,1 bar)	34 ± 5
	Atom-Cluster-Gemisch (78 K, 2,1 bar)	52 ± 10
2s→5p	atomar (300 K, 2,1 bar)	19 ± 9
	Atom-Cluster-Gemisch (78 K, 2,1 bar)	27 ± 3

Tab. 7.3: Lebensdauern τ der durch die beobachtete Fluoreszenz zerfallenden Zustände nach den jeweiligen primären Anregungen (die entsprechenden Gitterstellungen sind in Tabelle 7.2 angegeben).

Tabelle 7.3 zeigt die ermittelten Werte für die drei primären Anregungen für rein atomaren und gemischten Monomer-Cluster-Jet. Die Ortsauflösung des verwendeten Spektrometer-Detektor-

Aufbaus ermöglicht es nicht Spektrallinien einzelner Übergänge zu trennen. Die Lebensdauern sind daher nicht eindeutig Übergängen zuzuordnen und zu vergleichen. In Tabelle 7.3 besteht eine Tendenz zu längeren Relaxationszeiten in Clustern. Diese liegen jedoch nahe bei oder gar innerhalb der durch die Anpassung gegebenen Ungenauigkeiten. Für quantitative und signifikante Aussagen sind Untersuchungen mit noch größerer Statistik und höherer spektraler Auflösung nötig.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Experimente zur Fluoreszenz von Edelgasclustern nach Anregung mit Synchrotronstrahlung durchgeführt. Hintergrund ist dabei der zukünftig angestrebte Einsatz von Fluoreszenzspektroskopie als Nachweismethode für den Interatomaren Coulomb-Zerfall (ICD). Durch diesen interatomaren Energietransfer wird die Öffnung von fluoreszierenden Zerfallskanälen in Neonclustern nach resonanter $2s \rightarrow np$ -Anregung erwartet. Die Detektion der Fluoreszenz des gemischten Monomer-Cluster-Gasjet erfolgte erfolgreich außerhalb der Experimentierkammer an Atmosphäre. In den durchgeführten Fluoreszenzmessungen treten starke Sekundäreffekte auf, die gegenüber dem erwarteten Signal überwiegen und bisher keinen eindeutigen Schluss auf ICD ermöglichen. In Ladungsausbeute-Anregungs-Funktionen können dagegen clusterspezifische Strukturen beobachtet werden, die teilweise bekannte Ergebnisse reproduzieren. Einige Ergebnisse unterscheiden sich von denen früherer Beobachtungen und müssen weiter untersucht werden. Für eine detaillierte Analyse der Auswirkungen unterschiedlicher Gasjet-Eigenschaften auf die Parameter des charakteristischen Beutler-Fano-Profiles der Resonanzen sind weitere Messungen mit besserer Statistik erforderlich.

Für folgende Experimente, die einen ICD-Nachweis durch Fluoreszenzmessungen erbringen sollen, muss vor allem der starke Signalhintergrund durch Sekundärprozesse eliminiert werden. Eine niedrigere Targetdichte im Wechselwirkungsvolumen (z. B. durch den Einsatz eines Skimmers) kann stoßangeregte Sekundärprozesse vermindern. Durch Verbesserung des Spektrometer-Detektor-Aufbaus können einzelne Übergänge spektral aufgelöst und so in Primär- und Sekundärprozesse unterschieden werden. Im hier durchgeführten Experiment wurden die spektralen Bereiche der erwarteten $np \rightarrow 3s$ -Übergänge betrachtet. Durch Einsatz eines Detektors für den vakuum-ultravioletten Spektralbereich könnte der darauf folgende $3s \rightarrow 2p$ -Übergang untersucht werden. In diesem Spektralbereich ist das Auftreten von Sekundärprozessen und natürlichem Hintergrund (Streulicht) in der Regel geringer.

Der aufgebaute Detektor kann für diese und andere Folgeexperimente verwendet werden. Zur Messung elektronenstoßangeregter Fluoreszenz wurde er getestet und eingesetzt. Die Charakterisierung ergab, dass vor allem die lateralen Eigenschaften des Detektors zu berücksichtigen sind und einer Korrektur bei der Zusammensetzung und Auswertung von Teilspektren bedürfen. Mit den hier beschriebenen Korrekturen konnten durch lineare Kalibrierung der Wellenlängenskala alle beobachteten Übergänge des Heliums und Neons (intensiver als 2 %) sowie des Argons und Kryptons (intensiver als 10 %) bereits bekannten Übergängen zugeordnet werden. Die erreichte Auflösung bei Messungen in erster Ordnung des Monochromatorgitters betrug etwa 0,5 nm. Der messbare Spektralbereich wurde empirisch auf 40 bis ungefähr 120 nm bestimmt, der energieärmste beobachtete Übergang liegt bei 123,58 nm. Die Spektren der gemessenen Edelgase sind im untersuchten spektralen Ausschnitt reich an intensiven, charakteristischen Linien (teilweise unterschiedlich geladener Ionen). Sie sind daher gut geeignet, um Spektrometer-Detektor-Kombinationen zu charakterisieren und kalibrieren. Kataloge der intensivsten Übergänge wurden erstellt und können zu Kalibrierungszwecken herangezogen werden.

Der Aufbau der Fernfokuselektronenquelle konnte durch einige Maßnahmen so verbessert werden, dass kontinuierlicher Betrieb bei ausreichenden Elektronenströmen möglich ist. Bei der Durchführung der Messungen wurde beobachtet, dass die relativen Intensitäten von beobachteten Fluoreszenzübergängen empfindlich von den Parametern Messdruck sowie Energie und Intensität des Elektronenstrahls abhängen. Ein Verstehen dieser Abhängigkeiten erfordert weitere systematische Untersuchungen. Für bessere Reproduzierbarkeit der Ergebnisse ist außerdem der Aufbau eines Regelkreises für die Strahlintensität erstrebenswert.

LITERATURVERZEICHNIS

- [AAH84] Agentoft, M., T. Andersen, J. E. Hansen, W. Persson und S.-G. Pettersson. *A Study of the $ns^0np^6\ ^1S$ States in the Rare Gas Ions*. Phys. Scr., 29, 57 (1984).
- [AAP88] Aksela, H., S. Aksela, H. Pulkkinen, G. M. Bancroft und K. H. Tan. *Anomalous-ly strong shake-up processes in Auger decay of the resonantly excited $2p^53s^23p^6nl$ states of Ar*. Phys. Rev. A (1988).
- [ADK11] Averbukh, V., P. V. Demekhin, P. Kolorenč, S. Scheit, S. D. Stoychev, A. I. Kuleff, Y.-C. Chiang, K. Gokhberg, S. Kopelke, N. Sisourat und L. S. Cederbaum. *Interatomic electronic decay processes in singly and multiply ionized clusters*. J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom., 183, 36 (2011).
- [AIH06] Aoto, T., K. Ito, Y. Hikosaka, E. Shigemasa, F. Penet und P. Lablanquie. *Properties of Resonant Interatomic Coulombic Decay in Ne Dimers*. Phys. Rev. Lett., 97, 243401 (2006).
- [AMF11] Arion, T., M. Mucke, M. Förstel, A. M. Bradshaw und U. Hergenhahn. *Interatomic Coulombic decay in mixed NeKr clusters*. J. Chem. Phys., 134, 074306 (2011).
- [AOF08] Aziz, E. F., N. Ottosson, M. Faubel, I. V. Hertel und B. Winter. *Interaction between liquid water and hydroxide revealed by core-hole de-excitation*. Nature, 455, 89 (2008).
- [Aza74] Azaroff, L. V. *X-Ray Spectroscopy*. McGraw-Hill (1974).
- [BBC05] Borges, F. O., F. Bredice, G. H. Cavalcanti, M. Gallardo, M. Raineri, J. G. Reyna Almandos und A. G. Trigueiros. *Extended Analysis of the Ar VII Spectrum in the Vacuum Ultraviolet Region*. Eur. Phys. J. D, 36, 23 (2005).

- [BBH56] Becker, E. W., K. Bier und W. Henkes. *Strahlen aus kondensierten Atomen und Molekeln im Hochvakuum*. Z. Phys., 146, 333 (1956).
- [BC84] Baig, M. A. und J. P. Connerade. *Centrifugal Barrier Effects in the High Rydberg States and Autoionising Resonances of Neon*. J. Phys. B, 17, 1785 (1984).
- [BCH00] Boudaiffa, B., P. Cloutier, D. Hunting, M. A. Huels und L. Sanche. *Resonant formation of DNA strand breaks by low-energy (3-20 eV) electrons*. Science, 287, 1658 (2000).
- [BFF95] Björneholm, O., F. Federmann, F. Fössing und T. Möller. *Core Level Photoelectron and X-Ray Absorption of Free Argon Clusters: Size-Dependent Energy Shifts and Determination of Surface Atom Coordination*. Phys. Rev. Lett., 74 (1995).
- [BFM05] Bradeanu, I. L., R. Flesch, M. Meyer und H.-W. J. amd E.Rühl. *Radiative relaxation in 2p-excited argon clusters*. Eur. Phys. J. D, 36, 173 (2005).
- [BGR95] Bredice, F., M. Gallardo, J. G. Reyna Almandos, A. G. Trigueiros und C. J. B. Pagan. *Revised Analysis of Triply Ionized Argon (Ar IV)*. Phys. Scr., 51, 446 (1995).
- [BJM05] Barth, S., S. Joshi, S. Marburger, V. Ulrich, A. Lindblad, G. Öhrwall, O. Björneholm und U. Hergenhahn. *Observation of resonant Interatomic Coulombic Decay in Ne clusters*. J. Chem. Phys., 122, 241102 (2005).
- [BK96] Buck, U. und R. Krohne. *Cluster size detemination from diffractive He atom scattering*. J. Chem. Phys., 105, 5408 (1996).
- [BMP88] Benedek, G., T. Martin und G. Paccioni. *Elemental and Molecular Clusters*. Springer Series in Material Science. Springer (1988).
- [Boy35] Boyce, J. C. *The Spectra of Krypton in the Extreme Ultraviolet*. Phys. Rev., 47, 718 (1935).
- [BR33] Badami, J. S. und K. R. Rao. *Investigations on the Spectrum of Selenium. - Part II, Se III*. Proc. R. Soc. London, Ser. A, 140, 387 (1933).
- [BRR88] Bredice, F., M. Raineri, J. Reyna Almandos und M. Gallardo. *Classified Lines in the Spectrum of Kr II*. Spectrosc. Lett., 21, 11 (1988).
- [BRR00] Bredice, F., M. Raineri, J. Reyna Almandos, M. Gallardo und A. G. Trigueiros. *Weighted Oscillator Strengths for Kr IV Spectrum*. J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 65, 805 (2000).

- [Bur11] Burbank, N. *Elektronenstoßinduzierte Fluoreszenzspektroskopie*. Diplomarbeit, Universität Kassel (2011).
- [BW3] BW3. *User manual*. DESY.
- [Chu02] Churilov, S. S. *Analysis of the Spectrum of the Zn-like Kr VII Ion: Highly Excited 4p4d and 4p5s Configurations*. *Opt. Spectrosc.*, 93, 826 (2002).
- [CM72] Codling, K. und R. P. Madden. *The Absorption Spectra of Krypton and Xenon in the Wavelength Range 330-600 Å*. *J. Res. Nat. Bur. Stand., Sect. A*, 76, 1 (1972).
- [CME67] Codling, K., R. P. Madden und D. L. Ederer. *Resonances in the Photo-Ionization Continuum of Ne I (20-150 eV)*. *Phys. Rev.*, 155 (1967).
- [CZT97] Cederbaum, L. S., J. Zobeley und F. Tarantelli. *Giant Intermolecular Decay and Fragmentation of Clusters*. *Phys. Rev. Lett.*, 79, 4778 (1997).
- [Dem03] Demtröder, W. *Molekülphysik*. Oldenbourg Verlag (2003).
- [Dem05a] Demtröder, W. *Experimentalphysik 1*. Springer, 3. Auflage (2005).
- [Dem05b] Demtröder, W. *Experimentalphysik 3*. Springer, 3. Auflage (2005).
- [Dem10] Demtröder, W. *Atoms, Molecules and Photons*. Springer, 2. Auflage (2010).
- [DIN84] *Strahlungsphysik im optischen Bereich und Lichttechnik; Benennung der Wellenlängenbereiche*. Deutsches Institut für Normung. DIN 5031, Teil 7 (1984).
- [DK12] Demekhin, P. und A. Kuleff. Private Mitteilung (2012).
- [Ein17] Einstein, A. *Zur Quantentheorie der Strahlung*. *Physik. Z.*, 18, 121 (1917).
- [Fan61] Fano, U. *Effects of Configuration Interaction on Intensities and Phase Shifts* (1961).
- [FB80] Fawcett, B. C. und G. E. Bromage. *Classification of Krypton IV, V and Xenon VI Spectral Lines*. *J. Phys. B*, 13, 2711 (1980).
- [Fri94] Friedrich, H. *Theoretische Atomphysik*. Springer, 2. Auflage (1994).
- [Hag81] Hagen, O. F. *Nucleation and growth of clusters in expanding nozzle flows*. *Surf. Sci.*, 106, 101 (1981).
- [Hag92] Hagen, O. F. *Cluster ion sources*. *Rev. Sci. Instrum.*, 63, 2374 (1992).
- [HBD03] Hanel, G., B. Gstir, S. Denifl, P. Scheier, M. Probst, B. Farizon, E. Illenberger und T. D. Märk. *Electron Attachment to Uracil: Effective Destruction at Subexcitation Energies*. *Phys. Rev. Lett.*, 90, 188104 (2003).

- [Her58] Herzberg, G. *Ionization Potentials and Lamb Shifts of the Ground State of ^4He and ^3He* . Proc. R. Soc. London, Ser. A, 248, 309 (1958).
- [Her11] Hergenhahn, U. *Interatomic and intermolecular coulombic decay: The early years*. J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom., 184, 78 (2011).
- [HJK10] Havermeier, T., T. Jahnke, K. Kreidi, R. Wallauer, S. Voss, M. Schöffler, S. Schössler, L. Foucar, N. Neumann, J. Titze, H. Sann, M. Kühnel, J. Voigtsberger, J. H. Morilla, W. Schöllkopf, H. Schmidt-Böcking, R. E. Grisenti und R. Dörner. *Interatomic Coulombic Decay following Photoionization of the Helium Dimer: Observation of Vibrational Structure*. Phys. Rev. Lett., 104, 133401 (2010).
- [HO72] Hagena, O. F. und W. Obert. *Cluster Formation in Expanding Supersonic Jets: Effekt of Pressure, Temperature, Nozzle Size, and Test Gas*. J. Chem. Phys., 56, 1793 (1972).
- [Hop30] Hopfield, J. J. *New Ultra-Violet Spectrum of Helium*. Astrophys. J., 72, 133 (1930).
- [Huf69] Huffmann, R. E. *Absorption cross-section of atmospheric gases for use in aeronomy*. Can. J. Chem., 47, 1823 (1969).
- [HW90] Haken, H. und H. Wolf. *Atom- und Quantenphysik*. Springer, 4. Auflage (1990).
- [IH10] I. Hertel, C. S. *Atome, Moleküle und optische Physik 2*. Springer (2010).
- [IUN88] Ito, K., K. Ueda, T. Namioka, K. Yoshino und Y. Morioka. *High-Resolution Absorption Spektrum of Ne I in the Region of 565-595 Å*. J. Opt. Soc. Am. B, 5, 2006 (1988).
- [Jac06] Jackson, J. D. *Klassische Elektrodynamik, vierte Auflage*. de Gruyter, 4. Auflage (2006).
- [Jah05] Jahnke, T. *Interatomic Coulombic Decay. Experimentelle Untersuchung eines neuartigen, interatomaren Abregungsmechanismus*. Dissertation, Johann-Wolfgang-Goethe-Universität Frankfurt am Main (2005).
- [JCS04] Jahnke, T., A. Czasch, M. S. Schöffler, S. Schössler, A. Knapp, M. Käs, J. Titze, C. Wimmer, K. Kreidi, R. E. Grisenti, A. Staudte, O. Jagutzki, U. Hergenhahn, H. Schmidt-Böcking und R. Dörner. *Experimental Observation of Interatomic Coulombic Decay in Neon Dimers*. Phys. Rev. Lett, 93, 163401 (2004).
- [JSH10] Jahnke, T., H. Sann, T. Havermeier, K. Kreidi, C. Stuck, M. Meckel, M. Schöffler, N. Neumann, R. Wallauer, S. Voss, A. Czasch, O. Jagutzki, A. Malakzadeh, F. Afaneh, T. Weber, H. Schmidt-Böcking und R. Dörner. *Ultrafast energy transfer between water molecules*. Nat. Phys., 6, 139 (2010).

- [KBS12] Knie, A., N. Burbank, P. Schmidt, C. Ozga und A. Ehresmann. *Electron-impact induced fluorescence for EUV spectrometer-detector calibration*. J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom., 185, 492 (2012).
- [KFT13] Kimura, M., H. Fukuzawa, T. Tachibana, Y. Ito, S. Mondal, M. Okunishi, M. Schöffler, J. Williams, Y. Jiang, Y. Tamenori, N. Saito und K. Ueda. *Controlling Low-Energy Electron Emission via Resonant-Auger-Induced Interatomic Coulombic Decay*. J. Phys. Chem. Lett., 4 (2013).
- [KJS93] Karnbach, R., M. Joppien, J. Stapelfeldt, J. Wörner und T. Möller. *CLULU: An experimental setup for luminescence measurements on van der Waals clusters with synchrotron radiation*. Rev. Sci. Instrum., 64(10), 2838 (1993).
- [KN06] Kramida, A. E. und G. Nave. *The Ne II Spektrum*. Eur. Phys. J. D, 39, 331 (2006).
- [Kni12] Knie, A. *Photon induced inner-shell excitation processes of nitrous oxide probed by angle resolved fluorescence and Auger-electron spectrometry*. Dissertation, Universität Kassel (2012).
- [Kra91] Kraus, B. *Entwicklung eines zweidimensional positionsempfindlichen Detektorsystems und sein Einsatz in der Spektroskopie von Wenigelektronensystemen*. Dissertation, Universität Gießen (1991).
- [KRR13] Kramida, A., Y. Ralchenko und J. Reader. *NIST Atomic Spectra Database*. <http://physics.nist.gov/asd> (2013).
- [KTR77] King, G., M. Tronc, F. Read und R. Bradford. *An investigation of the structure near the L_{2,3} edges of argon, the M_{4,5} edges of krypton and the N_{4,5} edges of xenon, using electron impact with high resolution*. J. Phys. B: Atom. Molec. Phys., 10 (1977).
- [KW96] Kaufmann, V. und W. Whaling. *Improved Wavelengths and Energy Levels of Doubly-Ionized Argon (Ar III)*. J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol., 101, 691 (1996).
- [LAH07] Lablanquie, P., T. Aoto, Y. Hikosaka, Y. Morioka und F. Penent. *Appearance of interatomic Coulombic decay in Ar, Kr, and Xe homonuclear dimers*. J. Chem. Phys., 127, 154323 (2007).
- [LBB94] Larsson, C. U. S., A. Beutler, O. Björneholm, F. Federmann, U. Hahn, A. Rieck, S. Verbin und T. Möller. *First results from the high resolution XUV undulator beamline BW3 at HASYLAB*. Nucl. Instr. and Meth. A, 337, 603 (1994).
- [LPH00] Lablanquie, P., F. Penent, R. I. Hall, J. H. D. Eland, P. Bolognesi, D. Cooper, G. C. King, L. Avaldi, R. Camilloni, S. Stranges, M. Coreno, K. C. Prince, A. Muehleisen

- und M. Žitnik. *Observation and Characterization of the Fluorescence Decay of the $2s2p^6np\ ^1P^0$ Excited States of Ne*. Phys. Rev. Lett., 84, 431 (2000).
- [MBB10] Mucke, M., M. Braune, S. Barth, M. Förstel, T. Lischke, V. Ulrich, T. Arion, U. Becker, A. Bradshaw und U. Hergenhahn. *A hitherto unrecognized source of low-energy electrons in water*. Nat. Phys., 6, 143 (2010).
- [MC06] Müller, I. B. und L. S. Cederbaum. *Ionization and double ionization of small water clusters*. J. Chem. Phys., 125, 204305 (2006).
- [Min59] Minnhagen, L. *The Spectrum of Singly Ionized Argon in the Vacuum Ultraviolet*. Ark. Fys., 14, 483 (1959).
- [Min71] Minnhagen, L. *Accurately Measured and Calculated Ground-Term Combinations of Ar II*. J. Opt. Soc. Am., 61, 1257 (1971).
- [Min73] Minnhagen, L. *Spectrum and the Energy Levels of Neutral Argon*. J. Opt. Soc. Am., 63, 1185 (1973).
- [MK97] Mayer-Kuckuk, T. *Atomphysik*. Teubner, 5. Auflage (1997).
- [MKH03] Marburger, S., O. Kugeler und U. Hergenhahn. *Experimental Evidence for Interatomic Coulombic Decay in Ne Clusters*. Phys. Rev. Lett., 90, 203401 (2003).
- [MLS06] Morishita, Y., X.-J. Liu, N. Saito, T. Lischke, M. Kato, G. Prümper, M. Oura, H. Yamaoka, Y. Tamenori, I. H. Suzuki und K. Ueda. *Experimental Evidence of Interatomic Coulombic Decay from the Auger Final States in Argon Dimers*. Phys. Rev. Lett., 96, 243402 (2006).
- [Mö93] Möller, T. *First results from the HASYLAB XUV undulator beamline BW3*. Synchrotron Radiation News, 6, 16 (1993).
- [MSP69] Minnhagen, L., H. Strihed und B. Petersson. *Revised and Extended Analysis of Singly Ionized Krypton*. Ark. Fys., 39, 471 (1969).
- [MSZ01] Moiseyev, N., R. Santra, J. Zobeley und L. S. Cederbaum. *Fingerprints of the nodal structure of autoionizing vibrational wave functions in clusters: Interatomic Coulombic Decay in Ne dimer*. J. Chem. Phys., 114, 7351 (2001).
- [ORB13] O’Keeffe, P., E. Ripani, P. Bolognesi, M. Coreno, M. Devetta, C. Callegari, M. D. Fraia, K. C. Prince, R. Richter, M. Alagia, A. Kivimäki und L. Avaldi. *The Role of the Partner Atom and Resonant Excitation Energy in Interatomic Coulombic Decay in Rare Gas Dimers*. J. Phys. Chem. Lett., 4, 1797 (2013).

- [OSF11] Ouchi, T., K. Sakai, H. Fukuzawa, I. Higuchi, P. V. Demekhin, Y.-C. Chiang, S. D. Stoychev, A. I. Kuleff, T. Mazza, M. Schöffler, K. Nagaya, M. Yao, Y. Tamenori, N. Saito und K. Ueda. *Interatomic Coulombic decay following Ne 1s Auger decay in NeAr*. Phys. Rev. A, 83, 053415 (20011).
- [OTL04] Öhrwall, G., M. Tchapyguine, M. Lundwall, R. Feifel, H. Bergersen, T. Rander, A. Lindblad, J. Schulz, S. Peredkov, S. Barth, S. Marburger, U. Hergenbahn, S. Svensson und O. Björneholm. *Femtosecond Interatomic Coulombic Decay in Free Neon Clusters: Large Lifetime Differences between Surface and Bulk*. Phys. Rev. Lett, 93, 173401 (2004).
- [Ozg11] Ozga, C. *Elektronenstoßangeregte Fluoreszenzspektroskopie von Argon im Wellenlängenbereich von 160 nm bis 320 nm nach Anregung mit 3,5 keV Elektronen*. Bachelorarbeit, Universität Kassel (2011).
- [PBB09] Pokapanich, W., H. Bergersen, I. L. Bradenau, R. R. T. Marinho, A. Lindblad, S. Legendre, A. Rosso, S. Svensson, O. Björneholm, M. Tchapyguine, G. Öhrwall, N. V. Kryzhevoi und L. S. Cederbaum. *Auger Electron Spectroscopy as a Probe of the Solution of Aqueous Ions*. J. Am. Chem. Soc., 131, 7264 (2009).
- [Pol83] Pollock, H. C. *The discovery of synchrotron radiation*. Am. J. Phys., 51, 278 (1983).
- [PP41] Phillips, L. W. und W. L. Parker. *Spectra of Argon in the Extreme Ultraviolet*. Phys. Rev., 60, 301 (1941).
- [PRB96] Pagan, C. J. B., M. Raineri, F. Bredice, J. G. Reyna Almandos, M. Gallardo, S.-G. Pettersson, G. H. Cavalcanti und A. G. Trigueiros. *Weighted Oscillator Strengths for Kr VI Spectrum*. J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 55, 163 (1996).
- [RBG92] Raineri, M., F. Bredice, M. Gallardo, J. G. Reyna Almandos, C. J. B. Pagan, und A. G. Trigueiros. *Revised and Extended Analysis of Five Times Ionized Argon (Ar VI)*. Phys. Scr., 45, 584 (1992).
- [Rei10] Reiß, P. *Interferenzeffekte lebensdauerbreiteter Zustände der CO 1s⁻¹ π* Resonanz beobachtet durch den CO⁺ A 2Π → X 2Σ⁺-Fluoreszenzzerfall*. Diplomarbeit, Universität Kassel (2010).
- [RGB98] Raineri, M., J. G. Reyna Almandos, F. Bredice, M. Gallardo, A. G. Trigueiros und S.-G. Pettersson. *Weighted Oscillator Strengths for Kr III Spectrum*. J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 60, 25 (1998).
- [RHH93] Rühl, E., C. Heinzl, A. P. Hitchcock und H. Baumgärtel. *Ar 2p spectroscopy of free argon clusters*. J. Chem. Phys., 98, 2653 (1993).

- [RHJ93] Rühl, E., C. Heinzl und H. W. Jochims. *Fluorescence of Ar(2p)-excited argon clusters*. Chem. Phys. Lett., 211 (1993).
- [RSV92] Raassen, A. J. J., L. C. Snoek, H. Volten, P. H. M. Uylings, F. G. Meijer und Y. N. Joshi. *Accurate Wavelength Determination for Vacuum Ultraviolet Lines in Chlorine and Argon*. Astron. Astrophys., Suppl. Ser., 95, 223 (1992).
- [Sak67] Sakurai, J. J. *Advanced Quantum Mechanics*. Addison-Wesley (1967).
- [Sch26] Schrödinger, E. *Quantisierung als Eigenwertproblem*. Ann. Phys., 79, 361, 489, 734 (1926).
- [Sch13] Schmidt, P. *Lyman- α Koinzidenz nach neutraler Dissoziation von Wasserstoffmolekülen aus superexcited states in neutrale Fragmente*. Diplomarbeit, Universität Kassel (2013).
- [Sho67] Shore, B. *Analysis of Absorption Profiles of Autoionizing Lines*. J. Opt. Soc. Am., 57, 881 (1967).
- [SKN96] Sairanen, O.-P., A. Kivimäki, E. Nömmiste, H. Aksela und S. Aksela. *High-resolution pre-edge structure in the inner-shell ionization threshold region of rare gases Xe, Kr, and Ar*. Phys. Rev. A, 54 (1996).
- [Ste93] Steinfeld, J. *Molecules and Radiation*. MIT Press, 2. Auflage (1993).
- [SZC01] Santra, R., J. Zobeley, L. S. Cederbaum und F. Tarantelli. *Intermolecular Coulombic decay of clusters*. J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom., 114-116, 41 (2001).
- [TMG97] Trigueiros, A. G., A. J. Mania, M. Gallardo und J. G. Reyna Almandos. *Atomic Transitions for the Ar VII Spectrum in the Vacuum Ultraviolet*. J. Opt. Soc. Am. B, 14, 2463 (1997).
- [TMP93] Trigueiros, A. G., A. J. Mania, S.-G. Pettersson und J. G. Reyna Almandos. *Levels of the $4p^4$ Configuration of Ge-like Kr V*. Phys. Rev. A, 48, 3595 (1993).
- [TPP89] Trigueiros, A. G., C. J. B. Pagan, S.-G. Pettersson und J. G. Reyna Almandos. *Transitions and Energy Levels in the $n = 4$ Complex of Kr V*. Phys. Rev. A, 40, 3911 (1989).
- [UFL08] Ueda, K., H. Fukuzawa, X.-J. Liu, K. Sakai, G. Prümper, Y. Morishita, N. Saito, I. H. Suzuki, K. Nagaya, H. Iwayama, M. Yao, K. Kreidi, M. Schöffler, T. Jahnke, S. Schössler, R. Dörner, T. Weber, J. Harries und Y. Tamenori. *Ineratomic Coulombic decay following the Auger decay: Experimental evidence in rare-gas dimers*. J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom., 166-167, 3 (2008).

- [WF06] Winter, B. und M. Faubel. *Photoemission from Liquid Aqueous Solutions*. Chem. Rev., 106, 1176 (2006).
- [Wil96] Wille, K. *Physik der Teilchenbeschleuniger und Synchrotronstrahlungsquellen*. B. G. Teubner (1996).
- [Wiz79] Wiza, J. L. *Microchannel plate detectors*. Nucl. Instr. and Meth., 162, 587 (1979).
- [YT79] Yoshino, K. und Y. Tanaka. *Absorption Spectrum of Krypton in the Vacuum UV Region*. J. Opt. Soc. Am., 69, 159 (1979).
- [YZL12] Yang, H., B. Zhao, Y. Liu, Q. Yan und H. Hu. *The resolution estimation of wedge and strip anodes*. Rev. Sci. Instrum., 83, 093107 (2012).

ABBILDUNGSVERZEICHNIS

3.1	Schematische Darstellung des früher verwendeten Aufbaus der Fernfokuselektronenquelle	13
3.2	Aufnahmen der Glühdrahtspitze	14
3.3	Abhängigkeit der Glühdraht-Elektronenemission vom Druck im Emissionsvolumen	15
3.4	Schema einer Keil- und Streifen-Anode	20
3.5	Spannungsversorgung der Mikrokanalplatten	21
3.6	Explosionszeichnung des Detektoraufbaus	21
3.7	Einfluss von Signalverarbeitungsparametern auf das Detektorbild	24
3.8	Laterale Photoelektronenausbeute-Funktion einer Detektorkonfiguration	25
3.9	Laterale Eigenschaften einer verwendeten Detektorkonfiguration	26
3.10	Korrektur lateraler Detektoreigenschaften	27
4.1	Vergleich der erreichbaren Auflösung in erster und zweiter Ordnung des Monochromatorgitters	29
4.2	Einfluss des Messdruckes auf Intensitätsverhältnisse von Fluoreszenzübergängen	29
4.3	Elektronenstoßinduziertes Fluoreszenzspektrum des Heliums von 40 bis 120 nm .	30
4.4	Elektronenstoßinduziertes Fluoreszenzspektrum des Neons von 40 bis 120 nm . .	31
4.5	Elektronenstoßinduziertes Fluoreszenzspektrum des Argons von 40 bis 120 nm .	32
4.6	Elektronenstoßinduziertes Fluoreszenzspektrum des Kryptons von 40 bis 120 nm	33
5.1	Auswahl energetischer Lagen von Zuständen des Neon-Monomers und Neon-Dimers	39
5.2	Interatomarer Zerfall nach 2s-Ionisation im Neon-Dimer	40
5.3	Erster ICD-Nachweis: Messung von zwei Ionen und einem Elektron in Koinzidenz	43
5.4	Experimentelle Beobachtung des resonanten ICD	44

6.1	Resonanter ICD nach $2s \rightarrow 3p$ -Anregung im Neon-Dimer	48
6.2	Skizze des verwendeten Versuchsaufbaus	51
7.1	Fluoreszenz-Anregungs-Funktionen der atomaren $2s \rightarrow np$ -Resonanzen im Neon .	53
7.2	Anpassung eines Beutler-Fano-Profiles an die Fluoreszenz-Anregungs-Funktion .	54
7.3	Fluoreszenz-Anregungs-Funktionen der $2s \rightarrow 3p$ -Resonanz im Neon für einige Gasreservoir-Parameter	55
7.4	Ladungsausbeute-Anregungs-Funktionen der ersten drei $2s \rightarrow np$ -Resonanzen im Neon	57
7.5	Ladungsausbeute-Anregungs-Funktion der $2s \rightarrow 3p$ -Resonanz für einige Gasreservoir-Parameter	57
7.6	Anpassung zweier addierter Beutler-Fano-Profile an eine Ladungsausbeute- Anregungs-Funktion	58
7.7	Addition und Subtraktion zweier Beutler-Fano-Profile	60
7.8	Fluoreszenz-Anregungs-Funktionen der $2p \rightarrow nl$ -Resonanzen im Argon	61
7.9	Ladungsausbeute-Anregungs-Funktionen der $2p \rightarrow nl$ -Resonanzen im Argon . . .	62
7.10	Differenz der Ladungsausbeute von Monomer-Cluster-Gemisch und Monomeren	63
7.11	Anpassung von zwei Gauß-Funktionen an die $2p_{3/2} \rightarrow 4s$ -Clusterresonanz	63

ERKLÄRUNG

Hiermit versichere ich, dass ich diese Diplomarbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe. Die Stellen meiner Arbeit, die dem Wortlaut oder dem Sinn nach anderen Werken entnommen sind, habe ich in jedem Fall unter Angabe der Quelle als Entlehnung kenntlich gemacht. Dasselbe gilt sinngemäß für Tabellen und Abbildungen. Diese Arbeit hat in dieser oder einer ähnlichen Form noch nicht im Rahmen einer anderen Prüfung vorgelegen.

Ort und Datum

Andreas Hans