Diplomarbeit

„Lyman-α Koinzidenz nach neutraler Dissoziation von Wasserstoffmolekülen aus superexcited states in neutrale Fragmente“

Philipp Schmidt

Kassel, 15. März 2013

Durchgeführt in der Arbeitsgruppe Experimentalphysik IV der Universität Kassel unter Anleitung von Prof. Dr. A. Ehresmann

To understand hydrogen is to understand all of physics.

Victor Frederick Weisskopf

Inhaltsverzeichnis

Einleitung **1**

1 Grundlagen **3**

1.1 Fluoreszenz 3

1.2 Wasserstoffmolekül 6

1.2.1 Begriff des Molekülpotentials 6

1.2.2 Klassifizierung und Lage der Zustände 9

1.3 superexcited states 13

1.4 Stand der Forschung 17

1.4.1 Wirkungsquerschnitte und Zerfallskanäle 17

1.4.2 Druckeffekt der Lebensdauer und Winkelverteilung 19

2 Experiment **25**

2.1 Synchrotronstrahlungsquelle 25

2.1.1 DORIS III 28

2.1.2 Strahlrohr BW3 29

2.2 Koinzidenzaufbau 30

2.2.1 Seya-Namioka-Spektrometer 33

2.2.2 ONLINE Protokoll 36

2.3 Fernfokuskathode 39

2.4 Photonendetektoren 42

2.4.1 Photek PMT240 FUV Detektor 42

2.4.2 Hamamatsu R1460 FUV Photomultiplier 44

2.4.3 EUV Detektor mit Keil- und Streifenanode 45

3 Auswertung **47**

3.1 Elektrolumineszenz- und Fluoreszenzspektren 47

3.2 relativer partieller Fluoreszenzquerschnitt 53

3.3 Koinzidenzzeitspektrum 55

3.4 zeitabhängige Fluoreszenzintensität 59

3.4.1 Koinzidenzkarte 60

3.4.2 Detektorsummen 63

4 Ergebnisse und Diskussion **69**

4.1 Emissionsspektren 69

4.2 Lebensdauer in den Koinzidenzmessungen 74

4.3 Detektoraufgelöste Zeitstruktur 77

Zusammenfassung und Ausblick **85**

Literaturverzeichnis **89**

Abbildungsverzeichnis **97**

Einleitung

Wasserstoff ist das häufigste Molekül im Universum, das jedoch trotz des einfachen Aufbaus aus zwei Protonen und Elektronen sowie der umfangreichen Erforschung in der Vergangenheit noch bis heute unverstandene Eigenschaften besitzt. Ein Beispiel hierfür ist die Fluoreszenz nach Anregung mit Energien oberhalb der Ionisationsschwelle. Diese Prozesse sind von großer Relevanz in der Astrophysik, da sie einen Großteil der Emission und Absorption im Spektralbereich der extremen ultravioletten Strahlung ausmachen, wie sie beispielsweise in der äußeren Atmosphäre von Planeten oder in interstellaren Wolken beobachtet wird.

Dieses Verhalten wird erklärt durch die Anregung in sogenannte superexcited states, die jenseits des Grundzustandes des jeweiligen Molekülions liegen. Diese Zustände zeichnen sich durch eine Vielzahl an möglichen Zerfallskanälen aus, welche die Betrachtung der einzelnen Prozesse getrennt voneinander sehr erschweren.

Das Ziel dieser Arbeit ist die Untersuchung der neutralen Dissoziation von Wasserstoffmolekülen in superexcited states anhand der Fluoreszenz der dabei entstehenden neutralen, aber angeregten atomaren Fragmente. Dazu soll die Verwendung eines Photon-Photon-Koinzidenzaufbaus dienen, der mit zwei Detektoren die Fluoreszenz zeitaufgelöst vermessen kann. Dies ermöglicht die Trennung dieser koinzidenten, also aus demselben Prozes stammenden, Emission von den zahlreichen anderen ablaufenden Fluoreszenzprozessen. Dafür wird Wasserstoff bei verschiedenen Drücken zwischen 100 mPa und 400 mPa mit Synchrotronstrahlung einer Energie von 33.66 eV angeregt, um in zwei Fragmente im $2p$-Zustand des Wasserstoffatoms zu dissozieren. Diese relaxieren dann über die Emission der bekannten Ly_α-Linie bei 121.6 nm in den Grundzustand $1s$. Das Augenmerk liegt dabei auf dem Vergleich die-

ser Zerfallsprozesse von miteinander korrelierten Fragmenten mit den Übergängen von freien Wasserstoffatomen in Hinblick auf die Lebensdauer oder Winkelanisotropie. Dieser Einfluss wurde von zuletzt veröffentlichten Arbeiten vermutet und vorhergesagt [MIK07, TON09, JDH10, TON10].

Zu diesen Koizindenzmessungen schließt sich außerdem noch die Fluoreszenzspektroskopie von molekularen Wasserstoff an, um einen Überblick über die zu erwartenden Emissionslinien zu geben. Diese wurde durchgeührt im Spektralbereich von 35 bis 220 nm bei Anregung durch Synchrotronstrahlung sowie Elektronenstoß.

1 Grundlagen

Dieses Kapitel soll eine Einführung in das physikalische Modell der Fluoreszenz und der Beschreibung von elektronischen Zuständen in Molekülen geben. Das Konzept der superexcited states wird vorgestellt und ein Überblick über den aktuelle Stand der Forschung zu solchen Zuständen im Wasserstoffmolekül gegeben.

1.1 Fluoreszenz

Eine der grundlegenden Motivationen für die Entwicklung theoretischer Modelle zur Beschreibung von Atomen und Molekülen war die Beobachtung der Lumineszenz seit dem 16. Jahrhundert [VBS11]. Dieser Kategorie wird jede Emission von Licht eines Körpers zugerechnet, die nicht durch seine Temperatur begründet ist und damit keine thermische Strahlung darstellt. Der Unterbegriff der Fluoreszenz taucht dabei in der Mitte des 19. Jahrhunderts zuerst auf als eine durch Lichteinfall hervorgerufene Lumineszenz, die sehr zeitnah mit der Anregung einhergeht in Abgrenzung zur "nachleuchtenden" Phosphoreszenz [VBS11].

Die Emission und Absorption elektromagnetischer Strahlung wird allgemein verstanden durch die Übergänge zwischen zwei Zuständen $|i\rangle$ und $|k\rangle$ eines quantenmechanischen Systems [Ste93], welches das entsprechende Atom oder Molekül beschreibt. Die Darstellung dieser Zustände sowie die zu ihrer Charakterisierung nötigen Quantenzahlen ergeben sich dabei grundsätzlich durch das Lösen der Schrödingergleichung [Sch26], in ihrer zeitunabhängigen Form als Eigenwertgleichung der Energie

$$\hat{H}|\Psi\rangle = E|\Psi\rangle \tag{1.1}$$

mit einem entsprechend gewählten Hamilton-Operator, der die Wechselwirkungen des Systems berücksichtigt. Der einfachste Fall ist dabei das Wasserstoffatom, das im Schwerpunktssystem des Kerns durch die kinetische Energie des Hüllenelektrons sowie die Couloumb-Wechselwirkung mit dem Kern beschrieben werden kann:

$$\hat{H} = \hat{T} + \hat{V} = -\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2 - \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0}\frac{1}{r} \tag{1.2}$$

Dieser Ansatz führt [Dem05] zu einem Satz von Wellenfunktionen zur Beschreibung des Grundzustandes sowie der angeregten Zustände des Wasserstoffatoms mit den Quantenzahlen n, l, m_l (sowie das nachträglich durch phänomenologische Beobachtungen hinzugefügte m_s), welche die Zustände untereinander charakterisieren und von denen sich eine oder mehrere bei einem Übergang ändern müssen.

Neben der Absorption eines Photons aus einem elektromagnetischen Strahlungsfeld sowie der spontanen Emission eines Photons existiert noch der Prozess der stimulierten Emission, bei der ein angeregtes Atom oder Molekül durch ein Photon aus dem Strahlungsfeld dazu gebracht wird, ein eigenes Photon zu emittieren. Die Wahrscheinlichkeiten pro Zeit $\mathrm{d}W/\mathrm{d}t$ für diese Prozesse sind im Fall der Absorption sowie stimulierten Emission dabei abhängig vom Strahlungsfeld der spektralen Dichte $\rho(\nu)$ und für die spontane Emission konstant [Dem03].

$$\left(\frac{\mathrm{d}W_{ik}}{\mathrm{d}t}\right)_{\mathrm{abs}} = B_{ik}\,\rho(\nu) \tag{1.3}$$

$$\left(\frac{\mathrm{d}W_{ki}}{\mathrm{d}t}\right)_{\mathrm{sti}} = B_{ki}\,\rho(\nu) \tag{1.4}$$

$$\left(\frac{\mathrm{d}W_{ki}}{\mathrm{d}t}\right)_{\mathrm{spo}} = A_{ki} \tag{1.5}$$

Die Konstanten B_{ik}, B_{ki} und A_{ki} werden Einstein-Koeffizienten genannt. Aus einem Vergleich der spektralen Energiedichte eines thermischen Strahlungsfeldes und der Annahme einer Boltzmann-Verteilung bei der Besetzung der Zustände zueinander erhält man einfache Relationen mit den statistischen Gewichtungen g_{i} und g_{k} der beteiligten Zustände [Dem03]:

$$B_{ik} = \frac{g_{\mathrm{k}}}{g_{\mathrm{i}}}\,B_{ki} \tag{1.6}$$

$$A_{ki} = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3}\,B_{ki} \tag{1.7}$$

Aus (1.5) kann außerdem eine Aussage über die Lebensdauer dieser angeregten Zustände bei einem spontanen Zerfall getroffen werden. Mit A_{ki} als Wahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit, das ein Atom oder Molekül unter Aussendung eines Photons in einen energetisch niedrigeren Zustand übergeht, kann die Anzahl $\mathrm{d}N_k$ der im Zeitintervall $\mathrm{d}t$ strahlenden Teilchen abgeschätzt werden von der Gesamtzahl N_k in dem entsprechenden Zustands [Dem05]:

$$\mathrm{d}N_k = -A_{ki}\, N_k\, \mathrm{d}t \tag{1.8}$$

Die Integration dieser Gleichung liefert die zeitabhängige Besetzung des angeregten Zustands, die danach exponentiell von einem Anfangswert bis auf Null abfällt.

$$N_k(t) = N_k(0)\, \mathrm{e}^{-A_{ki}t} \tag{1.9}$$

Quantenmechanisch beschreibt in erster Näherung der Dipoloperator $\hat{d} = q\hat{r}$ den elektrischen Übergang zwischen zwei Zuständen $|i\rangle$ und $|k\rangle$. Über die im Mittel abgestrahlte Leistung ist es möglich, die Einstein-Koeffizienten aus (1.3), (1.4) und (1.5) mit dem Matrixelement des Dipoloperators $D_{ik} = \langle i|\hat{d}|k\rangle$ für die beteiligten Zustände zu verknüpfen:

$$A_{ik} = \frac{2}{3}\frac{e^2\omega_{\mathrm{ik}}^3}{\varepsilon_0 c^3\, h}|D_{ik}|^2 \tag{1.10}$$

Mithilfe der Relationen (1.6) und (1.7) ist es somit möglich, mit der Kenntnis der Wellenfunktionen die Übergangswahrscheinlichkeiten und damit auch die Intensitäten der Fluoreszenzlinien in Form der Einstein-Koeffizienten zu berechnen. Deren Wellenlänge ergibt sich wiederum aus der Differenz der beteiligten Energieniveaus zueinander.

Aus der Berechnung des Dipolmatrixelements ergeben sich außerdem noch bestimmte Auswahlregeln für die Änderung der Quantenzahlen, bei denen ein elektrischer Übergang (unter Wirkung von Dipolstrahlung) überhaupt erst stattfinden kann. Für das Beispiel des Wasserstoffatoms gilt dabei [Her45]

$$\Delta l = \pm 1 \qquad \Delta m_l = 0, \pm 1 \qquad \Delta m_s = 0 \tag{1.11}$$

Für Multipolübergänge höherer Ordnung ergeben sich jeweils andere Sätze von Auswahlregeln. Diese können dann auch Übergänge zwischen Zuständen ermöglichen,

die für die Dipolnäherung verboten sind. Diese Momente höherer Ordnung sind jedoch deutlich schwächer, das Verhältnis des elektrischen Dipolmomentes ist in der Größenordnung von 10^5 zum magnetischen Dipolmoment und 10^8 zum elektrische Quadrupolmoment [Her45].

1.2 Wasserstoffmolekül

1.2.1 Begriff des Molekülpotentials

Analog zu (1.2) ist ein vergleichbarer Ansatz auch möglich, um Moleküle zu beschreiben. Der Hamilton-Operator mit den Koordinaten der Elektronen $\vec{r}_i$ und der Kerne $\vec{R}_j$ setzt sich zusammen aus den kinetischen Energien der Kerne und Hüllenelektronen sowie deren elektrostatischen Wechselwirkungen $\hat{V} = V_{\mathrm{KK}}(\vec{R}) + V_{\mathrm{Ke}}(\vec{r}, \vec{R}) + V_{\mathrm{ee}}(\vec{r})$:

$$\hat{H} = -\frac{\hbar^2}{2m} \sum_{\text{Elek.}} \nabla_i^2 - \frac{\hbar^2}{2m} \sum_{\text{Kerne}} \frac{1}{M_j} \nabla_j^2 + V(\vec{r}, \vec{R}) \tag{1.12}$$

Dieser Ansatz ist jedoch selbst für das Wasserstoffmolekülion H_2^+ nicht mehr analytisch lösbar, da es ein Drei-Körper-Problem darstellt. Aufgrund der hohen Kernmasse im Vergleich zu den Elektronen kann die Kernbewegung als Störung der elektronischen Energie behandelt werden, das heißt über den Verlauf einer Elektronenbewegung ist das Kerngerüst starr und aus der Sicht der Kerne passen sich die Elektronen jeder Bewegung ohne Verzögerung an. Dieser Ansatz einer adiabatischen Näherung geht auf Born und Oppenheimer zurück [BO27], der Hamilton-Operator setzt sich jetzt zusammen aus

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}' \tag{1.13}$$

mit $\hat{H}_0 = \hat{T}_{\mathrm{e}} + \hat{V}$ als ungestörten Hamilton-Operator und $\hat{H}' = \hat{T}_{\mathrm{K}}$ als Störterm. Nach Einsetzen in die Schrödingergleichung erhält man nach kurzer Rechnung [Dem03]

ein gekoppeltes Gleichungssystem

$$\hat{H}_0\,\phi_{n,\vec{R}}(\vec{r}) = E_{0,n}(\vec{R})\,\phi_{n,\vec{R}}(\vec{r}) \tag{1.14}$$

$$\hat{H}'\,\chi_n(\vec{R}) + \sum_m c_{nm}\,\chi_m(\vec{R}) = (E - E_{0,n}(\vec{R}))\,\chi_n \tag{1.15}$$

Die Wellenfunktionen ϕ_n und χ_n entstammen dabei einer Entwicklung der ursprünglich mit (1.12) gesuchten Wellenfunktion Ψ. Die $\phi_{n,\vec{R}}$ beschreiben dabei die Lösung des ungestörten Hamilton-Operators und damit die Elektronenbewegung. Wird dieser Satz von Lösungen so gewählt, dass er ein vollständiges orthonormales Funktionensystem bildet, kann Ψ nach diesen Funktionen entwickelt werden:

$$\Psi(\vec{r},\vec{R}) = \sum_m \chi_m(\vec{R})\,\phi_{n,\vec{R}}(\vec{r}) \tag{1.16}$$

Diese hängen dabei aufgrund des in (1.13) gemachten Ansatzes nicht mehr von $\vec{R}$ als Argument ab, sondern nur noch als festem Parameter. Die Entwicklungskoeffizienten χ_n sind hier gerade die Lösung des Störoperators $\hat{H}'$ und beschreiben damit die Kernwellenfunktionen, wobei diese mit (1.15) und (1.16) an die Elektronenwellenfunktionen über die c_{nm} gekoppelt sind.

Zur weiteren Lösung der Gleichung (1.15) können verschiedene Näherung gemacht werden. Die Born-Oppenheimer-Näherung (BO) setzt dabei alle $c_{nm} = 0$, so dass die Kopplung zwischen der Kernbewegung und Elektronenhülle verschwindet. Damit können die Kerne mit einem Hamilton-Operator der Form

$$\hat{H}_\mathrm{K} = \hat{H}' + E_{0,n}(\vec{R}) = \hat{T}_\mathrm{K} + U_n(\vec{R}) \tag{1.17}$$

beschrieben werden. Sie bewegen sich hier in dem Molekülpotential $U_n(\vec{R})$, das nur von den Kernkoordinaten (in der Regel der Kernabstand) abhängt und nicht mehr den Elektronenkoordinaten. Der Elektronenzustand n bestimmt jedoch die Wahl des Potentials. Im Fall von zweiatomigen Molekülen wie Wasserstoff ergibt sich daraus für jeden Zustand n eine Potentialkurve wie in Abb.
1.1 dargestellt.

Darauf aufbauend vernachlässigt die adiabatische Näherung nur die Nichtdiagonalelemente $c_{nm} = 0$ mit $n \neq m$. In der Folge dessen erhält das in (1.17) definierte

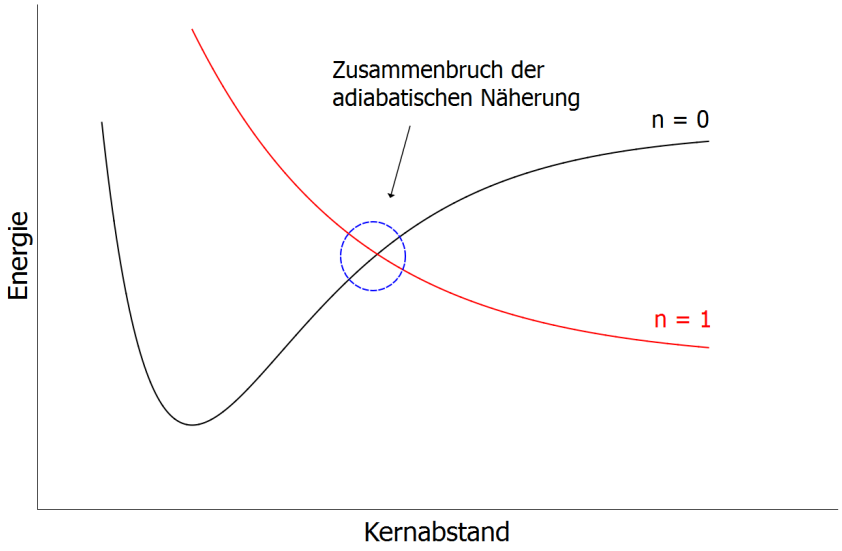


Abb. 1.1: Schematische Potentialkurven für zwei elektronische Zustände. $n = 0$ besitzt einen stabilen Gleichgewichtsabstand, während $n = 1$ zur Dissoziation führt. Beim Schnittpunkt der beiden Potentialkurven versagt die adiabatische (und damit Born-Oppenheimer) Näherung.

Potential noch einen Korrekturterm, der die Kernmassen sowie die Ableitung der Elektronwellenfunktion nach den Kernkoordinaten enthält. Damit unterscheidet sich das Potential je nach vorliegendem Isotop der Kerne und die Elektronen passen sich der Kernbewegung mit einer gewissen Verzögerung an. Die Korrekturen sind im Allgemeinen jedoch aufgrund der sehr großen Kernmassen sehr klein, alle in der Born-Oppenheimer-Näherung vernachlässigten Terme haben zusammen nur einen Energiebeitrag von 10^{-5} zur Gesamtenergie [Ste93]. Im Fall von energetisch entarteten Elektronenzuständen wie z.B. in Abb. 1.1 am Ort des Schnittpunktes zweier Potentialkurven sind beide Näherung jedoch nicht länger gültig, da bereits kleinste Variationen der Kernkoordinaten die Reihenfolge der elektronischen Zustände ändern können - in diesem Fall sind die Voraussetzungen der Störungsrechnung in Form der adiabatischen Näherung nicht mehr gegeben und es muss in einer diabatischen Näherung gerechnet werden [Ste93].

1.2.2 Klassifizierung und Lage der Zustände

Der elektronische Zustand eines zweiatomigen Moleküls (in der Born-Oppenheimer-Näherung) wird beschrieben durch die Eigenschaften der elektronischen Wellenfunktion. Ausgehend vom Wasserstoffatom besitzen auch hier die Elektronen einen Bahndrehimpuls l_i, der sich zu $L = \sum l_i$ addiert. Durch die Zylindersymmetrie im Wasserstoffmolekül ist bei der Bewegung im elektrischen Feld der beiden Kerne jedoch nur die Projektion M_L auf die Symmetrieachse (die Kernverbindungsachse) eine Erhaltungsgröße, die damit in Einheiten von $\hbar = h/2\pi$ die $2L + 1$ Werte

$$M_L = L, L-1, ..., 0, ..., -L \tag{1.18}$$

annehmen kann. Da sich der zum elektrischen Feld parallele Anteil der Zustände M_L und $-M_L$ jeweils nicht unterscheidet, sind diese energetisch entartet. Als Komponente des Bahndrehimpulses der Elektronen entlang der Kernverbindungsachse wird daher

$$\Lambda = |M_L| \tag{1.19}$$

definiert. Entsprechend nach (1.18) kann Λ die Werte $0, ..., L$ annehmen. Die entsprechenden Molekülzustände werden dabei mit $\Sigma, \Pi, \Delta, ...$ bezeichnet, analog zu $s, p, d, ...$ bei Atomzuständen.

Gleiches lässt sich auf die Betrachtung des Gesamtspins $S = \sum s_i$ anwenden. Für Zustände mit $\Lambda \neq 0$ erzeugt die Elektronenbewegung ein Magnetfeld entlang der Kernachse, welches den Spin zur Präzession anregt. Dessen Projektion M_S in Einheiten von $\hbar$ wird hier mit Σ bezeichnet und kann die $2S + 1$ Werte von S bis $-S$ annehmen. Für Σ-Zustände (d.h. mit $\Lambda = 0$, nicht zu verwechseln mit der soeben definierten Quantenzahl) ist Σ nicht definiert [Her50].

Der Gesamtdrehimpuls $\Omega = |\Lambda + \Sigma|$ eines Molekülzustands ergibt sich damit direkt als Summe von Λ und Σ, wobei hier anders als beim Wasserstoffatom keine vektorielle Addition nötig ist, da beide Komponenten entlang derselben Achse verlaufen. Diese Symbole werden zusammenfassend wieder ähnlich wie bei atomaren Zuständen notiert:

$$^{2S+1}\Lambda_\Omega \tag{1.20}$$

ergänzt durch einen vorangestellten Buchstaben für die energetische Reihenfolge mit X für den Grundzustand und $A, B, C, ...$ für die höher angeregten Zustände.

Zusätzlich zu den Drehimpulsen sind die Symmetrieeigenschaften der elektronischen Wellenfunktion bei einem Molekül, bei denen sich die Elektronenverteilung als Quadrat der Wellenfunktion nicht ändert, weiterhin noch von Bedeutung. Bei zweiatomigen Molekülen bezeichnet die Parität das Verhalten bei einer Spiegelung an einer Ebene durch die Kernverbindungsachse. Die Wellenfunktion kann entweder das Vorzeichen wechseln oder nicht, dies wird entsprechend als positive und negative Parität mit Σ^+ oder Σ^- bezeichnet. Diese Unterscheidung wird üblicherweise nur für Σ-Zustände gemacht, da im Fall von Zuständen mit $\Lambda > 0$ beide Paritäten energetisch entartet sind [Her50]. Ist das Molekül darüberhinaus homöopolar oder sogar homonukulear (wie z.B. Wasserstoff), ist die Spiegelung am Ladungsschwerpunkt eine weitere Symmetrieoperation, die das Vorzeichen ändern kann. Dies entspricht gerade der mathematischen Eigenschaft einer geraden (ohne Vorzeichenwechsel) oder ungeraden (mit Vorzeichenwechsel) Funktion, und wird daher entsprechend bezeichnet als gerade und ungerade Wellenfunktion mit Π_g oder Π_u [Her50].

Für das in dieser Arbeit diskutierte Wasserstoffmolekül zeigt Abb. 1.2 eine Auswahl elektronisch angeregter Zustände ausgehend vom Grundzustand bis zu sehr hoch angeregten Zuständen jenseits der Ionisationsschwelle. Der Grundzustand des Moleküls wird vollständig bezeichnet durch $X\,^1\Sigma_g^+$ (mit $\Omega = |\Lambda| = 0$). Folgend auf den dazu entsprechenden Zustand mit ungerader Symmetrie $b\,^3\Sigma_u^+$, der repulsiv ist, folgen einige gebundene angeregte Zustände in verschiedenen Konfigurationen bis zur ersten Ionisationsschwelle von 15,4 eV mit dem Grundzustand des Wasserstoffmolekülions $X\,^2\Sigma_g^+$. Mit Ausnahme von $^2\Sigma_\mathrm{u}^+$ und $^2\Pi_\mathrm{u}$ des Ions gehören die darüber dargestellten Potentialkurven zu den superexcited states des Wasserstoffmoleküls, die im folgenden Abschnitt vorgestellt werden. Am rechten Rand sind die Zustände der Dissoziationsprodukte eingetragen.

Gemäß des Franck-Condon-Prinzips vollziehen sich elektronische Übergänge im Potentialdiagramm aufgrund der sehr schnellen Dynamik stets senkrecht. Damit ergibt sich eine endlich Region, die sich aus der Breite der Potentialkurve des Grundzustands bei der Energie des Vibrationsgrundniveaus ergibt, von der ein elektrischer

Übergang ausgehen kann. In Abb. 1.2 ist dies durch den schattierten Bereich dargestellt.

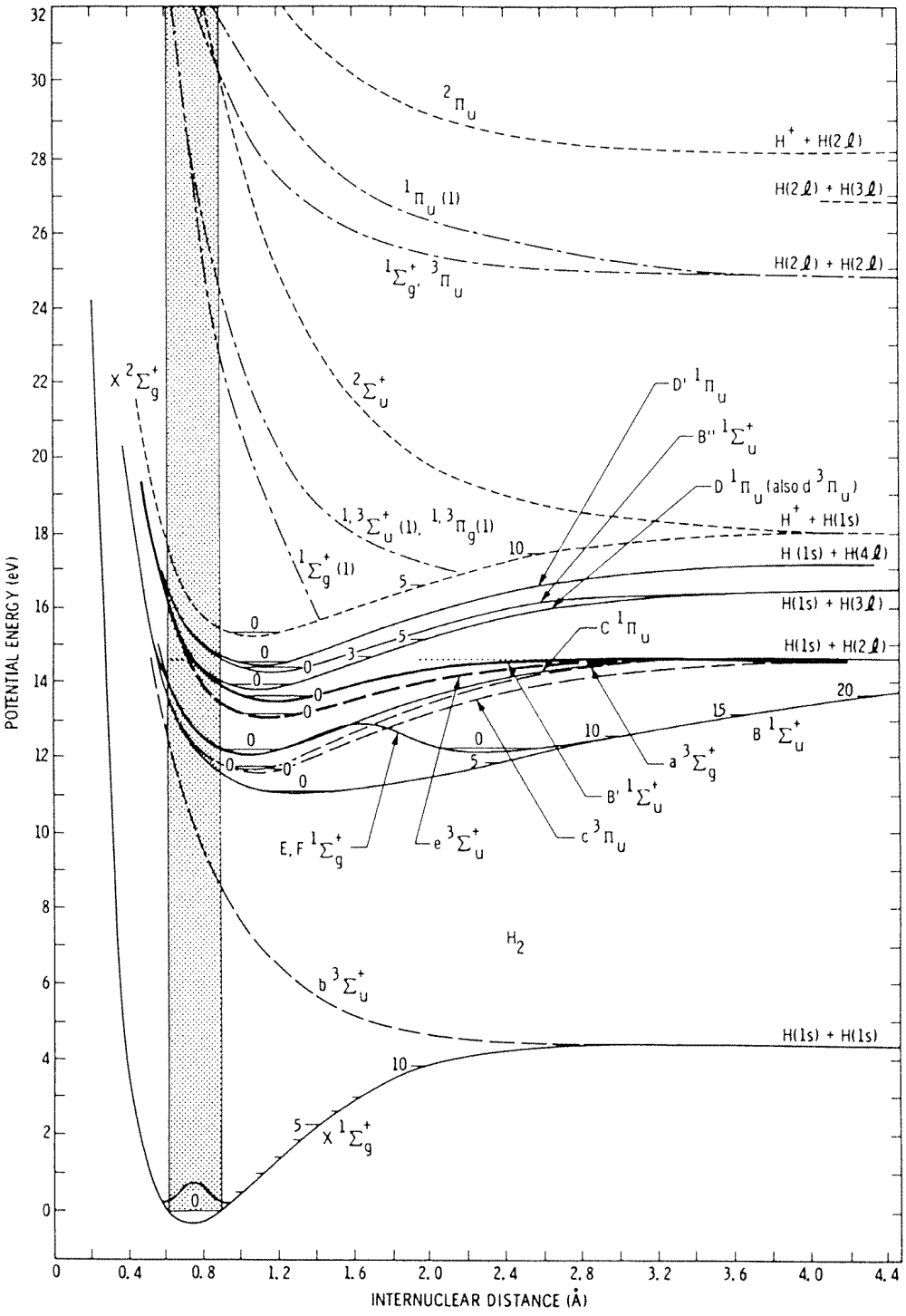


Abb. 1.2: Potentialkurven des Wasserstoffmoleküls mit Singulett (durchgezogen), Triplett (langgestrichelt), Ionen (kurzgestrichelt) [Sha70] und superexcited states (Punkt-Strich) [Gub82]. Der schattierte Bereich markiert die Franck-Condon-Region, während am rechten Rand die Dissoziationsprodukte eines Zustandes dargestellt sind. Aus [ASJ91].

1.3 superexcited states

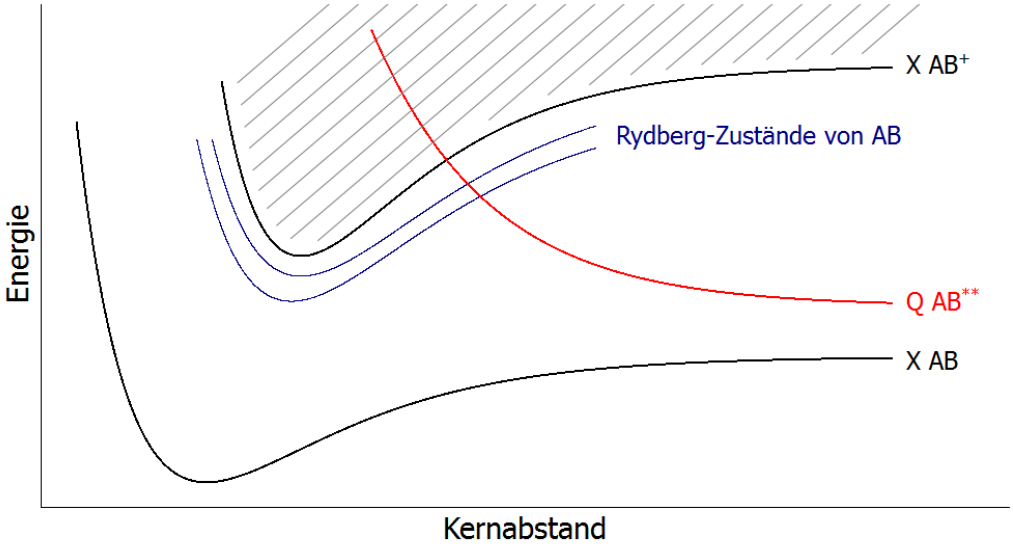


Abb. 1.3: Schematischer Potentialverlauf für ein Molekül AB in der Nähe der Ionisationsschwelle (d.h. dem Grundzustand des Molekülions X AB^+) mit Rydberg-Zuständen und einem superexcited state Q AB^{**} im Energiekontinuum

Ein Molekül in einem elektronisch angeregten Zustand mit einer Energie, die (bei bestimmten Kernabständen) höher liegt als die erste Ionisationsschwelle und die erste Dissoziationsgrenze, wird als *superexcited* bezeichnet [Pla62], der entsprechende Zustand als *superexcited state*. Dieser kann auf zwei unterschiedlichen Weisen realisiert werden [Nak91]:

- In *superexcited states of the first kind* (erster Art) sind zwei oder mehr Valenzelektronen des Moleküls oder ein Kernelektron eines der Bindungspartner angeregt, während bei

- *superexcited states of the second kind* (zweiter Art) das Molekül sich in einem rovibronisch angeregten Rydberg-Zustand befindet. Hier liegt ein Elektron gebunden in großen Abstand zum Molekülion vor, daher liegt hier die elektronischen Anregung energetisch noch unter der Ionisationsschwelle (da jenes Elektron nach wie vor gebunden ist). Zusammen mit der Rotations- und Vibrationsenergie jedoch kann die Gesamtenergie diese übersteigen und sich

im Kontinuum befinden.

Die Anregung in einen solchen Zustand mit elektromagnetischer Strahlung ist dabei ein Konkurrenzprozess zur direkten Ionisation wie in Abb. 1.4 skizziert.

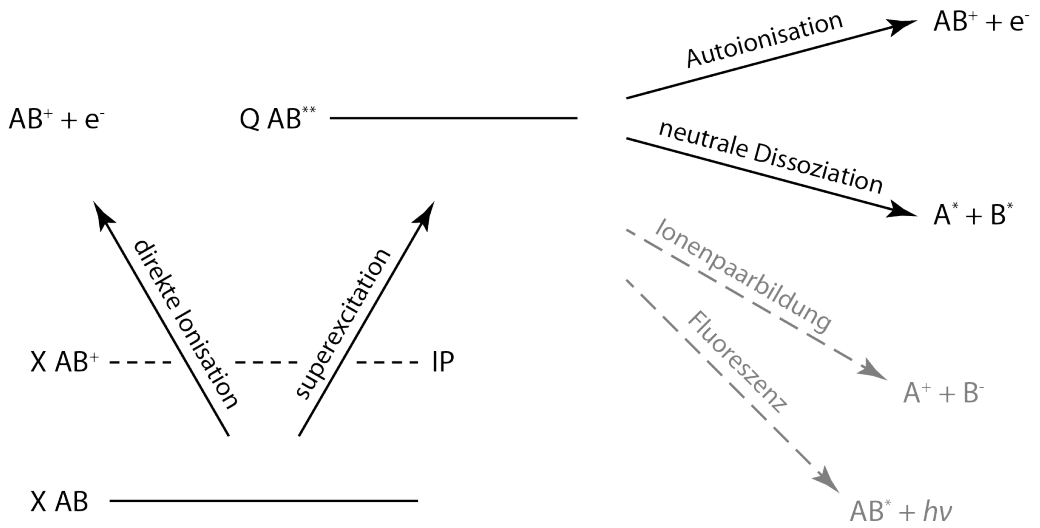


Abb. 1.4: Schema der Prozesse bei der Anregung eines Moleküls AB mit Energien oberhalb der Ionisations- bzw. Dissoziationsschwelle (IP). Die Anregung führt entweder zur direkten Ionisation oder in einen superexcited state, der wiederum verschiedene mögliche Zerfallskanäle hat.

Dem Molekül AB^{**} in einem nicht stabilen superexcited state stehen dabei verschiedene Zerfallsprozesse zur Verfügung [KUH97]:

$$AB^{**} \rightarrow AB^{+} + e^{-} \quad \text{(a)}$$
$$\rightarrow A^{(*)} + B^{(*)} \quad \text{(b)}$$
$$\rightarrow A^{+} + B^{-} \quad \text{(c)}$$
$$\rightarrow AB + h\nu \quad \text{(d)}$$

Prozess (a) beschreibt die Autoionisation, bei der das Molekül analog zur direkten Ionisation in einen angeregten Zustand des Molekülions unter Emission eines Elektrons zerfällt. Bei Prozess (b) dissoziiert das neutrale Molekül in zwei neutrale (in der Regel noch elektronisch angeregte) Fragmente. Weitere Prozesse, die im Allgemeinen jedoch deutlich seltener auftreten, sind die Bildung eines Ionenpaars (c) oder molekulare Fluoreszenz (d) des Moleküls selber. Die Anteile dieser einzelnen

Prozesse werden sowohl durch die Anregungsenergie als auch den genauen Zustand bestimmt, in den angeregt wurde. Abb. 1.5 zeigt die relativen Anteile von (Auto-)Ionisation, Fluoreszenz und Dissoziation für verschiedene elektronische Zustände und Vibrationsquantenzahlen von Wasserstoff in superexcited states nach Anregung mit Synchrotronstrahlung mit einer Energie von 15,41 eV bis 16,57 eV [GMJS10].

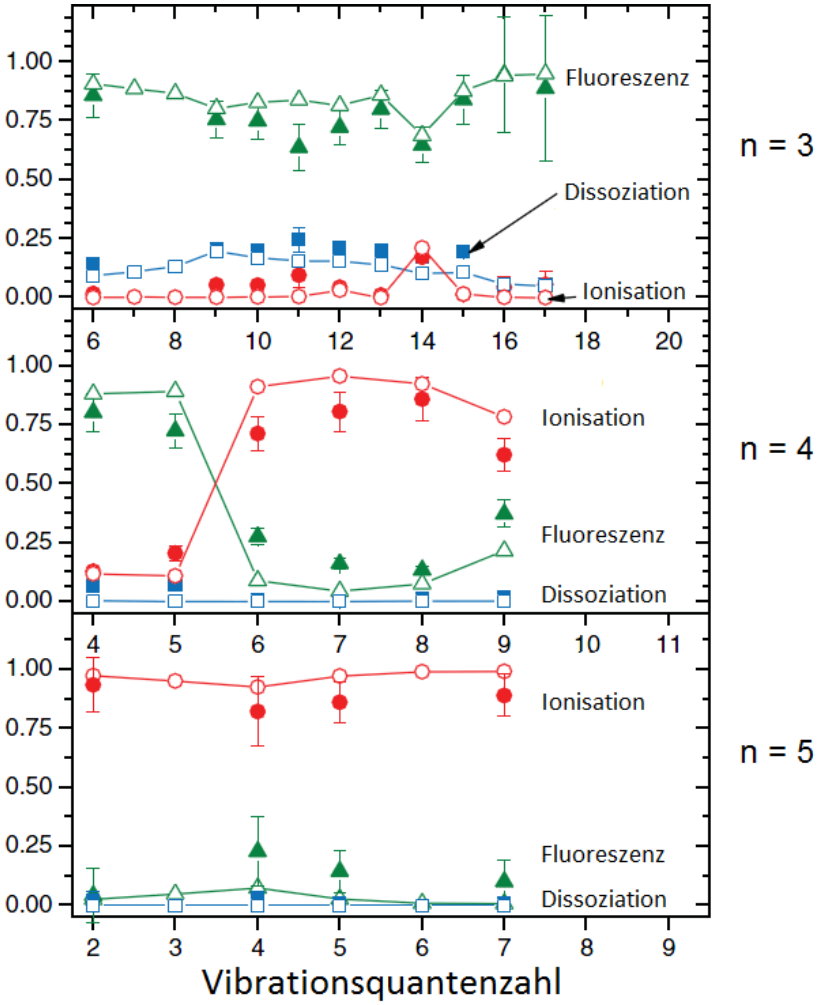


Abb. 1.5: Anteile der konkurrienden Zerfallskanäle für den Zerfall von superexcited states aufbauend auf den Rydberg-Zuständen $3p\pi D$, $4p\pi D'$, $5p\pi D''$ im Wasserstoff nach Anregung mit Synchrotronstrahlung mit einer Energie von 15,41 eV bis 16,57 eV. Aus [GMJS10].

Die Systematik von superexcited states wird abgeleitet von den Anregungszuständen des Wasserstoffmolekülions X, A, ...und entsprechend mit Q_1, Q_2, ... bezeichnet [OMK04]. Abb. 1.6 zeigt den oberen Teil der bereits in Abb. 1.2 gezeigten Potenti-

alkurven des Wasserstoffmoleküls mit entsprechender Markierung der superexcited states.

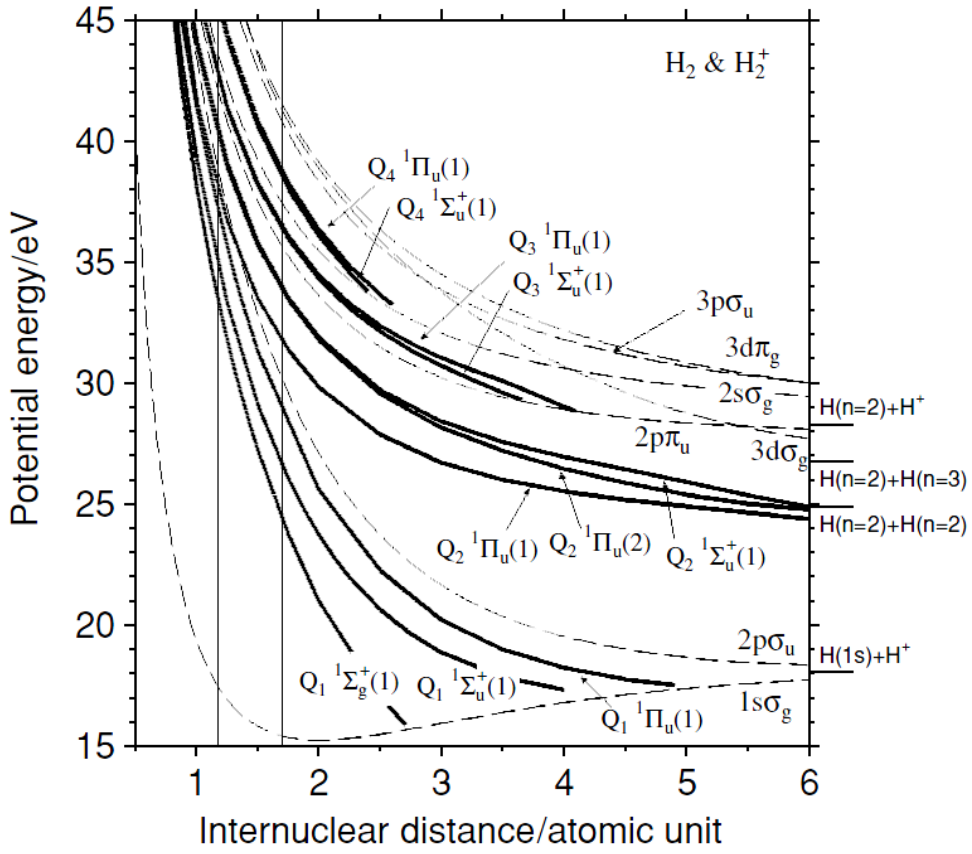
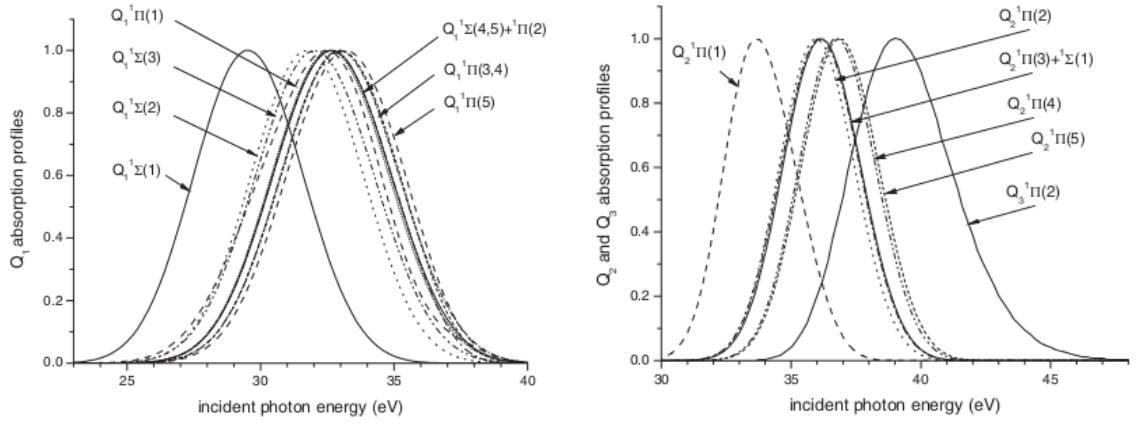


Abb. 1.6: Potentialkurven der superexcited states (durchgezogene Linie) [SM97, SM99] des Wasserstoffmoleküls ausgehend von den Zuständen des Wasserstoffmolekülions (gestrichelte Linie) [Sha70]. Aus [OMK04].

1.4 Stand der Forschung

1.4.1 Wirkungsquerschnitte und Zerfallskanäle

Aus theoretischen Betrachtungen beispielsweise in [GMS05] sind die Absorptionswirkungsquerschnitte bei Absorption von elektromagnetischer Strahlung für die superexcited states von Wasserstoffmolekülen bekannt, Abb. 1.7 zeigt die nicht relativ normierten Profile für Zustände aus den Reihen Q_1, Q_2 und Q_3.



(a) Q_1 **(b)** Q_2 und Q_3

Abb. 1.7: Wirkungsquerschnittsprofile für superexcited states bei Anregung mit elektromagnetischer Strahlung mit einer Energie zwischen 24 und 47 eV für die superexcited states aus den Reihen Q_1, Q_2 und Q_3. Die Intensitäten sind nicht aufeinander normiert. Aus [GMS05].

Von besonderem Interesse für diese Arbeit ist die Betrachtung des Wirkungsquerschnittes für die Entstehung von zwei H($2p$)-Fragmenten nach der neutralen Dissoziation eines Wasserstoffmoleküls in einem superexcited state, die dann koinzident über den Ly_α Prozess, d.h. dem Übergang von H($2p$) zu H($1s$), fluoreszieren. Abb. 1.8 zeigt die Ergebnisse für den relativen Wirkungsquerschnitt für die einfache sowie koinzidente Ly_α-Fluoreszenz [OMK04].

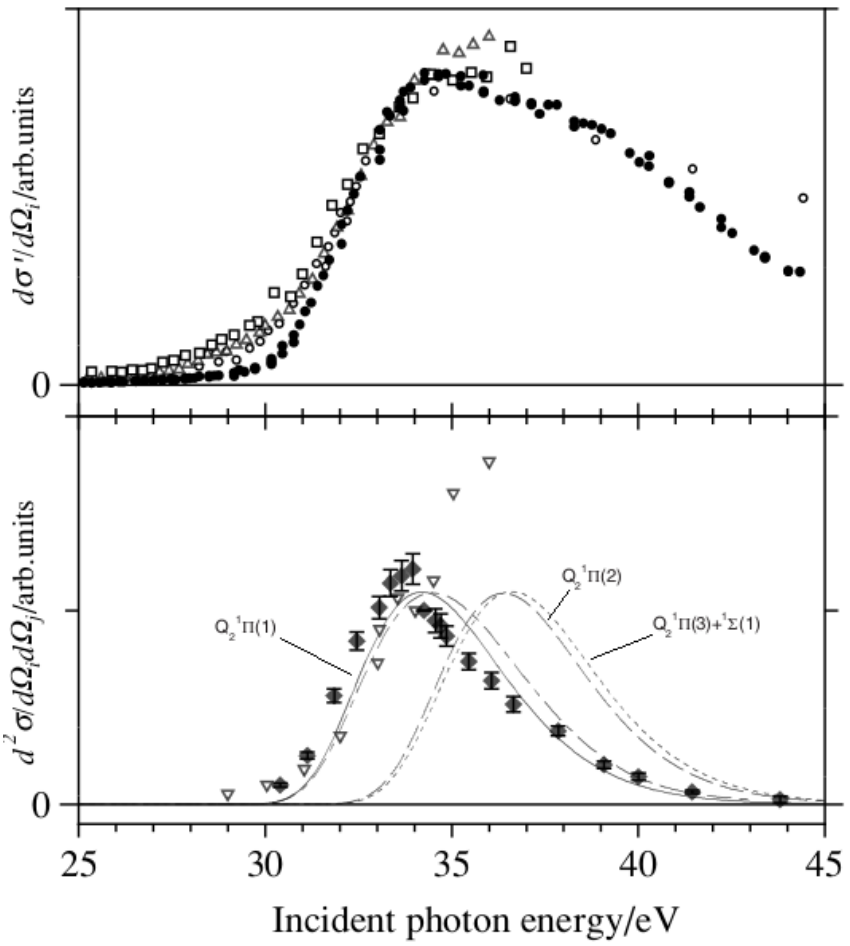


Abb. 1.8: Einfacher ($\mathrm{d}\sigma'/\mathrm{d}\Omega$) und koinzidenter ($\mathrm{d}^2\sigma/\mathrm{d}\Omega_i\mathrm{d}\Omega_j$) Wirkungsquerschnitt für Ly_α Fluoreszenz in willkürlichen Einheiten (arb. units) bei Anregung mit Photonen verschiedener Energie (Incident photon energy) in eV. Ausgefüllte Kreise (oben) beziehungsweise Rauten (unten) sind experimentelle Messungen aus [OMK04], Dreiecke (oben/unten) aus [AKU88], leere Kreise (oben) aus [GM86] und leere Rechtecke aus [GM88]. Alle Daten sind normiert aufeinander bei 34 eV. Die Kurven sind jeweils Anpassungen der theoretischen Wirkungsquerschnitte für die Absorption der einzelnen superexcited states an die Daten aus [OMK04]. Aus [OMK04].

Auf der Grundlage dieser Daten wird in den bisherigen Arbeiten zur Ly_α-Koinzidenz [AKU88, OMK04] der größte Anteil der $\mathrm{H}(2p)$-Paarproduktion im Zustand $Q_2\,^1\Pi_u(1)$ vermutet, der als Q_2 Zustand auf dem $(2p\pi_u)$ Orbital des Wasserstoffmoleküls basiert und im Allgemeinen damit bei neutraler Dissoziation zu $\mathrm{H}(2l') + \mathrm{H}(nl)$ zerfällt.

Dies ist der niedrigste superangeregte Zustand, der bei neutraler Dissoziation zu zwei angeregten Wasserstoffatomen führen kann; die darunterliegenden Q_1 Reihe zerfällt in Fragmente der Konfiguration H($1s$) + H(nl) [GMS05]. Diese Arbeit benutzt damit dieses gefundene Maximum im Anregungsquerschnitt für $2p$-$2p$-Fragmente aus dem Zustand $Q_2\,{}^1\Pi_u(1)$ bei einer anregenden Energie von $E = 33{,}66\,\mathrm{eV}$.

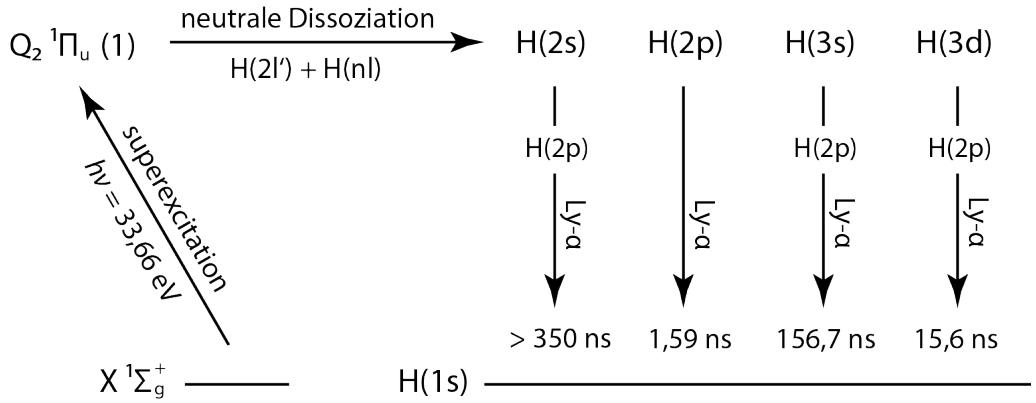


Abb. 1.9: Zerfallskanäle mit Ly$_\alpha$-Fluoreszenz für angeregte Fragmente nach neutraler Dissoziation des Zustands $Q_2\,{}^1\Pi_u(1)$ von H_2 mit der Lebensdauer der beteiligten atomaren Zustände. Der H($2s$) kann dabei in H($2p$) über Quenchprozesse übergehen [RCM77], während H($3s$) und H($3d$) direkt über H$_\alpha$-Fluoreszenz in H($2p$) übergehen [VN82].

Neben der direkten Fluoreszenz von H($2p$) mit einer natürlichen Lebensdauer von $\tau_{2p} = 1{,}59\,\mathrm{ns}$ können auch beim Zerfall von anderen angeregten Zuständen des Wasserstoffatoms Ly$_\alpha$-Fluoreszenz auftreten [VN82] wie in Abb. 1.9 skizziert: Die Zustände $3s$ und $3d$ zerfallen über Kaskaden mit einer Lebensdauer von $\tau_{3s} = 156{,}7\,\mathrm{ns}$ und $\tau_{3d} = 15{,}6\,\mathrm{ns}$. Der $2s$-Zustand geht über Quench-Prozesse [RCM77] in den $2p$-Zustand über mit einer Lebensdauer von $\tau_{2s} > 350\,\mathrm{ns}$.

1.4.2 Druckeffekt der Lebensdauer und Winkelverteilung

Tanabe et al. zeigen in [TON10] Messungen der koinzidenten Ly$_\alpha$ Fluoreszenz nach Anregung mit Synchrotronstrahlung einer Energie von 33,66 eV und anschließender neutraler Dissoziation der Wasserstoffmoleküle in superexcited states. Im Koinzidenzzeitspektrum $K(\Delta t)$, welches die Häufigkeit einer bestimmten Zeitdifferenz Δt

zwischen den eingesetzten Detektoren beschreibt, wird hierfür ein exponentieller Zerfall erwartet wie ihn (1.9) beschreibt mit derselben Zerfallskonstante beziehungsweise Lebensdauer. Für die Population

$$N(t) = N_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right)$$

des angeregten Zustandes, der über Ly_α-Fluoreszenz zerfällt, ergibt sich im Koinzidenzzeitspektrum $K(\Delta t)$ für den Fall von zwei Detektoren nämlich ein Ausdruck, der proportional zum Produkt der Population zu verschiedenen Zeitpunkten ist. Zur Betrachtung einer abgeschlossenen Messung wird dieser noch über die Zeit (d.h. von Beginn bis zum Ende der Messung) integriert. Dieses Ergebnis zeigt dann die Beziehung zwischen dem Koinzidenzzeitspektrum und der zeitabhängigen Population eines Zustandes

$$\begin{aligned} K(\Delta t) &\propto \int N(t)\, N(t+\Delta t)\, \mathrm{d}t = \int N(2t)\, N(\Delta t)\, \mathrm{d}t \\ &= N(\Delta t) \underbrace{\int N(2t)\, \mathrm{d}t}_{\text{const}} \propto N(\Delta t) \end{aligned} \tag{1.21}$$

mit einem exponentiellen Zerfall der Lebensdauer Δt. Ein Vertauschen der Detektoren entspricht negativen Zeitdifferenzen und einer Spiegelung an der y-Achse.

Entgegen dieser Erwartungen zeigte sich in [TON10] bei den zwei verschiedenen Drücken von 400 mPa und 20 mPa ein Unterschied in der Lebensdauer um den Faktor 2. Abb. 1.10 zeigt das Koinzidenzzeitspektrum dieser Messungen für die genannten Drücke mit exponentiellen Zerfallskurve, die an die Daten angepasst sind.

Dieser Effekt wird der Verschränkung des Paares von $\mathrm{H}(2p)$ Atomen zugeschrieben, die bei der neutralen Dissoziation des superexcited state $Q_2\,{}^1\Pi_u(1)$ (siehe Vergleich der Zerfallskanäle in 1.4.1) nach Anregung mit Synchrotronstrahlung bei 33,66 eV entstehen. Bei einem geringeren Druck kann ein größerer Teil dieser Paare die Verschränkung erhalten, ohne sie durch Stöße zu verlieren. In [TON10] wird damit postuliert, dass die natürliche Lebensdauer der angeregten Zustände durch die Dissoziation des superexcited state beeinflusst wird.

Die Übertragung dieser Verschränkung auf das erzeugte Ly_α Photonenpaar führt darüber hinaus zu einer Anisotropie der Fluoreszenzemission aus den neutralen Frag-

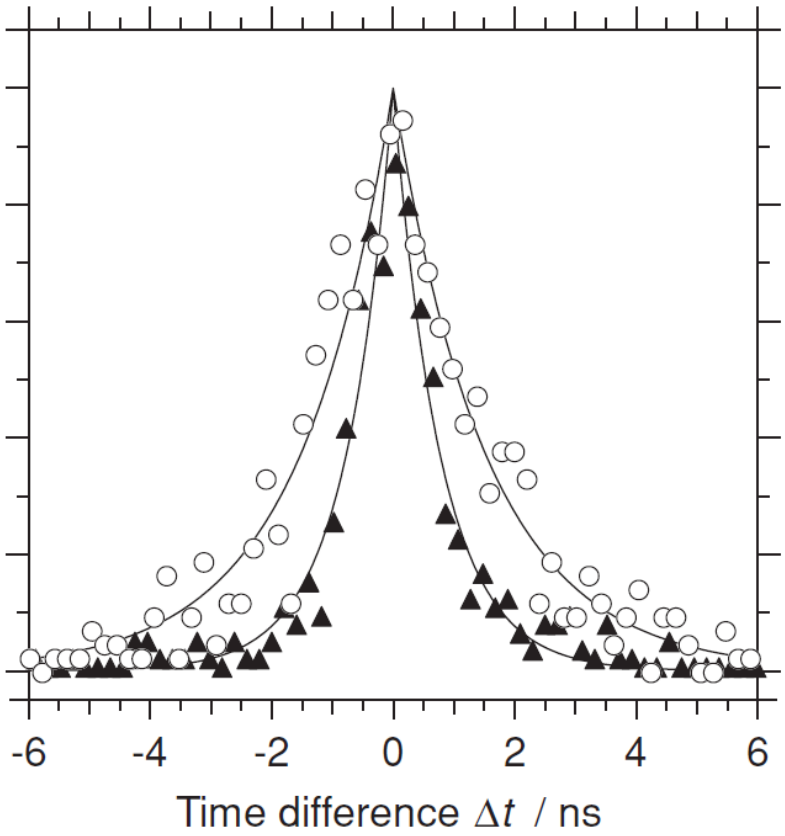


Abb. 1.10: Koinzidenzzeitspektrum von Ly_α-Fluoreszenz bei Drücken von 400 mPa (Kreis) mit einer Lebensdauer der Fluoreszenz von $\tau = (1{,}54 \pm 0{,}08)$ ns und 20 mPa (Dreieck) mit $\tau = (0{,}78 \pm 0{,}04)$ ns nach neutraler Dissoziation von H_2 in superexcited states. Aus [TON10].

menten. Dieses Ergebnis wurde theoretisch betrachtet in [MIK07, JDH10], Abb. 1.11 zeigt die Winkelkorrelation für zufällig im Raum orientierte Wasserstoffmoleküle bei Anregung durch linear polarisiertes elektromagnetische Strahlung mit den beiden Winkeln θ_n, θ_m der Detektoren zur Polarisationsebene der einfallenden Strahlung.

Die experimentelle Bestätigung hierfür geben Messungen aus [TON09, TON10], ein Vergleich mit den zuvor vorgestellten theoretischen Vorhersagen zeigt Abb. 1.12. Die Detektoren wurden hier in einem festen Abstand von 180°, also gegenüberliegend, angebracht und dann relativ zur Polarisationsebene der linear polarisierten Synchrotronstrahlung gedreht. Wie erwartet ergibt sich für eine Ausrichtung direkt senkrecht zur Polarisationsebene die maximale Fluoreszenzintensität in Koin-

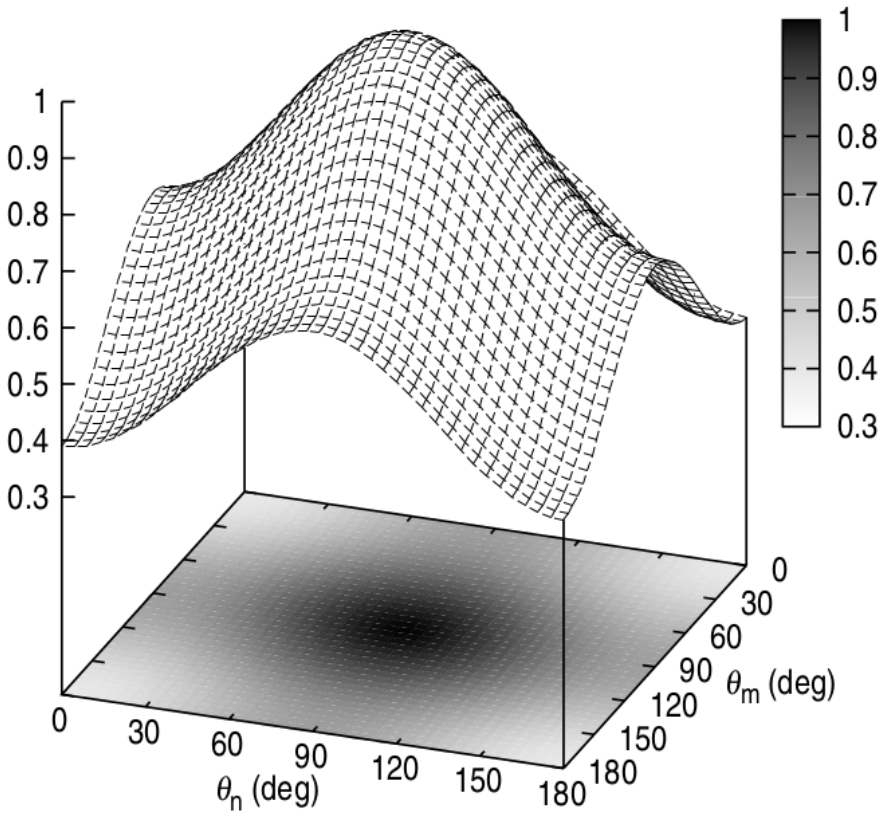


Abb. 1.11: Berechnete Winkelkorrelation der koinzidenten Fluoreszenz gemessen von zwei Detektoren nach neutraler Dissoziation von zufällig im Raum orientiertem H_2 in superexcited states. Die beiden Detektorwinkel θ_n, θ_m sind jeweils die Ausrichtung zur Polarisationsebene der linear polarisierten einfallenden Strahlung. Aus [JDH10].

zidenz. Auch diese Messungen wurden bei verschiedenen Drücken von 400 mPa und 130 mPa durchgeführt und zeigen eine bessere Anpassung an die Theorie mit sinkendem Druck, wobei die beiden zuvor erwähnten Theorien (aus jeweils [MIK07] und [JDH10]) auch deutliche Unterschiede zeigen bei einer Ausrichtung parallel zur Polarisationsebene.

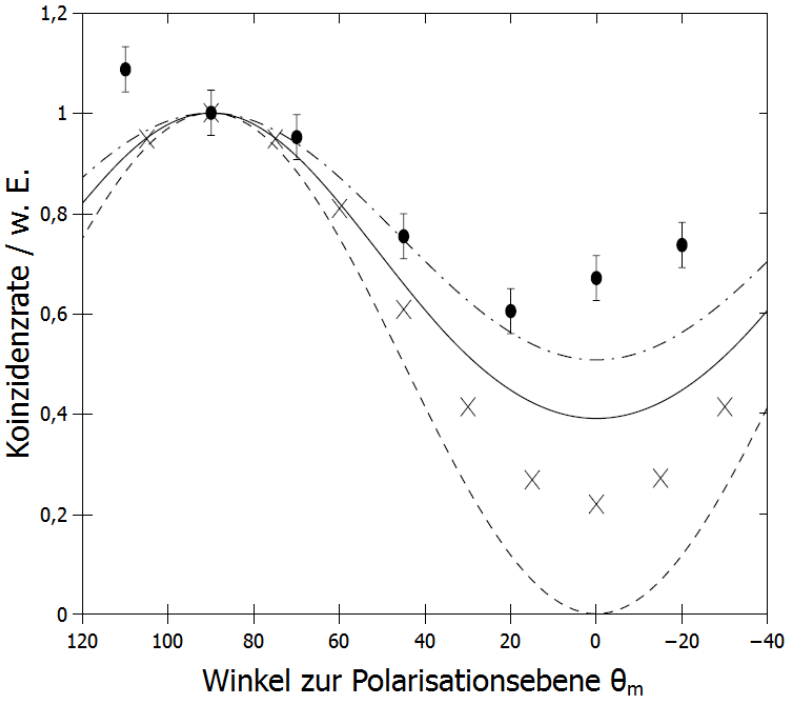


Abb. 1.12: Winkelkorrelation von koinzidentem Ly_α nach neutraler Dissoziation von H_2 in superexcited states. Die beiden Detektoren haben einen festen Abstand von 180°, θ_m ist der Winkel eines Detektors zur Polarisationsebene der einfallenden Synchrotronstrahlung. Die ausgefüllten Kreise zeigen Messdaten von [TON09] bei 130 mPa, die durchgezogene und Punkt-Strich-Kurve (gefaltet mit Apparatsfunktion) die Berechnungen aus [JDH10], die gestrichelte Kurve und Kreuze (gefaltet mit Apparatsfunktion) die Berechnungen aus [MIK07].

2 Experiment

Der für die Koinzidenzmessungen benutzte Aufbau wird zusammen mit dem benutzten Strahlrohr BW3 der Synchrotronstrahlungsquelle DORIS III am Forschungszentrum DESY in Hamburg in diesem Kapitel vorgestellt. Daran schließt sich eine Beschreibung der in Kassel aufgebauten Fernfokuskathode an, die zur Messung des Wasserstoffspektrums im Bereich von 35 nm bis 220 nm und zur Spektrometerkalibrierung [KBS12] genutzt wurde.

2.1 Synchrotronstrahlungsquelle

Die elektromagnetische Strahlung, die radial beschleunigte geladene Teilchen mit Geschwindigkeiten nahe der Lichtgeschwindigkeit emittieren, wird als Synchrotronstrahlung bezeichnet; benannt nach der ersten Beobachtung bei der Beschleunigung von Elektronen in einem Synchrotron [EGL47, Pol83]. Während sich diese Strahlung im Ruhesystem des Teilchens wie klassische Dipolstrahlung ausbreitet, führen relativistische Effekte über die Lorentztransformation zu einer starken Bündelung in Bewegungsrichtung im Laborsystem. Diese Eigenschaft zusammen mit der Manipulierbarkeit der spektralen Verteilung durch die Energie und Ablenkung wird in Synchrotronstrahlungsquellen genutzt, um elektromagnetische Strahlung hoher Intensität über einen großen Spektralbereich einstellbar zu machen. Da die abgestrahlte Leistung proportional zu E^4/m^4 der Teilchen ist [Jac99], werden hierfür möglichst leichte Teilchen genutzt wie Elektronen oder Positronen.

Die ersten Generationen von Synchronstrahlungsquellen erzeugten die Strahlung an

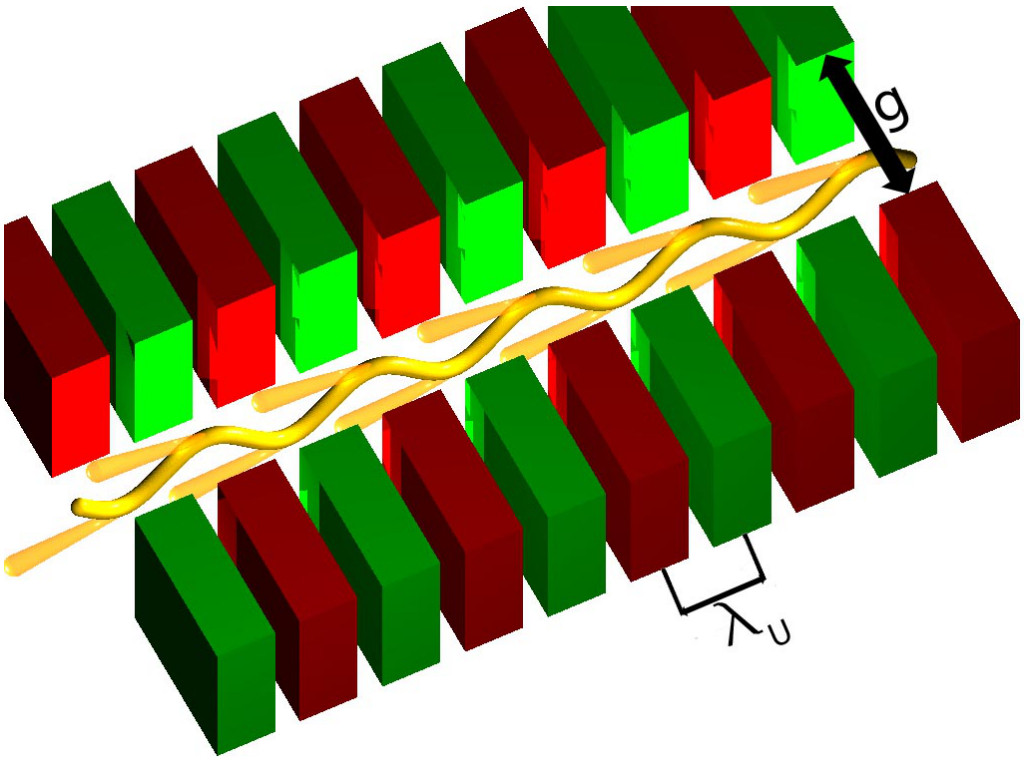


Abb. 2.1: Schematische Darstellung einer Wiggler- oder Undulatorstruktur [Kie06] mit der oszillierenden Teilchenbahn, die in Bewegungsrichtung Synchrotronstrahlung emittiert. Die relevanten geometrischen Parametern eines solchen Aufbaus sind der Abstand g und die Periodenlänge λ_U.

den Ablenkmagneten, welche die Teilchen auf der Kreisbahn eines Ringbeschleunigers halten. In heutigen Quellen der dritten Generation werden hingegen auf den geraden Abschnitten sogenannte insertion devices platziert, die durch eine periodische Magnetfeldstruktur die Teilchenbahnen transversal oszillieren lassen. Durch die starke Bündelung der Synchrotronstrahlung in Bewegungsrichtung ist auf diese Weise eine deutlich höhere Intensität nutzbar als bei einem einfachen Dipolmagnet. Je nach der maximalen Ablenkung der Teilchen von ihrer geraden Bahn werden diese in Abb. 2.1 skizzierten Strukturen als Wiggler oder Undulator bezeichnet. Dies gibt der dimensionslose Parameter K wieder, der definiert ist als das Produkt aus Lorentzfaktor γ und der maximalen Winkelablenkung ψ_0 des Teilchenstrahls, aber auch durch die Periode λ_U der magnetischen Struktur, die Stärke B des Magnetfelds sowie die entsprechenden Teilcheneigenschaften $\beta = v/c$, Masse und Ladung (hier für Elektronen oder Positronen mit Masse m_e und Ladung $|q| = e$) ausgedrückt werden

kann [Jac99]:

$$K = \gamma\psi_0 = \frac{eB\lambda_U}{2\pi\beta m_e c} \tag{2.1}$$

Ein Wiggler arbeitet im Bereich $K \gg 1$ und erzeugt auf diese Art in der Ausbreitungsrichtung des Teilchenstrahls eine gepulste Strahlung (durch den großen Auslenkungswinkel) mit einem breiten kontinuierlichen Spektrum ähnlich der eines Ablenkmagnets. Die Intensität steigt jedoch um den Faktor N mit N Perioden der Magnetfeldstruktur [Jac99].

Für $K \ll 1$ kann die Auslenkung der Emissionsrichtung der Synchrotronstrahlung vernachlässigt werden und es entsteht eine nahezu kontinuerliche Emission in Bewegungsrichtung, solange sich das Teilchen im Undulator befindet. Durch diese Superposition der entstehenden elektromagnetischen Strahlung besteht das Spektrum eines Undulators theoretisch aus einzelnen Linien bei definierten Frequenzen, in der Praxis führt die endliche Länge und Dopplerverschiebung zu verbreiterten Linien im Laborsystem wie in Abb. 2.2 dargestellt [Jac99].

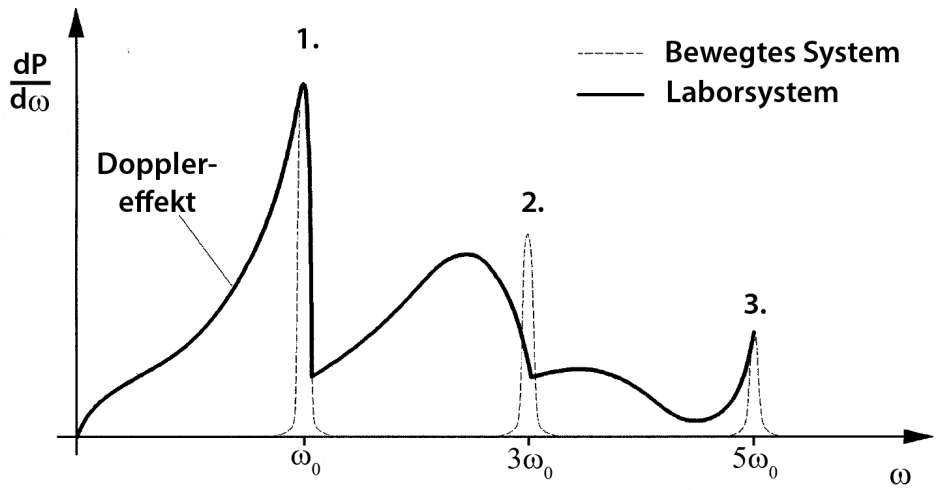


Abb. 2.2: Spektrum eines Undulators [Wil96] im Ruhesystem des Teilchens (gestrichelt) und im Laborsystem (durchgezogen) mit der Frequenz ω_0 der ersten Harmonischen.

Da diese spektrale Verteilung eines insertion devices neben der Energie des Teilchens auch von der eingesetzten Magnetfeldstärke abhängt, die anders als bei einem Ablenkmagneten leicht durch den Abstand der Magneten variiert werden kann, ist diese

für jede Apparatur individuell einstellbar. Bei einer entsprechend gewählten Geometrie der Magnetfeldstruktur ist es weitergehend möglich, nicht nur streng linear polarisiertes Licht zu erzeugen, sondern auch elliptische Polarisation mit beliebigen Halbachsen und Orientierungen [Wil96].

2.1.1 DORIS III

Der 1974 auf dem Gelände des Deutschen Elektronen-Synchrotrons DESY fertiggestellte Teilchenbeschleuniger DORIS (**Do**ppel-**Ri**ng-**S**peicher) hat einen Umfang von etwa 300 m und wurde ursprünglich genutzt als Doppelring für die gleichzeitige Speicherung von Elektronen und Positronen mit anschließenden Kollisionsexperimenten bei Energien bis zu 5 GeV pro Teilchen. Eine der herausragenden Entde-

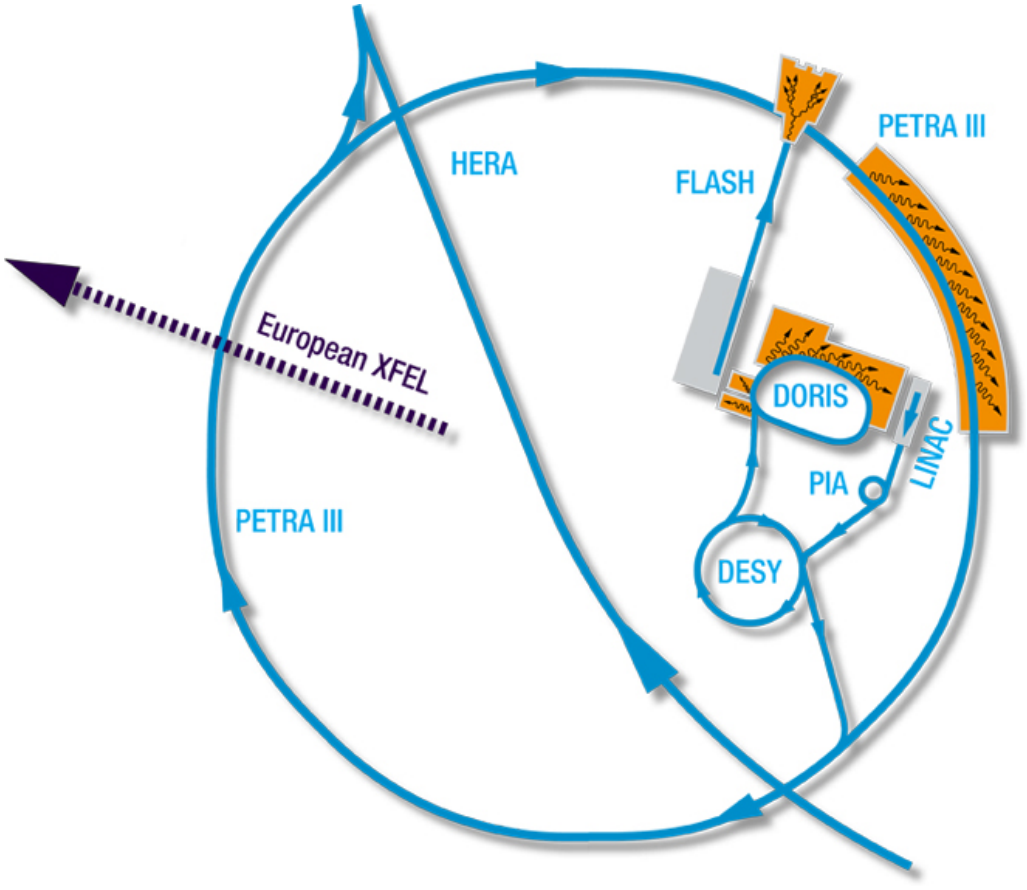


Abb. 2.3: Überblick über die Teilchenbeschleuniger auf dem DESY Gelände [DES12].

ckungen ist hier der Beitrag zum Nachweis für die Umwandlung des B-Mesons in sein Antiteilchen im ARGUS Detektor im Jahr 1987 [A87c, A87b, A87a]. Während der ARGUS Detektor bis 1993 noch für Teilchenkollision genutzt wurde, begann im Jahr 1980 der Umbau zu einer Synchrotronstrahlungsquelle mit dem Einbau von Wigglern und Undulatoren ab 1984. Insgesamt besitzt DORIS III heute 33 Strahlrohre vom infraroten Spektralbereich bis hin zu harter Röntgenstrahlung [Pfl92], die Synchrotronstrahlung wird erzeugt aus 2, 5 oder 10 Bunchen im Abstand von jeweils 480 ns, 192 ns oder 96 ns bei einer Energie von 4,5 GeV; der Großteil der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen erfolgte bei 10 Bunchen. Um die Lebensdauer und Stabiltät des Strahls zu erhöhen, werden aufgrund des geringeren Wirkungsquerschnittes mit Restgas in der Regel Positronen statt Elektronen beschleunigt [Bri05]. Der Ringstrom beträgt 140 mA direkt nach einer Injektion und fällt über einen Zeitraum von 6 Stunden auf ungefähr 80 mA, wenn neue Teilchen in den Ring injiziert werden. Das Injektionssystem besteht dabei aus dem 32 Meter langen Linearbeschleuniger LINAC III, auf den der Kreisbeschleuniger PIA mit 29 m Umfang folgt, der die im Linearbeschleuniger erzeugten und vorbeschleunigten Positronen sammelt. Bei einer ausreichenden Intensität werden diese dann im 293 m langen Synchrotron DESY II auf die Endenergie beschleunigt und in DORIS III oder PETRA III, ein weiteres Synchrotron auf dem DESY Gelände das heute als Synchrotronstrahlungsquelle genutzt wird, injiziert.

2.1.2 Strahlrohr BW3

Dieses Strahlrohr wurde 1992 erstmals in Betrieb genommen [LBB93, Mö93] und steht speziell für die von Nutzern bereitgestellten Experimente zur Verfügung. Es deckt mit 15 bis 2000 eV einen sehr großen Energiebereich ab mit einer besonders geringen Minimalenergie. Durch einen sogenannten Revolverundulator kann die magnetische Struktur gewechselt werden, wobei zwei verschiedene Strukturen mit jeweils 21 und 44 Perioden zur Verfügung stehen, um über weite Teile jenes Energiebereiches einen hohen Photonenfluss von $\geq 10^{12}\,\mathrm{s}^{-1}$ zu erreichen. In dem Plangittermonochromator auf Basis eines *Zeiss SX700* stehen weiterhin zwei goldbeschichtete Gitter mit $1200\,\mathrm{mm}^{-1}$ Linien für den oberen und $366\,\mathrm{mm}^{-1}$ Linien für den unte-

ren Energiebereich zur Verfügung. Für die Energie von 33,66 eV im Rahmen dieser Arbeit wurde entsprechend der Undulator mit 21 Perioden sowie das Gitter mit $366\,\mathrm{mm}^{-1}$ Linien verwendet. Der Austrittsspalt ist von wenigen µm verstellbar bis auf 800 µm, wobei hier die Messungen bei maximal geöffnetem Spalt durchgeführt wurden. Laut der im Handbuch des Strahlrohres [BW3] vermerkten empirischen Gleichung ergibt sich für Bandbreite damit bei der eingestellten Photonenenergie E und Spaltbreite s:

$$\Delta E = \frac{2{,}16 \cdot 10^{-4}}{\mathrm{mm}\sqrt{\mathrm{eV}}} \cdot E^{1{,}5} \cdot s \approx 40\,\mathrm{meV}$$

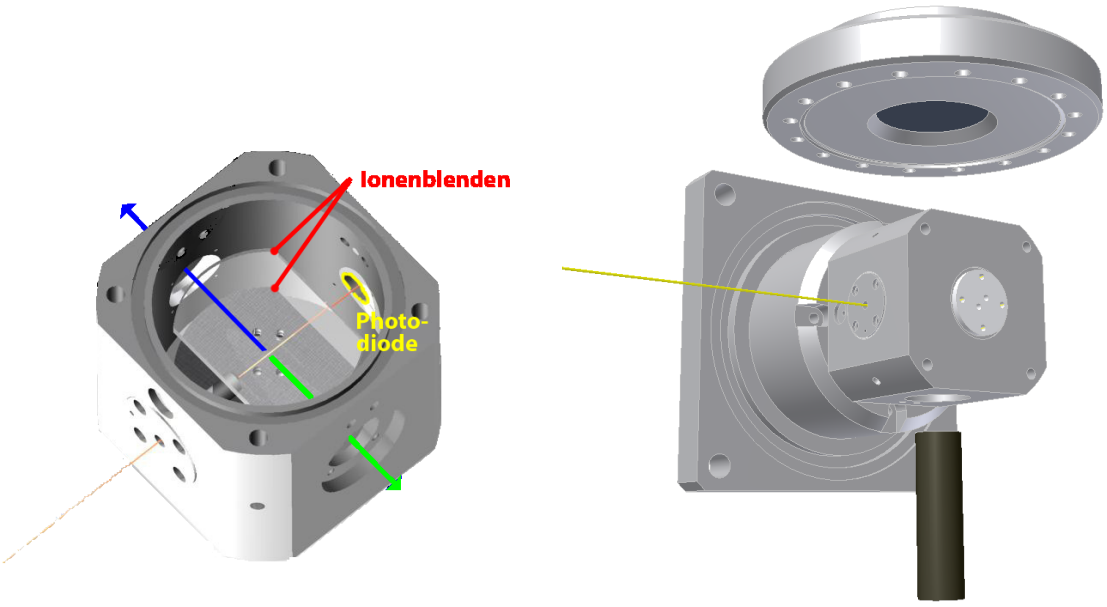
2.2 Koinzidenzaufbau

Der in dieser Arbeit verwendete Aufbau ermöglicht die koinzidente Detektion von Ly_α Photonen, die im Wechselwirkungsvolumen durch das mit Synchrotronstrahlung angeregte Wasserstoffgas entstehen. Abb. 2.4(a) zeigt den inneren Aufbau der Targetzelle in der Experimentierkammer und Abb. 2.4(b) die Positionierung der Detektoren dazu.

Die Targetzelle besitzt vier Öffnungen entlang einer Ebene. In der hier verwendeten Anordnung ist nur die zum Strahlrohr gerichtete Seite offen, an der gegenüberliegenden Seite sitzt eine *Hamamatsu* Photodiode zur Messung der Intensität der Synchrotronstrahlung, deren Strom bestimmt wird mit einem *Keithley 617* Amperemeter. Die anderen beiden Öffnungen sind mit je einem MgF_2 Fenster versehen, um nur Strahlung mit einer Wellenlänge von mehr als $\lambda \approx 115\,\mathrm{nm}$ durchzulassen [DS58]. Dahinter ist jeweils einer der beiden Detektoren zur Messung der Fluoreszenz angebracht.

Im Inneren der Targetzelle befinden sich weiterhin noch zwei Ionenblenden, die als Plattenkondensatoren ausgeführt sind. Durch Anlegen einer kleinen Spannung von $U = 10\,\mathrm{V}$ können die bei der Anregung entstehenden Ionen an eine Platte abgeführt und als Strom gemessen werden, hier mit einem *Keithley 6514* Amperemeter.

Der Gaseinlass befindet sich an der Oberseite in Abb. 2.4(a) beziehungsweise am



(a) (b)

Abb. 2.4: Innerer Aufbau der Targetzelle (a) mit den beiden Fluoreszenzfenster in blau und grün sowie Targetzelle von außen (b) am Anschlussflansch mit Anbringung der Detektoren (DLD oben, PM unten).

Flansch an der Hinterseite in Abb. 2.4(b) und verbindet die Targetzelle mit der Experimentierkammer. Das Gas wird aus einer Minican über ein *Balzers RME 010* Magnetventil in die Zelle eingelassen, das über ein *Balzers RVG 040* auf einen konstanten Druck regelt. Dieser wird dabei mit einem *MKS Baratron 310CA-0001* bestimmt, das über einen *MKS Type 2403 Signal Conditioner* ausgelesen wird.

Der eine Detektor ist der in Abschnitt 2.4.1 beschriebene ortsauflösende *Photek PMT240* und wird im Folgenden als DLD bezeichnet. Die Spannungsversorgung geschieht durch ein *BA Model 205A-05R* Hochspannungsnetzteil auf $U_{\mathrm{DLD}} = -3100\,\mathrm{V}$ mit einer internen Spannungsteilung.

Der zweite Detektor ist ein *Hamamatsu R1460* Photomultiplier (PM) aus Abschnitt 2.4.2. Dieser wird durch ein *FuG HCN 7e-3500* mit einer Spannung von $U_{\mathrm{PM}} = -1400\,\mathrm{V}$ und interner Spannungsteilung versorgt.

Das Zeitsignal des DLD gelangt vorverstärkt in einen Constant Fraction Discrimi-

nator (CFD) des Typs *Tennelec TC454 Quad CFD*, während die Ortssignale zuvor noch zusätzlich durch einen *RoentDek PreFAMP6* vorverstärkt werden. Die Verstärkung des PM Signals geschieht durch einen *GSI Quad Fast Amplifier FA 4000* und gelangt anschließend in die CFDs.

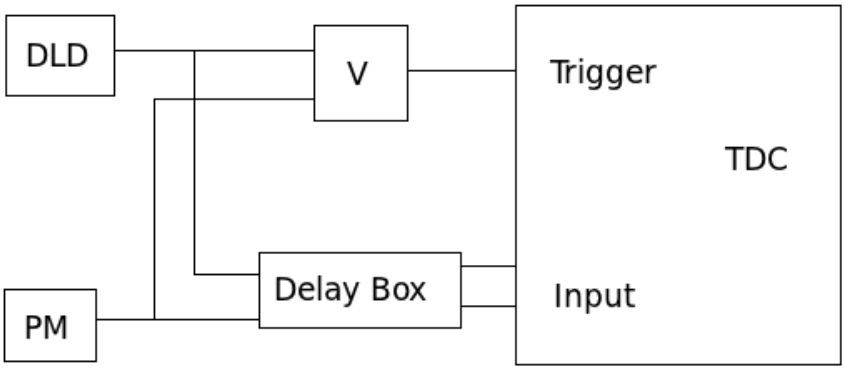


Abb. 2.5: Schematische Darstellung der Messelektronik. Das zuerst einsetzende Messsignal von entweder dem DLD oder dem PM löst über die logische ODER-Einheit (V) den Auslöser des TDC aus. Der relative Zeitpunkt beider Signale dazu wird dann am Eingang mit einer zusätzlichen konstanten und bekannten Verzögerung gemessen.

Abb. 2.5 zeigt den weiteren Aufbau der Signalauswertung der Detektoren. Ein Time to Digital Converter (TDC) *Agilent Acqiris TC840* wird ausgelöst, sobald der Photomultiplier oder das Zeitsignal des DLDs ein Ereignis messen. Beide sind dabei über eine *LRS Modul 365 ALP 4-Fold Logic Unit* an den Trigger des TDC angeschlossen. Das mit einer *EG&G/Ortec Model DB 463 Delay Box* verzögerte Messsignal beider Detektor gelangt dann in die Messeingänge des TDC, der wiederum ausgelesen wird durch eine *NI PCI-6110* Messkarte im Messrechner. Die Verzögerung stellt sich, dass auch das auslösende Signal noch am Eingang registriert wird. Der TDC misst damit die Zeitdifferenz des auslösenden Signals aus der Logikeinheit zu dem Zeit- und Ortssignal des DLD, dem PM sowie des Bunchmarkers von DORIS III in Einheiten von 50 ps. Wenn innerhalb von $t_{\text{out}} = 5\,\mu\text{s}$ (100.000 Zeiteinheiten) kein Signal an jedem der Eingänge des TDC angekommen ist, so wird das Ereignis verworfen und wieder auf einen Auslöser gewartet.

Über eine *NI Analog Input Box* werden weiterhin die Ströme der beiden verwendeten Amperemeter für Photodiodenstrom und Ionenstrom, der Photostrom eines im Strahlrohr befindlichen Goldnetzes sowie das Drucksignal des Baratrons aufgezeichnet.

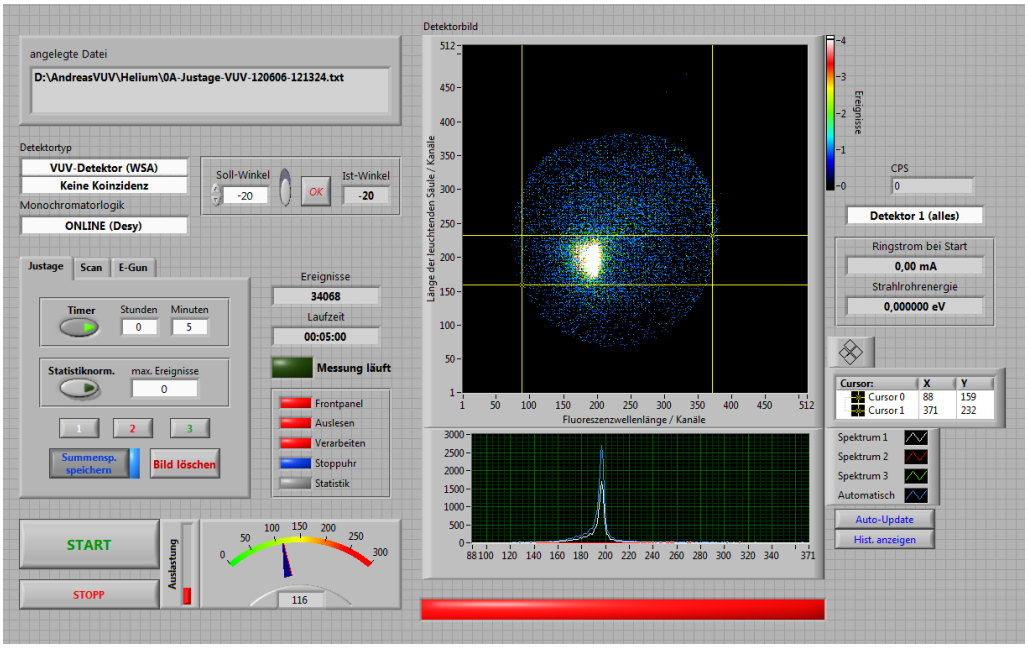


Abb. 2.6: Programmoberfläche des Messprogramms Argus.

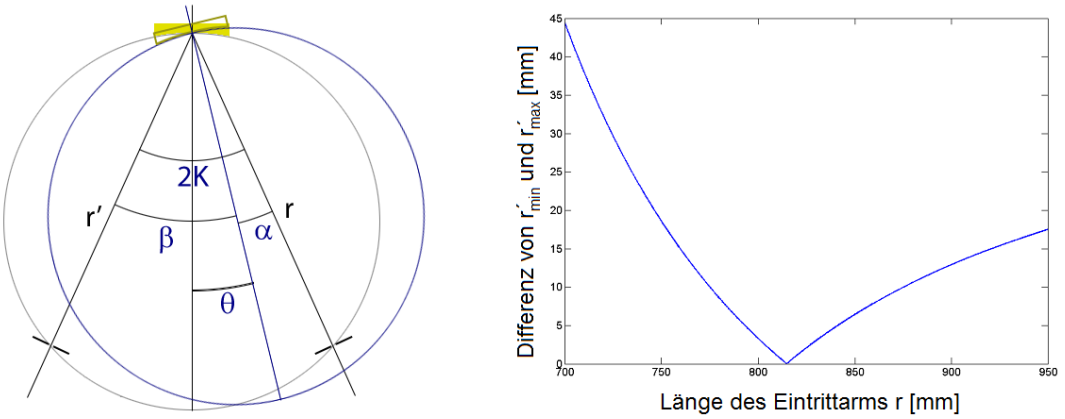
Die Aufnahme der Daten auf dem Messrechner geschieht mit einer modifizierten Version des in LabVIEW implementierten Messprogramms Argus, seinerseits eine Weiterentwicklung des in [Rei10] vorgestellten Programmpakets Knecht. Abb. 2.6 zeigt die typische Programmoberfläche. Die Modifikationen gegenüber der ursprünglichen Ausführung umfassen die Möglichkeit, in Koinzidenz mehrere Detektoren gleichzeitig (hier DLD und PM) aufzunehmen, die Konfiguration des TDC zur Koinzidenzmessung sowie die Steuerung des Strahlrohres BW3 über das dort verwendete ONLINE Protokoll [Kra12a], welches in 2.2.2 näher beschrieben wird.

2.2.1 Seya-Namioka-Spektrometer

Um einen Überblick über das Fluoreszenzspektrum nach Anregung mit Synchrotronstrahlung bei der verwendeten Energie der anregenden Photonen zu erhalten,

kann an den Koinzidenzaufbau auch ein Spektrometer angeschlossen werden. Dazu wird die Experimentierkammer um 90° gedreht und anstatt des DLD der Eintrittsarm eines Seya-Namioka-Spektrometer angebracht, an dessen Austrittsarm wird der DLD wiederum zur Messung der dispergierten Fluoreszenz benutzt.

In einem Spektrometer ergibt sich durch konstruktive Interferenz der Elementarwellen, die von zwei Gitterpunkten ausgehen, für jede Wellenlänge gerade eine Verstärkung für einen bestimmten Phasenunterschied dieser beiden ausgehenden Wellen. Die beobachtete Wellenlänge wird durch den Winkel ausgewählt, unter dem das Gitter betrachtet wird. Die Abbildungspunkte eines sphärischen Gitters liegen auf dem Rowland-Kreis, dessen Durchmesser gerade dem Krümmungsradius des Gitters entspricht. Eine einfache Rotation des Gitters führt jedoch zu einer Verkippung des Rowland-Kreises wie in Abb. 2.7 angedeutet, sodass gleichzeitig eine Verschiebung der optischen Komponenten nötig wäre, um weiterhin eine fokussierte Abbildung der dispergierten Fluosreszenz auf dem Detektor zu halten.



(a) Rowland-Kreis **(b)** Fokusentfernung

Abb. 2.7: Konstruktion der Fokusbedingungen für die Eintrittsarmlänge r, Austrittsarmlänge r', den Monochromatorwinkel $2K$ sowie die Zwischenwinkel α, β, θ mit (a) eingezeichneten Rowland-Kreisen für verschiedene Gitterstellungen (schwarz und blau) und (b) Differenz von maximaler und minimaler Austrittsarmlänge beim Drehen des Gitters mit $R = 1\,\mathrm{m}$ bei verschiedenen Eintrittsarmlängen.

Es ergibt sich jedoch eine geometrische Konstruktion [Sey52, Nam54, Nam59], für

die die Fokusbedingungen bei festen Ein- und Austrittspalten auch bei Verkippung des Gitters erfüllt bleiben. Bei dieser ergibt sich als Bedingungen an die Länge des Eintrittsarms r, des Austrittsarms r' sowie den Gitterradius R:

$$r = r' = R\,\cos(70°15'/2) \qquad \frac{r}{R} = 0{,}818 \tag{2.2}$$

mit dem festen Monochromatorwinkel $2K = 70°15'$. Diese Anordnung wird als Seya-Namioka-Spektrometer bezeichnet und ist in Abb. 2.8 mit dem inneren Aufbau skizziert, wie es in der vorliegenden Arbeit genutzt wird. Die am Austrittsarm betrachtete Wellenlänge wird hier einfach selektiert über eine Rotation des Gitters ohne eine Änderung der Fokusbedinungen zu verursachen.

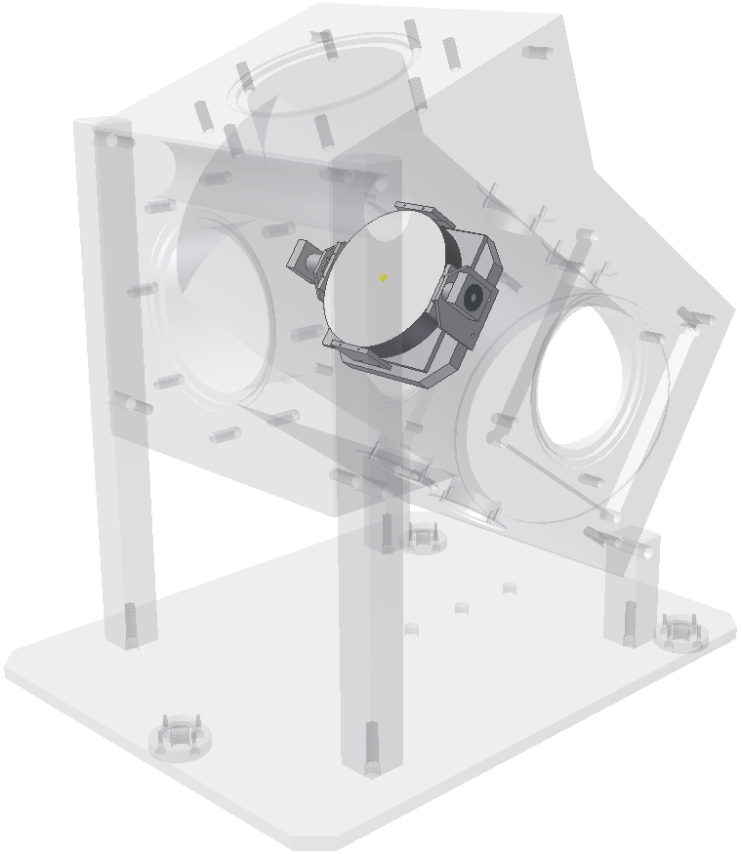


Abb. 2.8: Innerer Aufbau des Seya-Namioka-Spektrometers mit montiertem Gitter.

2.2.2 ONLINE Protokoll

Die Laufzeitumgebung ONLINE [Kra12a] dient an den Strahlrohren von DORIS III zur Steuerung des Strahlrohres selber sowie von dort angeschlossenen Messinstrumenten. Die interne Verarbeitung von Eingaben geschieht dabei im eigentlichen durch SPECTRA [Kra12b], ein Programmpaket zur Analyse und Darstellung von Daten, dessen Kommandozeilenverarbeitung für diesen Zweck erweitert ist um einen interaktiven Betriebsmodus (d.h. kontinuerliche und gleichzeitige Ein- und Ausgabe) sowie eben jene Fähigkeiten zur Steuerung der Apparaturen. Die Bedienung erfolgt über virtuelle Terminals (Kommandozeilenfenster) direkt oder Batch Files (Abfolge von einzelnen Befehlen) auf dem Strahlrohrrechner.

Ebenso ist auch eine Netzwerkkommunikation über das TCP/IP Protokoll von einem externen Rechner aus möglich, um ONLINE Befehle auszuführen. Dazu ist es zunächst nötig, über ein virtuelles Terminal aus dem Strahlrohrrechner einen Server zu starten, auf den dann von außen zugegriffen werden kann. Dies kann synchron (diese Instanz von ONLINE kann bis zum Beenden des Servers keine Eingabe mehr über das virtuelle Terminal annehmen) oder asynchron (der Server wird im Hintergrund gestartet) erfolgen, wobei der synchrone Modus als veraltet betrachtet wird und nicht mehr verwendet wird. Das Starten eines asynchronen Servers geschieht durch:

```
server/async[/mask=ipmask] [port]
```

Die optionale Angabe einer IP Maske ermöglicht das Eingrenzen der Rechner, von denen eine Verbindung zugelassen ist, während für den Port ohne eine Angabe 7777 verwendet. Dieser asynchrone Server bleibt bestehen, bis er explizit geschlossen wird durch

```
server/async/close
```

oder ein Schließen des virtuellen Terminals, welches den Server gestartet hat. Ein Client kann während der Lebensdauer des Servers beliebig oft sich verbinden, tren-

nen und neu verbinden. Die Kommunikation erfolgt durch den Austausch von ASCII [Gro69] kodierten Zeichenketten, wobei der Server jedes gesendete Paket als eine Eingabe betrachtet und nicht bis auf den nächsten Zeilenumbruch wartet (ASCII Code LF). Als Antwort sendet der Server bei einer Anfrage das entsprechende Ergebnis oder für einen Befehl entweder `done` oder `error` je nach Erfolg gefolgt von einem Zeilenumbruch (ASCII Code LF). Eine Verbindung kann vom Client geschlossen werden durch das Senden von `bye`, gefolgt von der Antwort `bye` und einer Verbindungstrennung. Die gesamte Server-Client-Kommunikation kann auf dem Strahlrohrrechner überwacht werden durch die Einstellung

```
set verbose/socket on
```

Ein Großteil der durch ONLINE bereitgestellten Funktionalität dient der Steuerung der Vielzahl an fest aufgebauten Experimenten [HAS12]. Die für diese Arbeit nötige Steuerung des Strahlrohres beschränkt sich jedoch auf die Energie der vom Undulator erzeugten Synchrotronstrahlung sowie die Gittereinstellung am Primärmonochromator. Dies geschieht in ONLINE mithilfe der Funktion `energy()`. Die Syntax in SPECTRA für die Ausgabe einer Funktion wie beispielsweise `energy()` ist

```
* = energy()
```

Der Wechsel auf eine bestimmte Energie `<E>` (angegeben in eV) erfolgt mit

```
energy() = <E>
```

Mithilfe einer Reihe von internen Parametern wird dabei einem gewünschten Energiewert ein Undulatorabstand sowie ein Gitterwinkel zugeordnet und diese Bauteile entsprechend verfahren. Eine Veränderung dieser Parameter ist möglich über

```
move/mc
```

welches jedoch nur direkt am Strahlrohrrechner über ein virtuelles Terminal ausgeführt werden sollte, da die Einstellungen über eine grafische Oberfläche getätigt werden.

Zur Integration in die bereits existierende Messumgebung Argus zeigen die Abbildungen 2.9 und 2.10 eine Implementierung der beschriebenen Abläufe des ONLINE Protokolls zur Abfrage beziehungsweise Einstellung der Strahlrohrenergie über eine zuvor geöffnete TCP/IP Verbindung zum Strahlrohrrechner.

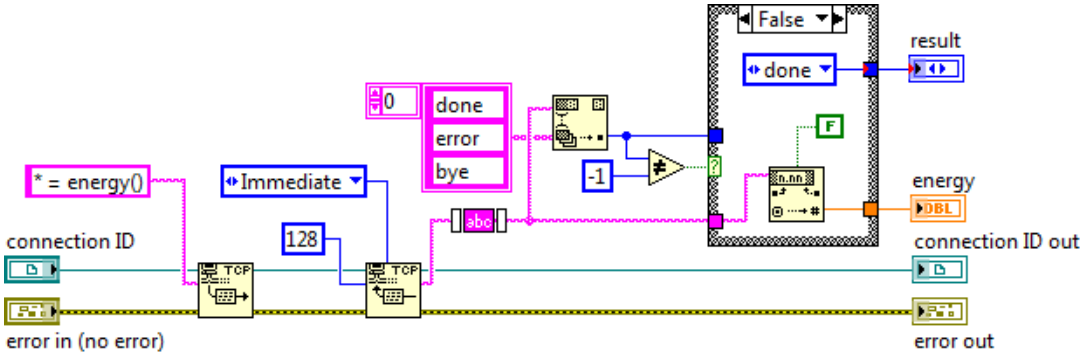


Abb. 2.9: LabVIEW VI zur Abfrage der Strahlrohrenergie über ONLINE. Eine bereits vorher aufgebaute TCP/IP Verbindung zum Strahlrohrrechner muss in `connection ID` übergeben werden. Als Ausgabe gibt `energy` die Energie in eV an, im Falle eines Fehlers enthält `result` die Zeichenkette `error`.

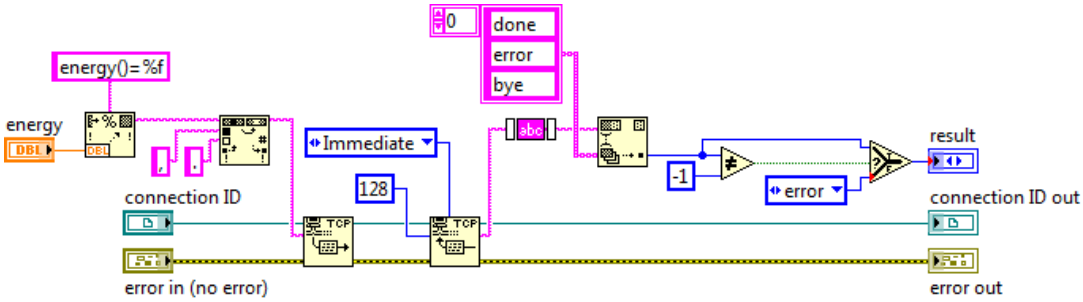


Abb. 2.10: LabVIEW VI zum Setzen der Strahlrohrenergie über ONLINE. Eine bereits vorher aufgebaute TCP/IP Verbindung zum Strahlrohrrechner muss in `connection ID` übergeben werden sowie die gewünschte Zielenergie in eV in `energy`. Bei Erfolg gibt `result` die Zeichenkette `done` zurück, ansonsten `error`.

2.3 Fernfokuskathode

Als Referenz für die Messung des Fluoreszenzspektrums wurde derselbe Spektralbereich außerdem nach Anregung durch Elektronenstoß untersucht. Die hier verwendete Fernfokuskathode ist zuvor für diesen Methode bereits mehrfach erfolgreich verwendet worden [Bur11, Ozg11, KBS12], es erfolgten jedoch eine Reihe von Modifikationen am Aufbau für die vorliegende Arbeit.

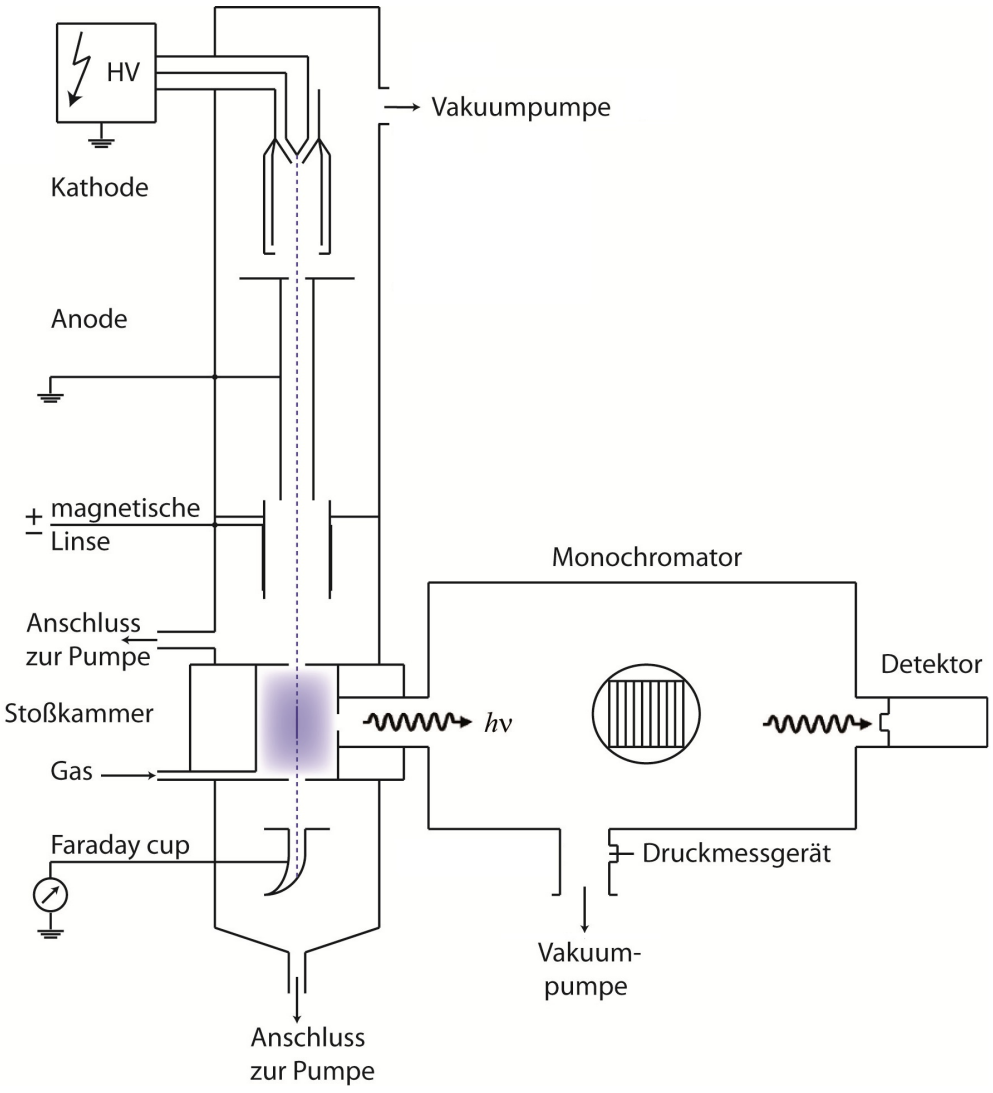


Abb. 2.11: Schematische Darstellung der Fernfokuskathode [Bur11].

Der grundlegende Aufbau ist schematisch in Abb. 2.11 dargestellt. Aus einem direkt geheizten Draht werden durch thermische Emission bei einem Stromfluss von

$I_D = 2{,}5\,A$ Elektronen ausgelöst. Der Draht ist von einem aus drei einzelnen Zylindern aufgebauten Wehneltzylinder umgeben, wobei nur der untere in Abb. 2.11 dargestellte Teil genutzt und auf eine positive Spannung von ungefähr $U_P = 250\,V$ gegenüber dem Draht gelegt wird. Der gesamte Aufbau von Draht und Wehneltzylinder hat gegenüber der Erde ein Potentialunterschied von $U_B = -3{,}5\,kV$, wodurch die Elektronen auf die wenige Zentimeter weiter unten liegende verstellbare Anode beschleunigt werden, die auf Erdpotential liegt. Um den Fokuspunkt des Elektronenstrahls vom Inneren der Anode in die Targetzelle abzubilden, schließt sich auf die Anode eine Spule an, unter der sich weiterhin noch eine Blende mit einer Öffnung von 2,5 mm zur Targetzelle hin befindet. Unter dieser befindet sich ein Faraday-Cup zur Bestimmung des Elektronenstroms, zur Seite hin ist die Targetzelle an einem *McPherson 1m-Normal-Incidence-Monochromator Type 225* Spektrometer angebracht.

Abb. 2.12: Mikroskopische Aufnahme des abgeplatteten Glühdrahtes.

Aufgrund einer veränderten Drahtgeometrie bei der Wiederinbetriebnahme werden anders als in dem vorherigen Betrieb sowohl der weiter innenliegende als auch weiter außenliegende Wehneltzylinder auf Erdpotential gelegt, da eine Vorspannung gegenüber dem Draht nicht mehr zu einer Verbesserung des Elektronenstroms führt. Um eine möglichst hohe Temperatur und damit thermische Elektronenemission an der Drahtspitze zu erreichen, wird diese an ihrem äußersten Punkt mechanisch durch

Quetschen abgeplattet wie die mikroskopische Aufnahme in Abb. 2.12 zeigt. Zur Vereinfachung der Fokussierung ist der gesamte Aufbau weiterhin durch das Entfernen von nicht benötigten Abstandsringen zwischen Kathode, Anode und magnetischer Linse verkürzt worden.

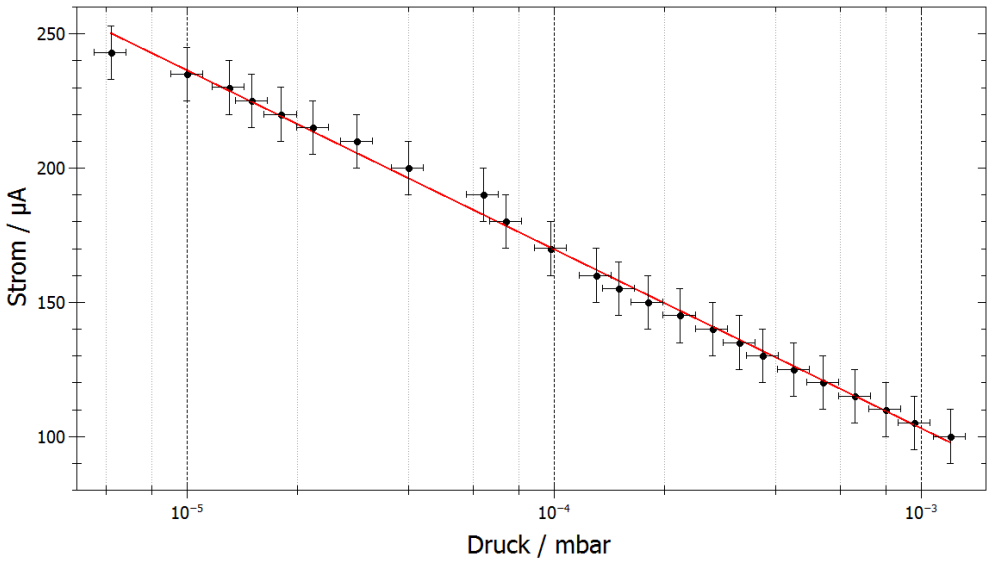


Abb. 2.13: Kennlinie für den in die Kathode abfließenden Strom bei steigendem Druck am Ort der Kathode. Die Fehler ergeben sich aus den bekannten Abweichungen der verwendeten Messgeräte sowie der einfachen statistischen Abweichung über mehrere Messreihen

Eine Charakterisierung der Auswirkungen des Restgasdrucks am Ort der Kathode ist in Abb. 2.13 dargestellt. Der Druck wird bestimmt von einer Penningröhre an der Wand des Rezipienten auf Höhe des Glühdrahts, während ein *Voltcraft 95* Multimeter den Strom misst. Da die aktive Druckmessung durch das Magnetfeld der Penningröhre den Elektronenstrahl entscheidend beeinflusst, wird dieser nicht durch den Faraday-Cup bestimmt, sondern aus dem Strom, den das Hochspannungsnetzteil abgibt. Da dieses gerade die Kathode selbst auf Hochspannung setzt und alle weiteren Komponenten auf dieselbe Erde gelegt sind, ist dieser direkt abhängig von dem Strom an emittierten Elektronen. Er setzt sich zusammen aus der Verlustleistung des Netzteils und dem Strom an Elektronen, welche den Glühdraht verlassen und auf ein Bauteil auf Erdpotential treffen. Aufgrund des exponentiellen Zusammenhangs von Strom und Restgas am Ort der Kathode wird diese nun direkt gepumpt durch

eine aufgesetzte Turbomolekularpumpe, während die Targetzelle indirekt über eine Verbindung mit dem direkt gepumpten Spektrometer verbunden ist. Diese kann über ein Ventil während der Messung verschlossen werden.

Insgesamt können Elektronenströme von $\geq 300\,\mu A$ bei einer Spannung von $U_B = 3{,}5\,kV$ erreicht werden. Neben den deutlichen Verbesserungen im emittierten Elektronenstrom zeigte sich während der durchgeführten Messungen eine weitaus höhere Lebensdauer des verwendeten Drahtes, die vermutlich auch den besseren Vakuumbedingungen zugerechnet werden kann.

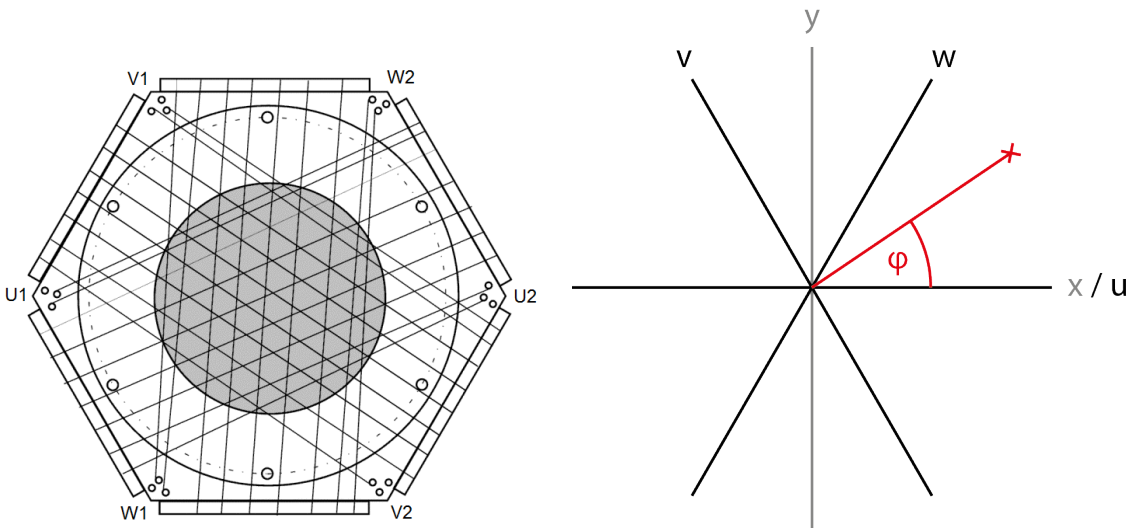
2.4 Photonendetektoren

Zur Detektion der Fluoreszenzphotonen wurden im Rahmen dieser Arbeit drei verschiedene Detektoren eingesetzt: Für Messungen im FUV (Far Ultraviolet) Spektralbereich (und damit auch alle Koinzidenzmessungen) von 115 bis 220 nm sind dies ein ortsauflösender Detektor *Photek PMT240* (im Folgenden mit DLD abgekürzt) sowie ein Photomultiplier *Hamamatsu R1460* (PM), die beide über eine Photokathode aus Cäsiumtellurit (Herstellerbezeichnung: solar blind) verfügen mit einer Empfindlichkeit in diesem Spektralbereich [PHO12]. Bei kürzeren Wellenlängen im EUV (Extreme Ultraviolet) von 35 bis 130 nm hingegen wurde ein selbstgebauter ortsauflösender Detektor (WSA) verwendet, der ohne Photokathode arbeitet.

2.4.1 Photek PMT240 FUV Detektor

Hierbei handelt es sich um einen gekapselten Detektor mit einer aus Cäsiumtellurit bestehenden Photokathode hinter einem Magnesiumfluoridfenster. Zur Messung der durch Mikrokanalplatten (MCPs) in einem Z Stack verstärkten Photoelektronen wird hier eine Delay Line Anode verwendet, bei denen die Ladungswolke über orthogonal zueinander gespannten Drähten abließt und anhand der Laufzeitdifferenzen der Ort sowie dem Vergleich mit den MCP-Signalen die Zeit bestimmt werden kann [KKK87]. Diese Methode ist in der Lage, eine hohe Zeitauflösung im Bereich

von $< 1\,\mathrm{ns}$ zu erreichen und die inhärente Mittelung der Ladungswolke über den Ort ermöglicht präzise Ortsmessungen von $\geq 50\,\mu\mathrm{m}$ [SJJ99].



(a) Hexanode **(b)** hexagonale Koordinaten

Abb. 2.14: Schematischer Aufbau der Hexanode (a) mit den beiden Abgriffen für die drei Ebenen U, V, W [JCC02] sowie das auf dieser Basis definierte hexagonale Koordinatensystem (b) mit den Achsen u, v, w zur Berechnung der Position.

Der in dieser Arbeit verwendete Detektor benutzt eine Weiterentwicklung dieses Typs aus [JCC02] mit drei in einem Winkel von 60° zueinander ausgerichteten Drahtebenen U, V, W wie in Abb. 2.14 dargestellt. Um aus diesen drei Laufzeiten die Koordinaten in einem kartesischen Koordinatensystem zu erhalten, werden zunächst hexagonale Koordinaten

$$u = U1 - U2 \tag{2.3}$$

$$v = V1 - V2 \tag{2.4}$$

$$w = W1 - W2 \tag{2.5}$$

eingeführt, die gemäß Abb. 2.14 entlang der drei aufgespannten Drahtebenen liegen. In dieser Definition wird angenommen, dass die Ausbreitungsgeschwindigkeit des elektrischen Signals entlang der Drähte jeweils dieselbe ist und damit nicht weiter berücksichtigt werden muss. Durch geometrische Konstruktion ergibt sich, dass mit je zwei dieser hexagonalen Koordinaten die entsprechenden kartesischen Koordinaten

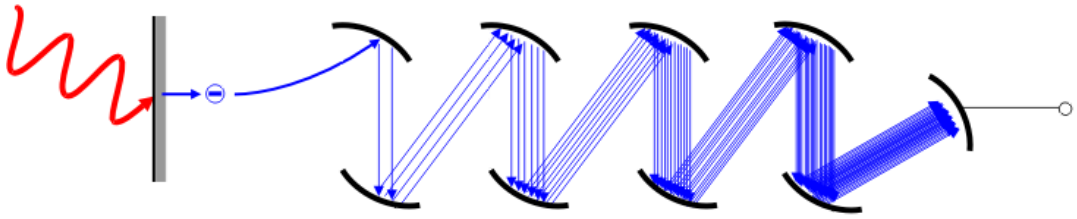


Abb. 2.15: Dynodenstruktur eines Photomultipliers [Kri08] zur Elektronenvervielfachung. Ein Photon (rot) löst an der Photokathode ein Elektron (blau) aus, das durch eine Reihe von Dynoden vervielfacht und schließlich als Strompuls detektiert wird.

x, y bestimmt werden können:

$$x_{uv} = u \qquad y_{uv} = \frac{u + 2v}{\sqrt{3}} \tag{2.6}$$

$$x_{uw} = u \qquad y_{uw} = -\frac{2w + u}{\sqrt{3}} \tag{2.7}$$

$$x_{vw} = w - v \qquad y_{vw} = \frac{v - w}{\sqrt{3}} \tag{2.8}$$

Diese Redundanz der Information ermöglicht die sichere Detektion von zwei in Zeit und Raum sehr nahe beeinanderliegenden Ereignissen, die bei Delay Lines mit nur zwei Drähten durch die Überlagerung der zwei Laufzeiten auf einer Achse zu mehrdeutigen Ergebnissen führen kann. Es ist ebenso möglich, die Redundanz für eine bessere Mittelung der Position zu nutzen:

$$\bar{x} = \frac{2u - v - w}{3} \qquad \bar{y} = \frac{v - w}{\sqrt{3}} \tag{2.9}$$

2.4.2 Hamamatsu R1460 FUV Photomultiplier

Der verwendete Photomultiplier ohne Ortsauflösung besitzt wie der DLD eine Photokathode aus Cäsiumtellurit hinter einem Magnesiumfluoridfenster. Die Photoelektronen werden hier vervielfacht durch eine Dynodenstruktur wie in Abb. 2.15 dargestellt.

2.4.3 EUV Detektor mit Keil- und Streifenanode

Dieser von der Arbeitsgruppe in Kassel selbst konstruierte Detektor nach dem Konzept beschrieben in [Kra91] verwendet keine Photokathode sondern offen liegende MCPs mit einer dahinterliegenden Anode zur Detektion der verstärkten herausgeschlagenen Elektronen. Diese ist hier eine Keil- und Streifenanode (engl. Wedge and Stripe), die den Auftreffpunkt eines Ereignisses über die Anteile der Ladungswolke bestimmt, die auf jeweils voneinander isolierten Flächen auftreffen. Die einzelnen Sektoren in diesem konkreten Fall sind in Abb. 2.16 dargestellt.

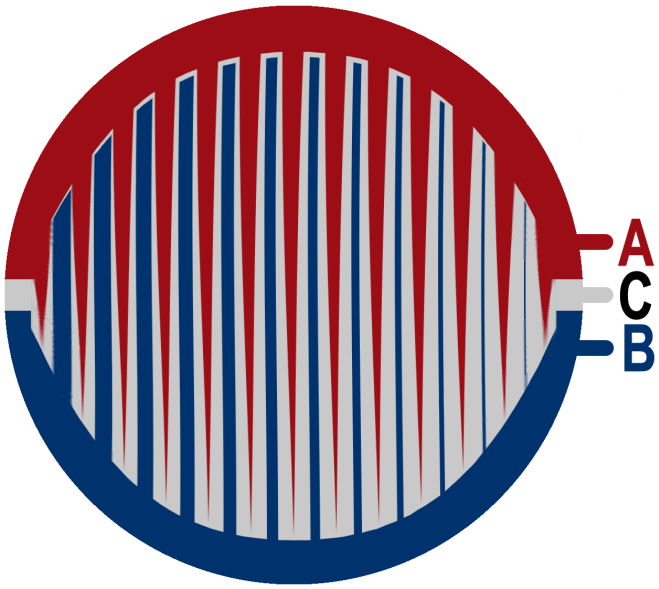


Abb. 2.16: Schematische Struktur [Rei10] einer Keil- und Streifenanode mit den voneinander isolierten Abgriffen für die Keile (A), Streifen (B) und der Meander (C) dazwischen.

Zur Bestimmung der horizontale Position (bezogen auf Abb. 2.16) variiert die Breite der Streifen, so dass ein Ereignis auf der linken Seite ein stärkeres Signal produziert als auf der rechten. Die vertikale Position kann bestimmt werden durch spitz zulaufenden Keile; hier erzeugt ein Ereignis am oberen Rand ein stärkeres als am unteren.

Insgesamt ergibt sich für die Koordinaten eines eintreffenden Teilchens:

$$X \propto \frac{A}{A+B+C} \tag{2.10}$$

$$Y \propto \frac{B}{A+B+C} \tag{2.11}$$

3 Auswertung

Die Analyse der ermittelten Daten in diesem Abschnitt umfasst die aufgenommenen VUV-Spektren im Bereich von 35 bis 220 nm sowohl durch Elektrolumineszenz, in Anlehnung an [KBS12] im Folgenden als EIFS (Electron-Impact Induced Fluoresence Spectroscopy) bezeichnet, mit einer kinetische Energie der Elektronen von 3,5 keV als auch Fluoreszenz beziehungsweise PIFS (Photon-Impact Induced Fluorescence Spectroscopy) mit einer Anregungsenergie von 33,66 eV. Die EIFS Messungen an der Fernfokuskathode erstrecken sich dabei über den gesamten genannten Spektralbereich, während am Strahlrohr BW3 durch PIFS nur der Bereich von 115 bis 220 nm im FUV vermessen wurde. Im Anschluß folgt eine Untersuchung des relativen partiellen Fluoreszenzquerschnitt durch Anregung mit Synchrotronstrahlung im Energiebereich von 29 bis 45 eV sowie schließlich die Koinzidenz- und Zeitstruktur der Zerfälle unter Emission von Ly_α durch Messung an der BW3.

3.1 Elektrolumineszenz- und Fluoreszenzspektren

Alle gemessenen Spektren wurden mit ortsauflösenden Detektoren aufgenommen, bei denen ein Detektorbild jeweils einen kleinen Ausschnitt des gesamten Spektrums darstellt. Das Gitter des Monochromators dispergiert die einfallende elektromagnetische Strahlung in horizontaler Richtung (X) auf dem Detektor. Durch die Abbildung des Spaltes erscheint sie hier als vertikale (Y) Linie, die spektrale Intensität an diesem (X-)Punkt ergibt sich dann als Summation entlang dieser Achse. Von Bild zu Bild wird das Gitter dann um eine konstante Winkeldifferenz weitergedreht. Zur Verarbeitung der Rohdaten zu entsprechenden Einzelbildern und dem Zusammen-

fügen zu einem Spektrum wurde in LabVIEW das Programm *Pacman* (Post-Argus Calibration, Merging and Normalization) im Rahmen dieser Arbeit entwickelt. Damit kann ein ganzes Verzeichnis mit Messdaten alphabetisch geordnet eingelesen werden, wobei jede einzelne Datei als einzelnes Bild aufgefasst wird. Diese können dann korrigiert, normiert, verschoben und anschließend zu einem Spektrum summiert werden. Das Format der Rohdaten hängt von dem verwendeten Detektor beziehungsweise speziell der im Detektor verwendeten Anode ab. Für die bei den EUV Messungen verwendete Keil- und Streifenanode (siehe 2.4.3) sind dies die Pulshöhen auf den Kanälen der drei Bestandteile der Anode A, B und C. Bei Messungen im FUV Bereich mit dem DLD (siehe 2.4.1) hingegen werden die Verzögerungen des Spannungspulses auf den Ortskanälen gegenüber dem Zeitsignal verwendet.

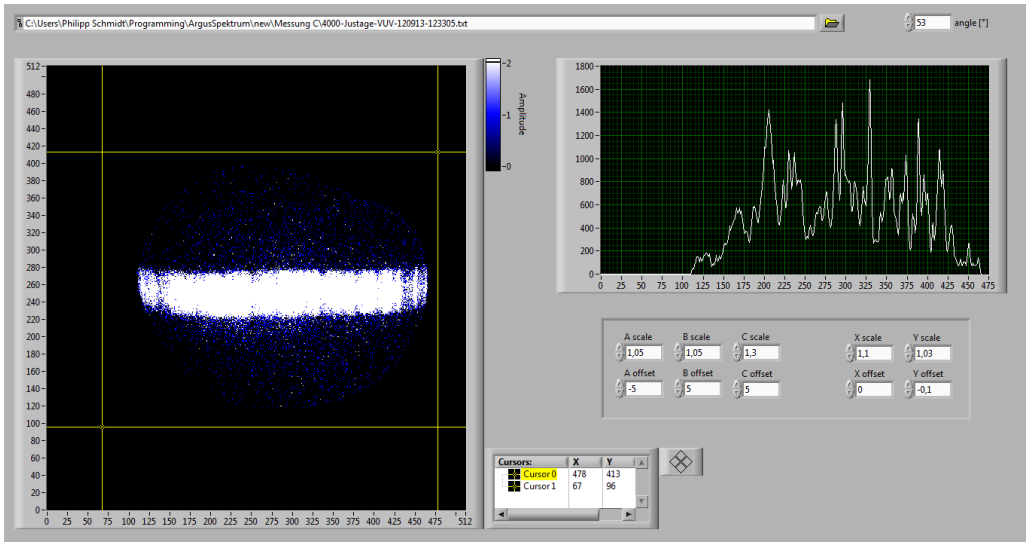


Abb. 3.1: Kalibrierung der Detektorparameter in Pacman für die Keil- und Streifenanode. Links ist das Detektorbild für den aktuell angegebenen Satz von Parametern dargestellt und rechts das daraus resultierende Spektrum (d.h. Summierung in Y-Richtung). Die Wahl der Farbskala des berechneten Bildes dient der Verdeutlichung der beleuchteten Detektorfläche.

Der erste Schritt ist dabei anhand eines Bildes die Drehung des Detektors bei der Messung sowie eventuelle Korrekturparameter für die Bildgenerierung zu bestimmen. Dies zeigt Abb. 3.1 für die Keil- und Streifenanode, wo durch Ladungseffekte bei hoher Verstärkung das Bild verzerrt werden kann [Kra91]. Dafür bietet das Pro-

gramm eine lineare Korrektur der gemessenen Kanäle:

$$A' = m_A A + q_A \qquad B' = m_B B + q_B \qquad C' = m_C C + q_C$$

$$X = m_X \frac{A'}{A' + B' + C'} + q_X \tag{3.1}$$

$$Y = m_Y \frac{B'}{A' + B' + C'} + q_Y \tag{3.2}$$

mit den Skalierungsfaktoren m und Verschiebungen q für die Kanäle sowie berechneten Koordinaten. Dieser Schritt wird bei den Messungen mit dem DLD nicht durchgeführt, da die Einzelbilder keine Verzerrung aufweisen.

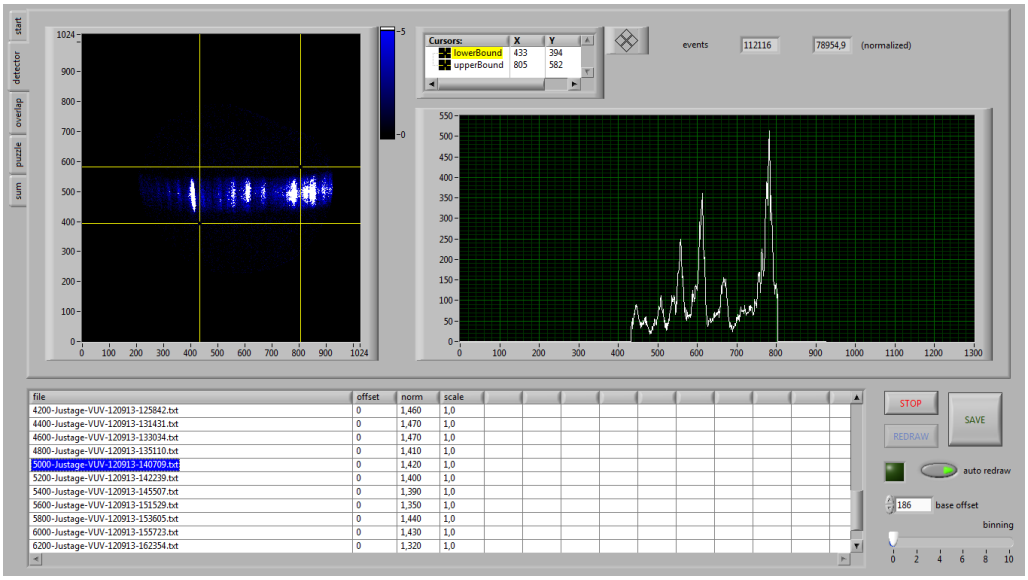


Abb. 3.2: Darstellung eines einzelnen Detektorbildes in Pacman mit direktem Bild links und resultierendem Spektrum rechts (d.h. Summierung in Y-Richtung). In der Liste ist jede Einzelmessung aufgeführt mit den jeweiligen Einstellung wie Normierungsfaktor.

Anschließend kann jedes generierte Einzelbild untersucht werden, um den Ausschnitt für das anschließende Zusammenfügen zu einem Spektrum auszuwählen. Für jede Messung stehen dabei zur Normierung die beiden Parametern `scale` und `norm` zur Verfügung, die in der Form `scale/norm` mit dem jeweiligen Teilspektrum multipliziert werden. Dies ermöglichst beispielsweise eine erste Berücksichtigung der Anregungsintensität bei der Messung, in diesem Fall wurde bei der Fernfokuskathode der

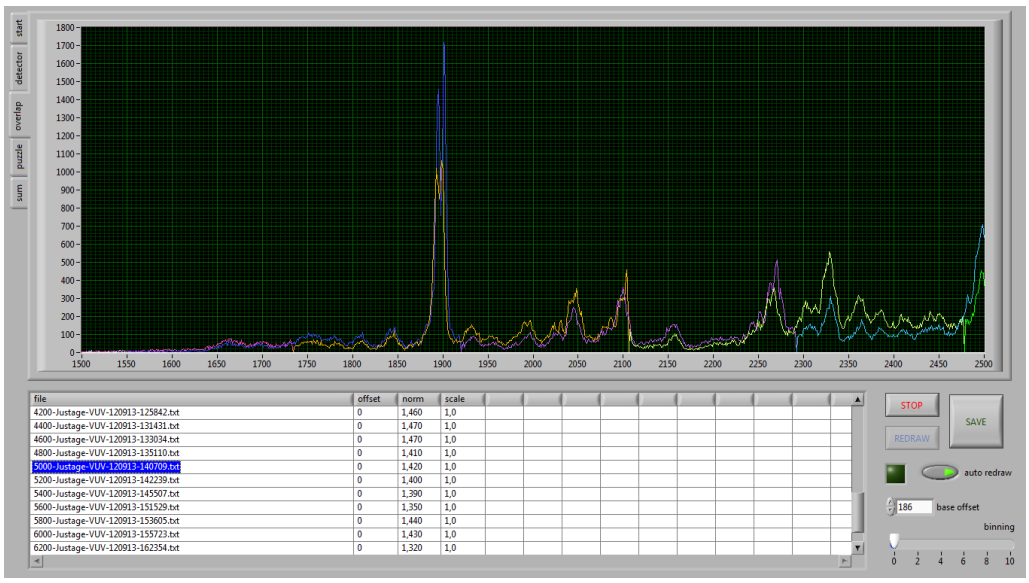


Abb. 3.3: Überlapp der Teilspekten (dargestellt in jeweils verschiedenen Farben) in Pacman unter Verwendung einer konstanten Verschiebung von 186 Kanälen zueinander.

am Faraday-Cup gemessene Elektronenstrom verwendet und bei dem Fluoreszenzspektrum der Ringstrom.

Im nächsten Schritt werden die aus jedem Einzelbild gewonnen Teilspektren mit den eingestellten Parametern verschoben und zusammen dargestellt wie in Abb. 3.3. Dies ermöglicht die genaue Anpassung des Überlapps für einzelne Linien oder Bereiche des Spektrums. Dazu kann jede einzelne Messung gegenüber eines globalen Versatzes noch individuell verschoben werden, was jedoch im Rahmen dieser Arbeit nicht durchgeführt wurde, da eine konstante Verschiebung für die gemessenen Spektren ausreichte. Die benutzen Parameter sind tabellarisch in Tabelle 3.1 aufgeführt und beziehen sich auf eine Projektion der Detektorbilder auf 1024x1024 Kanäle.

Als Ergebnis der Auswertung stehen zwei verschiedene Methoden zur Verfügung, welche die Teilspektren zusammenfassen. Bei der ersten "Puzzle"genannten Methode werden die Einzelbilder in den zuvor festgelegten Ausschnitten direkt aneinandergesetzt, wobei für den Überlapp das jeweils letzte Einzelbild, das diesen Bereich abdeckt, verwendet wird. Die zweite Methode summiert die Teilspektren an jedem Punkt und teilt durch die Anzahl der jeweils verwendeten Datenpunkte, es stellt also

Parameter	EIFS EUV	EIFS FUV	PIFS FUV
Versatz	186	124	120
Winkel	53°	21°	57°
X-Ausschnitt	433 – 805	308 – 705	330 – 677
Y-Ausschnitt	1 – 2	3 – 4	266 – 748

Tab. 3.1: Verwendete Parameter zur Auswertung der Spektren in Pacman

eine Mittelung dar. Für die Auswertung der im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Spektren wird stets die zweite Methode der Mittelung verwendet, der Vorgang in Pacman ist in Abb. 3.4 dargestellt.

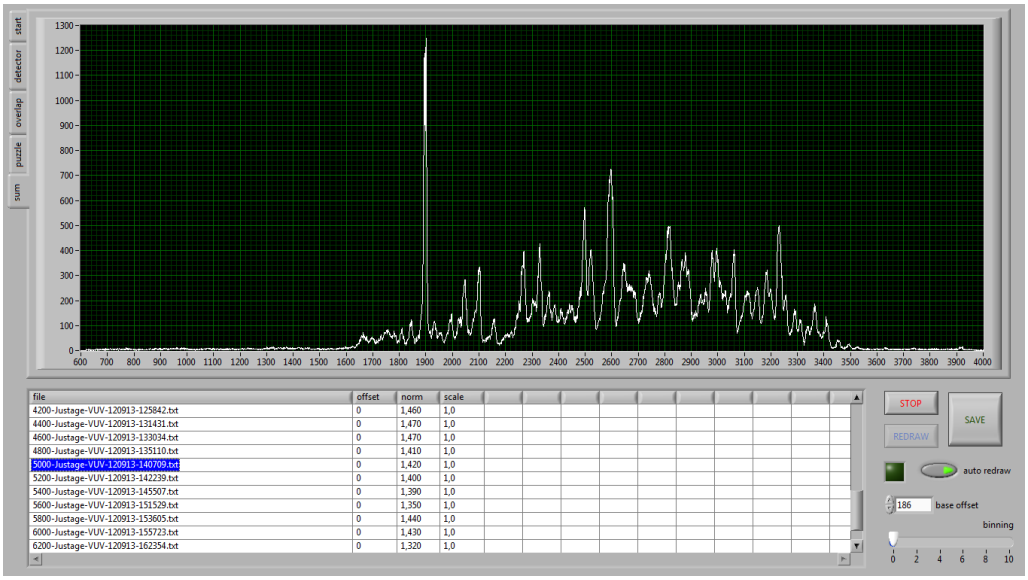
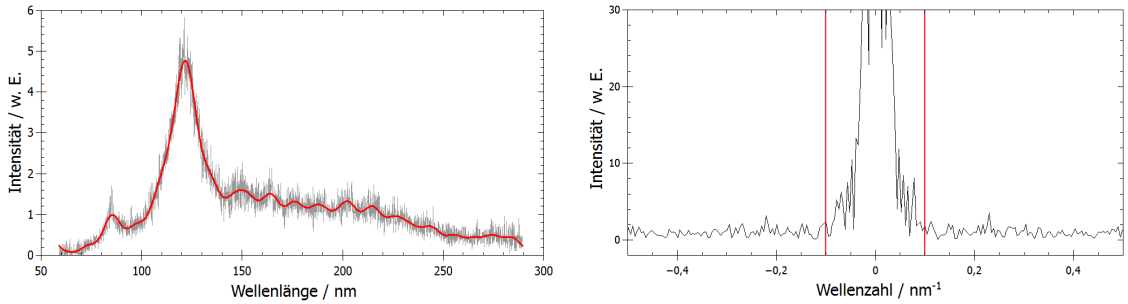


Abb. 3.4: Mittelwert der Teilspekten in Pacman unter Verwendung einer konstanten Verschiebung von 186 Kanälen der Teilspektren zueinander.

Für die Kalibrierung der Skala der dispergierte Elektrolumineszenz- beziehungsweise Fluoreszenzwellenlänge werden bei allen gemessenen Spektren zum Einen die stets deutlich sichtbare Ly_α-Linie mit $\lambda_{\mathrm{Ly}\alpha} = 121{,}6\,\mathrm{nm}$ [SKR04] benutzt. Bei den EIFS Messungen im EUV Bereich dient weiterhin die nullte Ordnung des Gitters mit $\lambda := 0\,\mathrm{nm}$ als weiterer Fixpunkt sowie weitere Linien der Lyman-Serie in der 1. Ordnung, im FUV hingegen die 2. Ordnung von Ly_α bei gerade dem doppelten Kanal wie der in 1. Ordnung. Da in dem an dem Strahlrohr BW3 aufgenommenen

PIFS Spektrum im FUV leider keine weiteren Linien identifiziert werden können, wird hier ein Referenzwert benutzt für das Verhältnis der wahren Gitterdrehung zu dem am Drehmechanismus angebrachten Zählwerk. Zusammen mit dem bekannten Versatz pro Detektorbild (in Kanälen bei der Auswertung bestimmt), der Zählwerkeinstellung und jenem Verhältnis kann so ebenfalls eine Kalibrierung durchgeführt werden.



(a) Ortsraum **(b)** reziproker Raum

Abb. 3.5: PIFS FUV Spektrum im Ortsraum (a) als direkte Messung (grau transparent) und nach Anwendung eines Tiefpass-Filters mit $\tilde{\nu}_{\max} = 0{,}1\,\mathrm{nm}^{-1}$ (rot) sowie der Betrag im reziproken Raum (b) mit markierten Grenzen der Abschneidung des Tiefpass-Filters (rot).

Zur Verbesserung des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses für die PIFS FUV Messung dient weiterhin ein Tiefpass-Filter, der scharf alle Wellenzahlen über $\tilde{\nu}_{\max} = 0{,}1\,\mathrm{nm}^{-1}$ im Impulsraum abschneidet; mit der reziproken Darstellung des Spektrums $\tilde{I}(\tilde{\nu})$, $\tilde{I}'(\tilde{\nu})$ nach dem Filter und der Heaviside-Funktion $\Theta(x)$ also:

$$\tilde{I}'(\tilde{\nu}) = \tilde{I}(\tilde{\nu})\,[1 - \Theta(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_{\max})] \tag{3.3}$$

Das Spektrum selbst ist in Abb. 3.5 (a) dargestellt, die Darstellung im reziproken Raum nach Anwendung einer Fouriertransformation in (b). Deutlich sichtbar ist das Rauschen des Ortsraums als eine leichte von null verschiedene Amplitude bei höheren Wellenzahlen, getrennt vom eigentlichen Signal um den Ursprung zentriert. Diese Bereiche werden durch den Tiefpass-Filter in (3.3) an den rot markierten Stellen zu positiven und negativen Wellenzahlen hin abgetrennt und anschließend das Spektrum wieder in den Ortsraum zurücktransformiert. Das Ergebnis ist als rote Linie in der Ortsraumdarstellung (a) angedeutet.

Die Wahl der Grenze auf genau $\tilde{\nu}_{\max} = 0{,}1\,\mathrm{nm}^{-1}$ ist dabei willkürlich für eine ausgewogene Darstellung, die das Rauschen minimiert ohne die gewünschte Struktur zu verfälschen. Eine Konsequenz dieses Filters ist eine überdeutliche Ausprägung von Oszillationen in der Einhüllenden des Signals (und damit dem gesuchten Spektrum), wie es hier bei Wellenlängen von 150 nm und höher sichtbar wird. Dies wird jedoch in der Diskussion der Ergebnisse nicht weiter berücksichtigt, da die Auflösung in diesem Bereich keine spezifischen Aussagen zulässt.

3.2 relativer partieller Fluoreszenzquerschnitt

Für die gesamte Fluoreszenzintensität wird hier für jeden Schritt in der Anregungsenergie die Gesamtanzahl der Ereignisse verwendet, die der Photomultiplier registriert hat. Der am letzten direkt vor dem Experiment befindliche Refokussierspiegel des Strahlrohres gemessene Spiegelstrom wird als Maß für die Intensität der einfallenden Synchrotronstrahlung verwendet. Der Verlauf dieser beiden Signale ist in Abb. 3.6 dargestellt. Der Quotient aus Ereignissanzahl und Spiegelstrom ergibt dann den relativen partiellen Fluoreszenzquerschnitt.

Zur Bestimmung einer eventuell nötigen Energiekorrektur des Strahlrohres werden diese normierten Daten mit ähnlichen Messungen in der Literatur [OMK04] verglichen. Die beste Übereinstimmung ergibt sich für eine Energieverschiebung der Messung gegenüber der Anzeige der Monochromatorsteuerung des Strahlrohres von $\Delta E = 0{,}66\,\mathrm{eV}$. Diese Energieverschiebung wird dementsprechend für alle weiteren Angaben der Anregungsenergie berücksichtigt.

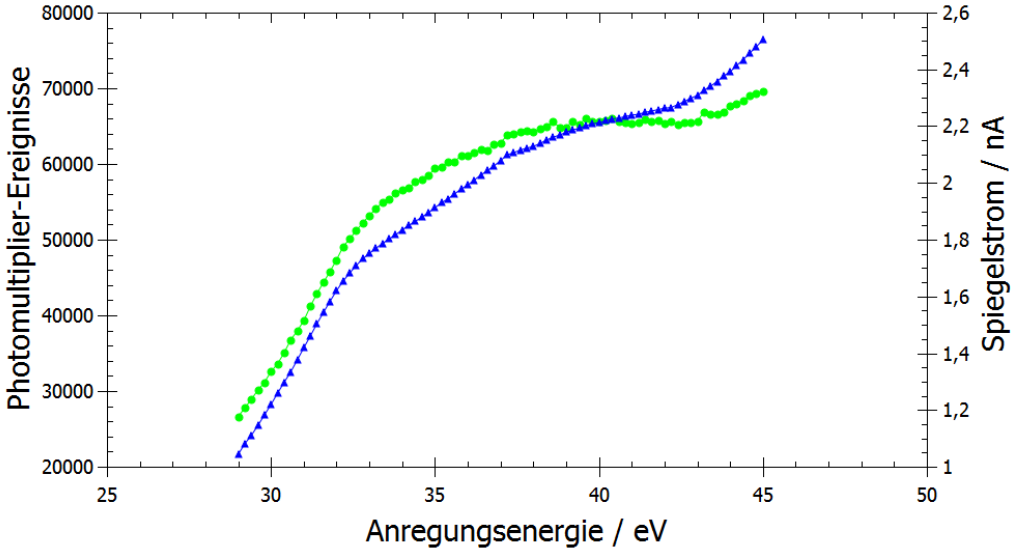


Abb. 3.6: Anzahl der Photomultipliereereignisse (grüne Kreise) und Spiegelstrom (blaue Dreiecke) bei Anregung im Energiebereich von 29 bis 45 eV. Die hier verwendete Energieskala entspricht direkt der Angabe der Monochromatorsteuerung des Strahlrohres und ist noch nicht kalibriert.

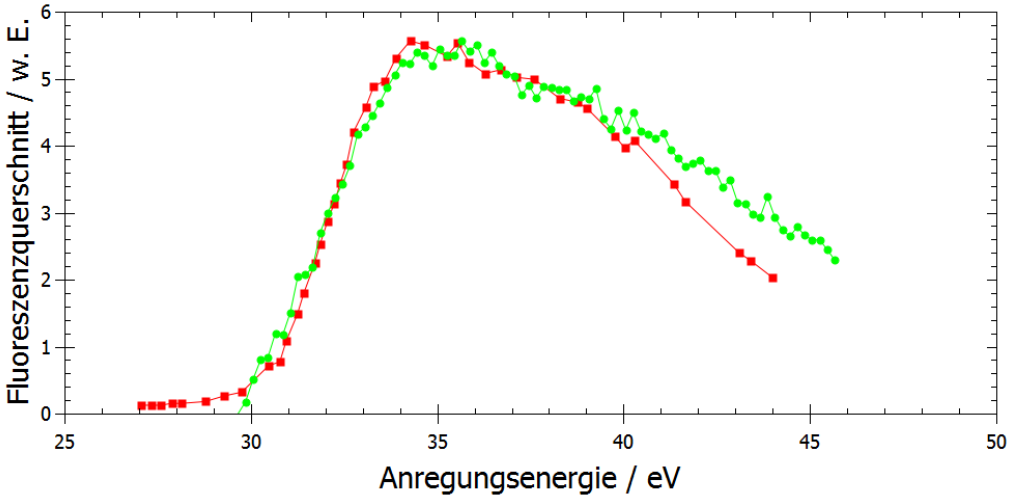


Abb. 3.7: relativer partieller Fluoreszenzquerschnitt von Wasserstoff bei Anregung im Energiebereich von 29 bis 45 eV gemessen an der BW3 (grüne Kreise) normiert auf den Spiegelstrom sowie Vergleichsmessungen aus [OMK04] (rote Quadrate). Die Messungen der BW3 sind um $\Delta E = +0{,}66\,\mathrm{eV}$ gegenüber der Monochromatorsteuerung verschoben.

3.3 Koinzidenzzeitspektrum

In der Beschreibung der Verfahren zur Auswertung der Zeitstruktur werden im Folgenden die Daten bei einem Druck von 100 mPa beispielhaft verwendet, die Verarbeitung bei 200 mPa und 400 mPa geschieht analog.

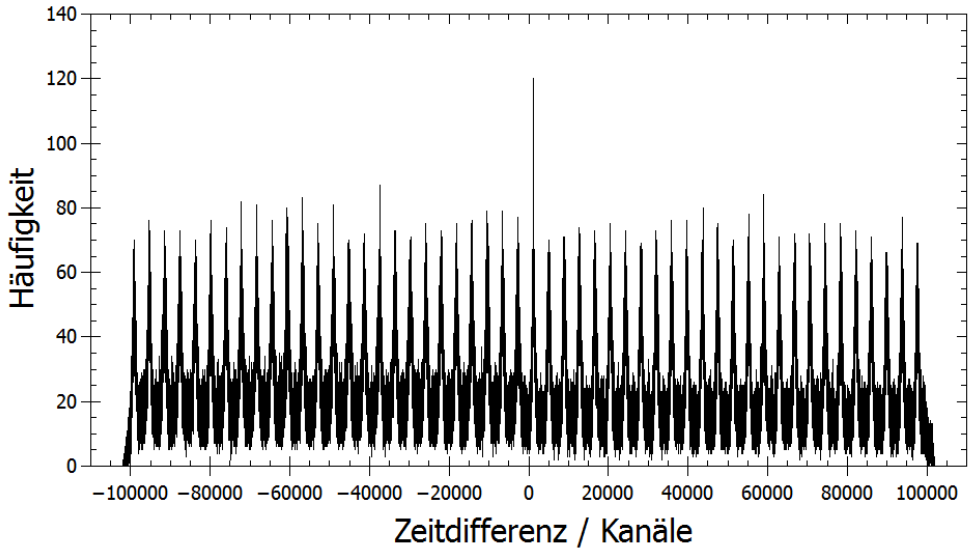


Abb. 3.8: Vollständiges Koinzidenzzeitspektrum bei einem Druck von $p = 100\,\mathrm{mPa}$. Die Zeitdifferenz $\Delta t = t_{\mathrm{PM}} - t_{\mathrm{DLD}}$ ist in Kanälen des Time-to-Digital Converters von je 50 ps angegeben.

Der für die Koinzidenzmessungen verwendete Time-to-Digital Converter (TDC) erfasst für jedes detektierte Fluoreszenzereignis die Verzögerung der beiden Detektoren, der Ortskanäle des DLD sowie des vom Speicherring zur Verfügung gestellten Bunchmarkers. Die Koinzidenz sollte daher in der Zeitdifferenz dieser Detektorverzögerungen sichtbar werden. Ein Histogramm dieser Verzögerung, das Koinzidenzzeitspektrum, ist in Abb. 3.8 für dargestellt. Die Zeitdifferenz Δt ist hier berechnet aus den Verzögerungen t_{PM} des Photomultipliers und t_{DLD} des DLDs durch:

$$\Delta t = t_{\mathrm{PM}} - t_{\mathrm{DLD}} \tag{3.4}$$

Die maximal gemessene Zeitdifferenz liegt bei $|t_{\mathrm{max}}| \approx 100000\,\mathrm{Kanäle} = 5\,\mu\mathrm{s}$ wie bei der Konfiguration des TDC festgelegt. Deutlich sichtbar ist die Struktur der Anregung durch die Synchrotronstrahlung, die hier mit einem Bunchabstand von

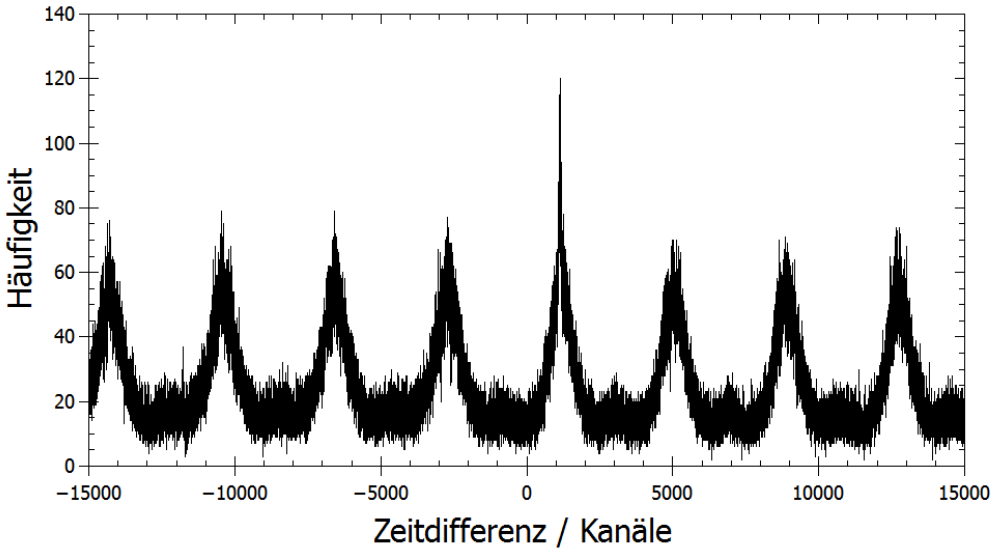


Abb. 3.9: Zentraler Bereich des Koinzidenzzeitspektrums bei einem Druck von $p = 100\,\mathrm{mPa}$. Die Zeitdifferenz $\Delta t = t_{\mathrm{PM}} - t_{\mathrm{DLD}}$ ist in Kanälen des Time-to-Digital Converters von je 50 ps angegeben.

192 ns = 3840 Kanäle erfolgt. Dies stellt zunächst nur die zufällige Koinzidenz dar, denn rein statistisch kann für jede mögliche Zeitdifferenz Δt eine sogenannte falsche Koinzidenz erwartet werden; bei dieser messen die beiden Detektoren ein entsprechendes Signal, welches jedoch aus beliebigen (und voneinander unabhängigen) Prozessen stammen kann. Die Wahrscheinlichkeit für ein solches Ereignis ist abhängig von der Intensität der Anregung und spiegelt daher die Bunchstruktur wider. Einer dieser periodischen Peaks im Zentrum des Koinzidenzzeitspektrums um $\Delta t = 0$, wie in Abb. 3.9 verdeutlicht dargestellt, zeigt nun eine zusätzliche Oberstruktur mit deutlich höherer Amplitude. Dies kann als die echte Koinzidenz interpretiert werden, denn sobald diese in dem betrachteten physikalischen Prozess wirklich stattfindet, sollte sich ein entsprechendes Signal aus der Statistik der falschen Koinzidenzen abheben.

Die Verschiebung dieses Koinzidenzpeaks von $\Delta t = 0$ ist zu erklären durch die unterschiedliche Funktionsweise der verwendeten Detektoren, die unterschiedlich lange Laufwege der Signale aufweisen. Der Wert dieser Verschiebung kann aus dieser Darstellung einfach bestimmt werden durch Anpassen eines Gauß-Profiles an die

Überstruktur. Dies ergibt einen Zeitunterschied der beiden Detektoren von

$$\Delta t_{\mathrm{PMdelay}} = (56{,}84 \pm 0{,}16)\,\mathrm{ns}$$

mit der einfachen Standardabweichung des Regressionsparameters als Unsicherheit. Aufgrund der in (3.4) gewählten Reihenfolge ergibt eine positive Zeitdifferenz $\Delta t_{\mathrm{PMshift}} > 0$, dass der Signallaufweg des Photomultipliers langsamer ist als der des DLD. Mit der Kenntnis dieser Verschiebung kann die Zeitskala der Koinzidenzzeitspektren kalibriert werden, wobei der Ursprung auf die Mitte des echten Koinzidenzpeaks gesetzt wird.

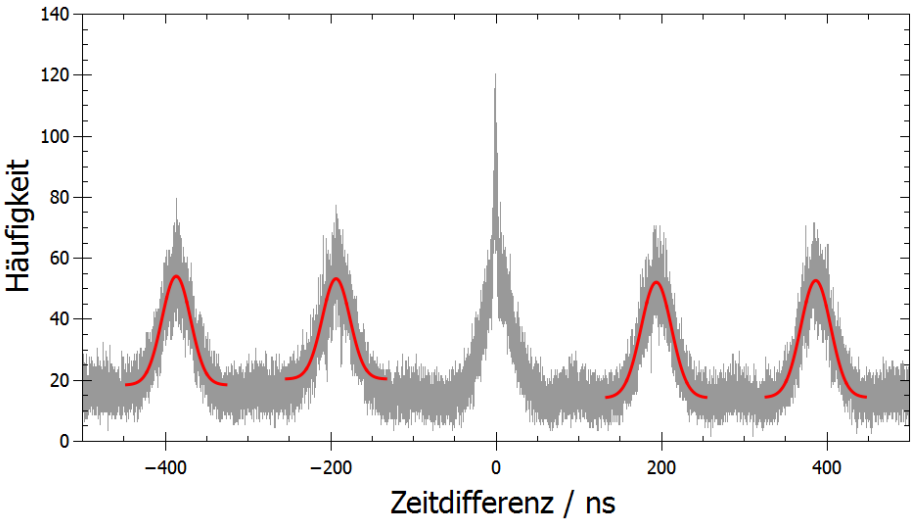


Abb. 3.10: Anpassung von Gaussprofilen an die zufälligen Koinzidenzpeaks bei einem Druck von $p = 100\,\mathrm{mPa}$. Die leichten Erhebung zwischen den zufälligen Koinzidenz entstammen einem Konfigurationswechsel bei der Befüllung des Speicherrings während der Messungen. Der Großteil ist mit 5 Bunchen mit einem Abstand von 192 ns durchgeführt, während kurzzeitig 10 Bunche im Abstand von 96 ns im Ring gespeichert waren.

Diese echte Koinzidenz kann damit jetzt isoliert werden mit der Annahme, dass der Peak bei $\Delta t = 0\,\mathrm{ns}$ die Summe aus der echte Koinzidenz und der zufälligen Koinzidenz ist. Die zufällige Koinzidenz lässt sich gut durch ein Gaussprofil anpassen, so dass der Mittelwert aus den Gaussprofilen für die umliegenden zufälligen Koinzidenzen benutzt wird für den Peak bei $\Delta t = 0\,\mathrm{ns}$ wie in Abb. 3.10 dargestellt. Das Ergebnis als Differenz aus dem ursprünglichen Signal und dem errechneten Gaussprofil für die zufällige Koinzidenz stellt dann im Rahmen der Messunsicherheiten

die echte Koinzidenz dar zuzüglich eines konstanten Verschiebung auf der y-Achse durch den Untergrund.

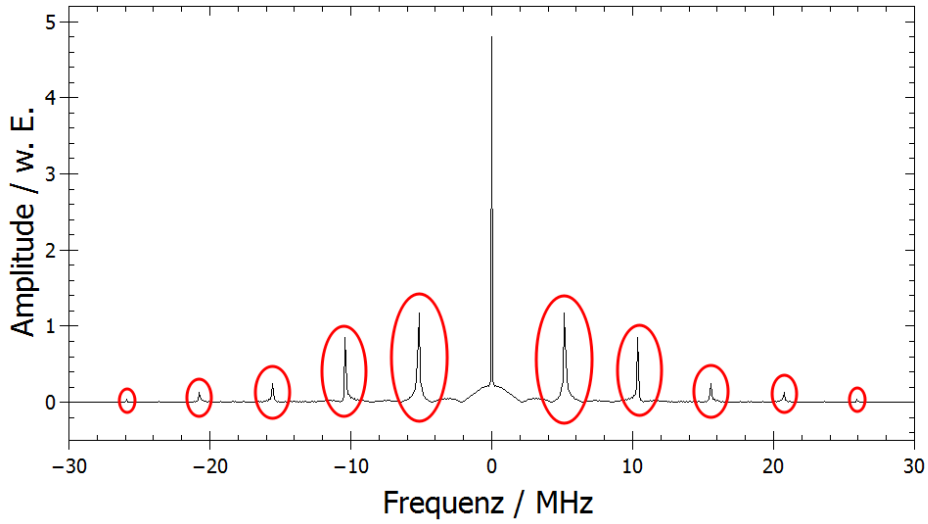


Abb. 3.11: Koinzidenzzeitspektrum bei einem Druck von $p = 100\,\mathrm{mPa}$ im Frequenzraum nach Anwendung der Fouriertransformation. Die markierten Peaks entsprechen gerade der Periodizität der Anregung mit $t = 192\,\mathrm{ns}$, d.h. $f = 5{,}2\,\mathrm{MHz}$ mit Oberschwingungen bei ganzzahligen Vielfachen.

Eine alternative Möglichkeit zur Isolation ergibt sich durch die Betrachtung des ursprünglichen Signals von Abb. 3.8 im Frequenzraum nach Anwendung einer Fouriertransformation. Das Spektrum ist in Abb. 3.11 dargestellt und zeigt markante Peaks bei Vielfachen von $f = 5{,}208\,\mathrm{MHz} \approx \frac{1}{192\,\mathrm{ns}}$, also gerade der entsprechenden Frequenz für die periodischen Anregung im Abstand von $t = 192\,\mathrm{ns}$ durch den Speicherring. Durch das Entfernen der markierten Peaks durch lineare Interpolation zwischen den begrenzenden Punkten verbleibt nach Rücktransformation in den Zeitbereich auch nur die echte Koinzidenz. Die Ergebnisse dieser beiden Methoden sind jeweils in Abb. 3.12 dargestellt.

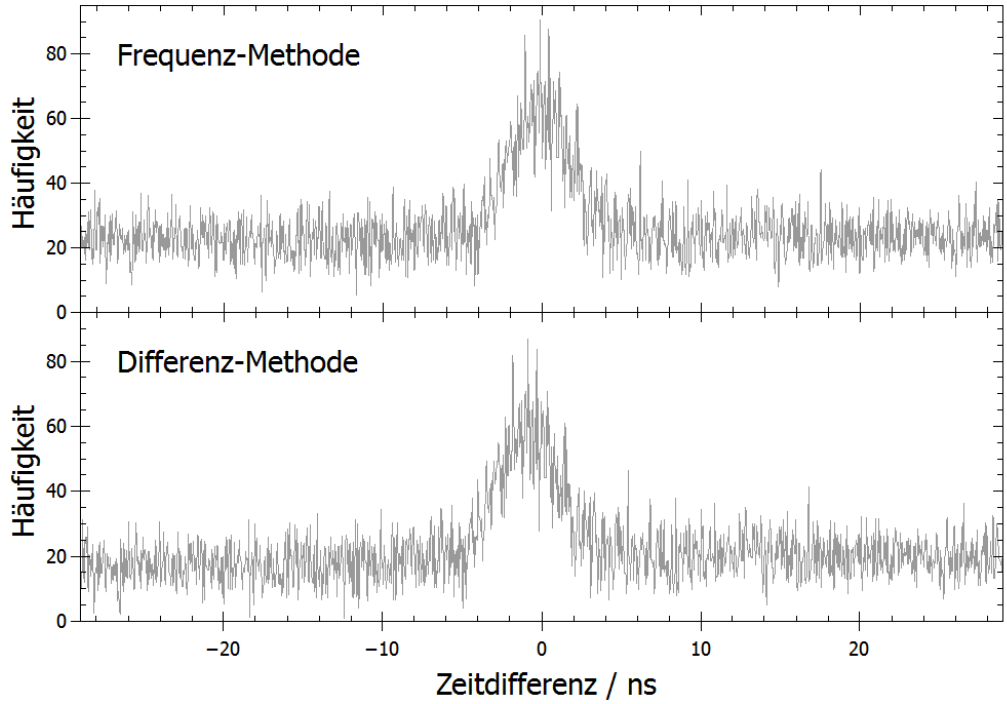


Abb. 3.12: Signal der echten Koinzidenz nach Isolierung aus dem Koinzidenzzeitspektrums bei $p = 100\,\mathrm{mPa}$. Die Frequenz-Methode eliminiert die periodische Struktur der Anregung durch den Speicherring im Frequenzraum, während die Differenz-Methode den Mittelwert der Anregungsstruktur aus den benachbarten Bunchen benutzt und vom Gesamtsignal subtrahiert. In beiden Fallen ist die echte Koinzidenz noch um einen konstanten Betrag auf der y-Achse den Untergrund verschoben.

3.4 zeitabhängige Fluoreszenzintensität

Die Verzögerungen für ein Signal auf den beiden Detektoren kann auch bezüglich des durch den Speicherring ausgelösten Bunchmarker betrachtet werden. Damit ergibt sich eine gemeinsame und absolute Referenz in der Zeitmessung, die Fluoreszenzintensität kann also zeitaufgelöst relativ zur Anregung betrachtet werden. Die beiden Zeiten Δt_{PM} und Δt_{DLD} werden hierfür gegenüber dem Bunchmarker t_{BM} errechnet durch:

$$\Delta t_{\mathrm{PM}} = t_{\mathrm{PM}} - t_{\mathrm{BM}} \qquad \Delta t_{\mathrm{DLD}} = t_{\mathrm{DLD}} - t_{\mathrm{BM}} \tag{3.5}$$

Da der Bunchmarker eine arbiträre Verschiebung zur eigentlichen Anregung hat, d.h. wenn ein Teilchenpaket den Undulator des Strahlrohrs passiert, haben die absolute Werte von Δt_{PM} und Δt_{DLD} keine Bedeutung. Der Versatz ist jedoch für jede Anregung konstant und führt damit lediglich zu einer Verschiebung. Der Ursprung ist daher so gewählt, das bei $\Delta t_{\mathrm{PM}} = 1\,\mathrm{Kanal}$ und $\Delta t_{\mathrm{DLD}} = 1\,\mathrm{Kanal}$ gerade das Fluoreszenzsignal mit der geringsten Verzögerung gegenüber der Anregung auftritt.

3.4.1 Koinzidenzkarte

Für beide Detektoren gleichzeitig ergibt dies als Histogramm eine zweidimensionale Darstellung, die Koinzidenzkarte oder Fluoreszenzintensitätsmatrix, mit je einer Zeitachsen pro Detektor und einer Achse der Häufigkeit wie in Abb. 3.13 zu sehen.

Analog zu dem Koinzidenzzeitspektrum zeigt auch diese Darstellung die Anregungsstruktur durch den bei dieser Messung verwendeten Bunchabstand des Speicherringes von 192 ns in quadratischen Strukturen, dessen Kantenlänge jeweils dieser Zeitdauer entspricht. Durch due bereits erwähnte unbekannte Verschiebung des Bunchmarkers zur echten Anregung fällt der eigentliche zeitliche Beginn der Anregung nicht zwangsläufig mit dem Beginn eines Bunchquadrates zusammen, speziell auf der Achse des Photomultipliers zeigt sich hier eine deutliche Verzögerung. Der unmittelbar aus einer Anregung enstammende Bunch, bei dem also beide Detektoren direkt nach der Anregung ein Signal messen, wird im folgenden 1:1-Bunch genannt und ist stets der am nächsten zum Ursprung gelegene. Dieser zeigt auch eine Diagonale mit der Steigung $m = 1$, die in anderen Bunchen nicht vorzufinden ist. Diese Gerade entspricht einer konstanten Zeitdifferenz der beiden Detektoren (entsprechend einer kleinen Zeitdifferenz Δt im Koinzidenzzeitspektrum) und enthält die echten Koinzidenzen. Wie bereits zuvor in 3.3 diskutiert machen sich diese gerade bemerkbar durch ein Signal, das nach Abzug der statistisch verteilten zufälligen Koinzidenz verbleibt. Da in jedem Bunch außer dem 1:1-Bunch einer der Detektoren ein Ereignis erst bei einer späteren Anregung registriert, kann bei den in dieser Arbeit betrachteten Prozessen ($\tau_{\mathrm{Ly}\alpha} = 1{,}6\,\mathrm{ns}$) in diesen eine echte Koinzidenz nicht vorkommen.

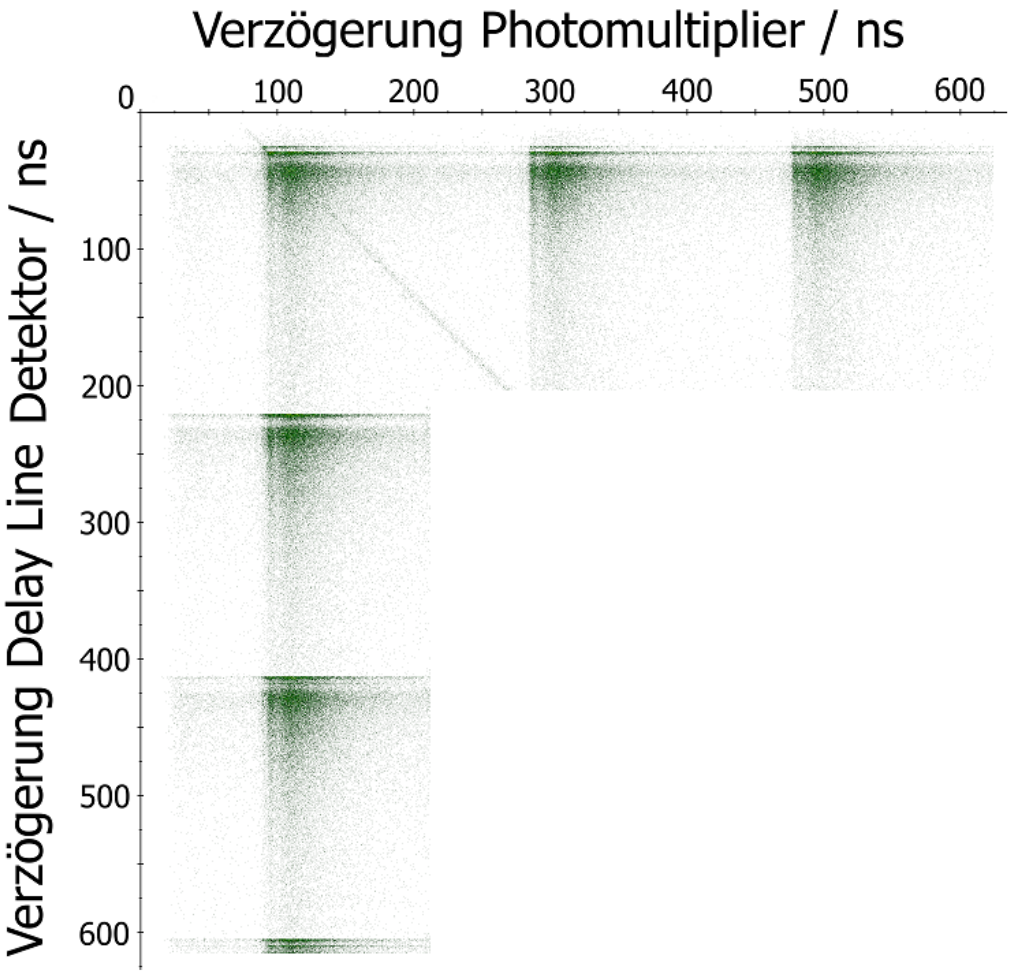
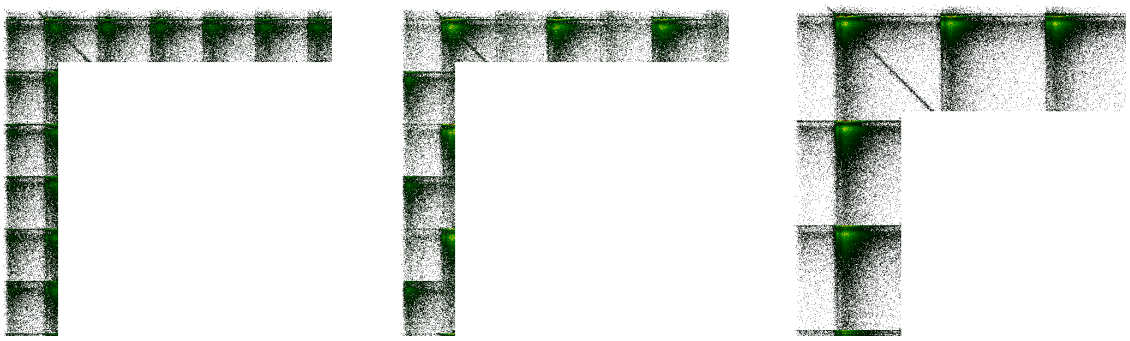


Abb. 3.13: Koinzidenzkarte bei 100 mPa und fünf Bunchen im Speicherring mit fünffachen Binning (1 Punkt = 250 ps zusammengefasst), welche die Häufigkeit einer bestimmten Verzögerung einer der beiden Detektoren gegenüber dem Bunchmarker darstellt. Je dunkler der Punkt, desto häufiger tritt die jeweilige Verzögerung auf. Der Ursprung ist für eine optimale Darstellung verschoben.

Anders als bei den Zeitdifferenzen zwischen den beiden Detektoren können bei dieser Art der Auswertung hingegen nicht die verschiedenen Anregungsstrukturen, die im Laufe der Messungen bei 100 mPa verwendet wurde, gemeinsam betrachtet werden. Während bei den vorhergehenden Messreihen mit 400 mPa und 200 mPa sich stets zehn Bunche im Speicherring befunden haben und der Bunchmarker einmal pro Teilchenpaket ausgelöst hat, liegen hier für jene Messungen drei verschiedene Konfiguration vor, die jeweils mit A', A'' und B bezeichnet werden sollen:



(a) A' (b) A'' (c) B

Abb. 3.14: Koinzidenzkarte der verschiedenen Konfigurationen A' (10 Bunche, Bunchmarker alle 96 ns), A'' (5 Bunche, Bunchmarker alle 96 ns) und B (5 Bunche, Bunchmarker alle 192 ns) bei 100 mPa mit 20fachen Binning. Der Ausschnitt hat in allen drei Fällen eine Breite und Höhe von 625 ns.

- A': 10 Bunche im Ring im Abstand von 96 ns, Bunchmarker alle 96 ns
- A'': 5 Bunche im Ring im Abstand von 192 ns, Bunchmarker alle 96 ns
- B: 5 Bunche im Ring im Abstand von 192 ns, Bunchmarker alle 192 ns

Eine Übersicht über die Darstellung in einer Koinzidenzkarte dieser drei Konfigurationen zeigt Abb. 3.14.

Deutlich sichtbar ist, dass der grundlegende Aufbau der Koinzidenzkarte stärker von der Einstellung des Bunchmarkers als von dem eigentlichen Bunchabstand abhängt, da dieser nach (3.5) die maximal mögliche Verzögerung gegenüber der Anregung definiert. In der Konfiguration A'' mit doppelten Bunchabstand aber derselben Bunchmarkereinstellung ist die Fluoreszenz eines Bunches aufgeteilt auf zwei aufeinanderfolge Abschnitte, die durch die erneute Auslösung des Bunchmarkers gebildet werden, obwohl keine weitere Anregung stattfindet. Wenn der Unterschied zwischen A' und A'' für die Auswertung keine Rolle spielt wie im Beispiel des Koinzidenzzeitspektrums, so werden diese beiden zu A zusammengefasst. Die Messungen bei 200 mPa und 400 mPa gehören im Sinne der Auswertung auch zur Konfiguration A'.

3.4.2 Detektorsummen

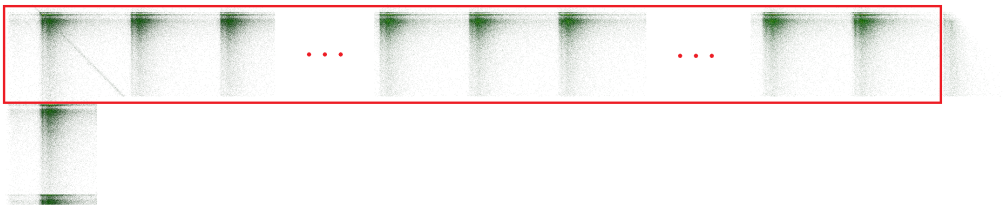
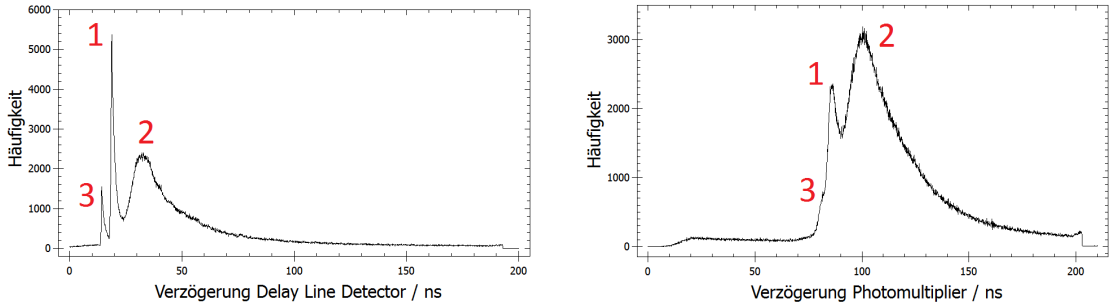


Abb. 3.15: Ausschnitt für die Summierung über eine Detektorachse, hier die des Photomultipliers, von Beginn der Koinzidenzkarte mit dem 1:1-Bunch bis zum Auslaufen des Timeout des Time-to-Digital-Converters bei $t_{\max} = 5\,\mu s$ mit 6fachem Binning.

Ausgehend von der Koinzidenzkarte kann durch Summierung entlang der Zeitachse eines der beiden Detektoren wie in Abb. 3.15 angedeutet wieder die einfache nicht-koinzidente zeitabhängige Fluoreszenzintensität rekonstruiert werden, wie sie von einem der beiden Detektoren alleine gesehen wird. Diese Addition entlang der Photomultiplierachse wird im folgenden als Photomultipliersumme oder PM-Summe bezeichnet, die entlang der Zeitachse des Delay Line Detector als DLD-Summe.



(a) PM-Summe **(b)** DLD-Summe

Abb. 3.16: Detektorsummen über alle Bunche für Photomultiplier und DLD der B-Konfiguration bei 100 mPa mit zweifachem Binning. Die relative Verschiebung zwischen den beiden Detektorsummen ist willkürlich durch den Bunchmarker gegeben.

Das Ergebnis für den Druck von $p = 100\,\text{mPa}$ in der B-Messkonfiguration zeigt Abb. 3.16. Bei der A''-Konfiguration wird dabei jeder zweite Bunch ausgeschnitten und nicht in die Summe miteinbezogen, da dieser nur die zeitversetzte Weiterführung

des vorherigen Bunches enthält. Dieser Bereich ist für die folgenden Betrachtungen nicht weiter relevant und in Messungen der der A'-Konfiguration durch die häufigere Anregung auch nicht enthalten. In beiden Darstellungen lassen sich 3 direkt sichtbare Peaks identifizieren, die im Folgenden wie in Abb. 3.16 dargestellt mit 1, 2 und 3 bezeichnet werden.

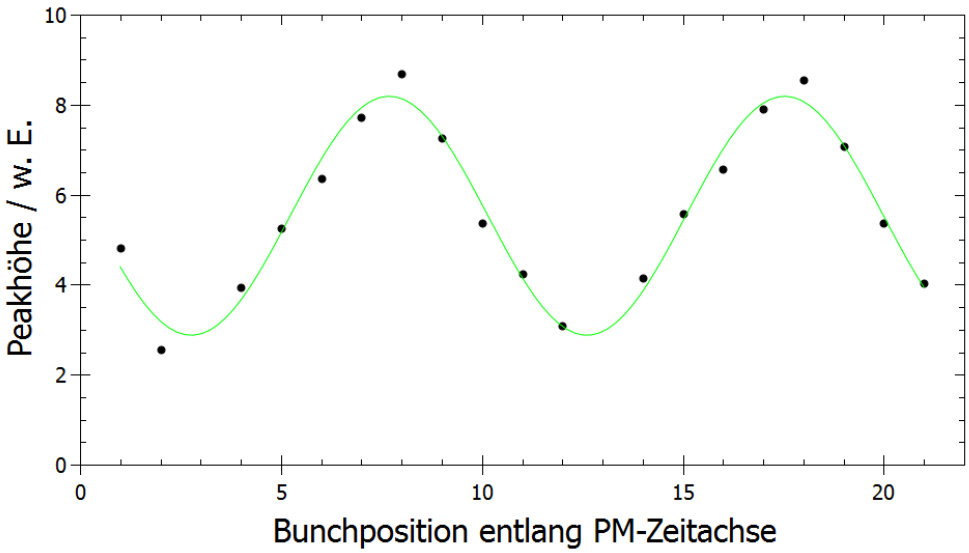


Abb. 3.17: Peakhöhe des dritten Peaks an verschiedenen Bunchpositionen der PM-Summe bei 400 mPa. Eine einfache Sinus-Funktion wurde angepasst mit $f = (0{,}102 \pm 0{,}002)\,\frac{1}{\text{Bunch}}$, was einer Periodizität von 10 Bunchen entspricht. Diese Messungen wurden durchgeführt mit 10 Positronenbunchen im Speicherring.

Während die ersten beiden in allen Einzelbunchen in gleicher Weise gefunden werden können, zeigt Peak 3 eine Oszillation in der Amplitude in Abhängigkeit von der Bunchposition. Abb. 3.17 zeigt dabei die relative Peakhöhe für die ersten 21 Bunche der PM-Summe bei 400 mPa. Die Amplitudenmodulation geschieht hier mit einer Frequenz von $f = (0{,}102 \pm 0{,}002)\,\frac{1}{\text{Bunch}}$ und wiederholt sich damit alle 10 Bunche, wobei diese Messungen auch mit 10 Positronenbunchen im Speicherring durchgeführt wurden. Der Peak stellt vermutlich denselben Prozess wie Peak 1 dar, der durch den zeitlichen Versatz eines der Bunche im Ring zu einem anderen Zeitpunkt stattfindet. Ein solcher Vorpeak ist dann auch für den Prozess von Peak 2 zu erwarten, jedoch hier durch die Breite nicht direkt sichtbar.

Für eine genauere Untersuchung der Struktur sollen diese durch einen mathematischen Ausdruck beschrieben werden. Nach (1.9) wird im zeitabhängigen Fluoreszenzsignal ein exponentieller Abfall $f(t)$ der Intensität erwartet, während der angeregte Zustand zerfällt. Dieser beginnt zum Zeitpunkt $t = t_0$ mit der Anregung, was zusätzlich durch die Multiplikation mit einer Stufenfunktion $\Theta(t - t_0)$ berücksichtigt wird. Als Detektorfunktion wird ein normiertes Gaussprofil $g(t)$ verwendet mit der Standardabweichung σ.

$$f(t) = \alpha \exp\left(-\frac{t - t_0}{\tau}\right) \Theta(t - t_0) \tag{3.6}$$

$$g(t) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2}} \exp\left(-\frac{t^2}{2\sigma^2}\right) \tag{3.7}$$

Das Messsignal stellt dann eine Faltung dieser beiden Funktionen $f(t)$ und $g(t)$ dar:

$$\begin{aligned} h(t) = (f * g)(t) &= \int_{-\infty}^{\infty} f(x)\, g(t - x)\, \mathrm{d}x \\ &= \frac{\alpha}{\sigma\sqrt{2}} \int_{-\infty}^{\infty} \Theta(x - t_0) \exp\left(-\frac{x - t_0}{\tau}\right) \exp\left(-\frac{(t - x)^2}{2\sigma^2}\right) \mathrm{d}x \\ &= \frac{\alpha}{\sigma\sqrt{2}} \exp\left(\frac{t_0}{\tau} - \frac{t^2}{2\sigma^2}\right) \int_{t_0}^{\infty} \exp\left(x\left(\frac{t}{\sigma^2} - \frac{1}{\tau}\right) - \frac{x^2}{2\sigma^2}\right) \mathrm{d}x \end{aligned} \tag{3.8}$$

Das Integral in (3.8) lässt sich mit der Fehlerfunktion

$$\mathrm{erf}(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^z \exp\left(-x^2\right) \mathrm{d}x = -\mathrm{erf}(-z)$$

für $a > 0$ mit *Wolfram Mathematica 8* analytisch lösen durch

$$\int_z^{\infty} \exp(bx - ax^2) = \frac{\sqrt{\pi}}{2\sqrt{a}} \exp\left(\frac{b^2}{4a}\right) \left[1 + \mathrm{erf}\left(\frac{b - 2az}{2\sqrt{2}}\right)\right] \tag{3.9}$$

Mit der komplementären Fehlerfunktion $\mathrm{erfc}(z) = 1 - \mathrm{erf}(z) = 1 + \mathrm{erf}(-z)$ sowie $a = \frac{1}{\sigma^2}$ und $b = \frac{t}{\sigma^2} - \frac{1}{\tau}$ folgt dann für $h(t)$

$$\begin{aligned} h(t) &= \frac{\alpha}{\sigma\sqrt{2}} \exp\left(\frac{t_0}{\tau} - \frac{t^2}{2\sigma^2}\right) \sigma \sqrt{\frac{\pi}{2}} \exp\left(\frac{(\sigma^2 - \tau t)^2}{2\sigma^2\tau^2}\right) \mathrm{erfc}\left(\frac{\sigma^2 - \tau t + \tau t_0}{\sigma\tau\sqrt{2}}\right) \\ &= \frac{\alpha}{2} \exp\left(\frac{\sigma^2}{2\tau^2} - \frac{t - t_0}{\tau}\right) \mathrm{erfc}\left(\frac{\sigma}{\tau\sqrt{2}} - \frac{t - t_0}{\sigma\sqrt{2}}\right) \end{aligned}$$

Als Endergebnis für die Faltung von $f(t)$ und $g(t)$ ergibt sich schließlich bei den Abkürzungen $\gamma = \frac{\sigma}{\tau\sqrt{2}}$ und $\tilde{\sigma} = \sigma\sqrt{2}$:

$$h_{\tau,\sigma,t_0}(t) = \frac{\alpha}{2} \exp\left(\gamma^2 - \frac{t-t_0}{\tau}\right) \operatorname{erfc}\left(\gamma - \frac{t-t_0}{\tilde{\sigma}}\right) \tag{3.10}$$

Diese Funktion $h(t)$ beschreibt die zeitabhängige Fluoreszenzintensität für den Übergang zwischen zwei Energieniveaus mit der Lebensdauer τ zum Zeitpunkt t_0 bei der Anfangsintensität α unter Annahme einer Gaußverbreiterung mit der Standardabweichung σ. Für $\sigma \longrightarrow 0$ geht dieser Ausdruck wieder in einen exponentiellen Zerfall mit Stufenfunktion $f(t)$ über. Abb. 3.18 zeigt den Verlauf von $h(t)$ für verschiedene Standardabweichungen bei jeweils gleicher Amplitude und Zerfallszeit. Zur Berücksichtigung eines konstanten Hintergrundrauschens sowie sehr langsamer Zerfälle, die in den betrachteten Zeitbereichen nicht aufgelöst werden, wird im Folgenden noch ein konstanter Parameter y_0 benutzt, der zu $h(t)$ addiert wird.

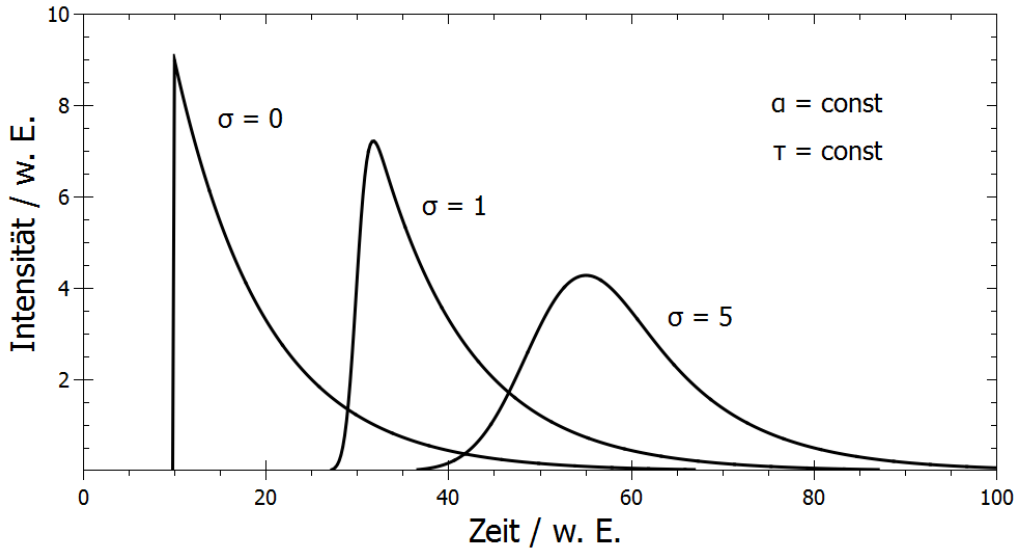


Abb. 3.18: Gaußverbreiterter exponentieller Fluoreszenzzerfall $h(t)$ bei verschiedenen Standardabweichungen σ. Die Anfangsamplitude α und Zerfallszeit τ ist jeweils gleich, die Anregung geschieht zu den Zeitpunkten $t_0 = 10$, 30 und 50.

An die drei direkt sichtbaren Peaks in Abb. 3.16 kann nun der Ausdruck $h(t)$ mit jeweils voneinander unabhängigen Parametern angepasst werden. Aufgrund der deutlich besseren zeitlichen Auflösung wird dies nun nur an der Photomultipliersumme

(wieder bei $p = 100\,\mathrm{mPa}$ in B-Konfiguration) verdeutlicht. Die gesamte Funktion lautet damit $k(t) = y0 + h_1(t) + h_2(t) + h_3(t)$, wobei die Indizes nach der vorherigen Peak-Nummerierung gewählt sind und nach (3.10) für jedes $h_i(t)$ jeweils gilt:

$$h_i(t) = \frac{\alpha_i}{2} \exp\left(\gamma_i^2 - \frac{t - t_i}{\tau_i}\right) \mathrm{erfc}\left(\gamma_i - \frac{t - t_i}{\tilde{\sigma}_i}\right)$$

Aus diesen Parametern kann nun das Amplitudenverhältnis $q = \frac{\alpha_3}{\alpha_1}$ sowie der zeitlichen Abstand $\Delta t = t_1 - t_3$ von Peak 1 zu 3 bestimmt werden, also zwischen den Fluoreszenzsignalen, die durch die Unterschiede in der Bunchstruktur getrennt werden. Das Amplitudenverhältnis gilt bedingt durch die Oszillation dieser Unterschiede nur für den Bunch, in dem diese Anpassung durchgeführt wird. Davon ausgehend können nun alle Fluoreszenzzerfälle voneinander getrennt werden durch

$$\begin{aligned} l(t) = y_0 + & h_{\tau_1,\sigma_1,t_1}(t) + q\, h_{\tau_1,\sigma_1,t_1+\Delta t}(t) \\ & h_{\tau_2,\sigma_2,t_2}(t) + q\, h_{\tau_2,\sigma_2,t_2+\Delta t}(t) \end{aligned} \tag{3.11}$$

also jeweils gleicher Zerfallszeit und Standardabweichung, aber verschoben um Δt zueinander und mit einem Amplitudenverhältnis von q. Abb. 3.19 zeigt die Anpassung von $l(t)$ nach Bestimmung der Beziehungen durch $k(t)$ sowie die einzelnen Zerfälle, aus denen es zusammengesetzt ist.

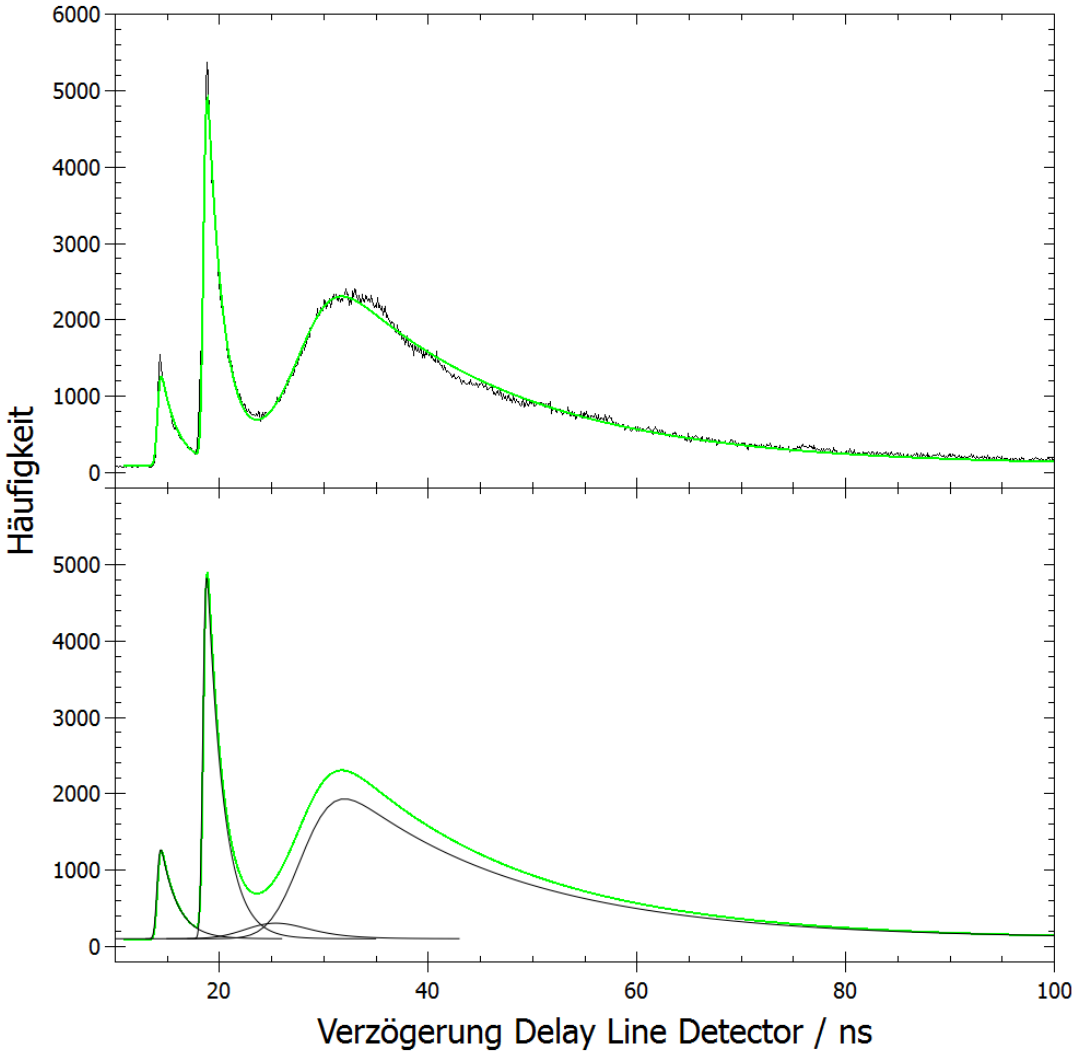


Abb. 3.19: Anpassung von $l(t)$ an B-Konfiguration bei 100 mPa (oben) sowie die Trennung der einzelnen Zerfälle (unten). Zwei zum selben Prozess gehörenden Peaks benutzen dieselbe Standardabweichung und Zerfallszeit und sind jeweils um ein gleiches Δt verschoben mit einem Amplitudenverhältnis von q.

4 Ergebnisse und Diskussion

Aus der Auswertung der aufgenommenen Daten in Kapitel 3 ergeben sich die Emissionsspektren von Wasserstoff nach Anregung durch Elektronenstoß (EIFS) im VUV-Spektralbereich von 35 bis 220 nm und Synchrotronstrahlung (PIFS) im FUV-Spektralbereich von 115 bis 220 nm sowie die Zeitstruktur der Fluoreszenzzerfälle in Koinzidenz und jeweils aufgelöst für die beiden eingesetzten Detektoren.

4.1 Emissionsspektren

Die beiden nach Anregung durch Elektronenstoß aufgenommenen Emissionsspektren sind in Abb. 4.1 zusammen dargestellt. Zum Vergleich mit vorherigen Messungen sind die Ergebnisse aus [ASK84] mit eingezeichnet, bei denen das Spektrum von H_2 nach Anregung mit Elektronen einer Energie von 100 eV aufgenommen wurde. Es ist nur der Ausschnitt dargestellt, auf dem ein signifikantes Signal gemessen werden konnte. In diesem können eine Reihe von Merkmalen beobachtet werden:

- die deutlich sichtbare Ly_α-Linie des Wasserstoffatoms bei 121,6 nm, die von beiden Detektoren gesehen wird; der Übersicht halber ist sie auf dieser Abbildung nur im EUV-Spektrum dargestellt,

- weitere Linien der atomaren Lyman-Serie mit Übergängen aus höheren Hauptquantenzahlen bis Ly_ε,

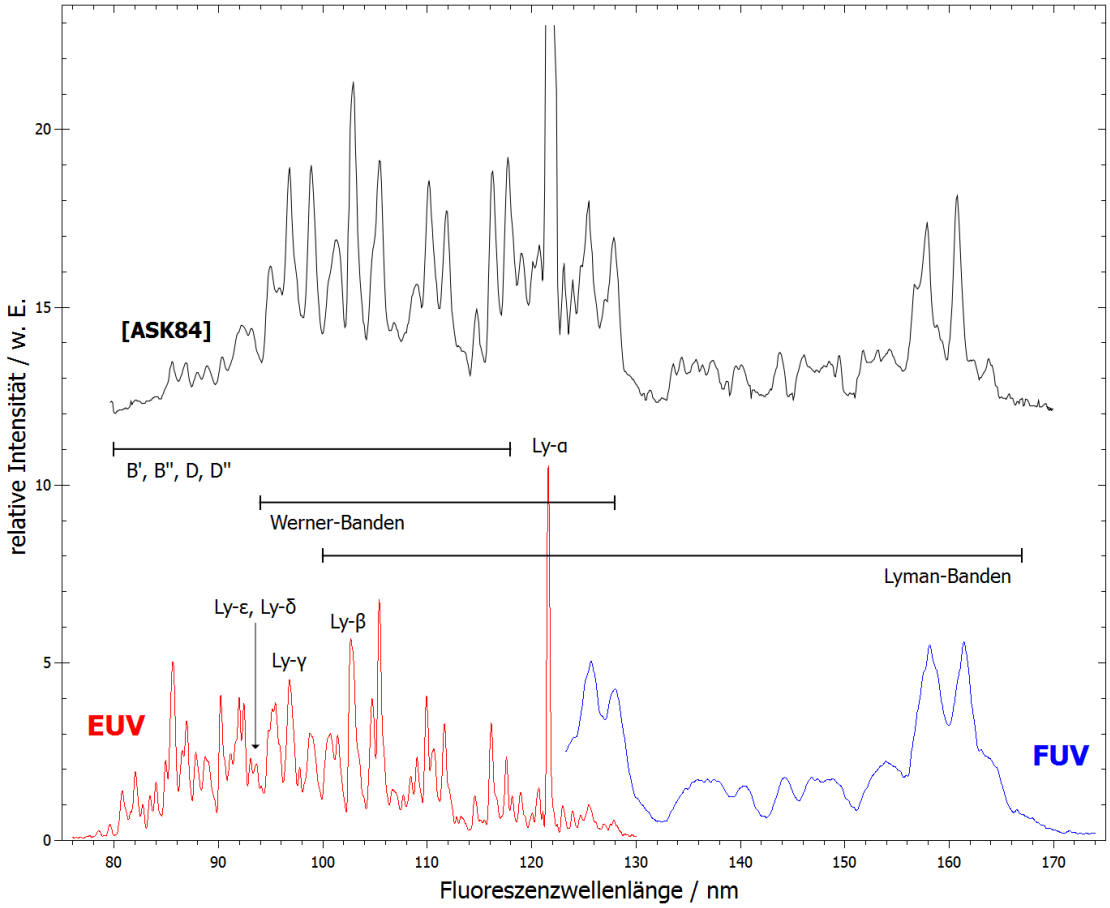


Abb. 4.1: Emissionsspektrum von Wasserstoff im VUV von 75 bis 175 nm nach Anregung durch Elektronenstoß bei einer Energie von 3,5 keV. Das Bild ist zusammengesetzt aus der Messung von WSA und DLD (siehe 2.4). Die relative Intensität der beiden Spektren zueinander ist willkürlich und dient der Ablesbarkeit, auf beide wurde ein Tiefpass-Filter angewendet mit einer Grenzfrequenz von $\nu_{\mathrm{EUV,WSA}} = 3\,\mathrm{nm}^{-1}$ und $\nu_{\mathrm{FUV,DLD}} = 2\,\mathrm{nm}^{-1}$. Den Literaturvergleich liefern Daten aus [ASK84]

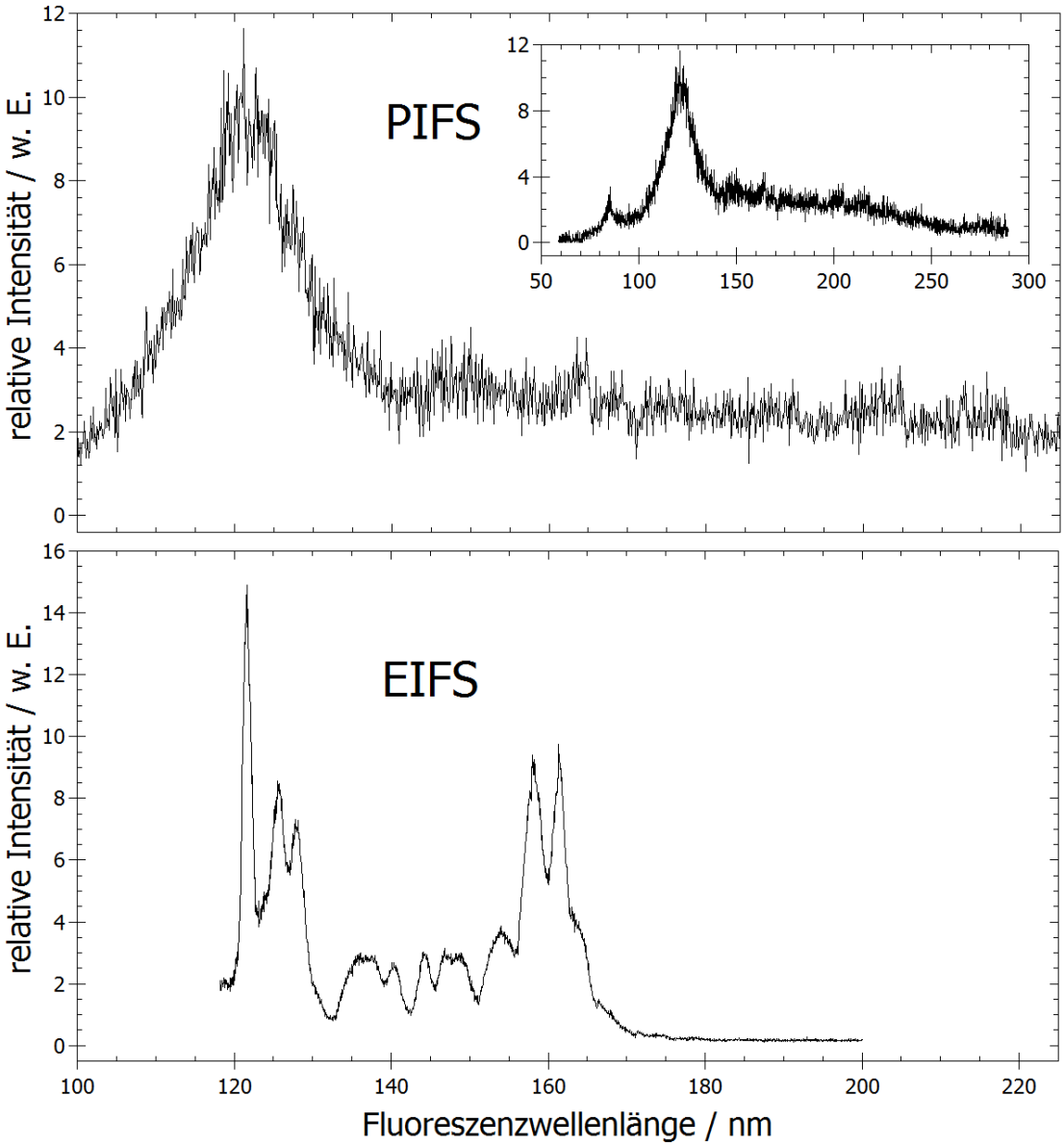


Abb. 4.2: Emissionsspektrum von Wasserstoff im FUV von 100 bis 200 beziehungsweise 225 nm nach Anregung durch Synchrotronstrahlung (PIFS) bei einer Energie von 33,66 eV sowie Elektronenstoß (EIFS) bei einer Energie von 3,5 keV. Die eingefügte Abbildung zeigt das vollständige PIFS-Spektrum.

- das Lyman-Bandensystem der Übergänge $B\,^1\Sigma_u^+ \rightarrow X\,^1\Sigma_g^+$ [ARL93], das Werner-Bandensystem der Übergänge $C\,^1\Pi_u \rightarrow X\,^1\Sigma_g^+$ [ARL93] sowie die Übergänge der Rydberg-Serien auf Basis der Zustände B', B'', D, D' [ASK84] des Wasserstoffmoleküls mit jeweils einer Vielzahl von einzelnen Linien und Kaskaden,

- die Grenze des Spektrums nahe der Ionisationsenergie des Wasserstoffmoleküls von $15.4\,\mathrm{eV} \mathrel{\hat{=}} 80.4\,\mathrm{nm}$ [ASK84].

Die Gegenüberstellung der Anregung durch Synchrotronstrahlung mit einer Energie von 33,66 eV und dem zuvor gezeigten Elektronenstoß im FUV-Spektralbereich zeigt Abb. 4.2. Die PIFS-Messung zeigt aufgrund einer signifikant geringeren spektralen Auflösung nur wenige Strukturen; neben einem deutlichen Signal, das der Ly_α-Linie zugeordnet werden kann, zeigt sich ein stark verrauschter Untergrund. Nach der Kalibration der Wellenlängenskala umfasst diese außerdem über einen weit größeren Bereich ein Signal als die Empfindlichkeit des verwendeten Detektors zulässt (auch im Vergleich zu EIFS). Die Gründe hierfür liegen vermutlich im fehlenden Spalt für das Fluoreszenzlicht im Eintrittsarm des verwendeten Spektrometers (beschrieben in 2.2.1) sowie dem Fokus des Detektors am Austrittsarm. Die dort vorhandene Konstruktion verfügte nicht über eine ausreichende Justagestrecke, um den Detektor genau in den Abbildungspunkt des Gitters zu positionieren. Dies führt zu einer unscharfen Abbildung und so zu einer Verbreiterung einzelner Linien und Merkmale wie auch des gesamten Spektrums. Bei der einzelnen links (d.h. bei kleineren Wellenlängen) von Ly_α liegenden Linie kann davon ausgegangen werden, dass es sich um einen Reflex von Ly_α selbst handelt. Der Detektor sollte bei dieser Gitterstellung keine Empfindlichkeit mehr zeigen, wie der Vergleich mit EIFS auch bestätigt.

Einen Vergleich der spektralen Auflösung für alle durchgeführten Messungen zeigt Abb. 4.3 anhand der Breite der Ly_α-Linie. Für ein angepasstes Gaussprofil ergibt sich jeweils als FWHM (Full width at half maximum) dieser Linie mit der doppelten Standardabweichung als Unsicherheit:

- im EUV $w_{\mathrm{Ly}\alpha} = (0{,}352 \pm 0{,}008)\,\mathrm{nm}$

- für EIFS im FUV $w_{\mathrm{Ly}\alpha} = (1{,}51 \pm 0{,}04)\,\mathrm{nm}$ in der ersten Beugungsordnung und

$w_{\mathrm{Ly}\alpha} = (0{,}44 \pm 0{,}03)\,\mathrm{nm}$ in zweiter Ordnung

- mit PIFS im FUV $w_{\mathrm{Ly}\alpha} = (17{,}12 \pm 0{,}14)\,\mathrm{nm}$

Auf eine weitergehende Betrachtung der Unsicherheiten wird hier verzichtet, da die aufgenommenen Spektren eine Übersicht über die Verteilung der einzelnen Linien und Übergänge geben sollen und nicht der Zuweisung beziehungsweise Bestimmung dienen. Insbesondere die Kalibrierung der Wellenlängenskala ist wie in Abschnitt 3.1 beschrieben für die FUV Messungen aufgrund der wenigen zur Verfügung stehenden Punkte stark fehlerbehaftet.

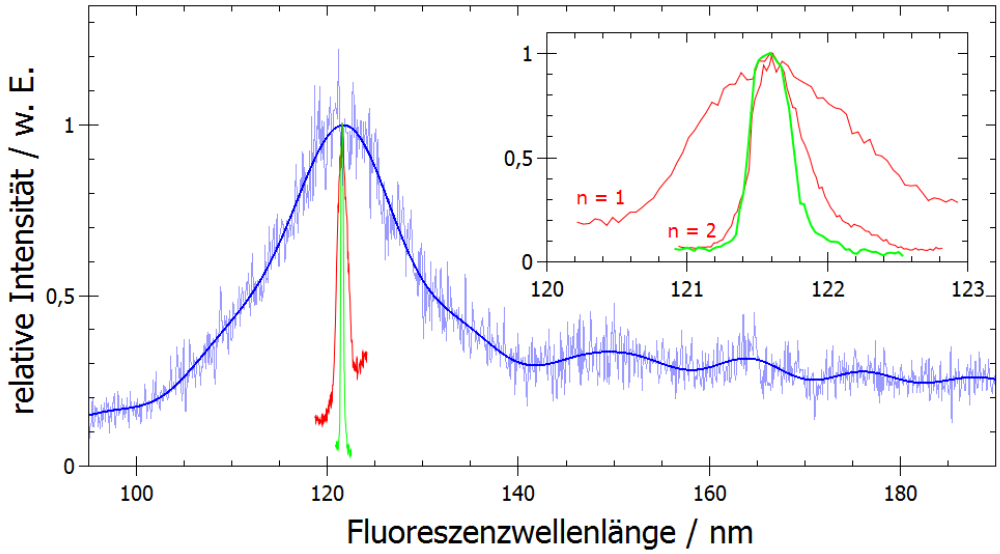


Abb. 4.3: Vergleich der Ly_α-Linienbreite in den aufgenommenen Spektren mit PIFS FUV (blau), EIFS FUV (rot) und EIFS EUV (grün). Die eingefügte Abbildung zeigt eine vergrößerte Darstellung der beiden EIFS-Messungen (FUV und EUV) erweitert um die 2. Ordnung der EIFS FUV-Messung.

Die Untersuchungen des Emissionsspektrums von Wasserstoff zeigen jedoch, dass im Wellenlängenbereich von 75 bis 175 nm die Ly_α-Linie den stärksten Übergang darstellt. Im speziell für die Koinzidenzmessungen relevanten FUV sind bei Anregung durch Elektronenstoß noch einzelne Merkmale aus den Lyman-Banden des Wasserstoffmoleküls und darauf aufbauenden Kaskaden sichtbar [ASK84]. Trotz der hohen Unsicherheiten der PIFS-Messung lässt der neben Ly_α weitgehend konstante Untergrund vermuten, das hier diese Strukturen nicht auftreten. Für das Koinzi-

denzexperiment kann daher angenommen werden, dass weitere diskrete Übergänge bei den verwendeten Detektoren und Anregungsenergien nur zu einem geringen Teil auftreten.

4.2 Lebensdauer in den Koinzidenzmessungen

Zur Untersuchung der Lebensdauer der neutralen H($2p$)-Fragmente nach Dissoziation eines superexcited state dient zunächst wie in den vorangegangen Arbeiten aus Abschnitt 1.4.2 das Koinzidenzzeitspektrum. Es wurden zwei Methoden entwickelt, um die Anregungsstruktur des Speicherrings zu berücksichtigen und das Signal zu isolieren, in dem die echten Koinzidenzen enthalten sind.

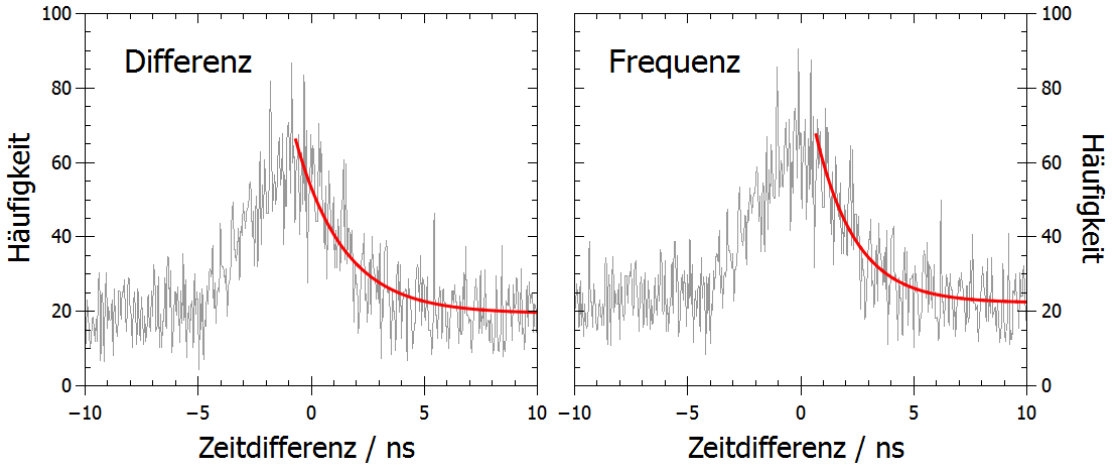


Abb. 4.4: Vergleich der beiden Methoden zur Isolierung der echten Koinzidenz aus dem Koinzidenzzeitspektrum bei $p = 100\,\mathrm{mPa}$. Bei beiden ist an die rechte abfallende Flanke eine exponentiell abfallende Funktion angepasst mit den Lebensdauern $\tau_{\mathrm{Diff}} = (1{,}6 \pm 0{,}4)\,\mathrm{ns}$ und $\tau_{\mathrm{Freq}} = (1{,}7 \pm 0{,}8)\,\mathrm{ns}$.

Das verbleibende Signal kann auch hier als Fluoreszenzzerfall identifiziert werden. Beide Methoden im Vergleich in Abb. 4.4 erzielen nach Anpassen eines exponentiellen Zerfalls mit $\tau_{\mathrm{Diff}} = (1{,}6 \pm 0{,}4)\,\mathrm{ns}$ und $\tau_{\mathrm{Freq}} = (1{,}7 \pm 0{,}8)\,\mathrm{ns}$ innerhalb der Fehlergrenzen, für die hier die doppelte Standardabweichung verwendet wird, vergleichbare Ergebnisse für die Lebensdauer. Die Differenzmethode zeigt hier jedoch

eine deutlich geringere Unsicherheit gegenüber der Frequenzmethode, so dass diese Methode für den Vergleich der verschiedenen Messdrücke bevorzugt wird.

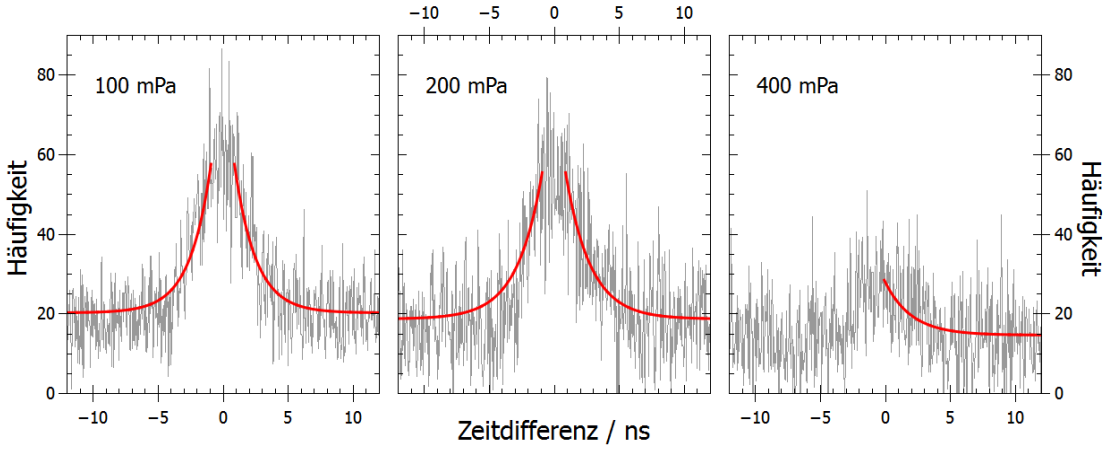


Abb. 4.5: Vergleich des Koinzidenzsignals nach dem Isolieren aus dem Untergrund im Koinzidenzzeitspektrum durch die Differenz-Methode bei den drei verwendeten Drücken von $p = 100\,\mathrm{mPa}$, $200\,\mathrm{mPa}$ und $400\,\mathrm{mPa}$. Es wurde jeweils an die linke Flanke ein exponentieller Zerfall angepasst mit $\tau_{100} = (1{,}6 \pm 0{,}4)\,\mathrm{ns}$, $\tau_{200} = (1{,}9 \pm 0{,}6)\,\mathrm{ns}$ und $\tau_{400} = (2{,}0 \pm 1{,}4)\,\mathrm{ns}$.

Abb. 4.5 zeigt diesen Vergleich für $p = 100\,\mathrm{mPa}$, $200\,\mathrm{mPa}$ und $400\,\mathrm{mPa}$ mit einer jeweiligen Anpassung eines exponentiellen Zerfalls an beiden Flanken. Die resultierende Lebensdauer ist die Mittelung über die beiden Seiten mit der doppelten Standardabweichung als Unsicherheit.

- Bei $100\,\mathrm{mPa}$ ist ein deutliches Koinzidenzsignal nach dem Isolieren vom Untergrund vorzufinden. Die Lebensdauer der angepassten Kurve beträgt $\tau_{100} = (1{,}6 \pm 0{,}4)\,\mathrm{ns}$.

- Bei $200\,\mathrm{mPa}$ zeigt sich auch eine Struktur mit einer vergleichbaren Amplitude wie bei dem geringeren Druck. Mit dem im Vergleich dazu jedoch generell stärkeren Rauschen von dieser Messung ergibt sich hier eine Lebensdauer von $\tau_{200} = (1{,}9 \pm 0{,}6)\,\mathrm{ns}$.

- Bei $400\,\mathrm{mPa}$ lässt sich kein eindeutiges Koinzidenzsignal mehr ausmachen, das sich vom Untergrund sowie dem Rauschen abhebt. Es ist noch möglich, eine

exponentiell abfallende Funktion an die Flanke anzupassen mit einer Lebensdauer von $\tau_{400} = (2{,}0 \pm 1{,}4)\,\mathrm{ns}$.

Aus den drei gemessenen Drücken lässt sich damit schließen, dass bei 100 mPa und 200 mPa ein koinzidenter Fluoreszenzzerfall auftritt. Die Lebensdauer dieser betrachteten koinzidenten Fluoreszenz ist in beiden Fallen im Rahmen der Unsicherheiten in Übereinstimmung mit der Lebensdauer $\tau_{2p} = 1{,}59\,\mathrm{ns}$ eines freien Wasserstoffatoms, dessen Elektron in das $2p$-Orbital angeregt ist. Somit folgt, dass die koinzidente Fluoreszenz aus der neutralen Dissoziation von einem Wasserstoffmolekül in zwei H($2p$)-Fragmente nach Anregung in einen superexcited state aufgetreten ist. Eine gleichzeitige Fluoreszenz von zwei voneinander unabhängigen Wasserstoffatomen, beispielsweise aus der Dissoziation von unterschiedlichen Molekülen, kann dabei vernachlässigt werden. Diese Signale sind auch in der zufälligen Koinzidenz enthalten, die in jedem gemessenen Bunch des Koinzidenzzeitspektrums zu gleichen Teilen auftritt - die echte Koinzidenz im Sinne eines koinzidenten Prozesses kann dagegen nur im zentralen Bunch um $\Delta t = 0$ auftreten. Dies gilt auch für andere Prozesse als die neutrale Dissoziation, die letztendlich zu angeregten H($2p$)-Fragmenten führen können. Bei dem höheren Druck von 400 mPa zeigt sich kein Koinzidenzsignal, das sich einer Fluoreszenz deutlich zuordnen lässt, auch wenn die Lebensdauer des angepassten Zerfalls noch innerhalb der sehr großen Unsicherheit von 35% die erwartete Lebensdauer von H($2p$) enthält. Die gesamte Zählrate bei diesem Druck war dabei auf dem gleichen Niveau wie bei den vorherigen beiden. Dies lässt sich dadurch erklären, das durch die höhere Teilchendichte die mittlere Zeit zwischen Stößen zu klein wird, um eine koinzidente Fluoreszenz aus dem selben Molekül entstammend zu ermöglichen; die Korrelation der beiden angeregten Wasserstoffatome bleibt nicht erhalten.

Für den Vergleich mit vorangegangen Arbeiten auf diesem Gebiet [TON09, TON10], wie sie in Abschnitt 1.4.2 vorgestellt werden, existieren Vergleichswerte für der Bestimmung der Lebensdauer bei 400 mPa und 20 mPa sowie bei der Winkelanisotropie bei 400 mPa, 130 mPa und 20 mPa. Zusammenfassend berichten diese Arbeiten davon, bei 400 mPa die gewöhnliche Lebensdauer von H($2p$) in Koinzidenz zu messen bei einer isotropen Winkelverteilung, während 130 mPa und 20 mPa eine ähnlich

starke Winkelanisotropie zeigen mit der verkürzten Lebensdauer im Koinzidenzzeitspektrum bei 20 mPa. Damit ergeben sich deutliche Unterschiede zwischen den in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnissen und den bisher veröffentlichten Resultaten:

Für den hohen Druck von $p = 400\,\mathrm{mPa}$ findet sich hier in der echten Koinzidenz kein eindeutiger Fluoreszenzzerfall. Da der Zellendruck mit dem verwendeten Aufbau sehr präzise bestimmt werden kann, ergibt sich hier die Möglichkeiten, dass dieser in den zuvor berichteten Experiment geringer war als angenommen.

Bei den niedrigeren Drücken zeigt sich wie erwartet ein Koinzidenzsignal mit einem exponentiellen Zerfall, dessen Lebensdauer aber als konstant und unverändert gegenüber der freien Ly_α-Fluoreszenz angenommen werden kann bis zur unteren Grenze von $p = 100\,\mathrm{mPa}$. Die verringerte Lebensdauer aus [TON10] für den Zerfall der verschränkten $\mathrm{H}(2p)$-Fragmente wurde gemessen mit einem Druck von 20 mPa, der also noch deutlich niedriger liegt. Bei der Winkelkorrelation jedoch wurde die starke Anisotropie gleichermaßen bei 20 mPa als auch 130 mPa gemeldet und spricht somit für einen Erhalt der Korrelation der Fragmente bei Drücken oberhalb von 100 mPa, die in der vorliegenden Arbeit gerade nicht bestätigt werden kann.

4.3 Detektoraufgelöste Zeitstruktur

Über die Koinzidenzkarte und anschließende Summierung entlang einer Detektorzeitachse resultiert eine Darstellung der Zeitstruktur der Fluoreszenzintensität, die getrennt aufgelöst ist für die beiden verwendeten Detektoren. Abb. 4.6 zeigt den direkten Vergleich der zeitabhängigen Fluoreszenzintensität, wie sie der Photomultiplier und der DLD jeweils für sich selbst genommen sehen.

In beiden Perspektiven finden sich zunächst dieselben Fluoreszenzmerkmale wieder, die analog zu Abb. 3.16 wieder mit Peak 1, 2 (und 3) bezeichnet werden. Dabei ist die DLD-Summe verschoben gegenüber der PM-Summe, die Verzögerung liegt in derselben Größenordnung wie sie bei der Kalibrierung der Zeitachse des Koinzidenzzeitspektrums bereits aufgetreten ist. Es ist weiterhin eine signifikant geringere

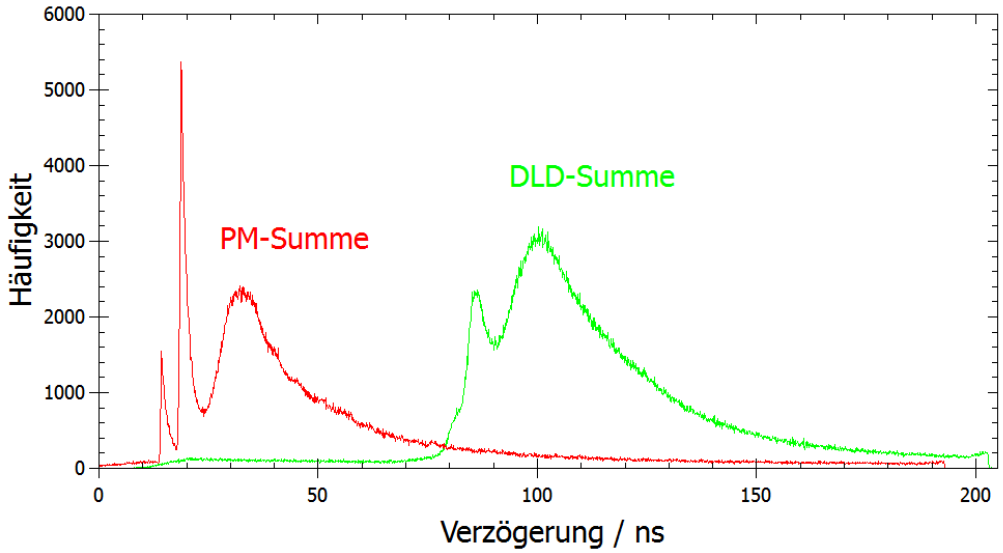


Abb. 4.6: Vergleich der zeitabhängigen Fluoreszenzintensität in der individuellen Sicht der beiden Detektoren. Die PM-Summe summiert dabei über die Zeitachse des PM und ist somit die Sicht des DLD und umgekehrt.

Zeitauflösung des PM gegenüber dem DLD (d.h. in der DLD-Summe gegenüber der PM-Summe) sichtbar. Der Grund für diese Unterschiede wird an dem internen Aufbau der jeweiligen Detektoren liegen. Während der DLD das Zeitsignal an der ersten Mikrokanalplatte unmittelbar hinter der Photokathode auskoppelt, muss jeder Puls aus dem Photomultiplier die gesamte Dynodenstruktur durchlaufen. Die vielen einzelnen Verstärkungsstufen verursachen einen längeren Signalweg und verringern die Auflösung durch die vielen Einzelprozesse. Im Folgenden wird nur noch anhand der PM-Summe die Zeitstruktur untersucht.

Die PM-Summe für alle verwendeten Drücke ist in Abb. 4.7 enthalten. Hier muss zunächst zwischen den Messkonfigurationen A und B (vgl. 3.4.1 bei 100 mPa unterschieden werden, da die unterschiedliche Einstellung des Bunchmarkers das Messfenster beeinflußt und die Signale so nicht direkt übereinandergelegt werden können; A' und A'' können hingegen direkt zusammengefasst werden. Der Ursprung der Zeitachse entstammt dabei dem der Koinzidenzkarte und unterscheidet sich daher zwischen den Konfigurationen A und B. In allen Messeinstellungen zeigt sich eine vergleichbare Struktur der Fluoreszenzzerfälle und der Ansatz (3.11) führt stets zu einer guten Anpassung an die Messdaten. Damit bekräftigt sich die Vermutung, das

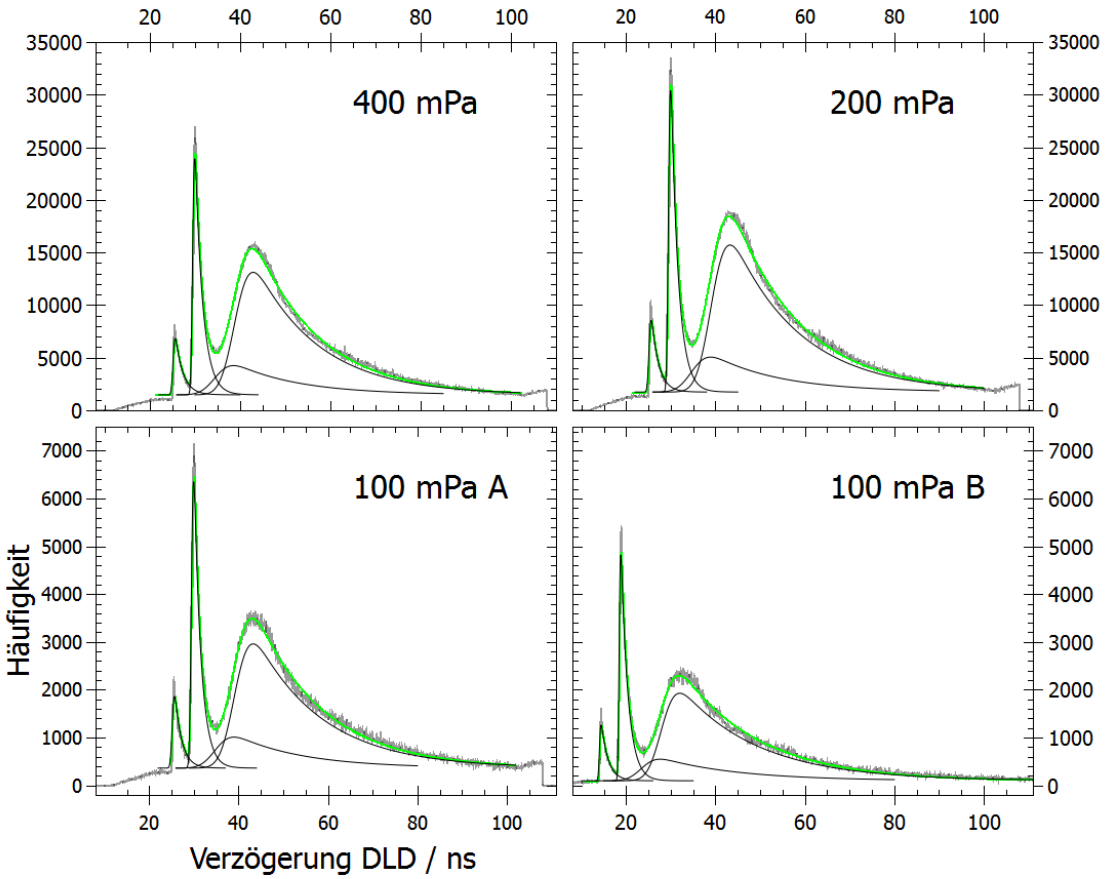


Abb. 4.7: Photomultipliersumme für die verwendeten Drücke von 400 mPa, 200 mPa und 100 mPa (in Messkonfiguration A und B). An den gemessenen Verlauf (grau) ist jeweils der in (3.11) entwickelte Ausdruck angepasst (grün) sowie die einzelnen Zerfälle, aus denen dieser besteht (schwarz).

der ganz links auf der Zeitachse gelegene Peak 3 aus demselben Prozess stammt wie der darauffolgende Peak 1. Die Anpassung enthält einen vergleichbaren Vorpeak für den langlebigeren Zerfall von Peak 2 und in beiden Fallen werden für diese die Lebensdauer und Standardabweichung des jeweiligen Hauptpeaks sowie dasselbe Amplitudenverhältnis von Peak zu Vorpeak genutzt. Die physikalische Betrachtung kann sich damit auf die Peaks 1 und 2 beschränken.

Die charakteristischen Parameter aus der Anpassung sind der zeitliche Abstand der beiden Peaks 1 und 2, das Flächenverhältnis der beiden zueinander zusammen mit ihren Vorpeaks sowie die jeweilige Lebenszeit τ_1, τ_2 des Fluoreszenzzerfalls und Standardabweichung σ_1, σ_2 der Gaußverbreiterung. Abb. 4.8 zeigt den grafischen Verlauf

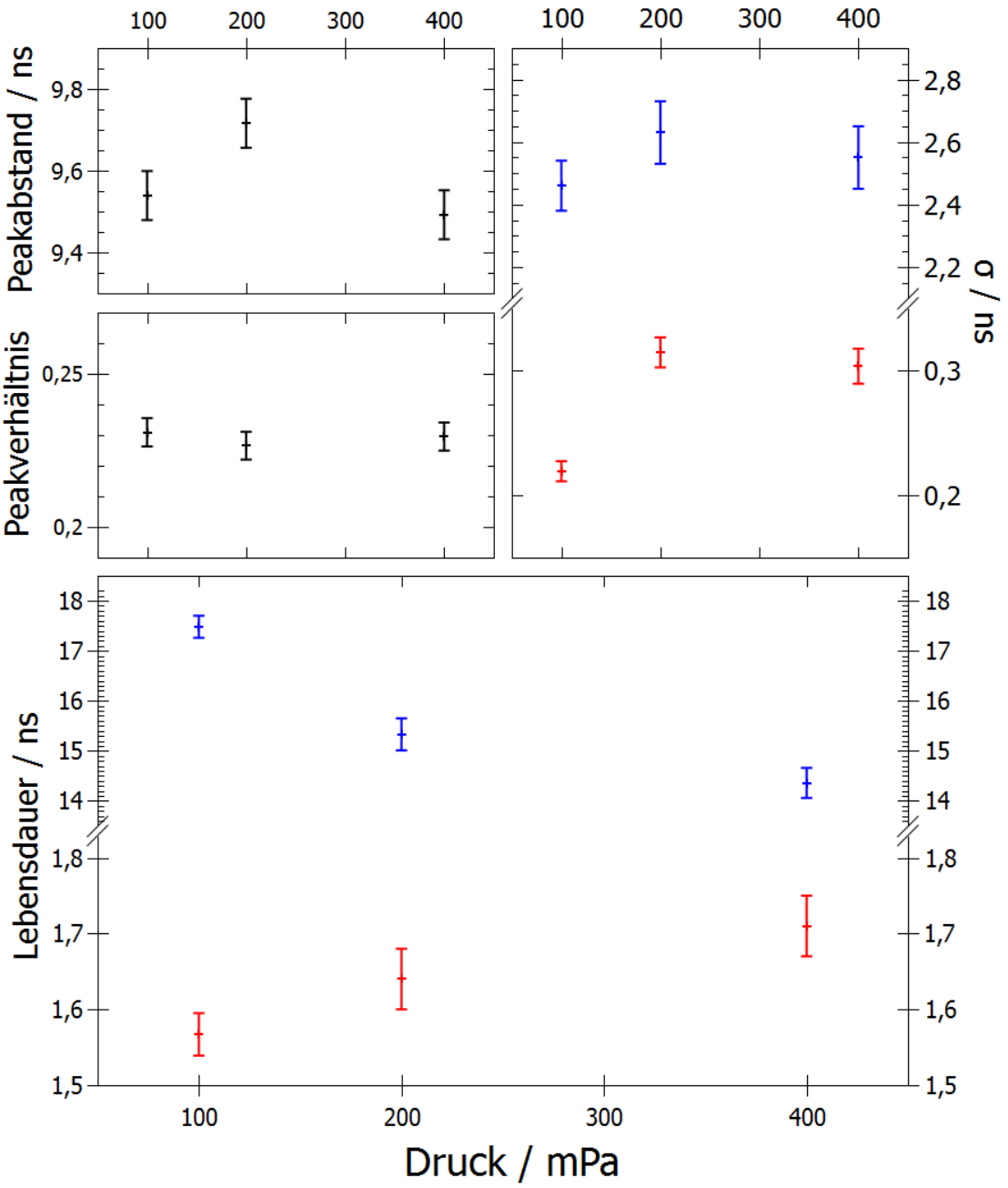


Abb. 4.8: Druckabhängigkeit der Parameter für Anpassung von Fluoreszenzzerfällen an die PM-Summe bei den verwendeten Drücke von 400 mPa, 200 mPa und 100 mPa (in *B* Konfiguration). Der Peakabstand gibt die Zeit zwischen den Peaks 1 und 2 an, das Peakverhältnis ist das Flächenverhältnis dieser beiden zueinander und σ sowie Lebensdauer beschreiben die Anpassungskoeffizienten für Peak 1 (rot) und Peak 2 (blau). Als Unsicherheiten wird die doppelte Standardabweichung aus der Anpassung benutzt.

dieser Größen in Abhängigkeit von dem verwendeten Druck. Für 100 mPa können die beiden Konfiguration A und B jetzt zusammen behandelt werden, da durch die Anpassung die Verschiebung zueinander bekannt ist, um die Signale korrekt zu addieren.

- Der Abstand der beiden Peaks 1 und 2 zeigt innerhalb der Grenzen der Unsicherheit keine deutliche Abhängigkeit vom Druck und kann daher als konstant angesehen werden mit einem mittleren Abstand von $\overline{\Delta t} = (9{,}58 \pm 0{,}06)$ ns.

- Das Peakverhältnis der beiden Peaks mit ihren Vorpeaks als Quotient der Integrale von $t = -\infty$ bis $t = \infty$ ist ebenso konstant über die verschiedenen Drücke mit einem mittleren Verhältnis von $0{,}23 \pm 0{,}01$. Die Unsicherheit hierfür ist abgeschätzt durch die doppelte Standardabweichung der beteilgten Amplituden.

- Die aus der Gaußverbreiterung des Fluoreszenzzerfalls entstammende Standardabweichung σ ist konstant für den zweiten Peak, während sie beim ersten Peak sie für 100 mPa deutlich geringer ist als der vergleichbare Wert bei höheren Drücken. Der Wert selbst liegt hier dabei mit ≈ 300 ps , während er für den später stattfindenden Zerfall um eine Größenordnung zunimmt.

- Bei der Lebensdauer zeigt der zweite Peak einen deutlichen Abfall zu größeren Drücken hin, der auch mit den Unsicherheiten noch signifikant bleibt. Der erste Peak zeigt hier hingegen einen Anstieg, jedoch lässt sich hier aufgrund der Fehlergrenzen keine eindeutige Aussage treffen. Auch hier zeigen beide Peaks einen Unterschied von etwa einer Größenordnung.

Diese Ergebnisse lassen darauf schließen, dass es sich bei Peak 1 und 2 um zwei unabhängige Fluoreszenzzerfälle handelt, die bei allen verwendeten Drücken zum jeweils gleichen Zeitpunkt relativ zur Anregung mit demselben Intensitätsverhältnis auftreten. Der erste Peak mit einer Lebensdauer im Bereich von 1,6 ns wird dem Zerfall der H($2p$)-Fragmente mit Ly_α-Fluoreszenz zuzuordnen sein, der insbesondere in den Koinzidenzbetrachtungen eine Rolle spielt. Als atomare Linie sollte die Zeitauflösung hier nur vom Detektor und der Messelektronik begrenzt werden, so

dass die geringste Verbreiterung bei 100 mPa von

$$\sigma_{1,100\text{mPa}} = (0{,}22 \pm 0{,}01)\,\text{ns} \geq \sigma_t$$

als obere Grenze für die Detektorauflösung σ_t in der Zeit angesehen werden kann.

Der zweite Prozess hingegen zeigt eine deutlich größere Lebensdauer und Standardabweichung der Gaußverbreiterung. Die Verzögerung gegenüber der dem ersten Peak bedeutet, das dieser nicht auch direkt auf den Synchrotronstrahlungspuls folgen kann. Dies alles zusammen mit der Druckabhängigkeit der Lebensdauer lässt vermuten, dass es sich hier nicht um direkte Fluoreszenz eines resonant angeregten Zustandes handelt, wie beispielsweise die Fluoreszenz von H($3d$)-Fragmenten mit einer Lebensdauer von 15 ns. Eine Möglichkeit sind die Mitwirkung von Stoßprozessen, bei denen die Anregungen durch Stöße der Atome und Moleküle untereinander gemischt werden. Diese Vermutung basiert auf zwei Annahmen:

In der kinetischen Gastheorie [BS98] beträgt die mittlere freie Weglänge λ eines Gasteilchens, das einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung folgt,

$$\lambda = \frac{k_B T}{\sqrt{2}\,\pi d^2 p} \propto \frac{1}{p} \tag{4.1}$$

mit dem Teilchendurchmesser d, Gasdruck p und -temperatur T. Da die Zeit zwischen zwei Stößen bei konstanter Geschwindigkeit proportional zu der mittleren freien Weglänge ist, sollte diese Beziehung sich auch auf die Lebensdauer der stoßbedingten Fluoreszenz auswirken; hier die reziproke Druckabhängigkeit der mittleren Stoßzeit. In Abb. 4.9 ist die aus der Anpassung an Peak 2 erhaltene Lebensdauer aufgetragen über eine reziproke Druckskala. Das Ergebnis ermöglicht innerhalb der Grenzen der Unsicherheit, die wieder durch die doppelte Standardabweichung abgeschätzt wird, die Annahme eines reziproken Zusammenhangs zwischen τ und p. Das Verhältnis zwischen Lebensdauer des Fluoreszenzzerfalls und Druck in der Gaszelle ähnelt damit in dem betrachteten Intervall dem der mittleren Zeit zwischen zwei Stößen und dem Druck eines Gases in der Maxwell-Boltzmann-Verteilung. Die Lebensdauer ist in diesem Bild dann nicht mehr als zu verstehen im Sinne eines Übergangs zwischen zwei Zuständen, sondern eine effektive Lebensdauer, die Stoßprozess und anschließende Fluoreszenz beeinhaltet.

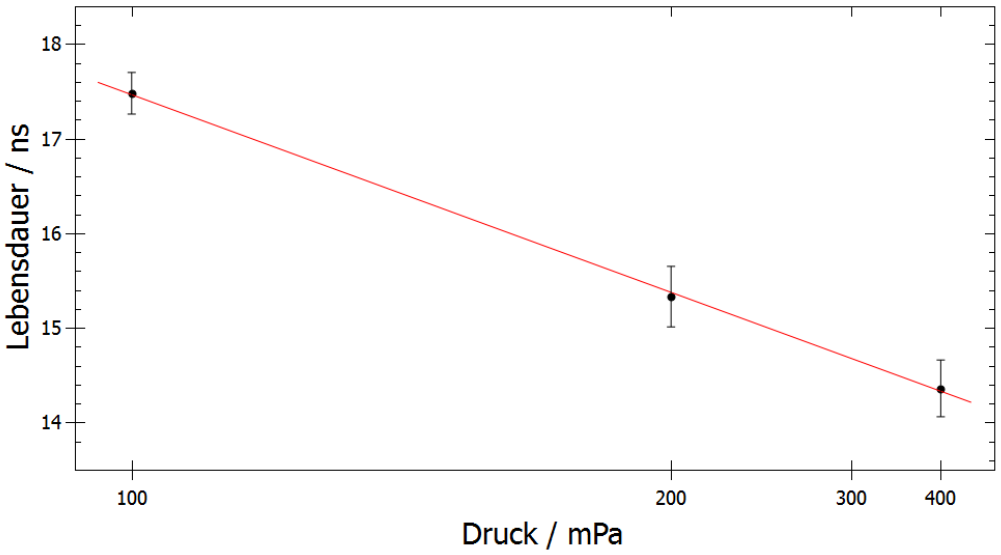


Abb. 4.9: Lebensdauer des zweiten Peaks der zeitabhängigen Fluoreszenzintensität aufgetragen über eine reziproke Druckskala. Eine reziproke Funktion $\tau = A/p + B$ ist an die Daten angepasst.

Weiterhin zeigt sich mit numerischer Integration und Anpassung eines Gaußprofils an das mit derselben Anregungsenergie wie die zeitabhängige Fluoreszenzintensität aufgenommene Spektrum in Abb. 4.2, dass der Flächenanteil der Ly_α-Linie mit 30% abgeschätzt werden kann. Der Großteil kann damit durch den als Ly_α identifizierten Peak 1 in der Zeitstruktur erklärt werden, dessen Flächenanteil 23% beträgt. Durch Stoßprozesse ist hingegen eine Vielzahl von Fluoreszenzlinien möglich wie es das EIFS-Spektrum in Abb. 4.1 auch zeigt. Diese sind dementsprechend auch auf den gesamten detektierten Spektralbereich verteilt, wie der Intensitätsvergleich nahelegt.

Zusammenfassung und Ausblick

Die Anregung von Molekülen mit Energien oberhalb ihrer Ionisations- und Dissoziationsschwelle führt in das Regime der superexcited states, die mit einer Reihe von verschiedenen Zerfallsprozessen eine vielfaltige Dynamik aufweisen. Einer dieser Prozesse ist die neutrale Dissoziation, bei der das Molekül in neutrale, angeregte Fragmente dissoziiert, die dann anschließlich durch Fluoreszenzprozesse in den Grundzustand relaxieren. Dieser wurde hier am kleinsten existierenden Molekül, dem Wasserstoff, untersucht.

Dazu wurde die zeitabhängige Fluoreszenzintensität von H_2 vermessen nach Anregung mit Synchrontronstrahlung einer Energie, die über den Grundzustand des Molekülions H_2^+ in den superexcited state $Q_2\,{}^1\Pi_u(1)$ führt. Ein Photon-Photon-Koinzidenzaufbau diente der Untersuchung dieser Zeitstruktur auf die gemeinsame Ly_α-Fluoreszenz von neutralen Fragmenten beim Übergang von $2p \rightarrow 1s$, die aus dem Zerfall dieser superexcited states entstehen können. Ein besonderes Augenmerk galt dabei der Frage, ob ein Paar aus angeregten Atomen als quantenmechanisches Gesamtsystem Unterschiede aufweist in der Zerfallsdynamik gegenüber einem freien Wasserstoffatom in demselben elektronischen Zustand, wie es durch zuletzt veröffentliche Ergebnisse [TON10] angedeutet wurde. Der zentrale Einfluss der Wechselwirkung mit der Umgebung wurde berücksichtigt durch die Messung bei verschiedenen Drücken.

Es konnte zuvor gezeigt werden, dass in dem beobachteten Spektralbereich von 115 bis 220 nm die Ly_α-Linie der mit Abstand stärkste diskrete Übergang bei der Anregung mit Synchrotronstrahlung der verwendeten Energie ist. Ein Vergleich mit der Anregung durch Elektronenstoß offenbart in dem größeren Bereich von 35 bis 220 nm

weiterhin eine Vielzahl von Linien durch die Lyman- und Werner-Bandensysteme von molekularem Wasserstoff zusammen mit weiteren Linien aus der Lyman-Serie bei niedrigeren Wellenlängen. Dieses Ergebnis konnte sehr erfolgreich mit der bekannten Literatur verglichen werden. Zu dem Zweck dieser Untersuchungen wurde dabei eine Fernfokuskathode als Elektronenquelle wieder in Betrieb genommen, die in der Zukunft insbesondere zur Spektrometerkalibration weiter verwendet werden soll.

In den Zeitmessungen findet sich nach Berücksichtigung der Anregungsstruktur der verwendeten Synchrotronstrahlungsquelle je nach Druck ein unterschiedlich stark ausgeprägtes Signal von echter Koinzidenz bei Betrachtung der Intensitäten für unterschiedliche Zeitdifferenzen zwischen den Signalen der Detektoren. Bei dem höchsten eingesetzten Druck von 400 mPa kann keine signifikante Koinzidenz nachgewiesen werden, während für die niedrigeren Drücke von 200 mPa und 100 mPa hier ein exponentiell abklingender Zerfall isoliert werden kann. Für diesen findet sich in beiden Fällen eine Lebensdauer, die innerhalb der Messunsicherheiten in Einklang steht mit dem bekannten Wert für den $2p \rightarrow 1s$ Übergang von $\tau = 1.59\,\mathrm{ns}$. Eine Veränderung der Lebensdauer für das System aus H($2p$)-Fragmenten, die aus der neutralen Dissoziation von H_2 entstehen, kann daher in dieser Arbeit nicht bestätigt werden.

Die Betrachtung der detektoraufgelösten Zeitstruktur offenbart weiterhin neben der Ly_α-Fluoreszenz einen weiteren Zerfall, der zeitlich stets um ungefähr 10 ns versetzt beginnt und 75% der beobachteten Fluoreszenz ausmacht. Die deutlich höhere Lebensdauer folgt dabei einer reziproken Druckabhängigkeit, wie sie für Stoßprozesse üblich ist. Zusammen mit dem Intensitätsverhältnis relativ zu Ly_α wird hier ein durch Stöße zwischen den Atomen und Molekülen beeinflusster Prozess vermutet. Eine Möglichkeit, diesen Zerfall näher zu untersuchen, könnte die Messung der zeitaufgelösten und gleichzeitig dispergierten Fluoreszenz bieten. Zu diesem Zweck sollte auch der vorhandene Spektrometer-Aufbau mit Ziel einer höheren Auflösung verbessert werden. Die Zuordnung einzelner Übergänge an die Merkmale im Zeitbereich erlaubt dann eine Überprüfung dieser Hypothese. Außerdem sollte zur genauen Verifizierung der Druckabhängigkeit der Lebensdauer diese noch bei weiteren

Drücken gemessen werden.

Eine weitere Option zur Beobachtung der Korrelation zwischen den neutralen Fragmenten nach der Dissoziation eines Moleküls aus superexcited states bietet die Winkelanisotropie der Fluoreszenz, die in theoretischen Arbeiten [JDH10, MIK07] berechnet und bereits bestätigt [TON09] werden konnte. Zu diesem Zweck müsste der in dieser Arbeit noch verwendete Photomultiplier ohne Ortsauflösung durch einen entsprechenden Detektor mit dieser Fähigkeit ersetzt und beide für einen großen Raumwinkel möglichst nahe am Wechselwirkungsvolumen platziert werden. Dies sollte auch eine deutliche Verbesserung der Zeitauflösung in Koinzidenz mit sich bringen, da gezeigt werden konnte, das Dynoden-basierte Detektoren für Untersuchungen von Prozessen auf einer Skala weniger Nanosekunden nicht geeignet sind.

Literaturverzeichnis

[A87a] Albrecht, H. et al.. *Measurement of the decay* $B^0 \to D^{*-} l^+ \nu$. Phys. Lett. B, 197, 452 (1987).

[A87b] Albrecht, H. et al.. *Observation of* B^0-$\bar{B}^0$ *mixing.* Phys. Lett. B, 192, 242 (1987).

[A87c] Albrecht, H. et al.. *Reconstruction of B mesons.* Phys. Lett. B, 185, 218 (1987).

[AKU88] Arai, S., T. Kamosaki, M. Ukai, K. Shinsaka und Y. Hatano. *Lyman-α, Lyman-α coincidence detection in the photodissociation of doubly excited molecular hydrogen into two H(2p) atoms.* J. Chem. Phys., 88, 3016 (1988).

[ARL93] Abgrall, H., E. Roueff, F. Launay, J. Y. Roncin und J. L. Subtil. *The Lyman and Werner Band Systems of Molecular Hydrogen.* J. Mol. Spectrosc., 157, 512 (1993).

[ASJ91] Ajello, J. M., D. E. Shemansky und G. K. James. Astrophys. J., 371, 422 (1991).

[ASK84] Ajello, J. M., D. Shemansky, T. L. Kwok und Y. L. Yung. *Studies of extreme-ultraviolet emission from Rydberg series of* H_2 *by electron impact.* Phys. Rev. A, 29, 636 (1984).

[BO27] Born, M. und R. Oppenheimer. *Zur Quantentheorie der Molekeln.* Annalen der Physik, 389, 457 (1927).

[Bri05] Brinker, F. *Summary of the electron test run at DORIS in august 2005.* Internal Report, DESY M05-01 (2005).

[BS98] Bergmann, L. und C. Schaefer. *Lehrbuch der Experimentalphysik Band 1: Mechanik, Relativität, Wärme.* Walter de Gruyter (1998).

[Bur11] Burbank, N. *Elektronenstoßinduzierte Fluoreszenzspektroskopie.* Diplomarbeit, Universität Kassel (2011).

[BW3] BW3. *Technical Manual.* DESY.

[Dem03] Demtröder, W. *Molekülphysik.* Oldenbourg Verlag (2003).

[Dem05] Demtröder, W. *Experimentalphysik 3: Atome, Moleküle und Festkörper.* Springer (2005).

[DES12] DESY. *Overview accelerators* (2012). URL `desy.de`.

[DS58] Duncanson, A. und R. W. H. Stevenson. *Some Properties of Magnesium Fluoride crystallized from the Melt.* Proc. Phys. Soc., 72, 1001 (1958).

[EGL47] Elder, F. R., A. M. Gurewitsch, R. V. Langmuir und H. C. Pollock. *Radiation from Electrons in a Synchrotron.* Phys. Rev., 71, 829 (1947).

[GM86] Glass-Maujean, M. *Photodissociation of doubly excited states of H_2, HD, and D_2.* J. Chem. Phys., 85, 4830 (1986).

[GM88] Glass-Maujean, M. *Photodissociation of doubly excited states of H_2: Emission of Balmer lines.* J. Chem. Phys., 89, 2839 (1988).

[GMJS10] Glass-Maujean, M., C. Jungen, H. Schmoranzer, A. Knie, I. Haar, R. Hentges, W. Kielich, K. Jänkälä und A. Ehresmann. *H_2 Superexcited States: Experimental and Theoretical Characterization of their Com-*

peting Decay-Channel Fluorescence, Dissociation and Ionization. Phys. Rev. Lett., 104 (2010).

[GMS05] Glass-Maujean, M. und H. Schmoranzer. *Dissociation dynamics of doubly excited states of molecular hydrogen.* J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 38(8), 1093 (2005).

[Gro69] Group, R. N. W. *ASCII format for Network Interchange* (1969).

[Gub82] Guberman, S. L. *The doubly excited autoionizing states of H_2.* J. Chem. Phys., 78, 1404 (1982).

[HAS12] HASYLAB. *Facilities → Beamlines* (2012). URL `hasylab.desy.de`.

[Her45] Herzberg, G. *Atomic Spectra and Atomic Structure.* Dover Publications (1945).

[Her50] Herzberg, G. *Molecular Spectra and Molecular Structure.* Van Nostrand Reinholf Company (1950).

[Jac99] Jackson, J. D. *Classical Electrodynamics, Third Edition.* John Wiley & Sons, Inc. (1999).

[JCC02] Jagutzki, O., A. Cerezo, A. Czasch, R. Dörner, M. Hattaß, M. Huang, V. Mergel, U. Spillmann, K. Ullmann-Pfleger, T. Weber, H. Schmidt-Böcking und G. Smith. *Multiple Hit Readout of a Microchannel Plate Detector With a Three-Layer Delay-Line Anode.* IEEE Transactions on Nuclear Science, 49(5), 2477 (2002).

[JDH10] Jänkälä, K., P. V. Demekhin, S. Heinäsmäki, I. Haar, R. Hentges und A. Ehresmann. *Theoretical description of dissociative $\gamma \rightarrow 2\gamma'$ scattering in diatomic molecules.* J. Phys B: At. Mol. Opt. Phys., 43(6), 065104 (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).

[Kie06] Kielich, W. *Hochauflösende Spektroskopie von Xe-Zweielektronenresonanzen mit hocheffizienter Fluoreszenzspektrometrie nach schmalbandiger Anregung mit Synchrotronstrahlung.* Diplomarbeit, Universität Kaiserslautern (2006).

[KKK87] Keller, H., G. Klingelhöfer und E. Kankeleit. *A Position Sensitive Microchannelplate Detector using a Delay Line Readout Anode.* Nucl. Instr. and Meth., 258, 221 (1987).

[Kra91] Kraus, B. *Entwicklung eines zweidimensional positionsempfindlichen Detektorsystems und sein Einsatz in der Spektroskopie von Wenigelektronensystemen.* Dissertation, Universität Gießen (1991).

[Kra12a] Kracht, T. *Online - A Program Package for Data Acquisition and Beamline Control at HASYLAB* (2012).

[Kra12b] Kracht, T. *Spectra - A Program Package for the Analysis and Presentation of Data* (2012).

[Kri08] Krieger, J. *Zeeman-Slower und Experimentsteuerung für das NaLi-Experiment.* Diplomarbeit, Unversität Heidelberg (2008).

[KUH97] Kouchi, N., M. Ukai und Y. Hatano. *Dissociation dynamics of superexcited molecular hydrogen.* J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 30(10), 2319 (1997).

[LBB93] 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 (1993).

[Mö93] Möller, T. *First results from the HASYLAB XUV undulator beamline*

BW3. Synchrotron Radiation News, 6, 16 (1993).

[MIK07] Miyagi, H., A. Ichimura und N. Kouchi. *Theoretical study on the angular correlation of two Lyman-α photons generated by single-photon absorption of a hydrogen molecule.* J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 40(3), 617 (2007).

[Nak91] Nakamura, H. *What are the basic mechanisms of electronic transitions in molecular dynamic processes?* Int. Rev. Phys. Chem., 10, 123 (1991).

[Nam54] Namioka, T. Sci. of Light (Tokyo), 3, 15 (1954).

[Nam59] Namioka, T. *Theory of the Concave Grating. III. Seya-Namioka Monochromator.* J. Opt. Soc. Am., 49, 951 (1959).

[OMK04] Odagiri, T., M. Murata, M. Kato und N. Kouchi. *(γ,2γ) studies on doubly excited states of molecular hydrogen.* J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., 34(19), 3909 (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).

[Pfl92] Pflüger, J. *Insertion devices for DORIS III.* Rev. Sci. Instrum., 63, 295 (1992).

[PHO12] PHOTEK. *Datasheet Photomultipliers & Photodiodes* (2012). URL `http://www.photek.com/pdf/datasheets/detectors/DS006 Photomultipliers.pdf`.

[Pla62] Platzman, R. L. *Superexcited States of Molecules.* Radiation Research, 17(3), 416 (1962).

[Pol83] Pollock, H. C. *The discovery of synchrotron radiation.* Ameican Journal of Physics, 51, 278 (1983).

[RCM77] Ryan, S. R., S. J. Czuchlewski und M. V. McCusker. *Collisional quenching of metastable hydrogen atoms by atoms and molecules.* Phys. Rev. A, 16(5) (1977).

[Rei10] Reiß, P. *Interferenzeffekte lebensdauerverbreiterter Zustände der CO $1s^{-1}$ π^* Resonanz beobachtet durch den CO^+ $A\ ^2\Pi \rightarrow X\ ^2\Sigma^+$-Fluoreszenzzerfall.* Diplomarbeit, Universität Kassel (2010).

[Sch26] Schrödinger, E. *An Undulatory Theory of the Mechanics of Atoms and Molecules.* Phys. Rev., 28, 1049 (1926).

[Sey52] Seya, M. Sci. of Light (Tokyo), 2, 8 (1952).

[Sha70] Sharp, T. E. *Potential-energy curves for molecular hydrogen and its ions.* At. Data, 2, 119 (1970).

[SJJ99] Siegmung, O., P. Jelinsky, S. Jelinsky, J. Stock, J. Hull, D. Doliber, J. Zaninovich, A. Tremsin und K. Kromer. *High-resolution cross delay line detectors for the GALEX mission.* Proc. SPIE, 3765, 429 (1999).

[SKR04] Sansonetti, C. J., F. Kerber, J. Reader und M. R. Rosa. *Characterization of the Far-ultraviolet Spectrum of Pt/Cr-Ne Hollow Cathode Lamps as Used on the Space Telescope Imaging Spectrograph on Board the Hubble Space Telescope.* Astrophys. J. Suppl. Ser., 153(2), 555 (2004).

[SM97] Sánchez, I. und F. Martín. *The doubly excited states of the H_2 molecule.* J. Chem. Phys., 106, 7720 (1997).

[SM99] Sánchez, I. und F. Martín. *Doubly excited autoionizing states of H_2 above the second ionization threshold: the Q 2 resonance series.* J. Chem. Phys., 110(14), 6702 (1999).

[Ste93] Steinfeld, J. I. *Molecules and Radiation.* MIT Press (1993).

[TON09] Tanabe, T., T. Odagiri, M. Nakano, I. H. Suzuki und N. Kouchi. *Large*

Pressure Effect on the Angular Distribution of Two Lyman-α Photons emitted by an Entangled Pair of H(2p) Atoms in the Photodissociation of H_2. Phys. Rev. Lett., 103, 173002 (2009).

[TON10] Tanabe, T., T. Odagiri, M. Nakano, Y. Kumagai, I. H. Suzuki, M. Kitajima und N. Kouchi. *Effect of entanglement on the decay dynamics of a pair of H(2p) atoms due to spontaneous emission.* Phys. Rev. A, 82, 040101(R) (2010).

[VBS11] Valeur, B. und M. N. Berberan-Santos. *A Brief History of Fluorescence and Phosphorescence before the Emergence of Quantum Theory.* J. Chem. Educ., 88, 731 (2011).

[VN82] Verolainen, Y. F. und A. Y. Nikolaich. *Radiative lifetimes of excited states of atoms.* Soviet Physics Uspekhi, 25(6), 431 (1982).

[Wil96] Wille, K. *Physik der Teilchenbeschleuniger und Synchrotronstrahlungsquellen.* B. G. Teubner (1996).

Abbildungsverzeichnis

1.1 Schematische Potentialkurven für zwei elektronische Zustände 8
1.2 Potentialkurven des Wasserstoffmoleküls 12
1.3 Schematischer Potentialverlauf für ein Molekül AB in der Nähe der Ionisationsschwelle 13
1.4 Schema der Prozesse bei der Anregung von Molekülen mit Energien oberhalb der Ionisations- bzw. Dissoziationsschwelle 14
1.5 Konkurrierende Zerfallskanäle bei Wasserstoffmolekülen in superexcited states 15
1.6 Potentialkurven der superangeregten Zustände des Wasserstoffmoleküls 16
1.7 Wirkungsquerschnittsprofile für superexcited states bei Anregung mit elektromagnetischer Strahlung 17
1.8 Wirkungsquerschnitt für einfache und koinzidente Ly_α Fluoreszenz . . 18
1.9 Zerfallskanäle mit Ly_α-Fluoreszenz für angeregte Fragmente nach neutraler Dissoziation des Zustands $Q_2\,{}^1\Pi_u(1)$ von H_2 19
1.10 Koinzidenzzeitspektrum von Ly_α-Fluoreszenz bei verschiedenen Drücken nach neutraler Dissoziation von H_2 aus [TON10] 21
1.11 Berechnete Winkelkorrelation der koinzidenten Fluoreszenz gemessen von zwei Detektoren nach neutraler Dissoziation von H_2 in superexcited states 22
1.12 Winkelkorrelation [JDH10] von koinzidentem Ly_α nach neutraler Dissoziation von H_2 in superexcited states 23

2.1 Schematische Darstellung eines Wigglers/Undulators 26
2.2 Spektrum eines Undulators im Ruhesystem des Teilchens und im Laborsystem 27

2.3 Überblick über die Teilchenbeschleuniger auf dem DESY Gelände . . 28
2.4 Innerer Aufbau der Targetzelle und Targetzelle von außen mit Detektoren 31
2.5 Schematische Darstellung der Messelektronik 32
2.6 Programmoberfläche des Messprogramms Argus 33
2.7 Konstruktion der Fokusbedingungen in einem Seya-Namioka-Spektrometer 34
2.8 Innerer Aufbau des Seya-Namioka-Spektrometer 35
2.9 LabVIEW VI zur Abfrage der Strahlrohrenergie über ONLINE 38
2.10 LabVIEW VI zum Setzen der Strahlrohrenergie über ONLINE 38
2.11 Schematische Darstellung der Fernfokuskathode 39
2.12 Mikroskopische Aufnahme des abgeplatteten Glühdrahtes 40
2.13 Druck-Strom-Kennlinie der Fernfokuskathode 41
2.14 Schematischer Aufbau der Hexanode 43
2.15 Dynodenstruktur eines Photomultipliers zur Elektronenverfielfachung 44
2.16 Schematische Struktur einer Keil- und Streifenanode 45

3.1 Kalibrierung der Detektorparameter in Pacman 48
3.2 Darstellung der Einzelbilder in Pacman 49
3.3 Überlapp der Teilspektren in Pacman 50
3.4 Mittelwert der Teilspektren in Pacman 51
3.5 PIFS FUV Spektrum in Orts- und reziproken Raum 52
3.6 Anzahl der Photomultiplierereignisse und Spiegelstrom bei Anregung im Energiebereich von 29 bis 45 eV 54
3.7 relativer partieller Fluoreszenzquerschnitt von Wasserstoff bei Anregung im Energiebereich von 29 bis 45 eV 54
3.8 Vollständiges Koinzidenzzeitspektrum bei 100 mPa 55
3.9 Zentraler Bereich des Koinzidenzzeitspektrums bei 100 mPa 56
3.10 Anpassung von Gaussprofilen an die zufälligen Koinzidenzpeaks . . . 57
3.11 Koinzidenzzeitspektrum im Frequenzraum 58
3.12 Echtes Koinzidenzsignal nach Isolierung aus dem Koinzidenzzeitspektrums 59
3.13 Koinzidenzkarte bei 100 mPa und 5 Bunchen im Speicherring 61
3.14 Koinzidenzkarte der verschiedenen Konfigurationen bei 100 mPa . . . 62

3.15 Ausschnitt für Summierung über eine Detektorachse bis zum Timeout 63
3.16 Detektorsummen der B-Konfiguration bei 100 mPa 63
3.17 Peakhöhe des dritten Peaks an verschiedenen Bunchpositionen 64
3.18 Gaußverbreiterter exponentieller Fluoreszenzzerfall bei verschiedenen Standardabweichungen 66
3.19 Anpassung an B-Konfiguration bei 100 mPa mit Trennung der einzelnen Zerfälle 68

4.1 Emissionsspektrum von Wasserstoff im VUV nach Anregung durch Elektronenstoß mit einer Energie von 3,5 keV 70
4.2 Emissionsspektrum von Wasserstoff im FUV nach Anregung durch Elektronenstoß sowie Synchrotronstrahlung 71
4.3 Vergleich der Ly_α-Linienbreite in den aufgenommenen Spektren . . . 73
4.4 Vergleich der beiden Methoden zur Isolierung der echten Koinzidenz . 74
4.5 Echte Koinzidenz aus dem Koinzidenzzeitspektrum bei verschiedenen Drücken 75
4.6 Vergleich der individuellen Sicht der zeitabhängigen Fluoreszenzintensität der beiden Detektoren 78
4.7 Photomultipliersumme für alle Drücke mit Anpassung von Fluoreszenzzerfällen 79
4.8 Druckabhängigkeit der Parameter für Anpassung von Fluoreszenzzerfällen an die PM-Summe 80
4.9 Druckabhängigkeit der Lebensdauer des zweiten Peaks der zeitabhängigen Fluoreszenzintensität 83

Danksagung

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, Karten und Abbildungen. Diese Arbeit hat in dieser oder einer ähnlichen Form noch nicht im Rahmen einer anderen Prüfung vorgelegen.

Ort und Datum *Unterschrift*