

# Elektroneneinfang in autoionisierende Zustände bei langsamen Ion-Atom-Stößen

Inaugural-Dissertation  
zur  
Erlangung des Doktorgrads  
der Naturwissenschaftlichen Fakultät  
der Justus-Liebig-Universität Gießen

vorgelegt beim

Fachbereich 07  
(Mathematik und Informatik, Physik, Geographie)  
der  
Justus-Liebig-Universität Gießen

von

Kristof Holste, Dipl.-Phys.

aus Frankfurt am Main

Institut für Atom- und Molekülphysik  
Justus-Liebig-Universität Gießen  
2011

Dekan: Prof. Dr. C. Diller  
1. Berichterstatter: Prof. Dr. A. Müller  
2. Berichterstatter: Prof. Dr. S. Schippers

# Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wird der Aufbau einer *crossed-beam*-Experimentieranlage zum Studium winkelaufgelöster Autoionisationsprozesse aus Ion-Atom-Stößen beschrieben. Erste experimentelle Ergebnisse dieser Anlage werden diskutiert. Der Ionenstrahl wird in einer 10 GHz Elektron-Zyklotron-Resonanz (EZR) Ionenquelle extrahiert, die gewünschte Ionenspezies durch Analyse des Masse-zu-Ladung Verhältnisses in einem Dipolmagneten selektiert. Der Projektilionenstrahl wird kollimiert in die Wechselwirkungszone eines zweistufigen elektrostatischen Elektronenspektrometers gebracht, wo er senkrecht mit einem Gasstrahl kollidiert. Die Projektilgeschwindigkeiten liegen im Bereich einer atomaren Einheit.

Die Autoionisation wird ausgelöst durch Doppeleinfang von Elektronen aus dem Gastarget in angeregte Zustände dieser hochgeladener Projektilionen. Als Target wurde Helium verwendet. Das Elektronenspektrometer verfügt über 20 Channeltron-Detektoren, die die Emissionsprodukte aus der Wechselwirkungszone unter den Winkeln  $\pm 15^\circ$ ,  $\pm 30^\circ$ ,  $\pm 45^\circ$ ,  $\pm 60^\circ$ ,  $\pm 75^\circ$ ,  $\pm 105^\circ$ ,  $\pm 120^\circ$ ,  $\pm 135^\circ$ ,  $\pm 150^\circ$ ,  $\pm 165^\circ$  detektieren können. Die Winkelakzeptanz beträgt dabei  $\pm 0.8^\circ$  in vertikaler und  $\pm 1^\circ$  in horizontaler Richtung. Ein zweiter Dipolmagnet erlaubt eine Analyse umgeladener Reaktionsprodukte. Typische Ionenströme in der Wechselwirkungszone liegen im Bereich 0.5 - 5 nA. Für das Stoßsystem  $C^{5+} + He$  wurden die Alignmentparameter anisotroper Resonanzen des KLL-Zerfalls für 40 und 60 keV bestimmt, für das Stoßsystem  $O^{7+} + He$  für 84 keV.



# Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	iii
Tabellenverzeichnis	v
Abkürzungsverzeichnis	vii
<b>1 Einführung</b>	<b>1</b>
<b>2 Ladungsaustausch in Ion-Atom-Stößen</b>	<b>7</b>
2.1 Das <i>over-barrier</i> Modell . . . . .	7
2.1.1 Einleitung . . . . .	7
2.1.2 Das klassische <i>over-barrier</i> Modell . . . . .	8
2.1.3 Das erweiterte <i>over-barrier</i> Modell . . . . .	10
2.1.4 Q-Wert und Wirkungsquerschnitt . . . . .	14
2.1.5 Berücksichtigung kinematischer Effekte . . . . .	18
2.2 Winkelverteilung von Auger-Elektronen . . . . .	21
2.2.1 Dichtematrix . . . . .	22
2.2.2 Gekoppelte Systeme und Irreduzibilität . . . . .	22
2.2.3 Irreduzible Tensoren . . . . .	23
<b>3 Experimenteller Aufbau</b>	<b>29</b>
3.1 Strahlführung . . . . .	29
3.2 EZR-Ionenquelle . . . . .	32
3.3 Gastarget . . . . .	34
3.4 Massenspektrum . . . . .	37
<b>4 Das Elektronenspektrometer</b>	<b>39</b>
4.1 Entwicklung der Elektronenspektroskopie . . . . .	40
4.2 Aufbau des Spektrometers . . . . .	41
4.2.1 Der sphärische Spiegelfeldanalysator . . . . .	44
4.2.2 Der zylindrische Spiegelfeldanalysator . . . . .	46

4.2.3	Fokussierung und Dispersion . . . . .	48
4.3	Feldkorrekturolektroden . . . . .	52
4.4	Detektorsystem und Auflösung . . . . .	52
4.5	Spannungsversorgung . . . . .	54
4.6	Formfaktor . . . . .	56
4.7	Allgemeines zur Analyse der Spektren . . . . .	57
4.7.1	Transmissions- und Raumwinkelkorrektur . . . . .	57
4.7.2	Dopplerverschiebung . . . . .	59
4.7.3	Dopplerverbreiterung . . . . .	59
4.8	Winkelverteilung der $L_3M_{2,3}M_{2,3}$ -Elektronen von Argon . . . . .	60
4.9	Messungen mit konstanter Durchlassenergie . . . . .	63
<b>5</b>	<b>Datenaufnahme</b>	<b>67</b>
<b>6</b>	<b>Ergebnisse</b>	<b>71</b>
6.1	KLL-Autoionisation von $C^{3+}$ . . . . .	71
6.1.1	Doppeleinfang bei Stoß von $C^{5+}$ mit He . . . . .	71
6.1.2	Bestimmung der Anisotropie-Koeffizienten für 40 keV $C^{5+}$ -Ionen nach Zwei-Elektroneneinfang von He . . . . .	80
6.1.3	Bestimmung der Anisotropie-Koeffizienten für 60 keV $C^{5+}$ -Ionen nach Zwei-Elektroneneinfang von He . . . . .	81
6.1.4	Zusammenfassung und Diskussion . . . . .	82
6.2	KLL-Autoionisation von $O^{5+}$ . . . . .	85
6.2.1	Doppeleinfang bei Stoß von $O^{5+}$ mit He . . . . .	85
6.2.2	Bestimmung der Anisotropie-Koeffizienten für 84 keV $O^{7+}$ -Ionen nach Zwei-Elektroneneinfang von He . . . . .	94
6.2.3	Zusammenfassung und Diskussion . . . . .	95
6.3	Untersuchung der Druckabhängigkeit . . . . .	96
<b>7</b>	<b>Ausblick</b>	<b>99</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>101</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>110</b>

# Abbildungsverzeichnis

1.1	Wirkungsquerschnitte für Elektroneneinfangprozesse . . . . .	2
1.2	Komet Hyakutake und weiches Röntgenspektrum . . . . .	4
1.3	Schematische Darstellung eines Kometen . . . . .	5
2.1	Definition der Parameter im <i>over-barrier</i> Modell. . . . .	9
2.2	Zeitlicher Verlauf des Einfangprozesses . . . . .	12
2.3	$\delta(q, i, c_i)$ als Funktion von $i$ und $c_i$ . . . . .	15
2.4	Partitionierung des Wirkungsquerschnitts im <i>over-barrier</i> Modell . . . . .	16
2.5	Bestimmung der Schwerpunktenenergie des Reaktionsfensters . . . . .	20
2.6	Illustration der Eulerwinkel . . . . .	25
2.7	<i>Alignment</i> und <i>Orientation</i> . . . . .	26
3.1	Gesamtaufbau des Experiments . . . . .	31
3.2	Aufbau der EZR-Ionenquelle . . . . .	32
3.3	Schematische Darstellung der Gasdüse . . . . .	35
3.4	Druckabhängigkeit der KLL-Resonanzen bei Autoionisation von $O^{5+}$ . . . . .	36
3.5	Massenspektrum für $C^{5+}$ -Messung . . . . .	37
4.1	Schematischer Aufbau des Spektrometers . . . . .	42
4.2	Sphärischer Spiegelfeldanalysator . . . . .	45
4.3	Zylindrischer Spiegelfeldanalysator . . . . .	47
4.4	$e^{k_0}$ als Funktion des Eintrittswinkels $\beta$ . . . . .	49
4.5	Fokussierung in zweiter Ordnung für verschiedene Parameter $d$ . . . . .	50
4.6	Feldkorrekturolektroden . . . . .	53
4.7	Detektorsystem . . . . .	54
4.8	Auflösung des Spektrometers . . . . .	55
4.9	Strahlprofil . . . . .	57
4.10	Glasröhrchen . . . . .	58
4.11	Dopplerverschiebung und -verbreiterung . . . . .	60
4.12	Argon $L_{2,3}M_{2,3}M_{2,3}$ -Auger Spektrum . . . . .	61
4.13	Winkelverteilung der $L_{2,3}M_{2,3}M_{2,3}$ -Augerelektronen von Argon . . . . .	62

4.14	$1s2p^2$ $^2S$ -Resonanz bei verschiedenen Durchlassenergien . . . . .	64
4.15	<i>Response</i> -Funktion des Spektrometers . . . . .	65
5.1	Zeitliche Regelung der Datenaufnahme . . . . .	68
5.2	<i>Data-</i> und <i>Control-Routing</i> . . . . .	69
5.3	Messung von Ladung und Druck . . . . .	70
6.1	KLL-Spektrum des Auger-Zerfalls von $C^{3+}$ bei $15^\circ$ . . . . .	72
6.2	Reaktionsfenster für Autoionisation von $C^{3+}$ . . . . .	73
6.3	Intensitätsverteilung isotroper KLL-Übergänge bei $C^{3+}$ . . . . .	77
6.4	KLL-Autoionisation von $C^{3+}$ bei 40 keV . . . . .	78
6.5	KLL-Autoionisation von $C^{3+}$ bei 60 keV . . . . .	79
6.6	Intensitätsverteilung des $^2P$ - und $^2D$ -Übergangs bei 40 keV . . . . .	82
6.7	Intensitätsverteilung des $^2P$ - und $^2D$ -Übergangs bei 60 keV . . . . .	83
6.8	Anisotropie-Koeffizienten des $^2P$ - und $^2D$ -Übergangs . . . . .	85
6.9	$M_L$ -Bevölkerung des $^2P$ - und $^2D$ -Niveaus . . . . .	86
6.10	KLL-Spektrum des Auger-Zerfalls von $O^{5+}$ bei $165^\circ$ . . . . .	87
6.11	Reaktionsfenster für Autoionisation von $O^{5+}$ . . . . .	91
6.12	KLL-Autoionisations-Spektren von $O^{5+}$ für A1-A10 . . . . .	93
6.13	Intensitätsverteilung isotroper KLL-Übergänge von $O^{5+}$ . . . . .	94
6.14	Intensitätsverteilung des $^2D$ - und $^2P$ -Übergangs bei 84 keV . . . . .	95
6.15	Massenspektrum des primären $O^{7+}$ -Ionenstrahls . . . . .	97

# Tabellenverzeichnis

2.1	Beispielrechnung für das <i>over-barrier</i> Modell, $\text{Ar}^{18+} \rightarrow \text{He}$ . . . . .	13
2.2	Beispielrechnung für das <i>over-barrier</i> Modell, $\text{C}^{6+} \rightarrow \text{Ar}$ . . . . .	14
2.3	$\sigma^{(j)}$ für Strings der Reaktion $\text{Ar}^{5+} + \text{Ar} \rightarrow \text{Ar}^{k+} + \text{Ar}^{s+}$ . . . . .	17
4.1	Designparameter des Spektrometers . . . . .	51
6.1	KLL-Übergänge von $\text{C}^{3+}$ . . . . .	74
6.2	Parameter für $\text{C}^{5+} + \text{He}$ aus <i>over-barrier</i> -Modell . . . . .	76
6.3	Peakflächen und -breiten bei 40 keV . . . . .	81
6.4	Peakflächen und -breiten bei 60 keV . . . . .	84
6.5	Parameter für $\text{O}^{7+} + \text{He}$ aus <i>over-barrier</i> -Modell . . . . .	88
6.6	KLL-Übergänge von $\text{O}^{5+}$ . . . . .	90



# Abkürzungsverzeichnis

BNC	.....	<i>Bayonet Neill Concelman</i>
CAN	.....	<i>Controller Area Network</i>
CEM	.....	<i>Channel Electron Multiplier</i>
CMA	.....	<i>Cylindrical Mirror Analyzer</i>
DAQ	.....	<i>Data Acquisition</i>
DC	.....	<i>Double Capture</i>
ESA	.....	Elektrostatisher Analysator
EUVE	.....	<i>Extreme Ultraviolet Explorer</i>
EZR	.....	Elektron-Zyklotron-Resonanz
HCI	.....	<i>Highly Charged Ion</i>
HV	.....	<i>High Voltage</i>
ICS	.....	<i>Inner Cylinder Sphere</i>
LANL	.....	<i>Los Alamos National Laboratory</i>
MCP	.....	<i>Microchannel Plate</i>
o.B.d.A.	.....	ohne Beschränkung der Allgemeinheit
OBM	.....	<i>Over-Barrier-Modell</i>
OC	.....	<i>Outer Cylinder</i>
OS	.....	<i>Outer Sphere</i>
PSD	.....	<i>Position Sensitive Detector</i>
ROSAT	.....	Röntgensatellit
SMA	.....	<i>Spherical Mirror Analyzer</i>
TI	.....	<i>Transfer Ionization</i>
VME	.....	<i>Versa Module Eurocard</i>

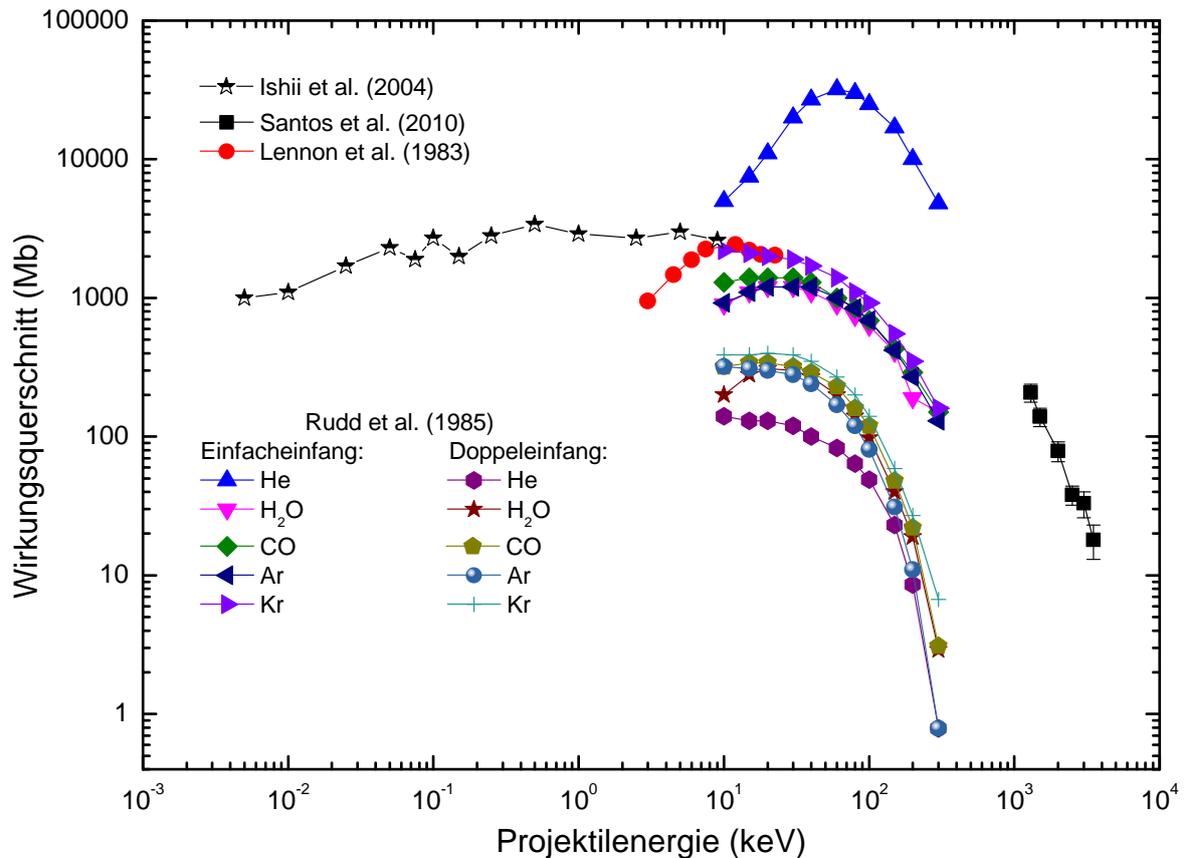


# 1 Einführung

Die vorliegende Dissertation behandelt die Physik der Ion-Atom-Stöße unter besonderer Berücksichtigung von Elektroneneinfangprozessen in angeregte Zustände des Projektilions und nachfolgender Autoionisation. Unter Elektroneneinfangprozessen versteht man Prozesse, bei denen ein oder mehrere Elektronen zwischen zwei atomaren Systemen ausgetauscht werden. Bei Kollisionen zwischen Ionen und Atomen im Bereich von Projektilgeschwindigkeiten, die vergleichbar sind mit der Geschwindigkeit der gebundenen Targetelektronen, ist nach DuBois (1986) der Einfang von Elektronen durch das Ion am wahrscheinlichsten. Die direkte Ionisation des Targets kann bei diesen Energien vernachlässigt werden. Bei höheren Projektilenergien nimmt der Wirkungsquerschnitt für einen Elektroneneinfang drastisch ab, direkte Ionisation und Anregung übernehmen die Rolle der dominanten Wechselwirkung. Eine Auswahl von Einzel- und Doppeleinfang-Wirkungsquerschnitten findet man in Abb. 1.1. Auffallend ist, dass die Wirkungsquerschnitte für verschiedene Projektile und Targets in den meisten Fällen einen ähnlichen Verlauf haben. Zudem gibt es einen Plateaubereich, der sich durch annähernd konstanten Wirkungsquerschnitt auszeichnet. Dieses Verhalten hat zur Entwicklung eines statischen Modells geführt, dem *over-barrier*-Modell (OBM).

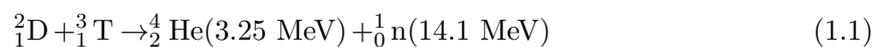
Die Untersuchung von Ion-Atom-Stößen ist zunächst ein Gegenstand der Grundlagenforschung. Dies liegt darin begründet, dass es sich bei diesen Prozessen um Viel-Teilchen-Wechselwirkungen mit einer Vielzahl möglicher Reaktionskanäle handelt. Sowohl der diskrete als auch der kontinuierliche Teil des Energiespektrums müssen für die Beschreibung dieser Wechselwirkung in Betracht gezogen werden, hinzu kommen mögliche Kopplungseffekte zwischen Reaktionskanälen (Janev und Presnyakov, 1981). Ion-Atom-Stöße sind deshalb auf Grund ihrer Vielschichtigkeit und Dynamik hervorragend zur Überprüfung theoretischer Modelle geeignet und liefern einen wichtigen Beitrag für das Verständnis der Wechselwirkung atomarer Strukturen, was bis hin zu komplexen biologischen Systemen reichen kann.

Im Bereich der Plasmaphysik spielen Elektroneneinfangprozesse eine signifikante Rolle, sie beeinflussen die Ladungs- und Energieverteilung des Plasmas sowie dessen Stabilität. Letztere wird bedingt durch den Einfang von Elektronen in angeregte Zustände des Ions und



**Abbildung 1.1:** Wirkungsquerschnitte für Elektroneneinfangprozesse bei Ion-Atom-Stößen als Funktion der Projektilenergie. Bei Santos et al. (2010) und Lennon et al. (1983) handelt es sich um den Einfacheinfang der Reaktion  $C^{3+} + He$ , bei Rudd et al. (1985) um Einfach- und Doppeleinfang von  $He^{2+}$  beim Stoß mit den im Diagramm angegebenen Targets, bei Ishii et al. (2004) um Einfacheinfang von  $C^{5+} + He$ . Wirkungsquerschnitte für Einfangprozesse bei Ion-Atom-Stößen im Bereich einiger keV liegen typischerweise in der Größenordnung Megabarn. Auffallend ist zudem, dass die Abhängigkeit von der Projektilenergie bis auf Helium nur schwach vom Target abhängt, da die Kurven annähernd gleich verlaufen.

nachfolgender radiativer Abregung. Im Bereich der thermonuklearen Fusion, z.B. im Prozess



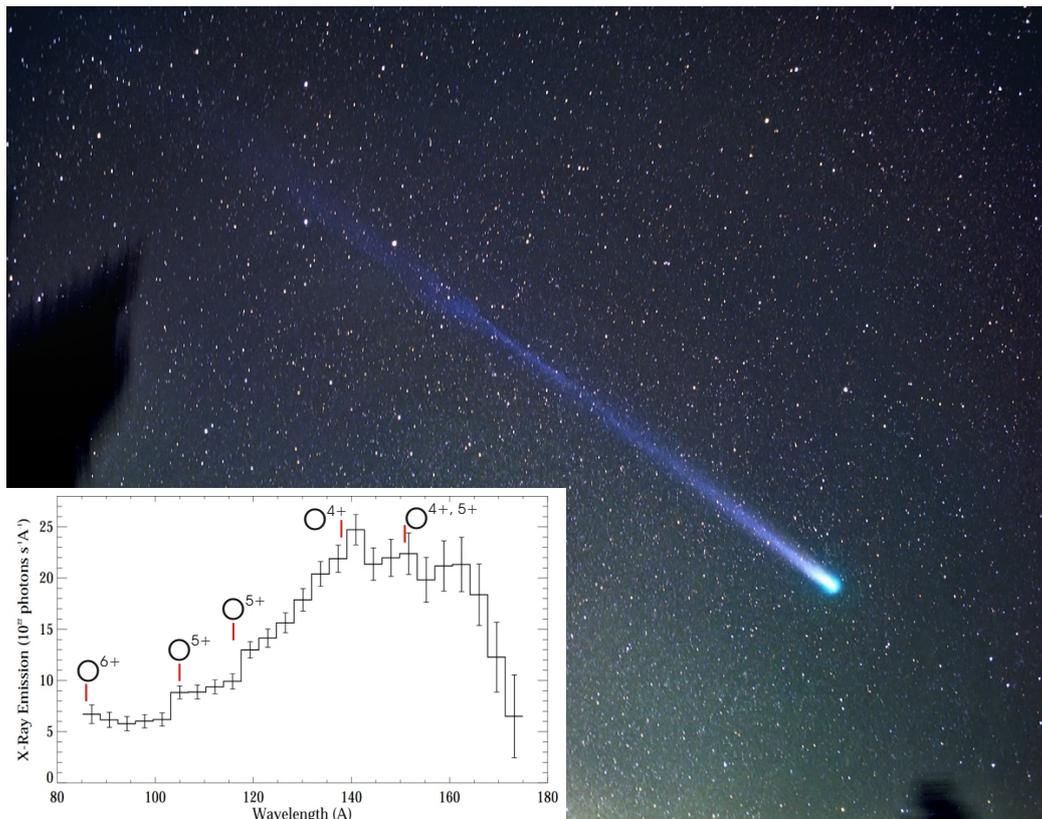
innerhalb eines Tokamaks oder Stellarators, kann es, bedingt durch Verunreinigungen des Plasmas, zu dessen Zusammenbruch kommen. Die Verunreinigungen entstehen nach Drawin (1981) primär durch Sputtereffekte aus den Wänden der Plasmakammer bedingt durch hochenergetische Plasmateilchen, die dem magnetischen Einschluss entkommen können. Dabei gelangen hochgeladene Bestandteile, vorwiegend Eisen, Nickel und Molybdän, aus dem Wandmaterial in das Plasma und entziehen diesem Energie über radiative Einfangprozesse (radiativer Zerfall, radiative und dielektronische Rekombination). Um den Prozess der Fusion zu optimieren, muss

---

man das Verhalten der hochgeladenen Spezies in Bezug auf die Energiebalance des Plasmas kennen. Auf der anderen Seite sind gezielte Verunreinigungen des Plasmas zu diagnostischen Zwecken erwünscht, sollen jedoch den eigentlichen Fusionsprozess nicht signifikant stören.

Neuere Designkonzepte von Fusionsreaktoren setzen auf Divertoren, um die Reinheit des Plasmas zu verbessern (Samm, 2003). Verunreinigungen des Plasmas sowie Endprodukte des Fusionsprozesses werden über eine angepasste Magnetfeldgeometrie auf spezielle Platten (Divertoren) gelenkt und dort neutralisiert. Die Neutralteilchen werden dann über Pumpen aus dem Reaktorvolumen befördert. Als Divertormaterial kommt bevorzugt Wolfram auf Grund seiner hohen Schmelztemperatur zum Einsatz (Neu et al., 2005). Da durch den hohen Gasdruck in der Divertorregion die kinetische Energie der Wasserstoffionen im Mittel unterhalb der Sputterschwelle liegt, die Konzentration von Wolfram im Plasma also gering ist, können die bedingt durch die hohe Ordnungszahl von Wolfram auftretenden radiativen Verluste mittels eines detaillierten Verständnisses dieses Prozesses u.U. kontrolliert werden (Rausch et al., 2011).

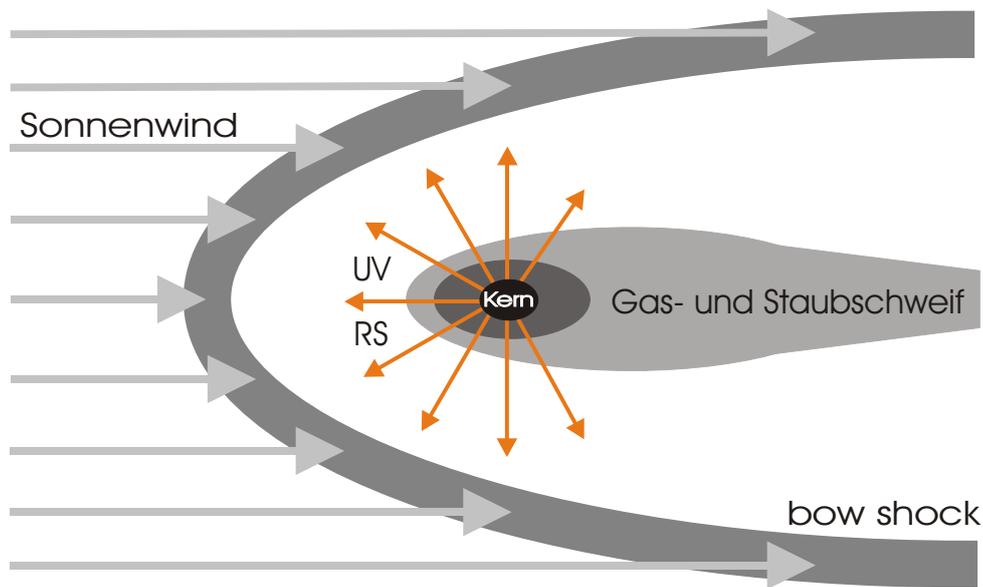
Im Bereich der Astrophysik ist man im besonderen Maße angewiesen auf Daten der experimentellen Atomphysik. Man geht davon aus, dass ca. 99% der sichtbaren Materie im Universum im Plasmazustand vorliegt (Peratt, 1996). Für astrophysikalische Modelle, z.B. der interplanetarischen Materie, ist daher die Kenntnis über Prozesse der Wechselwirkung von Ionen mit Atomen unentbehrlich. Als aktuelles Beispiel sei die Messung der extremen ultravioletten und Röntgenstrahlung des Kometen C/Hyakutake 1996 B2 (siehe Abb. 1.2) durch die Satelliten ROSAT (Röntgensatellit) und EUVE (*Extreme Ultraviolet Explorer*) genannt (Lisse et al., 1996). Dies ist insofern überraschend, als Kometen bis dahin als kalte Objekte galten, die keine Strahlung aussenden. Nachdem auch bei anderen Kometen die Emission von Röntgenstrahlung nachgewiesen wurde, kann nach Krasnopolsky und Mumma (2001) davon ausgegangen werden, dass es sich dabei um ein allgemeines Phänomen handelt. Als primärer Prozess der Erzeugung von Röntgenstrahlung im Kometen hat sich die von Cravens (1997) vorgeschlagene Wechselwirkung des Sonnenwindes mit den gasförmigen Bestandteilen des Kometen etabliert (Hasan et al., 2001). Der Sonnenwind setzt sich nach Schwadron und Cravens (2000) zusammen aus Protonen, Elektronen, 5% Helium und hochgeladenen Ionen ( $C^{6+}$ ,  $C^{5+}$ ,  $O^{8+}$ ,  $O^{7+}$ ,  $O^{6+}$ ,  $N^{7+}$ ,  $N^{6+}$ ,  $N^{5+}$ ,  $Ne^{8+}$ ,  $Ne^{7+}$ ). Geschwindigkeiten des Sonnenwindes liegen im Bereich 0.2-6 keV/amu ( $0.2 - 1.1 \cdot 10^6$  m/s für Kohlenstoff). Durch den Sonnenwind kommt es zunächst zu einer Erwärmung des Kometen, wodurch Bestandteile von seiner Oberfläche abdampfen. Die hochgeladenen Ionen des Sonnenwindes treffen mit diesen Gasteilchen zusammen und fangen von diesen Elektronen in hochangeregte Zustände ein, die anschließend radiativ oder über Autoionisation zerfallen. Die Wahrscheinlichkeit eines Elektroneneinfangs skaliert proportional mit dem Gasdruck. Daher wird sich die maximale Emission von Strahlung nahe der Oberfläche des Kometenkerns finden lassen (vg. Abb. 1.3). Auch wenn mit Satelliten lediglich



**Abbildung 1.2:** Komet Hyakutake und von EUVE (*Extreme Ultraviolet Explorer*) aufgenommenes weiches Röntgenspektrum des Kometen. Das Foto wurde am 28.3.1996 mit einer Belichtungszeit von 20 Minuten im Capella-Observatorium aufgenommen (Foto mit freundlicher Genehmigung von S. Binnewies, P. Riepe und D. Sporenberg). Das Spektrum ist entnommen aus Krasnopolsky und Mumma (2001).

elektromagnetische Strahlung von Kometen gemessen werden kann, ist die Kenntnis über die Effizienz der Autoionisation angeregter ionischer Zustände hilfreich, um ein Gesamtbild davon zu bekommen, welche Prozesse in der näheren Umgebung eines Kometenkerns ablaufen. Dies ist insofern interessant, als Kometen nach Bodewits et al. (2004) planetesimale Überbleibsel der Entstehung des Sonnensystems vor 4.5 Milliarden Jahren sind, die in der sog. Oort'schen Wolke (Weissman, 1990) bzw. im Kuiper Gürtel ihren Ursprung haben. Auch wenn nach Stern (2003) Kometen in diesen Ursprungsstätten nicht als wechselwirkungsfrei und somit als ursprünglich angesehen werden können, vermag ihr Studium zu einem besseren Verständnis der Bildung des Sonnensystems zu helfen.

In Beschleunigeranlagen spielen Ladungstransferprozesse eine wichtige Rolle bei der Optimierung von Vakuumbedingungen. Durch Stöße hochgeladener Ionen mit Restgasatomen innerhalb des Vakuumsystems kommt es zu Umladungsprozessen. Die umgeladenen Ionen



**Abbildung 1.3:** Schematische Darstellung eines Kometen nach Bodewits et al. (2004). Hochgeladene Ionen des Sonnenwindes treffen in der Nähe des Kometenkerns auf sublimierte Gasteilchen des Kometen. Bedingt durch die kleine Geschwindigkeit der Ionen, sind Elektronen-Einfangprozesse in angeregte Zustände der Ionen die dominante Wechselwirkung. Durch radiative Abregung kommt es zur Aussendung extremer UV- und Röntgenstrahlung (RS) sowie von Auger-Elektronen durch Autoionisation. Die Zeichnung ist nicht maßstabsgetreu.

erfüllen nicht mehr die eingestellten Referenzbedingungen der *Beamline*, werden also durch optische Elemente defokussiert und können z.B. auf die Wände des Vakuumsystems oder empfindliche Detektorteile treffen und zu Beschädigungen führen. Durch diese Wechselwirkung entstehen zusätzlich Sekundärteilchen, welche die Vakuumbedingungen weiter verschlechtern, wodurch eine Kaskade ausgelöst werden kann, die letztlich zum Verlust des Ionenstrahls führt. Um die Lebensdauer eines Ionenstrahls z.B. in einem Speicherring zu maximieren, ist man auf die Kenntnis der Wirkungsquerschnitte der beteiligten Stoßprozesse angewiesen (Omet et al., 2006; Weber et al., 2009). Die Lebensdauer  $\tau$  ist dabei nach Shevelko et al. (1998) definiert als

$$\tau(v) = \frac{1}{nv\sigma_{\text{tot}}(v)} \quad (1.2)$$

$\sigma_{\text{tot}}$  ist der totale Wirkungsquerschnitt für eine Änderung der Projektilladung,  $v$  ist die Geschwindigkeit des Projektils und  $n$  die Teilchendichte des Restgases. Die Lebensdauer muss für das jeweilige Experiment hinreichend groß sein. Daher kann bei Kenntnis von  $\sigma_{\text{tot}}$  die Effizienz des Vakuumsystems, also die Dichte des Restgases  $n$  so gewählt werden, dass neben physikalischen auch ökonomische Voraussetzungen erfüllt sind.

In dieser Arbeit werden Stoßprozesse von hochgeladenen Ionen mit Zwei-Elektronen-Targets untersucht. Die Untersuchung der Winkelabhängigkeit der Projektil-KLL-Autoionisation lithiumartiger Ionen bildet dabei den Schwerpunkt. Die Beschränkung auf KLL-Übergänge ist insofern interessant, als es nur einen  $^1S_0$ -Endzustand gibt. Die Winkelverteilung von Auger-Elektronen hängt im allgemeinen Fall von den Verhältnissen der Zerfallsamplituden ab, bei einem  $^1S_0$ -Endzustand ist dies aber gerade nicht der Fall. Somit kann die Winkelabhängigkeit vollständig auf die vorliegenden Drehimpulse und den Grad des *Alignments* der Ionen zurückgeführt werden (Berezhko und Kabachnik, 1977).<sup>1</sup> Als Projektile wurden  $C^{5+}$  und  $O^{7+}$  verwendet, als Target He. In Kapitel 2 werden die theoretischen Grundlagen des Ladungsaustauschs in Ion-Atom-Stößen am Beispiel eines einfachen Modells erklärt. Der weitere Teil dieses Kapitels wird sich mit der Theorie der Winkelverteilung von Auger-Elektronen beschäftigen, die als Folge der Autoionisation entstehen. In Kapitel 3 wird der experimentelle Aufbau der Strahlführung beschrieben. Die Beschreibung des Elektronenspektrometers folgt in Kapitel 4. In Kapitel 5 wird in knapper Form die Datenaufnahme des Experiments beschrieben. Resultate und Diskussion finden sich in Kapitel 6.

---

<sup>1</sup>Der Begriff *Alignment* wird von mir nicht übersetzt verwendet, da er in enger Beziehung zum Begriff *Orientation* steht. Beide Begriffe können im Deutschen mit „Ausrichtung“ übersetzt werden, obgleich sie verschiedene Bedeutung in der verwendeten Thematik haben. Eine Erklärung beider Begriffe wird in Kapitel 2 gegeben.

## 2 Ladungsaustausch in Ion-Atom-Stößen

Das folgende Kapitel beschreibt die in dieser Arbeit verwendeten theoretischen Grundlagen. Es ist thematisch in zwei Teile gegliedert. Der erste Teil beschäftigt sich mit dem Elektronentransfer zwischen einem Projektilion und einem Targetatom. Elektronen, die dabei transferiert werden, befinden sich nach diesem Prozess für gewöhnlich in angeregten Zuständen, die radiativ oder über Autoionisation zerfallen. Für die Beschreibung dieses Prozesses wird das *over-barrier* Modell (OBM) verwendet. Dieses semiklassische Modell hat den Vorteil, dass es nur einen mathematisch einfachen Formalismus benötigt und zudem sehr anschaulich ist, dabei aber hinreichend gute Vorhersagen macht. Diese Vorhersagen betreffen Wirkungsquerschnitte für Elektronen-Einfangprozesse sowie Reaktionsfenster, d.h. Energiebereiche, in denen man Elektronen aus Autoionisation von Projektil oder Target erwartet. Die Wirkungsquerschnitte können z.B. für eine Abschätzung der Erfüllung der Einzelstoßbedingung im Experiment verwendet werden. Aus den Reaktionsfenstern können Aussagen über die zu erwartenden Intensitäten gemacht werden. Der zweite Teil beschäftigt sich mit der Beschreibung der Winkelverteilung der Elektronen, die als Folge der Autoionisation emittiert werden. Dies ist notwendig, um qualitative Aussagen über die experimentell gewonnenen Winkelverteilungen fällen zu können.

### 2.1 Das *over-barrier* Modell

#### 2.1.1 Einleitung

Umladungsprozesse bei Stößen zwischen Ionen und Atomen werden beschrieben durch



In diesem Prozess ist A das q-fach geladene Ion, B das Targetatom. Insgesamt sind t Elektronen eingefangen worden. Sowohl Projektil als auch Target können nach einem solchen Austauschprozess in angeregten Zuständen vorliegen, was radiative Abregungen und Autoionisationsprozesse zur Folge hat.

Nach Niehaus (1986) sind die Wirkungsquerschnitte solcher Einfangprozesse für langsame

Projektilgeschwindigkeiten (0.01 bis 1 a.u.) nahezu unabhängig von der Geschwindigkeit, was die Beschreibung dieser Prozesse durch ein statisches Modell nahelegt. In Ryufuku et al. (1980) wird ein solches Modell für den Einfang von einem Elektron durch das Projektil vorgestellt. Bárány et al. (1985) erweitern dieses Modell für den Einfang von mehreren Elektronen. Der Nachteil dieser Modelle besteht darin, dass nur der Anfangszustand des Prozesses eine Rolle spielt, eine nachfolgende Autoionisation in Projektil oder Target wird nicht berücksichtigt. Bei Niehaus (1986) wird unter Einbeziehung der möglichen Endzustände berücksichtigt, auf welche Art der Austausch der Elektronen stattfindet. Außerdem wird aus der Unschärferelation eine Beziehung hergeleitet, die die Kinematik des Stoßprozesses in das Modell mit einbezieht.

Im folgenden Abschnitt wird zunächst das klassische sowie im Anschluss daran das erweiterte *over-barrier* Modell nach Niehaus (1986) beschrieben. Die Berücksichtigung kinematischer Effekte, d.h. die Abhängigkeit des Einfangprozesses von der Kollisionsenergie wird der Übersicht halber in einem weiteren Abschnitt behandelt. Soweit nicht anders erwähnt, werden ausschließlich atomare Einheiten benutzt. Zur Vermeidung von Missverständnissen bezüglich Vorzeichenkonventionen sei erwähnt, dass sowohl Bindungs- und Ionisierungsenergien positiv gerechnet werden. Die Darstellung des Modells orientiert sich hauptsächlich an de Nijs (1996) sowie an Mack (1987) und Knoop (2006).

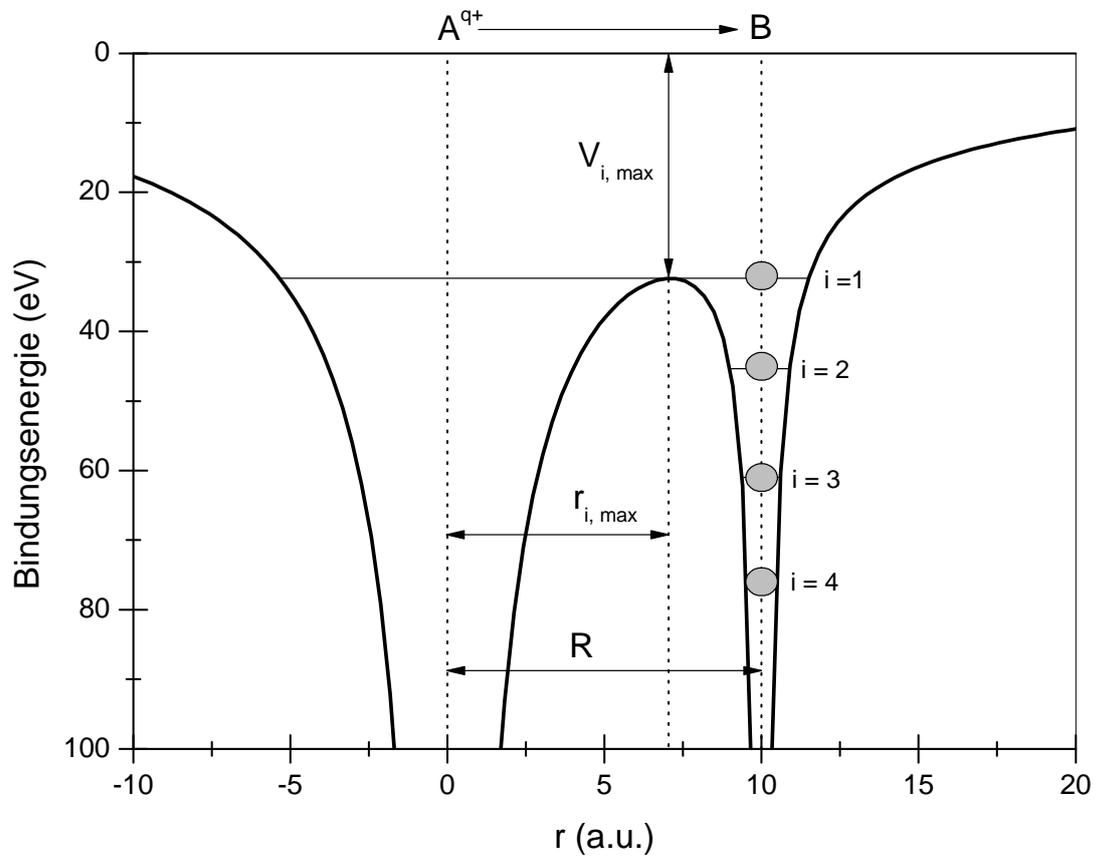
### 2.1.2 Das klassische *over-barrier* Modell

Wenn sich ein langsames hochgeladenes Ion dem Targetbereich nähert, wird die Coulombbarriere zwischen Ion und Atom herabgesetzt (siehe Abb. 2.1). Sei  $E_i$  die Bindungsenergie des  $i$ -ten Targetelektrons. Bei Annäherung des  $q$ -fach geladenen Ions erhöht sich die Bindungsenergie durch das zusätzliche Coulomb-Feld des Projektils:

$$I_i(R) = E_i + \frac{q}{R} \quad (2.2)$$

Hierbei beschreibt  $R$  den internuklearen Abstand zwischen Projektil und Target. Die Koordinate  $r$  liegt auf der Verbindungslinie zwischen Projektil und Target. Das  $i$ -te Elektron sieht in Folge der Annäherung des Ions die Summe der Potentiale des Ions und seines eigenen Kerns. Sei  $Z$  die Kernladungszahl des Atoms. Dann sieht das am schwächsten gebundene Elektron, welches als erstes die Coulomb-Barriere überwinden kann, bedingt durch die Abschirmung des Kerns durch die anderen  $(Z-1)$  Elektronen, einen einfach geladenen Kern. Das zweite Elektron sieht entsprechend einen zweifach geladenen Kern, das  $i$ -te Elektron einen  $i$ -fach geladenen. Das vom  $i$ -ten Elektron gesehene Potential lässt sich somit schreiben als:

$$V_i(r) = \frac{q}{|r|} + \frac{i}{|(R-r)|} \quad (2.3)$$



**Abbildung 2.1:** Definition der Parameter im *over-barrier* Modell. Gezeigt ist der Fall, in dem das erste Targetelektron ( $i = 1$ ) die Coulomb-Barriere überwinden kann. Die Positionen der Energieniveaus im Target verschieben sich bei Annäherung des Ions zu niedrigeren Energien. In dem Modell wird angenommen, dass sich der „quasimolekulare“ Zustand bei weiterer Absenkung der Coulomb-Barriere nicht weiter verändert.

Der Ursprung der Koordinate  $r$  liegt bei dem als Punktladung angenommenen Ion. Der Verlauf der Potentialbarriere ist in Abb. 2.1 für den Fall  $R = 10$  a.u. dargestellt. In diesem Beispiel kann das erste Targetelektron das Atom verlassen und einen quasimolekularen Zustand zwischen Atom und Ion besetzen. Der Wert des Potentials an dieser Stelle entspricht im allgemeinen Fall  $V_{i,max}$ , der Abstand wird durch  $r_{i,max}$  ausgedrückt. Diesen Abstand kann man bestimmen aus der Extremwertbeziehung

$$\frac{dV}{dr} = -\frac{q}{r^2} + \frac{i}{(R-r)^2} = 0 \quad (2.4)$$

Man erhält:

$$r_{i,\max} = \frac{R\sqrt{q}}{\sqrt{q} + \sqrt{i}} \quad (2.5)$$

Einsetzen von Gleichung (2.5) in Gleichung (2.3) liefert einen Ausdruck für  $V_{i,\max}$ , der nur noch vom internuklearen Abstand  $R$  und von den Ladungszuständen von Atom und Ion abhängt:

$$V_{i,\max} = \frac{q}{R} + \frac{1}{R}(i + 2\sqrt{iq}) \quad (2.6)$$

Der internukleare Abstand, bei dem das  $i$ -te Elektron vom Target zum Ion übergehen kann, wird mit  $R_i^{\text{in}}$  bezeichnet<sup>1</sup>. Da man die Position der verschobenen Energieniveaus aus Gl. (2.2) bekommt und das Maximum der Coulomb-Barriere durch Gl. (2.6) gegeben ist, bekommt man  $R_i^{\text{in}}$  durch Gleichsetzen dieser beiden Ausdrücke. Man erhält:

$$R_i^{\text{in}} = \frac{i + 2\sqrt{iq}}{E_i} \quad (2.7)$$

Bei weiterer Annäherung der beiden Teilchen wird die Position des quasimolekularen Zustands als fest angenommen, d.h. für  $r \leq R_i^{\text{in}}$  gilt für die Bindungsenergie des quasimolekularen Zustands  $i$ :

$$I_i^{\text{qm}} \equiv I_i(R_i^{\text{in}}) = E_i + \frac{q}{R_i^{\text{in}}} = \text{const.} \quad (2.8)$$

Solange sich Target und Projektil weiter annähern, d.h. solange die Coulomb-Barriere weiter sinkt, können Elektronen aus tieferen Schalen in den quasimolekularen Zustand gelangen. Der Zustand der kleinsten Annäherung, d.h. der Umkehrpunkt (*turningpoint*) wird durch den internuklearen Abstand  $R_{\text{TP}}$  beschrieben. Der größte Index  $i_{\max} = s$  ist definiert über die Beziehung  $R_{s+1} < R_{\text{TP}} < R_s$ . Dies bedeutet, dass sukzessiv bis zum Erreichen des Umkehrpunktes  $s$  Elektronen quasimolekular vorliegen und potentiell vom Projektil eingefangen werden können.

### 2.1.3 Das erweiterte *over-barrier* Modell

Nachdem der Punkt größter Annäherung überschritten wurde, erhöht sich die Coulomb-Barriere wieder. Für den Fall, dass die Barriere auf der Höhe eines quasimolekularen Zustandes liegt, muss sich das dort befindliche Elektron „entscheiden“ ob es beim Target oder beim Projektil bleibt. Für den Fall eines Einelektronenaustauschs ist der gesamte zeitliche Verlauf des Einfangprozesses in Abb. 2.2 am Beispiel der Reaktion  $\text{Ar}^{18+} + \text{He} \rightarrow \text{Ar}^{17+} + \text{He}^{1+}$  dargestellt. Das eingefangene Elektron wird nach dem *over-barrier* Modell im Zustand mit der Hauptquantenzahl  $n=8$  des Ions eingefangen. Die Abregung in tiefere Niveaus kann nur radiativ erfolgen. In Tab. 2.1 sind die charakteristischen Parameter für diesen Prozess angegeben. Die Stärke des

<sup>1</sup>Der Index „in“ soll andeuten, dass sich das Projektil dem Target annähert, also sich im sog. *way-in* befindet. Nähere Erläuterungen finden sich im nächsten Abschnitt.

erweiterten *over-barrier* Modells liegt nun darin, dass der Ausgangskanal im Unterschied zum klassischen Modell berücksichtigt wird. Der eigentliche Einfangprozess findet nach Niehaus (1987) nicht im sog. „*way-in*“, sondern im „*way-out*“ statt, wenn sich Projektil und Target wieder voneinander trennen. Im *way-in* werden eine bestimmte Anzahl von Elektronen in einem quasi-molekularen Zustand gebunden, im *way-out* findet die Separation statt. Diese Trennung wiederum hängt davon ab, was mit den tiefergelegenen Elektronen passiert ist, die ebenfalls im molekularen Zustand vorlagen. Bei der Beschreibung des Prozesses werden also die bereits eingefangenen oder nicht eingefangenen Elektronen berücksichtigt. Seine volle Stärke entfaltet dieses erweiterte Modell demnach auch nur, wenn mehrere Elektronen bzw. mindestens ein tiefliegendes Elektron eingefangen wird. Für einen einfachen Einfangprozess wie in Abb. 2.2 angegeben, ist die Erweiterung des Modells unerheblich, weil kein bereits eingefangenes Elektron aus einem tieferen Niveau vorliegen kann. Entsprechend sind die Parameter in Tab. 2.1 für  $R_i^{\text{in}}$  und  $R_i^{\text{out}}$  identisch.

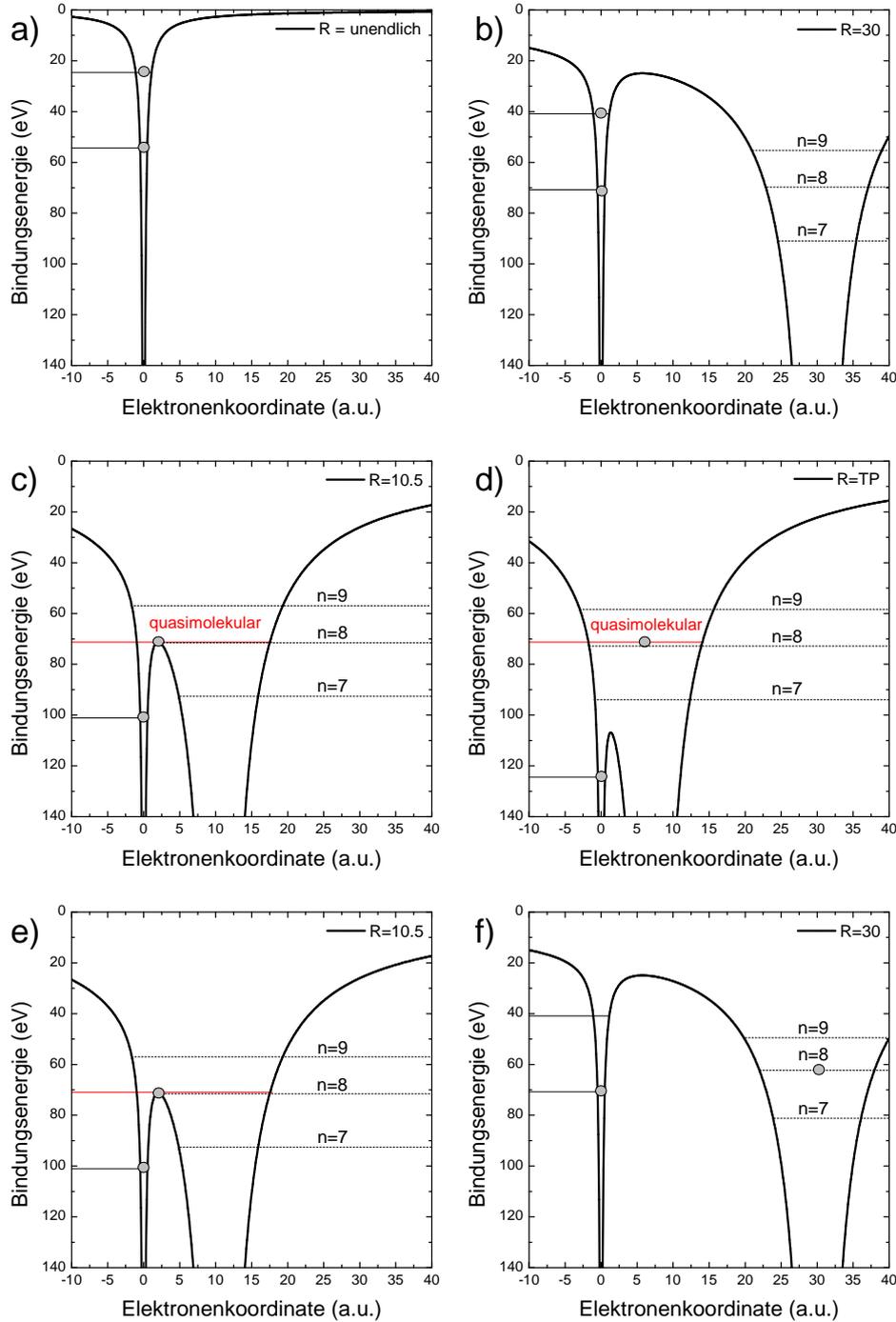
Die Coulomb-Barriere erhöht sich solange, bis kein quasimolekularer Zustand mehr vorliegt. Von den  $s$  Elektronen, die in diesen Zuständen vorlagen, sind einige vom Projektil eingefangen worden, andere sind beim Target geblieben. Nimmt man an, dass z.B. sechs Elektronen quasimolekular waren, so gibt es verschiedene Möglichkeiten, wie der Ausgangskanal aussieht. Niehaus (1986) beschreibt jeden möglichen Endzustand durch einen binären String  $j$ , der insgesamt  $s$  Elemente enthält. In unserem Fall ( $s = 6$ ) ergibt sich z.B. für einen möglichen Ausgangskanal

$$(j) \equiv (1 \ 0 \ 1 \ 0 \ 0 \ 0) \quad (2.9)$$

Der String läuft von  $i = 1 \dots s$ . Der Wert 1 bedeutet, dass das Elektron vom Projektil eingefangen wurde, 0 bedeutet, dass das Elektron beim Target bleibt. Im vorliegenden Beispiel sind das erste und das dritte Elektron vom Ion eingefangen worden, alle anderen vier Elektronen sind beim Target geblieben. Die Charakterisierung des Austauschs durch solche Strings ist nicht nur zur Veranschaulichung des Prozesses gedacht, sondern erlangt praktische Bedeutung bei der Berechnung des Wirkungsquerschnitts für den Einfang von  $r$  Elektronen, wo man über die verschiedenen Strings summieren muss:

$$\sigma_r = \sum_{(j)} \sigma_r^{(j)} \quad (2.10)$$

Da der Einfang eines Elektrons aus einer tiefen Schale einen Einfluss auf die Ladung hat, die von höhergelegenen Elektronen gesehen wird, haben die Strings auch Einfluss auf die Lage der Energieniveaus bei Projektil und Target im Fall des sich entfernenden Projektils. Für jedes vom Projektil eingefangene Elektron verringert sich in Gl. (2.3) die Ladung des Ions um eine Elementarladung. Umgekehrt erhöht sich die effektive Ladung des Targets um diese Ladung, da der Kern von einem Elektron weniger abgeschirmt wird. Sei  $c_i$  die Anzahl der



**Abbildung 2.2:** Zeitliche Darstellung des Einfangprozesses im klassischen *over-barrier* Modell am Beispiel eines Einelektronenaustauschs (a bis f). Gezeigt ist der Stoß von  $\text{Ar}^{18+}$  auf He. Der Umkehrpunkt ist o.B.d.A. mit  $R_{\text{TP}} = 7$  a.u. angenommen worden. Die Energieniveaus des Heliums ergeben sich aus Gl. (2.2). Die angegebenen Energieniveaus des Ions ( $n = 7, 8, 9$ ) sind mit  $I = \frac{q_1^2}{2n^2} + \frac{1}{R}$  berechnet worden. Berechnungen der Modellparameter findet man in Tab. 2.1

**Tabelle 2.1:** Beispielrechnung für das *over-barrier* Modell. Gerechnet wurde der String (10) (s. Abschnitt 2.1.3) der Kollision  $\text{Ar}^{18+} + \text{He}$ . Die (gerundeten) Bindungsenergien von Helium sind aus der NIST Atomic Spectra Database entnommen. Vom Projektil geht nur der Ladungszustand in die Kalkulation ein.

Elektronenindex i	1	2
String	1	0
$E_i$ (eV)	24.587 <sup>1</sup>	54.417 <sup>1</sup>
$c_i$	0	0
$R_i^{\text{in}}$ (a.u.)	10.498	7.001
$R_i^{\text{out}}$ (a.u.)	10.498	7.001
$I_i^{\text{qm}}$ (eV)	71.245	124.384
$I_i^{\text{out}}$ (eV)	68.653	116.61

<sup>1</sup> <http://www.nist.gov/pml/data/asd.cfm>

bereits eingefangenen Elektronen. Das  $i$ -te Elektron sieht entsprechend das Potential

$$V_i^{\text{out}} = \frac{q - c_i}{|r|} + \frac{i + c_i}{|R - r|} \quad (2.11)$$

Analog zu den Berechnungen im Eingangskanal ergibt sich das Maximum der Potentialbarriere zu

$$V_{i,\text{max}}^{\text{out}} = \frac{q}{R} + \frac{1}{R} \left[ i + 2\sqrt{(i + c_i)(q - c_i)} \right] \quad (2.12)$$

Beim internuklearen Abstand  $R_i^{\text{out}}$  ist die Höhe der Potentialbarriere gleich der Position des  $i$ -ten quasimolekularen Energieniveaus. Er ergibt sich aus

$$R_i^{\text{out}} = R_i^{\text{in}} \left[ \frac{\sqrt{q - c_i} + \sqrt{i + c_i}}{\sqrt{q} + \sqrt{i}} \right] \quad (2.13)$$

Die Bindungsenergie der Elektronen verändert sich durch den Ladungsaustausch zu

$$I_i^{\text{out}} = E_i + \frac{q}{R_i^{\text{in}}} - \frac{i + c_i}{R_i^{\text{out}}} \quad (2.14)$$

Der aus Gl. (2.14) errechnete Wert entspricht also der Bindungsenergie des  $i$ -ten Elektrons im Projektil. Bei Einfang durch das Target ergibt sich die Bindungsenergie dort zu:

$$I_{\text{Target}} = E_i + \frac{q}{R_i^{\text{in}}} - \frac{q - c_i}{R_i^{\text{out}}} \quad (2.15)$$

In Tab. 2.2 sind die charakteristischen Größen des Stoßprozesses für die Kollision von  $\text{C}^{6+}$  mit Argon am Beispiel des Strings (111001) durchgerechnet. Zu beachten ist, dass die Integer-Zahl

**Tabelle 2.2:** Beispielrechnung für das *over-barrier* Modell. Gerechnet wurde der String (111001) der Kollision von  $C^{6+}$  mit Argon. Die (gerundeten) Bindungsenergien von Argon sind aus der NIST Atomic Spectra Database entnommen. Vom Projektil geht nur der Ladungszustand in die Kalkulation ein.

Elektronenindex i	1	2	3	4	5	6
String	1	1	1	0	0	1
$E_i$ (eV)	15.758 <sup>1</sup>	27.63 <sup>1</sup>	40.735 <sup>1</sup>	59.686 <sup>1</sup>	75.134 <sup>1</sup>	91.00 <sup>1</sup>
$c_i$	3	2	1	1	1	0
$R_i^{\text{in}}$ (a.u.)	10.186	8.793	7.672	6.291	5.778	5.382
$R_i^{\text{out}}$ (a.u.)	11.923	9.424	7.874	6.355	5.778	5.382
$I_i^{\text{qm}}$ (eV)	31.789	46.198	62.015	85.640	103.390	121.333
$I_i^{\text{out}}$ (eV)	22.670	34.648	48.191	64.230	75.134	91.000

<sup>1</sup> <http://www.nist.gov/pml/data/asd.cfm>

$c_i$  im Programm-Code beim größten Elektronenindex rückwärts zu generieren ist. Für  $i = i_{\text{max}}$  gilt immer  $c_i = 0$ .

#### 2.1.4 Q-Wert und Wirkungsquerschnitt

Für die Berechnung des Q-Wertes, welcher als Differenz der Bindungsenergien der Elektronen nach und vor dem Stoß definiert ist, ist es zweckmäßig, Gl. (2.14) umzuschreiben:

$$I_i^{\text{out}} = E_i [(1 + \delta(q, i, c_i))] \quad (2.16)$$

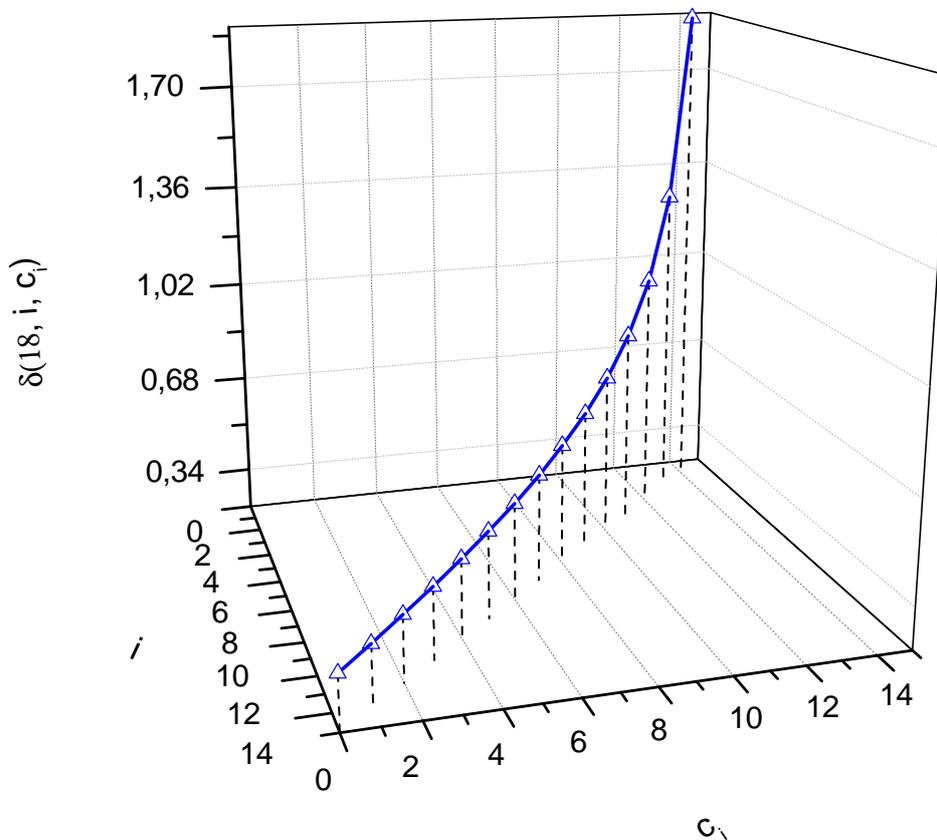
Die Funktion  $\delta(q, i, c_i)$  ist definiert als:

$$\delta(q, i, c_i) = \frac{1}{i + 2\sqrt{iq}} \left[ q - \left( \frac{\sqrt{q} + \sqrt{i}}{1 + \sqrt{\frac{q-c_i}{i+c_i}}} \right)^2 \right] \quad (2.17)$$

In Abb. 2.3 ist  $\delta(q, i, c_i)$  als Funktion des Elektronenindex  $i$  und der Anzahl der eingefangenen Elektronen  $c_i$  für den Fall  $q = 18$  dargestellt. Wie man dort sehen kann, gilt für jede mögliche Kombination von  $i$  und  $c_i$  immer  $\delta > 0$ . Dies bedeutet, dass jedes Elektron, das in einen gebundenen Zustand des Ions eingefangen wird, über eine höhere Bindungsenergie verfügt, als es vorher im Target besessen hatte, also stärker gebunden ist. Nach

$$Q = - \sum_i (I_i^{\text{out}} - E_i) = \sum_i I_i^{\circ} \delta(q, i, c_i) \quad (2.18)$$

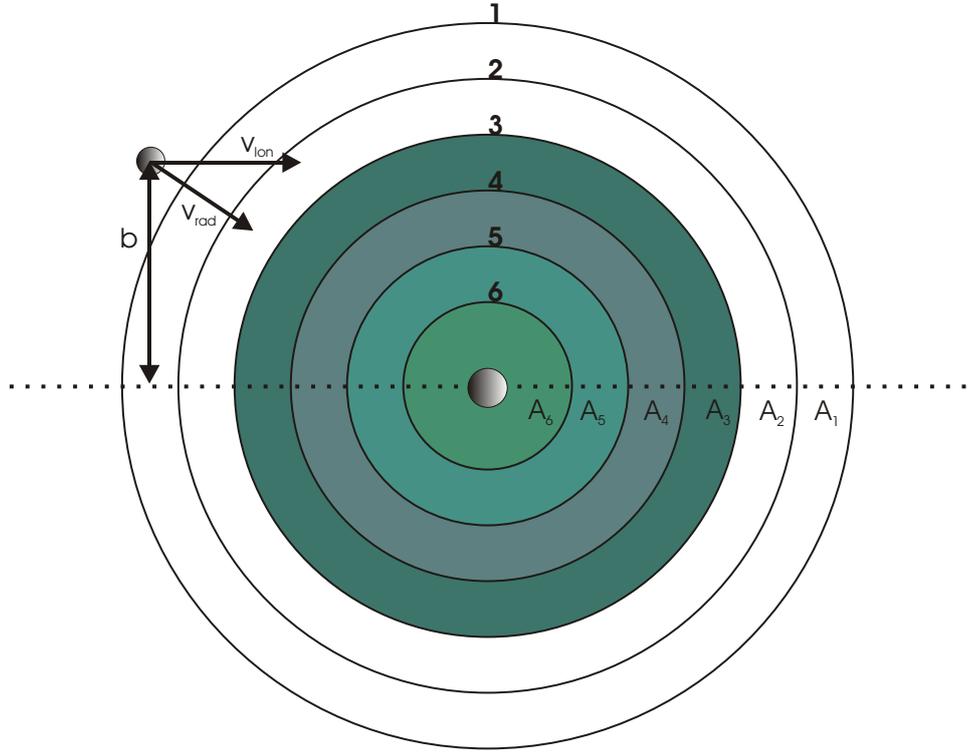
sind durch das *over-barrier* Modell beschriebene Einfangprozesse exotherm. Das negative Vorzeichen sorgt für die übliche Konvention, dass exotherme Reaktionen durch  $Q < 0$  definiert sind.



**Abbildung 2.3:**  $\delta(q, i, c_i)$  als Funktion von  $i$  und  $c_i$  für  $q = 18$ . Die physikalische Beschränkung der  $\delta$  – Werte auf den positiven Zahlenbereich hat zur Folge, dass Einfangprozesse im *over-barrier* Modell immer exothermer Natur sind.

Der Wirkungsquerschnitt für den Einfang von  $r$  Elektronen durch das Projektil ist gegeben durch Gl. (2.10). Bei Niehaus (1986) werden die Wirkungsquerschnitte  $\sigma^j$  für die einzelnen Strings durch die internuklearen Abstände  $R_i^{\text{in}}$  und die Einfangswahrscheinlichkeit  $W_i$  ausgedrückt. Gegeben sei der String (111000). Der geometrische Wirkungsquerschnitt für diesen Prozess ist  $\sigma^{\text{geo}} = \pi \cdot R_3^2$ , da  $R_{\text{TP}} < R_3$  gelten muss, damit dieser Prozess stattfinden kann. Diese Fläche wird nun in Kreisringe mit der Fläche  $A_i$  zerlegt, die durch die Radien  $R_i^{\text{in}}$  definiert sind (siehe Abb. 2.4)<sup>2</sup>. Jede Kreisfläche wird mit der Wahrscheinlichkeit  $W_i$  gewichtet, mit der das entsprechende Elektron vom Projektil eingefangen wird (bei Stringindex 1), bzw.

<sup>2</sup>Man verwendet für die Flächenberechnungen die internuklearen Abstände beim *way-in*. Dies ist physikalisch darin begründet, dass der Capture-Prozess mit der Bildung des quasimolekularen Zustands eingeleitet wird, obwohl der eigentliche Einfang erst im *way-out* stattfindet.



**Abbildung 2.4:** Partitionierung des Wirkungsquerschnitts im *over-barrier* Modell. Für ein sich mit dem Stoßparameter  $b$  und der Geschwindigkeit  $v_{\text{Ion}}$  näherndes Ion berechnet sich der Wirkungsquerschnitt  $\sigma^j$  für den String (111000) zu  $\sigma^j = W_1 W_2 W_3 A_3 + \sum_{i=4}^6 (1 - W_i) A_i$ .  $W_i$  steht dabei für die Wahrscheinlichkeit, dass das  $i$ -te Elektron vom Ion eingefangen wird. Der geometrische Wirkungsquerschnitt ergibt sich aus  $\sigma^{\text{geo}} = \pi R_3^2$ . Deutlich wird auch, dass der komplette String in die Berechnung eingeht. So führt z.B. der String (111) zum gleichen Ausgangszustand, der Wirkungsquerschnitt dafür ergibt sich jedoch zu  $\sigma^j = W_1 W_2 W_3 \pi R_3^2$ .

$(1 - W_i)$ , falls das Elektron nicht eingefangen wird (Stringindex 0). Daraus folgt:

$$\sigma^j = \sum_{i=1}^{i_{\text{max}}} A_i P_i^{(j)} \quad (2.19)$$

Für  $P_i$  folgt für den gegebenen String:

$$P_i^{(j)} = \begin{cases} 0 & \text{für } i < i_0 = 3 \\ W_1 \cdot W_2 \cdot W_3 & \text{für } i = i_0 = 3 \\ W_1 \cdot W_2 \cdot W_3 \cdot \prod_{i_0+1}^{i_{\text{max}}} (1 - W_i) & \text{für } i_0 < i \leq i_{\text{max}} = 6 \end{cases} \quad (2.20)$$

Die Eingangswahrscheinlichkeiten werden aus den zur Verfügung stehenden Phasenräumen für den Einfang durch Projektil oder Target abgeleitet. Hochgeladene Ionen verfügen im

**Tabelle 2.3:** Wirkungsquerschnitte  $\sigma^{(j)}$  für verschiedene Strings der Reaktion  $\text{Ar}^{5+} + \text{Ar} \rightarrow \text{Ar}^{k+} + \text{Ar}^{s+}$  auf Grundlage des in Abschnitt 2.1 gezeigten Formalismus und Vergleich mit den Literaturwerten. Kleinere Unterschiede in den Werten können in der Verwendung leicht verschiedener Bindungsenergien liegen. Die Ursache größere Unterschiede wie z.B. beim String (1 1 0 0 0) konnte bisher noch nicht ermittelt werden.

String (j)	$\sigma^{(j)}[\text{\AA}^2]$	$\sigma^{(j)}[\text{\AA}^2]$ (Lit.) <sup>1</sup>
1 0 0 0 0	18.29	17.6
0 1 0 0 0	6.79	6.9
0 0 1 0 0	3.12	2.4
0 0 0 1 0	1.26	0.8
0 0 0 0 1	0.96	0.6
1 1 0 0 0	7.18	10.9
1 0 1 0 0	3.29	3.6
1 0 0 1 0	1.33	1.3
1 0 0 0 1	1.02	0.9
0 1 1 0 0	2.92	3.6
0 1 0 1 0	1.18	1.3
0 1 0 0 1	0.90	1.0
0 0 1 1 0	1.11	1.3
0 0 1 0 1	0.85	1.0
0 0 0 1 1	0.79	1.0

<sup>1</sup> Die Werte sind aus Niehaus (1986) entnommen.

Vergleich zum Target über eine größere Zustandsdichte, weswegen Einfangprozesse in das Ion mit hohen Wahrscheinlichkeiten ablaufen. Die Zustandsdichten von Ion und Atom kann man bei Annahme wasserstoffähnlicher Systeme annähern durch die jeweilige Hauptquantenzahl des i-ten Elektrons bei Einfang von Projektil oder Target. Für die Einfangwahrscheinlichkeit ergibt sich daher:

$$W_i = \frac{n_i^2}{n_i^2 + m_i^2} \quad (2.21)$$

Da die Bindungsenergien als Funktion des internuklearen Abstands aus Gl. (2.14) und Gl. (2.15) bekannt sind, ergibt sich für die Hauptquantenzahl bei Einfang in das Ion:

$$n_i(c_i) \simeq \frac{q - c_i}{\sqrt{2 \cdot I_1^{\text{out}}}} \quad (2.22)$$

Bei Rückefang in das Target wird ein geeigneter Quantendefekt  $d$  eingeführt, der gewährleisten soll, dass der Rückefang bei  $c_i = 0$  in die Ursprungsschale stattfindet. Es gilt:

$$m_i(c_i) + d(c_i) = \frac{i + c_i}{\sqrt{2 \cdot I_{\text{Target}}}} \quad (2.23)$$

Der Quantendefekt ist definiert als:

$$d(c_i) = \frac{i + c_i}{\sqrt{2 \cdot I_{i+c_i}}} - m_0 \quad (2.24)$$

Dabei bezeichnet  $m_0$  die Hauptquantenzahl der äußeren Schale des Targets und  $I_{i+c_i}$  die  $i + c_i$ -te Ionisationsenergie des Targets. In Tab. 2.3 sind einige Wirkungsquerschnitte für den Prozess  $\text{Ar}^{5+} + \text{Ar} \rightarrow \text{Ar}^{k+} + \text{Ar}^{s+}$  berechnet und mit den Werten aus Niehaus (1986) verglichen worden. Obwohl die Werte in der Regel im Rahmen der verwendeten Bindungsenergien sehr ähnlich sind, gibt es jedoch stellenweise Differenzen, deren Ursache nicht bekannt ist. Möglicherweise wurden andere Bindungsenergien verwendet oder ein anderes Verfahren zur Bestimmung der Hauptquantenzahl angewandt. Im Rahmen der Genauigkeit dieses einfachen Modells sind die Unterschiede marginal. Die Übereinstimmung mit experimentellen Daten ist dennoch bemerkenswert: Für den in Tab. 2.3 angegebenen Prozess ist der totale Wirkungsquerschnitt für  $q = 5 \rightarrow k = 4, s = 1$  im Experiment  $26 \text{ \AA}^2$  (Niehaus, 1986), der in dieser Arbeit errechnete Wert liegt bei  $30.41 \text{ \AA}^2$  bzw.  $28.3 \text{ \AA}^2$  bei Niehaus (1986). Für den Fall  $5 \rightarrow 3, 2$  liegt der experimentelle Wert bei  $9.2 \text{ \AA}^2$ , der errechnete bei  $10.64 \text{ \AA}^2$ .

### 2.1.5 Berücksichtigung kinematischer Effekte

Das *over-barrier* Modell beschreibt den resonanten Einfang von Targetelektronen in das Projektil-Ion in einen Zustand mit der Bindungsenergie  $I_i^0$ . Es werde nun angenommen, dass die Bevölkerung dieses Niveaus zwar den Hauptbeitrag des Einfangprozesses ausmacht, benachbarte Niveaus jedoch auch mit einer endlichen Wahrscheinlichkeit besetzt werden können. Die Breite dieses Energiefensters, des sogenannten Reaktionsfensters, wird festgelegt durch die Heisenbergsche Unschärferelation  $\Delta E \cdot \Delta t \simeq 1$ . Dadurch, dass der Einfangprozess in einem endlichen Zeitintervall passiert, ergibt sich eine Unbestimmtheit in der Energiebreite. Verkleinert man das Zeitfenster durch Erhöhung der kinetischen Energie des Projektils, so wird sich das Reaktionsfenster entsprechend vergrößern.

Eine Charakterisierung des Einfangprozesses von der Geschwindigkeit gelingt, wenn man die zeitliche Veränderung der Potentialbarriere kennt. Diese lässt sich schreiben als:

$$\frac{dV}{dt} = \frac{dV}{dR} \frac{dR}{dt} \quad (2.25)$$

bzw.

$$\Delta V = \frac{dV}{dt} \Delta t = \frac{dV}{dR} \frac{dR}{dt} \Delta t = \frac{dV}{dR} v_{\text{rad}} \Delta t \quad (2.26)$$

$v_{\text{rad}}$  ist die radiale Komponente der Geschwindigkeit des Projektils (vgl. Abb. 2.4). Unter der Annahme  $\Delta V = \Delta E$  und  $\Delta t = 1/\Delta V$  folgt aus Gl. (2.26) für die minimale Energieunschärfe

$$\Delta V_{\text{min}} = \sqrt{\left| \frac{dV}{dR} \frac{dR}{dt} \right|} \quad (2.27)$$

Die Radialgeschwindigkeit ist nach Niehaus (1986) unter Annahme geradliniger Trajektorien, d.h.  $\vec{R} = \vec{b} + \vec{v} \cdot t$ , für den *way-in* gegeben durch

$$v_{\text{rad},i} = \begin{cases} v_0 \left[ 1 - \left( \frac{R_{i_0}^{\text{in}}}{R_i^{\text{in}}} \right)^2 \right]^{1/2} & \text{für } i < i_0 \\ v_0 \left[ 1 - \left( \frac{R_{i+1}^{\text{in}}}{R_i^{\text{in}}} \right)^2 \right]^{1/2} & \text{für } i \geq i_0 \end{cases} \quad (2.28)$$

und für den *way-out* durch

$$v_{\text{rad},i} = \begin{cases} v_0 \left[ 1 - \left( \frac{R_{i_0}^{\text{in}}}{R_i^{\text{out}}} \right)^2 \right]^{1/2} & \text{für } i < i_0 \\ v_0 \left[ 1 - \left( \frac{R_{i+1}^{\text{in}}}{R_i^{\text{out}}} \right)^2 \right]^{1/2} & \text{für } i \geq i_0 \end{cases} \quad (2.29)$$

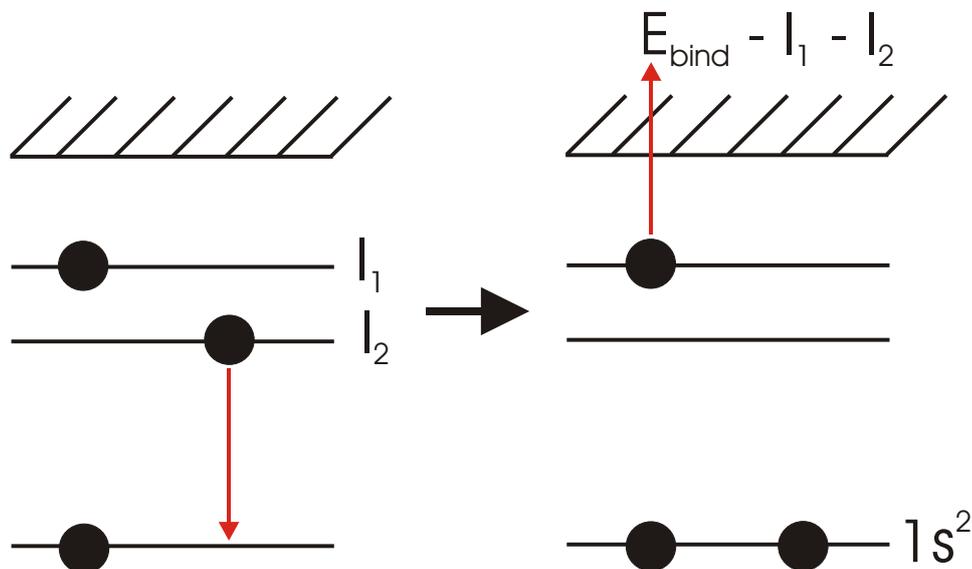
Für den Fall, dass das Projektil alle Elektronen des Targets in den quasimolekularen Zustand befördert, ergeben sich aus diesem Formalismus Probleme für die Radialgeschwindigkeit, da es kein Elektron mit dem Index  $(i+1)$  gibt. Der Stoßparameter  $b$  läuft in diesem Fall von 0 bis zum Einfangradius  $R_{i_{\text{max}}}$  des letzten Elektrons. Für die mittlere radiale Geschwindigkeit gilt dann (Hoekstra et al., 1993):

$$v_{\text{rad},i} = \frac{1}{\pi \cdot R_{i_{\text{max}}}^2} \int_0^{R_{i_{\text{max}}}} v_0 \sqrt{1 - \frac{R^2}{b^2}} 2\pi b db = \frac{2}{3} v_0 \quad (2.30)$$

Die Gesamtunschärfe des Zustands eines Elektrons setzt sich aus den Teilunschärfen für den *way-in* und *way-out* zusammen. Dabei gilt:

$$\Delta V_{i,\text{ges}} = \sqrt{(\Delta V_i^{\text{in}})^2 + (\Delta V_i^{\text{out}})^2} \quad (2.31)$$

Um die Bindungsenergie  $I_i^{\text{out}}$  eines eingefangenen Elektrons im Projektil wird eine gaußförmige Verteilung anderer Bindungsenergien  $I$  angenommen. Die Wahrscheinlichkeit, dass eine solche



**Abbildung 2.5:** Bestimmung der Schwerpunktsenergie des Reaktionsfensters am Beispiel eines zweifachen Elektroneneinfangs in einen angeregten lithiumartigen Zustand von Kohlenstoff. Die Schwerpunktsenergie ist definiert als das Maximum der als gaussförmig angenommenen Verteilung der Augerenergien um diesen Energiewert. Die Energien  $I_1$  und  $I_2$  folgen aus dem *over-barrier*-Modell und entsprechen den Einfangenergien im *way-out* ins Ion. Die Bindungsenergie eines Elektrons im  $1s^2$ -Zustand kann z.B. mit dem LANL-Code (s. Abschnitt 2.1.5) berechnet werden, eine Abschätzung über das Bohrsche Atommodell ist wegen der Elektron-Elektron-Wechselwirkung zu ungenau.

Bindungsenergie realisiert wird, ergibt sich somit zu:

$$W(I) = \frac{1}{\Delta V_{i,\text{ges}} \sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{I - I_i^{\text{out}}}{\Delta V_{i,\text{ges}}}\right) \quad (2.32)$$

Die Bestimmung der Schwerpunktsenergie in Gl. (2.32) ist in Abb. 2.5 am Beispiel eines KLL-Prozesses verdeutlicht. Die Bindungsenergien der eingefangenen Elektronen ins Ion folgen aus dem OBM. Die Bindungsenergie des  $1s^2$ -Zustands im angeregten  $C^{4+}$  kann über den Los Alamos Physics (LANL) Code berechnet werden (LANL, 2011). Dieser basiert auf dem von R. D. Cowan entwickelten Programmcode zur Berechnung atomarer Strukturen (Cowan, 1981).

Mehrfach angeregte Zustände von Ionen können über Auger-Prozesse zerfallen. Eine detaillierte Beschreibung des Auger-Prozesses findet man bei Stolterfoht (1987). Eine interessante Diskussion der Fragestellung, welche Parameter beim Auger-Effekt gemessen werden müssen, damit man ein 'vollständiges' Experiment bekommt, wird bei Kabachnik und Sazhina (1990) erörtert. Ein 'vollständiges' Experiment bedeutet, dass ein maximaler Satz von verträglichen,

d.h. kommutierenden Operatoren gemessen wird, der das System im Rahmen eines bestimmten Modells vollständig beschreibt. Unter der Annahme, dass die Autoionisation durch einen zweistufigen Prozess beschrieben werden kann, gelingt eine vollständige Beschreibung des Auger-Effekts durch Messung von Intensität, Winkelverteilung und Spinpolarisation der Elektronen.

Im ersten Schritt werden die doppeltangeregten Zustände über den Stoßprozess zwischen Ion und Atom bevölkert, im zweiten Schritt kommt es zum Auger-Zerfall. Dies ist gerechtfertigt für Projektilenergien in der Größenordnung einiger keV/amu, da die Kollisionszeit kurz im Vergleich zur Lebensdauer der angeregten Zustände ist (Chen und Lin, 1991; Bruch und Klar, 1980). Der  $1s2p^2\ ^2S$ -Zustand von  $C^{3+}$  hat z.B. eine natürliche Linienbreite von 12.1 meV (Prior et al., 1993), somit nach der Unschärferelation eine Lebensdauer von ca.  $5.44 \cdot 10^{-14}$  s. Der  $1s2s^2\ ^2S$ -Zustand hat analog eine Lebensdauer von  $1.34 \cdot 10^{-14}$  s. Der Einfangsprozess wird sich auf einer Wegstrecke einiger atomarer Einheiten abspielen. Nimmt man für diese Wegstrecke o.B.d.A. 20 atomare Einheiten an, so erhält man eine Stoßzeit von  $1.1 \cdot 10^{-15}$  s. Die Beschreibung durch einen zweistufigen Prozess führt zu einer Entkopplung des Anregungs- und Zerfallsprozesses (Mehlhorn und Taulbjerg, 1980). Dadurch kann angenommen werden, dass die Orientierung der angeregten Zustände im Sinne eines *Alignments* (siehe Abschnitt 2.2.3) vollständig auf den Zerfallskanal übertragen wird, somit keine Interferenzen zwischen dem resonanten Zwei-Stufen-Prozess und dem direkten Ein-Stufen-Prozess auftreten, was sich z.B. in einem Fano-Profil der Resonanzen ausdrücken würde. Eine Beschreibung der Winkelverteilung von Auger-Elektronen wird im nächsten Abschnitt durchgeführt.

## 2.2 Winkelverteilung von Auger-Elektronen

Der folgende Abschnitt behandelt die theoretische Beschreibung der Winkelverteilung von Auger-Elektronen. Es ist vorteilhaft, die Anisotropie der emittierten Elektronen im Dichtematrix-Formalismus zu beschreiben (Berezhko und Kabachnik, 1977; Bruch und Klar, 1980). Eine ausführliche Behandlung der Theorie der Dichtematrix mit Schwerpunkt der Anwendung dieser Theorie auf Stoßprozesse findet man bei Blum (1996). In diesem Abschnitt wird zunächst kurz auf die Dichtematrix in ihrer allgemeinen Formulierung eingegangen, insbesondere soll ihre Anwendung bei der Beschreibung von Stoßprozessen begründet werden. Der weitere Teil dieses Abschnitts widmet sich den wichtigsten Aspekten der Beschreibung der Winkelverteilung von Auger-Elektronen unter Verwendung des o.g. Formalismus.

### 2.2.1 Dichtematrix

Für einen gemischten Zustand  $|\psi_n\rangle$  ( $n=1, 2, \dots$ ) kann der Dichteoperator formuliert werden als:

$$\rho = \sum_n W_n |\psi_n\rangle \langle \psi_n| \quad (2.33)$$

$W_n$  steht für das statistische Gewicht, mit dem die Zustände  $|\psi_n\rangle \langle \psi_n|$  besetzt werden. Für ein beliebiges Basissystem  $|\psi_n\rangle = \sum_m a_m^{(n)} |\phi_m\rangle$  folgt für die Dichtematrix in dieser Darstellung:

$$\rho_{ij} = \langle \phi_i | \rho | \phi_j \rangle = \sum_n W_n a_i^{(n)} a_j^{(n)*} \quad (2.34)$$

Die Spur der Dichtematrix, ausgedrückt durch die statistische Wichtung der Zustände, ergibt Eins. Anders ausgedrückt bedeutet dies, dass in der Dichtematrix auch die Information enthalten ist, wieviele Teilchen sich auf die einzelnen Basiszustände verteilen. Wählt man ein geeignetes Basissystem, das bereits die Winkelabhängigkeit enthält, so kann man mittels der Dichtematrix die Population dieser Zustände bestimmen und erhält dadurch die Information über die Winkelabhängigkeit der beim Auger-Prozess emittierten Elektronen. Als Basiszustände bieten sich die Drehimpulseigenfunktionen an, die über die Kugelflächenfunktionen definiert sind und somit die Winkelabhängigkeiten enthalten.

Die Beschreibung von Winkelverteilungen über die Dichtematrix ist trotz dieses intuitiv einleuchtenden Ansatzes nicht trivial. Dies wird dadurch deutlich, dass das zu beschreibende System über Symmetrien verfügen wird, die bei einer Drehung des Koordinatensystems die Invarianz bestimmter Größen erfordert. Diese Information muss zwar in der Dichtematrix enthalten sein, jedoch erweist es sich als vorteilhaft, aus der Dichtematrix eine neue Größe zu bilden, die diese Invarianz bereits enthält. Dazu bedient man sich einer von U. Fano entwickelten Methode, der Entwicklung des Dichteoperators nach irreduziblen Tensoren (Fano, 1957), welche im Folgenden nachvollzogen werden soll.

### 2.2.2 Gekoppelte Systeme und Irreduzibilität

Bei den in dieser Arbeit untersuchten Stoßprozessen hat man es zunächst mit zwei voneinander unabhängigen Systemen zu tun, die miteinander in Wechselwirkung treten. Durch die Wechselwirkung kommt es zu einer Kopplung der beiden Systeme, die für alle Zeiten nach der Wechselwirkung erhalten bleibt. Um ein solches gekoppeltes System im Rahmen der Dichtematrixtheorie zu beschreiben, muss der mathematische Apparat entsprechend erweitert werden. Wird nach der Wechselwirkung nur eines der beiden Teilsysteme beobachtet, lässt sich die sog. reduzierte Dichtematrix aufstellen, welche im nächsten Abschnitt behandelt wird. Darauf aufbauend wird der Begriff des irreduziblen Tensors eingeführt, von dem ausgehend die Beschreibung der Winkelabhängigkeiten des untersuchten Prozesses vorgenommen wird.

### Reduzierte Dichtematrix

Im Folgenden bezeichnen  $\phi$  und  $\varphi$  zwei physikalische Teilsysteme, die miteinander in Wechselwirkung treten, die jeweils durch ein vollständiges orthogonales Basissystem  $|\phi_i\rangle$  und  $|\varphi_j\rangle$  beschrieben werden können. Beide Systeme befinden sich vor der Wechselwirkung in reinen Zuständen  $|\Phi_\alpha\rangle$  und  $|\varphi_\beta\rangle$ . Das Gesamtsystem kann dann durch die Produktzustände ausgedrückt werden:

$$|\Psi_{\text{in}}\rangle = |\Phi_\alpha\rangle |\varphi_\beta\rangle \quad (2.35)$$

Durch eine Wechselwirkung der beiden Teilsysteme wird das Gesamtsystem einer linearen Zeittransformation unterworfen. Nach der Wechselwirkung kann der Zustand  $|\Psi_{\text{out}}\rangle$  durch die Basiszustände des ungekoppelten Systems ausgedrückt werden:

$$|\Psi_{\text{out}}\rangle = \sum_{ij} a(ij, \alpha\beta) |\Phi_i\rangle |\varphi_j\rangle \quad (2.36)$$

Dabei gibt  $|a(ij, \alpha\beta) \langle \Phi_i | \varphi_j \rangle|^2$  die Wahrscheinlichkeit an, ein Teilchen des  $\phi$ -Systems im Zustand  $|\phi_i\rangle$  und ein Teilchen des  $\varphi$ -Systems im Zustand  $|\varphi_j\rangle$  zu finden. Der entscheidende Punkt hierbei ist, dass die beiden Teilsysteme miteinander gekoppelt sind, es also keine Faktorisierung der Art  $a(ij, \alpha\beta) = a(i, \alpha)a(j, \beta)$  gibt. Das Konzept der reduzierten Dichtematrix wird nun angewendet, wenn eines der beiden Teilsysteme unbeobachtet bleibt. Dann ist es möglich, eine Projektion der Dichtematrix  $\rho(t)$  auf den interessierenden Unterraum vorzunehmen. Sei z.B. das System  $\phi$  unbeobachtet und  $Q(\varphi)$  ein Operator, der nur auf die Zustände des  $\varphi$ -Systems wirkt. Bei Annahme orthonormaler Zustände  $|\phi_i\rangle$  gilt dann:

$$\langle \phi_{i'} \varphi_{j'} | Q(\varphi) | \phi_i \varphi_j \rangle = \langle \varphi_{j'} | Q(\varphi) | \varphi_j \rangle \delta_{ii'} \quad (2.37)$$

Für den Erwartungswert von  $Q$  gilt:

$$\begin{aligned} \langle Q(\varphi, t) \rangle &= \text{Sp } \rho(t) Q(\varphi) = \sum_{i'ij'j} \langle \phi_{i'} \varphi_{j'} | \rho(t) | \phi_i \varphi_j \rangle \langle \phi_i \varphi_j | Q(\varphi) | \phi_{i'} \varphi_{j'} \rangle \\ &= \sum_{j'j} \overbrace{[\langle \phi_i \varphi_{j'} | \rho(t) | \phi_i \varphi_j \rangle]}^{\langle \varphi_{j'} | \rho(\varphi, t) | \varphi_j \rangle} \langle \varphi_j | Q(\varphi) | \varphi_{j'} \rangle \\ &= \text{Sp } \rho(\varphi, t) Q(\varphi) \end{aligned} \quad (2.38)$$

In diesem Ausdruck steht  $\rho(\varphi, t)$  für die reduzierte Dichtematrix.

### 2.2.3 Irreduzible Tensoren

Ein Nachteil des Dichtematrix-Formalismus ist es, dass sich die Elemente dieser Matrix bei Koordinatendrehungen beliebig transformieren lassen. Für eine gegenüber Koordinatendrehungen

unabhängige Darstellung bietet sich die Entwicklung des Dichteoperators nach irreduziblen Tensoroperatoren  $T_{k\kappa}(j, j')$  an. Irreduzible Tensoren sind definiert über die Beziehung:

$$T_{k\kappa}(j, j') = \sum_{mm'} (-1)^{j-m} \sqrt{2k+1} \begin{pmatrix} j & j' & j \\ m & -m' & -\kappa \end{pmatrix} |jm\rangle \langle j'm'| \quad (2.39)$$

$k$  steht für den Rang,  $\kappa$  für die Komponente des Tensors. Der geklammerte Ausdruck ist ein Wigner'sches  $3j$ -Symbol. Der Vorteil dieser Darstellung ist, dass der Rang dieses Tensors invariant gegenüber Drehoperationen ist. Die Eigenschaften der Wigner'schen  $3j$ -Symbole und ihre Beziehung zu den Clebsch-Gordan-Koeffizienten (CGK) findet man z.B. bei Brink und Satchler (1993). Für die Entwicklung der Dichtematrix folgt:

$$\rho = \sum_{jj'k\kappa} \rho_{k\kappa}(j, j') T_{k\kappa}(j, j') \quad (2.40)$$

Die Entwicklungskoeffizienten dieser Reihenentwicklung bezeichnet man als Multipolmomente bzw. statistische Tensoren  $\rho_{k\kappa}(j, j')$ . Es gilt:

$$\rho_{k\kappa}(j, j') = \sum_{mm'} (-1)^{j'-m'} \overbrace{\langle jmj' - m' | k\kappa \rangle}^{\text{Clebsch-Gordan-Koeff.}} \langle jm | \rho | j'm' \rangle \quad (2.41)$$

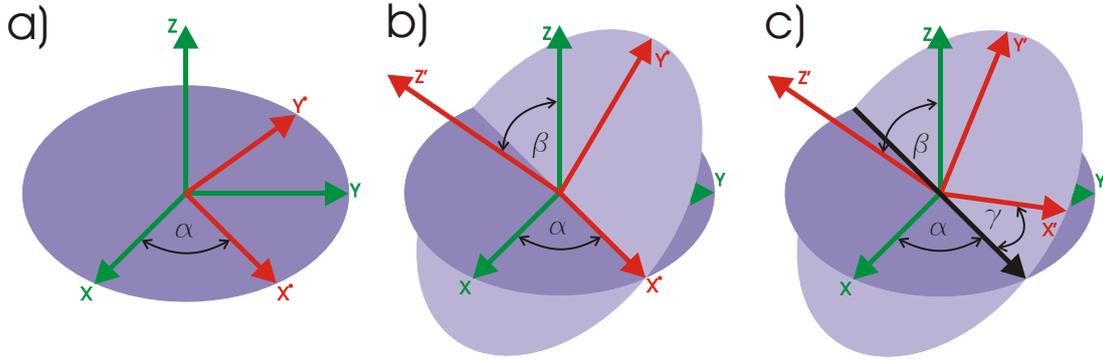
$j$  und  $m$  stehen für den Gesamtdrehimpuls des Ions und seine Projektion auf die Quantisierungsachse, welche mit der Strahlachse der Ionen identisch ist. Berezhko und Kabachnik (1977) normieren die Dichtematrix so, dass ihre Spur gleich dem Ionisationswirkungsquerschnitt ist:

$$\text{Sp } \rho = \sigma \quad (2.42)$$

Für den Tensor  $\rho_{00}(j, j)$  folgt dann:

$$\begin{aligned} \rho_{00}(j, j) &= \sum_m (-1)^{j-m} (-1)^{j-m} \sqrt{\frac{1}{2j+1}} \langle jm | \rho | jm \rangle \\ &= \sum_m (-1)^{2(j-m)} \sqrt{\frac{1}{2j+1}} \langle jm | \rho | jm \rangle \\ &= \frac{1}{\sqrt{2j+1}} \overbrace{\sum_m \langle jm | \rho | jm \rangle}^{\text{Sp}(\rho)=\sigma} = \frac{1}{\sqrt{2j+1}} \sigma \end{aligned} \quad (2.43)$$

Ein Ionenstrahl stellt ein axialsymmetrisches System dar. Sei  $Z$  die Symmetrieachse, dann können  $X$  und  $Y$  beliebig gewählt werden. Da diese Wahl willkürlich ist, kann auch ein System  $xyZ$  gewählt werden.  $xyZ$  geht durch Drehung um einen beliebigen Winkel  $\gamma$  in  $XYZ$  über. Diese Drehung kann über eine Drehmatrix  $D(00\gamma)_{Q\kappa}$  beschrieben werden, wobei  $\gamma$  für einen



**Abbildung 2.6:** Illustration der Euler'schen Winkel. Ausgehend von einem festen Koordinatensystem  $(X, Y, Z)$  kann ein beliebig dazu orientiertes Koordinatensystem  $(X', Y', Z')$  mit gleichem Ursprung durch drei Drehungen des festen Systems ausgedrückt werden, z.B. durch **a)** Drehung um die  $Z$ -Achse um den Winkel  $\alpha$ , **b)** Drehung um die neue  $X'$ -Achse um den Winkel  $\beta$  sowie **c)** Drehung um die neue  $Z'$ -Achse.

Eulerschen Winkel steht (siehe Abb. 2.6):

$$D(00\gamma)_{Q\kappa}^* = e^{-i\kappa\gamma} \delta_{Q\kappa} \quad (2.44)$$

Mit

$$\langle T(j, j')_{k\kappa}^+ \rangle = \sum_Q \langle T(j, j')_{k\kappa}^+ \rangle_{\text{rot}} \cdot D(00\gamma)_{Q\kappa}^* \quad (2.45)$$

folgt

$$\langle T(j, j')_{k\kappa}^+ \rangle = \langle T(j, j')_{k\kappa}^+ \rangle_{\text{rot}} e^{-i\kappa\gamma} \quad (2.46)$$

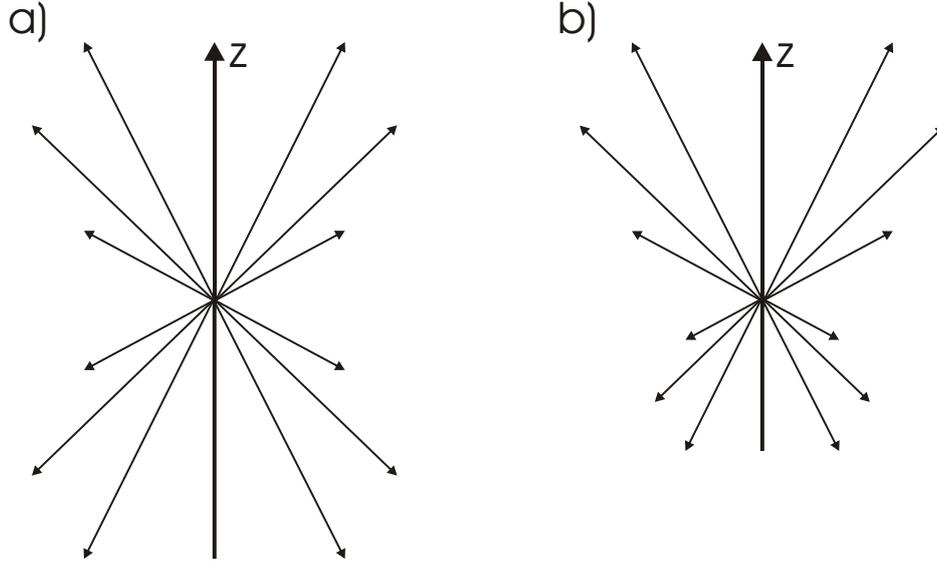
Dies ist nur dann erfüllbar, wenn  $\kappa = 0$  gilt. Daraus folgt

$$\rho_{k\kappa}(j, j) = \rho_{k0}(j, j) \delta_{\kappa 0} \quad (2.47)$$

Nur statistische Tensoren mit geradem Rang können einen nichtverschwindenden Beitrag liefern. Dies bedeutet, dass axialsymmetrische Systeme nur ein *Alignment* ( $k = 2, 4, \dots$ ), jedoch keine *Orientation* ( $k = 1, \kappa = 0, \pm 1$ ) aufweisen. Eine Veranschaulichung dieser Begriffe ist in Abb. 2.7 gezeigt. *Alignment* bedeutet, dass bei  $Z$  als Symmetrieachse das System spiegelsymmetrisch zur  $XY$ -Ebene ist. Die ist darin begründet, dass die Wirkungsquerschnitte für die Bevölkerung der magnetischen Unterzustände  $M_L$  eines doppeltangeregten Zustands verschieden sind. Der Grad des *Alignments* wird beschrieben durch:

$$\mathcal{A}_k = \frac{\rho_{k0}}{\rho_{00}} \quad k = 2, 4, \dots \quad (2.48)$$

Der Rang des Tensors ist eingeschränkt durch die Bedingung  $k \leq 2j$ . Die Bedingung für ein



**Abbildung 2.7:** a) *Alignment* b) *Orientation*. Die Pfeilrichtung kann als Richtung der Drehimpulsvektoren interpretiert werden, die einen bestimmten Zustand  $|JM\rangle$  beschreiben. Die Länge der Pfeile ist proportional zur Anzahl der unter dem jeweiligen Drehimpuls emittierten Teilchen.

Alignment ist  $j > 0.5$ . Die Winkelverteilung bei einem Emissionsprozess mit Alignment ist nach Berezhko und Kabachnik (1977) gegeben durch

$$W(\theta, \varphi) = \sum_{LL'} \sqrt{4\pi} \langle b|L|a \rangle \langle b|L'|a \rangle^* \hat{a}^2 (-1)^{a+b+L'} \sum_{k\kappa} \frac{1}{k} \times \left\{ \begin{matrix} L & a & b \\ a & L' & k \end{matrix} \right\} \rho_{k0}(a, a) C_{k\kappa}^*(L, L') Y_{k\kappa}(\theta, \phi) \quad (2.49)$$

Hierbei sind  $a$  und  $b$  der Drehimpuls des Ions vor und nach dem Augerprozess,  $L$  der Drehimpuls der Strahlung. Alle Größen  $\hat{x}$ , die mit einem Dach versehen sind, sind definiert als  $\hat{x} = \sqrt{2x+1}$ .  $\langle b|L|a \rangle$  steht für die Zerfallsamplituden,  $C_{k\kappa}(L, L')$  für die Zerfallsparameter. Diese werden beschrieben durch:

$$C_{k\kappa}(L, L') = (-1)^{\frac{1}{2}+L'} \frac{\hat{l}\hat{L}\hat{L}'}{4\pi} \langle 10l'0|k0 \rangle \left\{ \begin{matrix} 1 & l' & k \\ L' & L & \frac{1}{2} \end{matrix} \right\} \delta_{\kappa 0} \quad (2.50)$$

Der Gesamtdrehimpuls des emittierten Elektrons ist  $L$ , das orbitale Drehmoment  $l$ . Die Winkelverteilung ist gegeben durch

$$W_e(\theta) = \frac{W_e}{4\pi} \left( 1 + \sum_k A_k P_k(\cos \theta) \right) \quad (2.51)$$

$W_e$  steht für die Wahrscheinlichkeit eines Auger-Zerfalls pro Zeiteinheit,  $A_k$  wird als Anisotropie-Koeffizient bezeichnet. Im allgemeinen Fall gilt für diese Koeffizienten die Beziehung

$$A_k = \frac{1}{W_e} \sum_{l'l''} (-1)^{a+b+1+l'}^{-0.5} \langle b|L|a \rangle \langle b|L'|a \rangle^* \hat{a}^{2\hat{l}} \hat{l} \hat{L} \hat{L}' \times \langle 10l'0|k0 \rangle \left\{ \begin{matrix} L & a & b \\ a & L' & k \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} 1 & l' & k \\ L' & L & \frac{1}{2} \end{matrix} \right\} \mathcal{A}_k \quad (2.52)$$

Die Winkelverteilung der Auger-Elektronen ist demnach auch bestimmt durch die Zerfallsamplituden der verschiedenen Zerfallskanäle. Ein Sonderfall stellt der Zerfall in einen  $^1S_0$ -Zustand dar. In diesem Fall ist die Winkelverteilung vollständig bestimmt durch die Drehimpulse des Zerfallsprozesses und den Grad des Alignments. Dabei gilt:

$$A_k = (-1)^{a+\frac{1}{2}} \hat{1}^{2\hat{a}} \langle 1010|k0 \rangle \left\{ \begin{matrix} 1 & 1 & k \\ L & L & \frac{1}{2} \end{matrix} \right\} \mathcal{A}_k \quad (2.53)$$

Gl. (2.51) wird später für die Auswertung der experimentell gewonnenen Daten verwendet. Für die untersuchten KLL-Prozesse ist damit eine eindeutige Bestimmung der Anisotropie-Koeffizienten möglich.<sup>3</sup>

---

<sup>3</sup>In der Literatur wird zwischen den Begriffen *Alignment-Koeffizient*  $A_k$  und *Alignment-Parameter*  $\mathcal{A}_k$  unterschieden. Beide hängen über Gl. (2.52) voneinander ab. Leider wird diese Bezeichnung nicht immer konsequent verwendet, so dass eine gewisse Vorsicht geboten ist, wenn man Werte aus verschiedenen Publikationen miteinander vergleicht.



# 3 Experimenteller Aufbau

## 3.1 Strahlführung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde am Institut für Atom- und Molekülphysik der Justus-Liebig-Universität eine „*crossed-beams*“-Apparatur aufgebaut, welche die energie- und winkelabhängige Spektroskopie der Elektronen aus Ion-Atom-Stößen ermöglicht. Der Gesamtaufbau des Experiments ist in Abb. 3.1 dargestellt. Eine Beschreibung des Spektrometers findet sich in Kapitel 4.

In einer 10 GHz Elektron-Zyklotron-Resonanz (EZR) Ionenquelle werden Ionen des gewünschten Elements erzeugt und über eine Hochspannung extrahiert (siehe Abschnitt 3.2). Die Ionenquelle befindet sich dazu selbst auf einem positiven Potential gegenüber der geerdeten Strahlführung. Ein magnetischer Ablenker ermöglicht die Optimierung der Strahlposition. Mittels eines Dipolmagneten wird der benötigte Ladungszustand des Ions aus dem Primärstrahl herausgefiltert, der Magnet trennt dabei den Primärstrahl nach dem Ladung-zu-Masse-Verhältnis seiner Komponenten auf und lenkt den gewünschten Teilstrahl um  $90^\circ$  ab. Ein hinter dem Magneten eingebauter Faraday-Becher ermöglicht es, ein Massenspektrum des Primärstrahls aufzunehmen (siehe Abschnitt 3.4). Zwischen dem Dipolmagneten und der Spektrometerkammer befindet sich eine Ablenk- (Steerer) und eine Fokussiereinheit (Quadrupol-Triplett), um die Transmission der Ionen durch die Wechselwirkungszone des Spektrometers zu optimieren. Hinter der Spektrometerkammer befindet sich ein weiterer Dipolmagnet, der es erlaubt, Elektronenspektren in Koinzidenz mit einem speziellen umgeladenen Ladungszustand aufzunehmen. Dazu wird der umgeladene Strahl in eine Detektorkammer gelenkt, in der sich nach einem  $180^\circ$ -Ablenker ein Channeltron-Detektor (*Channel-Electron-Multiplier*, CEM) befindet (Rinn et al., 1982). Kennt man die Zeitdifferenz, die ein Ion braucht, um von der Wechselwirkungszone des Spektrometers zum CEM zu kommen, so kann man alle Spektrometersignale verwerfen, die nicht in einer definierten Zeitbeziehung zu einem CEM-Signal stehen. Koinzidenzmessungen sind insbesondere notwendig, wenn Gastargetatome mit mehr als zwei Elektronen verwendet werden.

Da im Rahmen dieser Arbeit ausschließlich ein Target mit zwei Elektronen verwendet worden ist (He), ist diese Technik nicht zum Einsatz gekommen. Bei ausgeschaltetem zweiten Magneten wird der Ionenstrom, der durch das Spektrometer gelangt, in einem Faraday-Becher innerhalb

des Magneten gemessen (in Strahlachse). Alle aufgenommenen Spektren werden auf diese Strommessung normiert, d.h. jeder Kanal eines Spektrums ist solange in Messbereitschaft, bis eine definierte Anzahl an Ionen am Faraday-Cup gemessen wird. Dadurch wird sichergestellt, dass eventuelle Stromschwankungen sich nicht auf die Zählstatistik auswirken. Der Druck innerhalb der Spektrometerkammer wird ebenfalls aufgezeichnet, damit bei Druckschwankungen eine Korrektur der Spektren möglich ist.

Mit Ausnahme des Gaseinlassbereichs der EZR-Ionenquelle befindet sich die gesamte Apparatur unter Hochvakuum, welches über eine Reihe von Turbomolekularpumpen aufrechterhalten wird. Mittels Hochvakuumventilen ist die Anlage in fünf unabhängige Bereiche aufgeteilt, damit bei Reparatur- bzw. Umbauarbeiten kein Vakuumbruch im Gesamtsystem vorgenommen werden muss. Im Vorvakuumsystem der Spektrometerkammer befindet sich eine Kältefalle, die mit flüssigem Stickstoff betrieben wird und verhindern soll, dass Öldämpfe von der Vorpumpe in den Hochvakuumbereich diffundieren können. Dies dient zum Schutz der Channeltron-Detektoren und soll zudem verhindern, dass Verschmutzungen im Bereich der Elektroden des Spektrometers die Experimente beeinträchtigen.

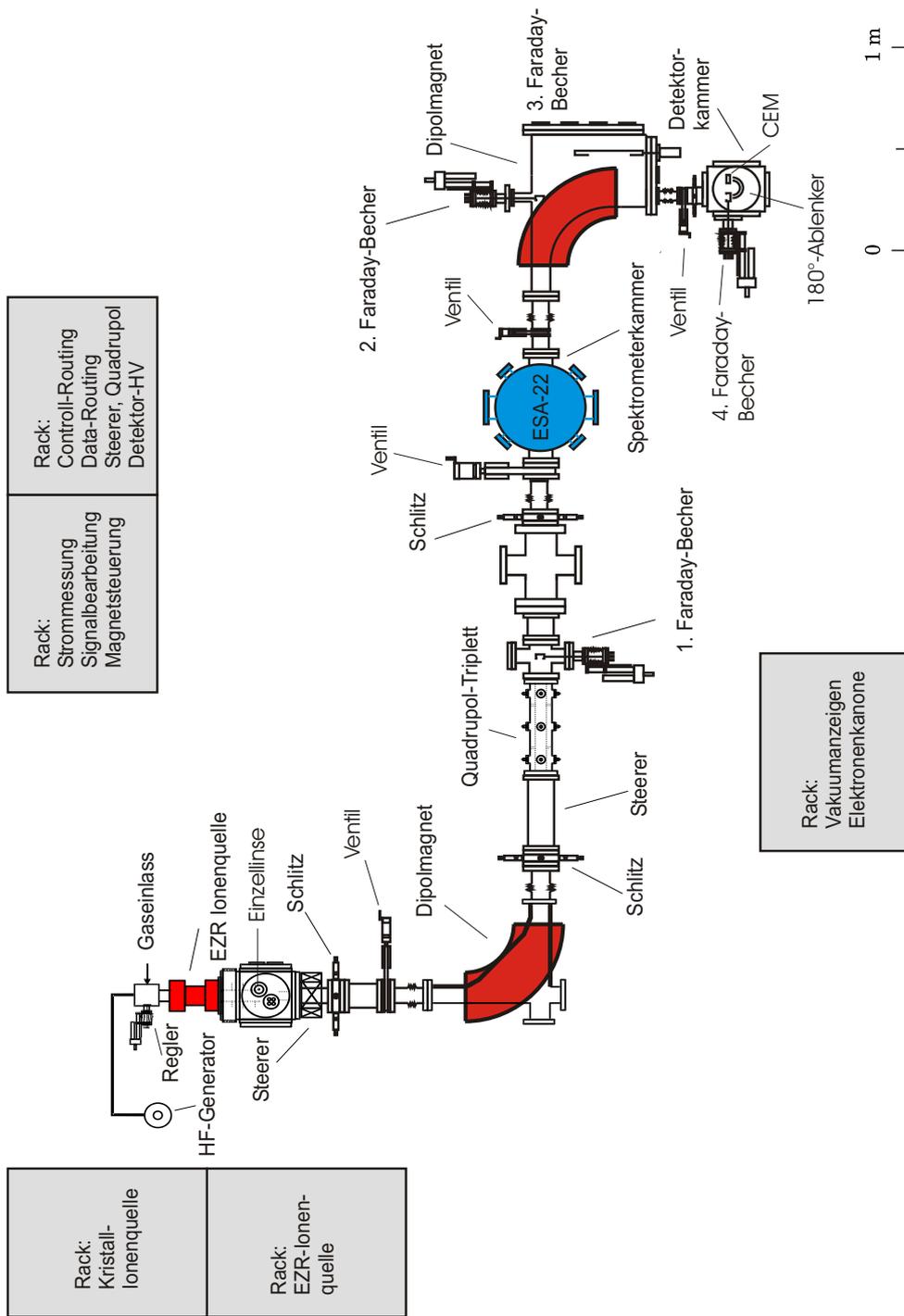
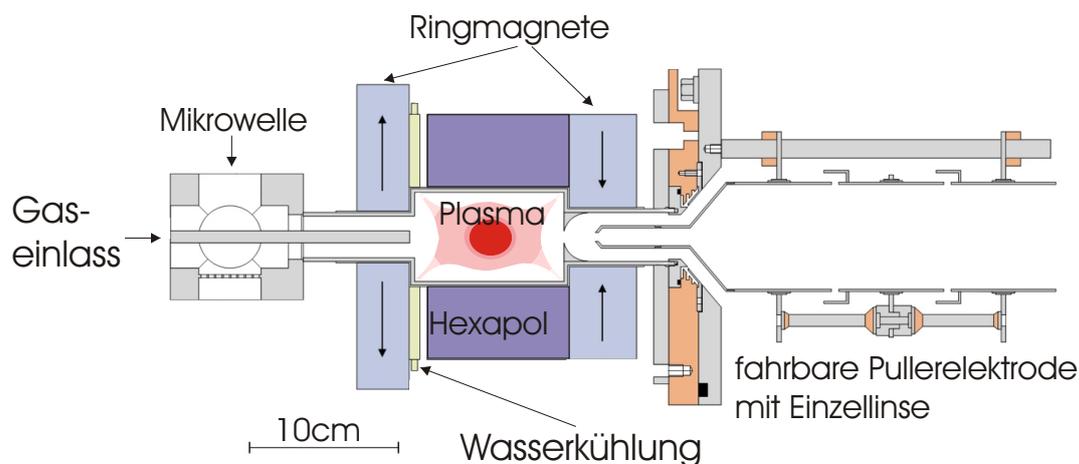


Abbildung 3.1: Gesamtaufbau des Experiments und Position der Kontrollschaltschränke.



**Abbildung 3.2:** Aufbau der EZR-Ionenquelle (Grafik aus Trassl, 1999). Ein thermisches Plasma wird axial und radial durch Permanentmagnete eingeschlossen und an ein elektromagnetisches Hochfrequenzfeld angekoppelt. Die gyrierenden Elektronen des Plasmas werden bei geeigneter Wahl der Frequenz des Feldes hinreichend beschleunigt, um mit den anderen Bestandteilen des Plasma so zu wechselwirken, dass es zur Elektronenstoßionisation kommt. Dadurch ist es möglich, hochgeladene Ionen innerhalb des Plasmas zu erzeugen, die über eine Elektrode aus dem Plasma gezogen werden können. Die Quelle befindet sich dabei üblicherweise auf Hochspannung, die Pullerelektrode ist geerdet. Gegebenenfalls kann man an die Pullerelektrode eine negative Hochspannung von einigen kV anlegen, um eine höhere Ionenausbeute aus dem Plasma zu erreichen. Die Plasmakammer ist zum Schutz der Magnete wassergekühlt.

### 3.2 EZR-Ionenquelle

Bei der verwendeten Ionenquelle handelt es sich um eine komplett mit Permanentmagneten ausgestattete 10 GHz-Ionenquelle. Der Aufbau dieser Quelle ist in Abb. 3.2 dargestellt. Eine Übersicht über die Funktionsweise einer EZR-Quelle findet man bei Geller (1990) sowie in sehr ausführlicher Form bei Trassl (1999), weshalb dieser Quellentyp hier nur in knapper Form beschrieben wird. EZR-Ionenquellen sind sog. Heißplasma-Quellen. In einer Vakuumkammer wird durch Ankopplung eines elektromagnetischen Hochfrequenzfeldes ein thermisches Plasma erzeugt, welches durch eine spezielle Anordnung von Permanentmagneten zusammengehalten wird. Das für das Experiment gewünschte Element muss dazu in der Gasphase vorliegen und kontinuierlich in das Plasma eingelassen werden. Bei gasförmigen Elementen wird dies über ein Nadelventil gesteuert. Liegt die gewünschte Spezies im festen Zustand vor, gelingt die Zuführung z. B. über einen Verdampferofen, wobei die zugegebene Gasmenge über die Heizleistung des Ofens geregelt wird. Der Plasmaeinschluss muss sowohl in axialer als auch in radialer Richtung erfolgen. Dazu sind zwei verschiedene Typen von Magneten notwendig. Der radiale Einschluss gelingt über einen Multipolmagneten (z.B. einen Hexapol), der axiale Einschluss über Ringmagnete. Die Kombination von axialem und radialem Einschluss bildet

eine sog. Minimum-B-Konfiguration, d.h. es gibt im Zentrum der Ionenquelle einen Punkt mit einem minimalen magnetischen Feld, von dem aus in allen Richtungen das B-Feld ansteigt.

Die Erzeugung hoher Ladungszustände basiert auf dem Prinzip der Elektronengyration: Elektronen bewegen sich in Magnetfelder auf Grund der Lorentzkraft auf Kreisbahnen<sup>1</sup> um die magnetischen Feldlinien mit der sog. Zyklotronfrequenz. Durch die Ankopplung eines Hochfrequenzfeldes der gleichen Frequenz werden die Elektronen in Abhängigkeit ihrer Phasenlage entweder beschleunigt oder abgebremst. Durch die Beschleunigung sind Energiegewinne von 1-2 keV pro Umlauf möglich, bei langer Einschlusszeit können so Elektronenenergien von 100 keV erreicht werden. Durch Elektronenstoßionisation mit den Bestandteilen des Plasmas werden schließlich hochgeladene Ionen erzeugt und durch ein Extraktionssystem aus dem Plasma geleitet. Bei diesem Extraktionssystem handelt es sich um eine sog. Pullerelektrode, welche üblicherweise auf Erdpotential liegt. Die Ionenquelle selbst liegt während des Betriebs auf Hochspannung (bis 12 kV) und definiert so die Energie der Ionen. An die Pullerelektrode kann bei Bedarf eine negative Spannung angelegt werden, was u.U. die Ausbeute der Ionen aus dem Plasma erhöht, zudem ist sie in axialer Richtung beweglich, was eine optimale Platzierung ermöglicht. Die Pullerelektrode ist mechanisch verbunden mit einer Einzellinse, die die extrahierten Ionen auf eine geeignete Position vor den ersten Magneten fokussiert, welcher die gewünschten Ionen in Richtung des Spektrometers ablenkt.

Die Vorteile einer EZR-Ionenquelle sind die kontinuierliche Extraktion hochgeladener Ionen aus dem Plasma, die hervorragende Langzeitstabilität der Extraktion und der geringe Bedarf an der zu ionisierenden Substanz, die in das Plasma eingelassen wird. Auf der Gaseinlass-Seite werden üblicherweise Drücke von einigen  $10^{-5}$  mbar benötigt, bei hochgeladenen Ionen teilweise nur einige  $10^{-6}$  mbar.

Zur Erhöhung der Ionenausbeute insbesondere bei höheren Ladungszuständen hat es sich als vorteilhaft erwiesen, neben dem eigentlichen Gas, das man ionisiert haben möchte, ein weiteres leichteres Gas als das Primärgas in das Plasma einzuleiten. Bei Zhao et al. (1995) wird das Verhalten von molekularem Sauerstoff als Mischgas bei der Produktion von Argonionen untersucht. Es wird gezeigt, dass damit besonders bei hochgeladenen Argonionen die Ausbeute bis zu einer Größenordnung verbessert werden kann. Shirkov (1997) führt den Mischgas-Effekt auf das Zusammenspiel dreier verschiedener Mechanismen zurück:

- Die primäre Ionenspezies wird durch elastische Stöße mit dem schnelleren leichteren Gas gekühlt. Die Absenkung der Temperatur der schweren Ionen führt zu einer längeren Aufenthaltszeit der Ionen im Plasma.

---

<sup>1</sup>Genauer gesagt bewegen sie sich auf Spiralbahnen, also der Überlagerung einer Kreisbahn und einer linearen Translation.

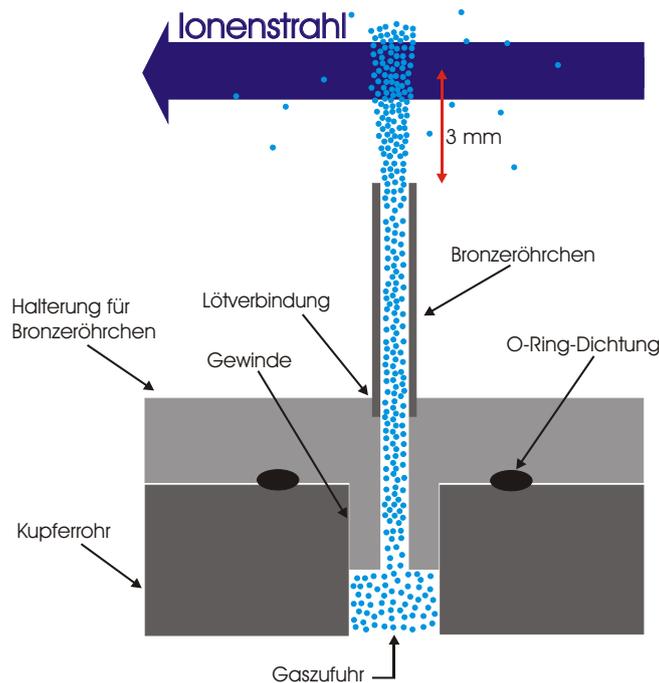
- Die Ionisation des Mischgases erhöht die Elektronendichte des Plasmas.
- Die gekühlten Ionen befinden sich mit höherer Wahrscheinlichkeit im Zentrum der Ionenquelle, da der Zusammenhalt durch die Minimum-B-Konfiguration bei kleineren Geschwindigkeiten größer ist. In diesem Bereich ist die Dichte und Energie der Elektronen maximal, daher können mit größerer Wahrscheinlichkeit höhere Ladungszustände erreicht werden (bessere *confinement*-Bedingung).

### 3.3 Gastarget

An der Unterseite des Spektrometers ist mittels einer am Spektrometer angebrachten Halterung eine Gasdüse montiert. Die Symmetrieachse dieser Düse fällt mit der des Spektrometers zusammen. Den Kreuzungspunkt des Ionenstrahls mit der Symmetrieachse des Spektrometers bezeichnet man als Wechselwirkungspunkt. Auf Grund der Winkelakzeptanz des Spektrometers ist es sensitiv auf ein kleines Volumenelement, das kugelsymmetrisch um diesen Punkt liegt. In diesem Wechselwirkungsvolumen wird der Ionenstrahl mit dem von der Düse erzeugten Gasstrahl unter einem Winkel von  $90^\circ$  gekreuzt (vgl. Abb. 3.3). Der Durchmesser der Austrittsöffnung der Düse beträgt 1 mm, der Abstand zum Punkt der höchsten Intensität des Ionenstrahl ca. 3 mm. Eine zu nahe Positionierung der Gasdüse an dem Ionenstrahl würde bewirken, dass die Düse in den Strahl eintaucht und auf Grund der Wechselwirkung der Ionen mit dem Festkörper eine beträchtliche Anzahl an Sekundärelektronen entstehen, die eine Messung der Wechselwirkung zwischen Ion und Gasmolekülen verhindern.

Die Gasdüse besteht aus einem Bronzeröhrchen von 1 cm Länge, das an eine spezielle Halterung angelötet ist. Diese Halterung ist über ein Gewinde an ein Kupferrohr befestigt, eine O-Ring-Dichtung sorgt dafür, dass das Gas nur über die Austrittsöffnung entweichen kann. Das Kupferrohr ist an der Unterseite mit einem Teflonschlauch verbunden, der an ein Nadelventil angeschlossen ist. Über das Nadelventil wird schließlich das Targetgas eingelassen. Da keine Möglichkeit besteht, den Druck direkt nach der Gasdüse zu messen, wird die eingelassene Gasmenge über den Gesamtdruck in der Spektrometerkammer geregelt. Zur Reduzierung von Sekundärelektronen wurde die Gasdüse mit Graphitfarbe überzogen.

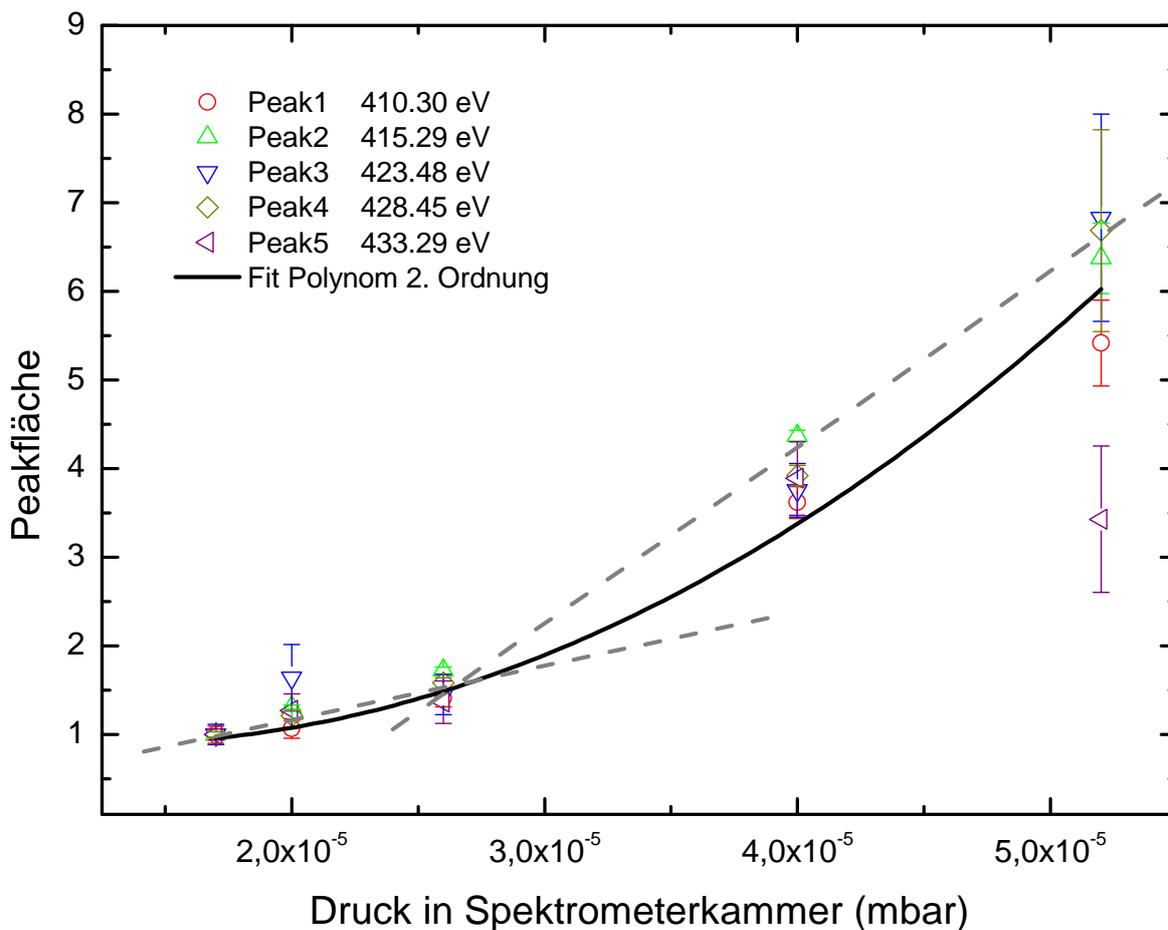
Die Gasdichte in der Spektrometerkammer kann über die Zustandsgleichung idealer Gase abgeschätzt werden: Geht man von einem Kammervolumen von ca.  $0.13 \text{ m}^3$  und einem mittleren Druck von  $2.0 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$  aus, so befinden sich etwa  $1.1 \cdot 10^{-7} \text{ mol}$  Gas in der Kammer. Dies entspricht in etwa  $6.0 \cdot 10^{10}$  Teilchen pro Kubikzentimeter. Im Bereich der Wechselwirkungszone des Spektrometers kann die Targetdichte nur grob abgeschätzt werden. Für eine Berechnung muss der Druck im Reservoir zwischen Nadelventil und Gasdüse bekannt sein. Dadurch könnten u.U. auch Rückschlüsse auf den Gasfluss und das Profil des



**Abbildung 3.3:** Schematische Darstellung der Gasdüse. Die Gasdüse ist an einer speziellen Halterung am Spektrometer so angebracht, dass die Symmetrieachse der Auslassöffnung mit der des Spektrometers zusammenfällt. Der Ionenstrahl ist maßstabgerecht gezeichnet worden, der Durchmesser im Bereich der Wechselwirkungszone beträgt auf Basis der Kollimationsgeometrie ca. 2 mm.

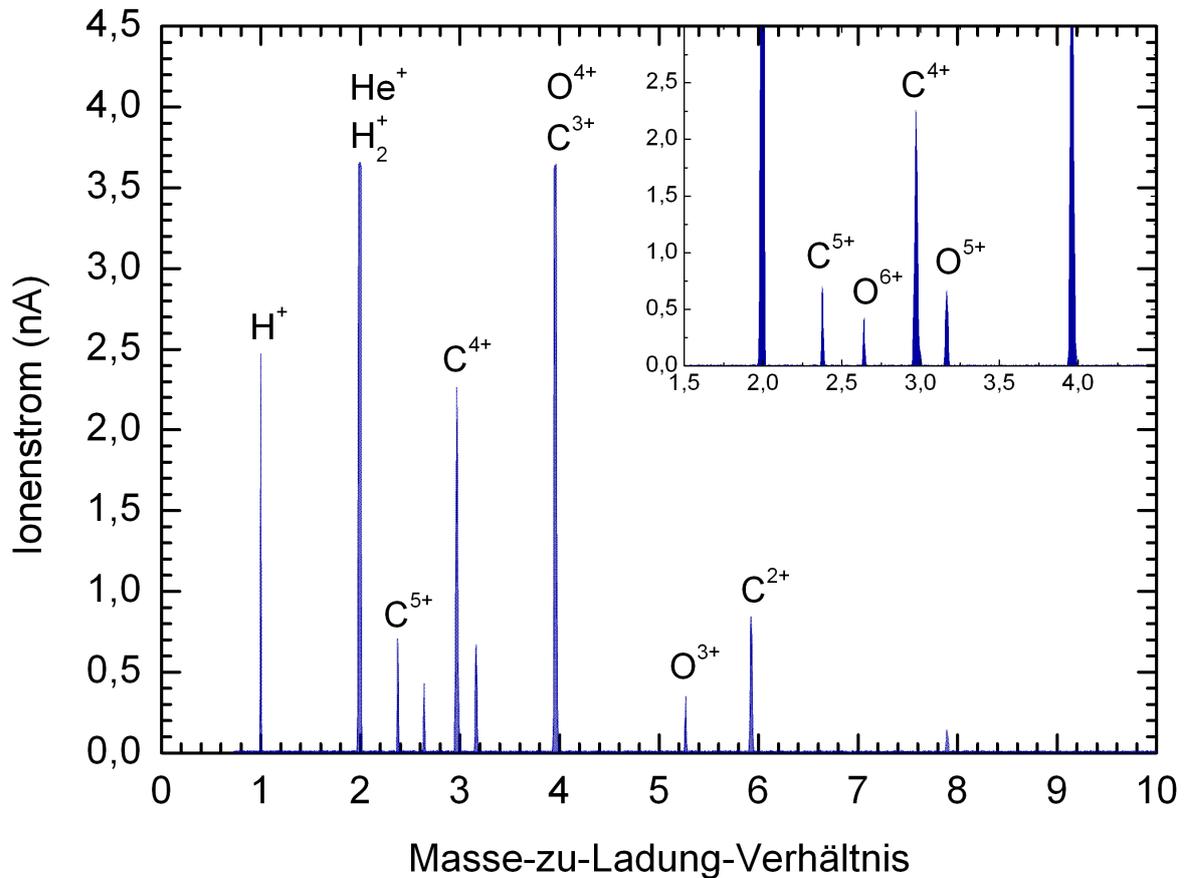
Gasstrahls gezogen werden. Die Targetdichte wird auf etwa zwei Größenordnungen größer geschätzt als in der gesamten Kammer, d.h. es wird von ca.  $10^{12}$  Teilchen pro  $\text{cm}^3$  ausgegangen.

Guevremont et al. (2000) beobachteten, dass bei hohen Drücken im Gasreservoir das Strahlprofil durch die Zunahme von Gas-Wand und Gas-Gas-Stößen breiter wurde. Eine Verbreiterung des Profils würde bedeuten, dass die Targetdichte im Reaktionsvolumen geringer wird. Der Übergang zwischen der turbulenten und der laminaren Strömung sollte dazu führen, dass bei Auftragung einer auf die Messzeit normierten Resonanzintensität eine Veränderung der Steigung ab dem Punkt dieses Übergangs sichtbar wird. In Abb. 3.4 ist für das System  $\text{O}^{7+} + \text{He}$  eine Druckabhängigkeit der KLL-Resonanzen gezeigt. Man sieht, dass eine lineare Verbindung der ersten drei Messpunkte eine andere Steigung aufzeigt, als eine Verbindung der letzten drei. Dies spricht zunächst für einen Umbruch der Strömungsbedingungen, jedoch sollte bei einem Wechsel zu einer turbulenten Strömung die Steigung auf Grund der erwarteten geringeren Dichte in der Wechselwirkungszone geringer sein. Eine Beschreibung des Anstiegs durch ein Polynom 2.ter Ordnung ist ebenfalls geeignet, den Anstieg zu erklären, jedoch müßten dann alle Resonanzen quadratisch wachsen, was unwahrscheinlich ist. Auffallend ist jedoch, dass die niederenergetische  $^4\text{P}$ -Resonanz das gleiche Druckverhalten aufzeigt, wie die



**Abbildung 3.4:** Druckabhängigkeit der KLL-Resonanzen bei Autoionisation von  $O^{5+}$ . Gemessen wurde unter  $15^\circ$  im Laborsystem. Jedes Spektrum wurde um ca. 1 eV so verschoben, dass die intensivste Resonanz (Peak 2) mit dem theoretischen Wert der niederenergetischen  $^4P$ -Resonanz übereinstimmt. Eine Zuordnung der Peaks ist über Tab. 6.6 möglich. Die verbindende Gerade der ersten drei Messpunkte weist eine andere Steigung auf, als eine lineare Verbindung der letzten drei Punkte. Dies kann in einer Änderung der Strömungsbedingungen in der Gasdüse begründet sein. Eine an die Daten angelegte quadratische Funktion beschreibt die Druckabhängigkeit der Intensitäten ebenfalls, jedoch scheint es unwahrscheinlich, dass alle Intensitäten quadratisch anwachsen, da dies nur über Zweifachkollisionen mit Einfacheinfang von Elektronen möglich wäre.

anderen Resonanzen. Diese Resonanz kann nur - wie an späterer Stelle näher beschrieben wird - durch Doppelkollisionen mit Einfacheinfang direkt entstehen. Da die Wahrscheinlichkeit einer Kollision proportional zum Druck ist, sollte gerade für diese Resonanz eine quadratische Abhängigkeit zu sehen sein. Die Art des Anstiegs lässt sich somit nicht eindeutig klären.



**Abbildung 3.5:** Massenspektrum für  $C^{5+}$ -Messung. Die  $C^{5+}$ -Ionen stammen aus dem als Primärgas eingelassenen Methan. Als Mischgas wurde Helium verwendet. Der Peak bei  $A/Z=2$  kann neben den angegebenen Ionen auch Anteile von  $C^{6+}$ ,  $N^{6+}$  und  $O^{8+}$  enthalten. Für diese Ladungszustände muss, sofern in zukünftigen Projekten verlangt, ein anderes Isotop des Elements verwendet werden, da sonst keine Unterscheidung von anderen Ionensorten mit  $A/Z=2$  möglich ist. Das Spektrum ist mit dem Faraday-Becher hinter dem Spektrometer aufgenommen worden.

### 3.4 Massenspektrum

Mit den Faraday-Bechern nach dem ersten Magneten bzw. nach dem Spektrometer, ist eine Messung des Ionenstroms in Abhängigkeit des angelegten Magnetfeldes möglich. Damit ist es möglich, ein Massenspektrum der Konstituenten des Ionenstrahls aufzunehmen. Zur Verbesserung der Auflösung sind in den Bild- und Gegenstandspunkten des doppeltfokussierenden Magneten einstellbare Schlitzblenden angebracht. Die Aufnahme der Massenspektren erfolgt über das Multifunktions- Datenerfassungsgerät (DAQ) NI USB-6211 der Firma National Instruments, für das mit der Software LABVIEW<sup>®</sup> ein geeignetes Ausleseprogramm geschrieben wurde. Das DAQ verfügt über 16 Analog- und 4 Digitaleingänge sowie 2 Analog- und 4 Digitalausgänge. Ein Ausgang wird verwendet, um das Netzgerät des Magneten (Heinzinger TNYs 15-3750 250 A, 15 V) anzusteuern, damit über den Spulenstrom ein definiertes Magnetfeld

erzeugt wird. Die Schrittbreite kann dabei im Programmcode angepaßt werden. Nach einer Einstellzeit von 10 Sekunden wird über die serielle Schnittstelle des Computers das Magnetfeldmessgerät (SYPRIS 7030 Gauss/Teslameter) und über den analogen Eingang des DAQ der analoge Ausgang des Ionenstrommessgeräts (Keithley 414 A) ausgelesen. Die Einstellzeit ist so gewählt, dass genügend Zeit für einen stabilen Startwert des magnetischen Feldes gewährleistet ist. Das Programm ist so konzipiert worden, dass die Spannung des Magnetfeld-Netzgerätes in kleinen Schrittbreiten erhöht wird. Dadurch ist sichergestellt, dass die Änderungen des Magnetfeldes pro Erhöhung klein sind. Somit können zwischen den einzelnen Meßpunkten kleine Wartezeiten eingestellt werden. Der Default-Wert beträgt 300 ms, eine Anpassung im Code ist jedoch problemlos möglich. Das Programm wurde konzipiert, um eine schnelle Identifikation der Ionen zu gewährleisten, die aus der EZR-Quelle entstammen. Es ist nicht sensitiv auf temporäre Schwankungen des Ionenstroms während der Aufnahme eines Massenspektrums, da nur ein Wert der Analogspannung für einen Magnetfeldwert aufgezeichnet wird.

In Abb. 3.5 ist ein Massenspektrum für die Untersuchung von  $C^{5+}$ -Ionen gezeigt. Als Primärgas ist Methan verwendet worden, als Mischgas Helium. Da der erste Peak eines solchen Spektrums nur von einfach geladenen Wasserstoffionen stammen kann, ist eine Kalibrierung der anderen Peaks auf dessen Position möglich, wodurch man für jeden Peak das Masse-zu-Ladungsverhältnis  $A/Z$  bestimmen kann.

## 4 Das Elektronenspektrometer

Spektrometer werden in einer Vielzahl wissenschaftlicher Bereiche verwendet und dienen dazu, präzise Informationen über die emittierten Teilchen eines Targets zu gewinnen, das einer Strahlenexposition ausgesetzt ist. Wichtige Messgrößen sind hierbei die Energie der emittierten Teilchen sowie deren Winkel- und Masseverteilung. Die Darstellung der Gesamtheit einer solchen Verteilung bezeichnet man als Spektrum. Als Target kommen eine Vielzahl physikalischer Systeme in Betracht, angefangen bei Festkörpersystemen bis hin zu atomaren oder molekularen Teilchen. Üblicherweise setzt man die atomaren bzw. molekularen Systeme in Form eines Gasstrahls der Strahlung aus, im Fall ionisierter Teilchen erzeugt man dazu einen fokussierten Ionenstrahl mit stabilen geometrischen und physikalischen Parametern.

Als Strahlung kann prinzipiell jede physikalische Strahlung verwendet werden. Zur Untersuchung von Oberflächen werden häufig Elektronen oder Photonen genommen, untersucht werden dabei die emittierten Photo- bzw. Augerelektronen. Gastargets können mit Ionen, Elektronen und Photonen beschossen werden, Ionen mit Elektronen, Photonen und Ionen. Beschränkt man sich auf die Untersuchung von ionisierter Materie mit Strahlung, so gibt es zwei Möglichkeiten, die Teilchenstrahlen wechselwirken zu lassen:

- Bei den merged-beams-Experimenten werden die Teilchenstrahlen auf einer ausgedehnten Flugstrecke  $L$  kollinear überlagert.
- Bei den crossed-beams-Experimenten werden die Teilchenstrahlen unter einem gewissen Winkel  $\theta$  gekreuzt.

Üblicherweise werden von einem strahlenexponierten Target Elektronen und Photonen emittiert, wobei auf die Photonen nicht weiter eingegangen wird. Möglich ist auch die Emission von Teilchenfragmenten, die hier ebenfalls keine Rolle spielen soll.

Das folgende Kapitel widmet sich der Beschreibung des im Experiment verwendeten Elektronenspektrometers. Da es sich um ein zweistufiges elektrostatisches Spektrometer handelt, das aus einem sphärischen und einem zylindrischen Teil aufgebaut ist, werden die beiden Bereiche nacheinander behandelt. Jeder Abschnitt des Spektrometers verfügt über inhärente Vor- und Nachteile, die herausgearbeitet werden sollen. Weiterhin wird die Energieauflösung und die

Dispersion des Spektrometers diskutiert. Der Anfang widmet sich zudem in knapper Form der historischen Entwicklung der Elektronenspektroskopie.

## 4.1 Entwicklung der Elektronenspektroskopie

Die Entwicklung der Elektronenspektroskopie ist historisch eng verknüpft mit der Untersuchung von elektrischen Entladungen. Eine der ersten Veröffentlichungen, die sich mit elektrischen Entladungen beschäftigt, ist nach Engel (1993) das im Jahr 1600 von W. Gilbert veröffentlichte *De magnete, magnetisque corporibus, et de magno magnete tellure*<sup>1</sup>. Gilbert fand heraus, dass sich ein Elektroskop auflädt, wenn es einer Flamme ausgesetzt wird. In den 30iger Jahren des 19. Jahrhunderts untersuchte Faraday Gasentladungen bei niedrigen Gasdrücken. Das Gas selber befand sich in einem abgeschlossenen Glaskolben. Faraday beobachtete, dass sich zwischen den Elektroden, zwischen denen sich die Entladung abspielte, leuchtende mit dunklen Bereiche abwechseln und, dass es sowohl stationäre Bedingungen gibt, unter denen sich die leuchtenden Bereiche nicht verändern, als auch dynamische Bedingungen. Er war auch der Erste, der die Ansicht vertrat, dass man unter Anerkennung der Atomhypothese davon ausgehen muss, dass Atome aus Bestandteilen gleicher elektrischer Quantität bestehen müssen. Nachdem Hittorf zeigen konnte, dass sich diese Kathodenstrahlen in magnetischen Feldern ablenken lassen, wurde gleiches von Goldstein und Hertz auch für elektrische Felder gezeigt.

G. J. Stoney, der sich in erster Linie mit der durch Clausius und Maxwell geprägten kinetischen Gastheorie beschäftigte, versuchte eine Verbindung herzustellen zwischen molekularen Größen, die man zur Charakterisierung von Gasen benötigt, und den Wellenlängen und Frequenzen von Licht, das von Gasen emittiert werden kann. Seine große Leistung bestand in der Auftrennung der molekularen Bewegung in einen äußeren translatorischen Anteil und in eine innere Bewegung. Diese innere Bewegung soll seiner Ansicht nach in periodischen Bahnen verlaufen und über eine Kopplung an den Äther zur Aussendung von Licht führen. Die innere Bewegung soll von einem Teilchen durchgeführt werden, das sich auf elliptischen Bahnen im Atom bewegt, elektrische Ladung trägt und dem er den Namen Elektron gegeben hat (O'Hara, 1975). Die Existenz des Elektrons wurde in den Experimenten von J.J. Thomson, Wien und Wiechert bestätigt (Rechenberg, 1997).

Für die Bestimmung der spezifischen Ladung des Elektrons und für die Untersuchung der 1896 von Goldstein entdeckten Kanalstrahlung war es notwendig, einen divergenten Strahl geladener Teilchen fokussieren zu können. Nachdem Wien im Jahr 1898 zeigte, dass sich Kanalstrahlen in starken magnetischen Feldern ablenken lassen und Träger positiver Ladung sind, konnte J.J. Thomson 1907 Kanalstrahlen durch simultan einwirkende elektrische und magnetische Felder

---

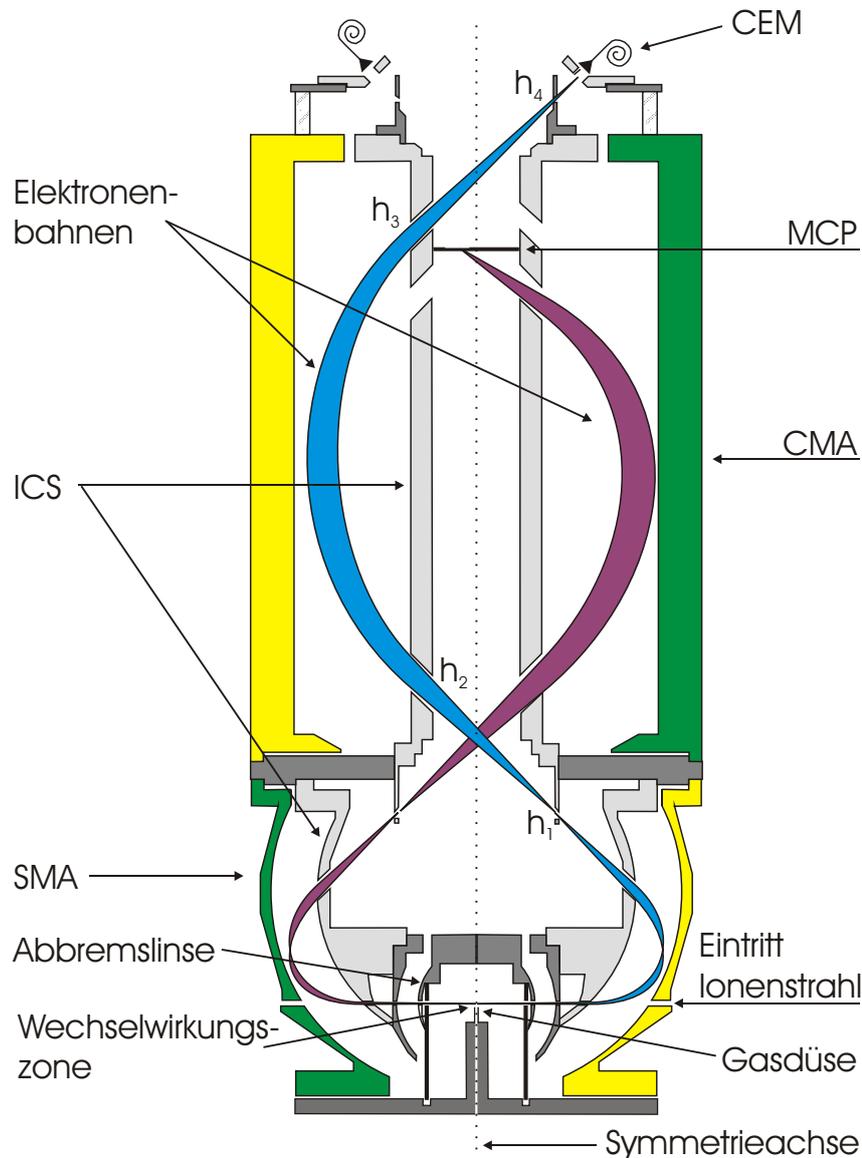
<sup>1</sup>Über den Magneten, Magnetische Körper und den großen Magneten Erde

auf Parabelbahnen aufspalten und abbilden (Thomson, 1907. Damit gelang es z.B. erstmals eine Isotopenaufspaltung von Neon zu erzielen, jedoch war die erreichte Auflösung noch nicht hoch genug, um die Isotopentheorie zu verifizieren. Dies gelang schließlich William Aston durch eine entscheidende Verbesserung der Apparatur, indem er magnetische und elektrische Felder nacheinander auf die Teilchen einwirken ließ, was unter bestimmten Bedingungen zu einer Fokussierung der Teilchen führte (Aston, 1919; Squires, 1998). Das Problem der Thomsonschen Parabelaufspaltung bestand im Intensitätsverlust durch die Verteilung der Teilchen auf die Parabel. Durch die Fokussierung konnte man auf kleinere Blenden zurückgreifen und letztlich eine deutliche Verbesserung der Auflösung erhalten. Eine Verbesserung dieses Experiments wird bei W. Bartky (1929) diskutiert. Bei Hughes und Rojansky (1929) findet man erstmalig eine theoretische Beschreibung der Fokussierungseigenschaften eines radialsymmetrischen elektrischen Feldes. Ausgehend von der zu dieser Zeit bekannten Eigenschaft, dass ein homogenes magnetisches Feld einen divergenten monoenergetischen geladen Teilchenstrahl unter einem Winkel von  $\phi = 180^\circ$  am besten fokussiert, errechnet Hughes in Analogie dazu für ein radialsymmetrisches Feld einen optimalen Fokussierungswinkel von  $\phi = 127.279^\circ$ . Eine detaillierte Beschreibung der Optik eines nichtrelativistischen geladenen Teilchens in einem radialsymmetrischen elektrischen Feld findet man bei Purcell (1938). Eine Erweiterung auf relativistische Teilchen ist bei F. T. Rogers (1951) zu finden. Experimentelle Details zu sphärischen elektrostatischen Analysatoren findet man bei Browne et al. (1951), Angaben zu Konstruktion und Kalibration bei H. H. Hubbel et al. (1964).

Eine ausführliche Beschreibung des Parallel-Platten-Analysators findet man bei Harrower (1955) sowie bei T. S. Green (1970). Konstruktionsparameter und optische Eigenschaften des zylindrischen Spiegelfeldanalysators (CMA) werden bei Risley (1972) sowie bei Sar-El (1967) behandelt. Das in dieser Arbeit verwendete Spektrometer vereint die Vorzüge eines sphärischen und eines zylindrischen Spiegelfeldanalysators durch eine geschickte Kombination der beiden Einzelanalysatoren. Diese Art von Spektrometer wurde am Institute of Nuclear Research of the Ungarian Academy of Science (ATOMKI) entwickelt und seit vielen Jahren erfolgreich eingesetzt. Bei Varga et al. (1992) findet man eine grundlegende Diskussion der Konstruktionsparameter dieses Spektromertyps, die in den folgenden Abschnitten dargelegt werden.

## 4.2 Aufbau des Spektrometers

Das Elektronenspektrometer ESA22 (ESA, *Electrostatic Analyzer*) ist ein zweistufiges Spektrometer, das die Methode der elektrostatischen Spiegelfelder anwendet. Der gesamte Aufbau des Spektrometers ist in Abb. 4.1 dargestellt. Der sphärische Abschnitt (SMA, *spherical mirror analyzer*) ist in der Lage, alle Elektronen zu erfassen, die in der Wechselwirkungszone erzeugt



**Abbildung 4.1:** Schematischer Aufbau des Spektrometers. Gezeigt ist die Flugbahn der Elektronen durch das Spektrometer von der Wechselwirkungszone bis zum Detektor. Der in dieser Arbeit verwendete Detektor ist eine rotationsymmetrische Anordnung von 20 Channeltron-Detektoren (CEM), die in Winkelabständen von  $15^\circ$  angebracht sind (in Vor- und Rückwärtsrichtung sowie unter  $90^\circ$  befindet sich kein Detektor, maximal können 22 Detektoren untergebracht werden). Die Verwendung eines Vielkanalplatten-Detektors (MCP) ist zusätzlich möglich. Das Spektrometer besteht aus zwei elektrisch isolierbaren Hälften, wobei SMA und CMA gespiegelt zueinander sind, was die gleichzeitige Verwendung von CEMs und MCP ermöglicht. Dies kann in Koinzidenzmessungen ausgenutzt werden. Elektrisch zusammenspielende Spektrometerelektroden sind in der Abbildung gleichfarbig dargestellt.

werden und in die Ebene senkrecht zur Spektrometerachse emittiert werden. Bedingt durch die endliche Ausdehnung der Eintrittsöffnungen in den sphärischen Spiegelfeldbereich kann dabei ein Raumwinkelement von 1% detektiert werden. Der sphärische Bereich fokussiert nun die Elektronen in eine Ringfläche, die sich ebenfalls senkrecht zur Spektrometerachse befindet und gleichzeitig die Fläche bildet, die nachfolgend vom zylindrischen Abschnitt auf den Detektor abgebildet wird. Im Fokus des SMA ist eine Blende (Punkt C) mit einer bestimmten Blendöffnung angebracht, die bei Bedarf durch anders dimensionierte Blenden ausgetauscht werden kann. Der Einfluss der Blenden auf die Abbildungseigenschaften des Spektrometers wird an anderer Stelle beschrieben. Der zylindrische Spiegelfeldanalysator (CMA, *cylindrical mirror analyzer*) kann unter verschiedenen Fokussiermoden betrieben werden. Bekannt ist vor allem die Punkt-zu-Punkt-Abbildung, wobei sich beide Punkte auf der Symmetrieachse des CMA befinden. Nach Risley (1972) ist auch eine Ring-zu-Ring-Abbildung möglich, wobei die Durchmesser der Ringe unterschiedlich sein können. ESA22 verwendet eine solche Ring-zu-Ring-Abbildung. Zur Abschirmung des Erdmagnetfeldes ist das Spektrometer von drei Lagen  $\mu$ -Metall mit einer Dicke von jeweils 2 mm umgeben. Dadurch erzielt man maximale magnetische Feldstärken von einigen Milligauss in der Spektrometerkammer (Holste, 2006).

Die äußeren Elektroden von SMA und CMA sind in zwei Abschnitte geteilt, die voneinander isoliert betrieben werden können. Dadurch ist es möglich, mit jeder Spektrometerhälfte nach unterschiedlichen Energien zu schauen. Bereiche des Spektrometers, die funktionell zusammengehören, sind in Abb. 4.1 gleichfarbig gezeichnet. Die inneren Elektroden von SMA und CMA (ICS, *inner cylinder sphere*) liegen immer auf dem selben Potential.<sup>2</sup> Zur Verbesserung der absoluten Energieauflösung ist ferner eine Abbremmlinse angebracht, welche die Elektronen vor Eintritt in den SMA abbremst. Die Abbremmlinse setzt sich zusammen aus dem Bereich, der die Wechselwirkungszone umgibt und einer speziellen Elektrode, die zwischen diesem Bereich und dem SMA eingesetzt und mit der ICS-Elektrode kurzgeschlossen ist. Der Bereich um die Wechselwirkungszone wird bei normaler Betriebsweise des Spektrometers geerdet.<sup>3</sup> Durch Anlegen einer negativen Spannung  $U$  an die Abbremslektrode werden Elektronen der Energie  $E$  auf  $E' = E - eU$  abgebremst. Da die relative Auflösung  $\Delta E/E$  des Spektrometers konstant ist, wird sich bei Verkleinerung von  $E$  entsprechend  $\Delta E$  mitverkleinern.  $\Delta E$  kann dabei als minimaler Energieabstand interpretiert werden, bei dem zwei Energiepeaks noch getrennt darstellbar sind.

Nach Roy und Tremblay (1990) ist ein Spektrometer im Wesentlichen durch seine Transmissionseffizienz und seine Energieauflösung charakterisiert. Durch die Kombination von SMA und CMA versucht man diese beiden Größe zu optimieren. Der SMA hat im Vergleich zum CMA

---

<sup>2</sup>Die Bezeichnung ICS wird verwendet, wenn beide inneren Elektroden von SMA und CMA gemeint sind, IS und IC stehen für den jeweiligen Einzelelektroden.

<sup>3</sup>Durch Anlegen einer negativen Spannung kann man Elektronen aus der Wechselwirkungszone beschleunigen, bevor sie in den SMA eintreten. Eine Beschleunigung mit der ICS-Elektrode ist zwar generell auch möglich, jedoch liefert das verwendete Netzgerät nur negative Spannungen.

ein schlechteres Auflösungsvermögen, ist jedoch in der Lage, den Wechselwirkungspunkt des Ion-Atom-Stoßes auf den Bildpunkt des CMA in zweiter Ordnung abzubilden, was die Transmission deutlich erhöht, im Vergleich zur Verwendung eines einzelnen CMA. Der CMA verfügt über bessere Auflösungsseigenschaften und wird folglich für die Energieanalyse verwendet.

#### 4.2.1 Der sphärische Spiegelfeldanalysator

Für die Beschreibung des sphärischen Spiegelfeldanalysators ist die Verwendung von Kugelkoordinaten  $\vec{r}(r, \vartheta, \varphi)$  mit Polarwinkel  $\vartheta$  und Azimutalwinkel  $\varphi$  sinnvoll. Die verwendeten Größen sind in Abb. 4.2 definiert, die Herleitung orientiert sich an Varga et al. (1992). Für die Radialkomponente der Bewegungsgleichung eines Elektrons (Masse  $m$ , Ladung  $e$ ) im elektrischen Feld des SMA gilt:

$$\ddot{r} - r\dot{\vartheta}^2 - r\sin^2\vartheta\dot{\varphi}^2 = -\frac{e}{m}E_r \quad (4.1)$$

Entsprechend erhält man für die polare und azimutale Komponente:

$$\frac{d}{dt}(r^2\dot{\vartheta}) - r^2\dot{\varphi}^2\sin\vartheta\cos\vartheta = 0 \quad (4.2)$$

$$\frac{m}{r\sin\vartheta}\frac{d}{dt}(r^2\sin^2\vartheta\dot{\varphi}) = 0 \quad (4.3)$$

Auf Grund der Erhaltung des Drehimpulses gilt  $\dot{\varphi} = 0$ . Somit reduziert sich Gl. (4.2) zu:

$$\frac{d}{dt}(r^2\dot{\vartheta}) = 0 \quad (4.4)$$

Daraus folgt  $r^2\dot{\vartheta} = av_0\cos\alpha = c_1$ . Mit  $\dot{\vartheta}^2 = c_1^2/r^4$  schreibt sich die radiale Komponente:

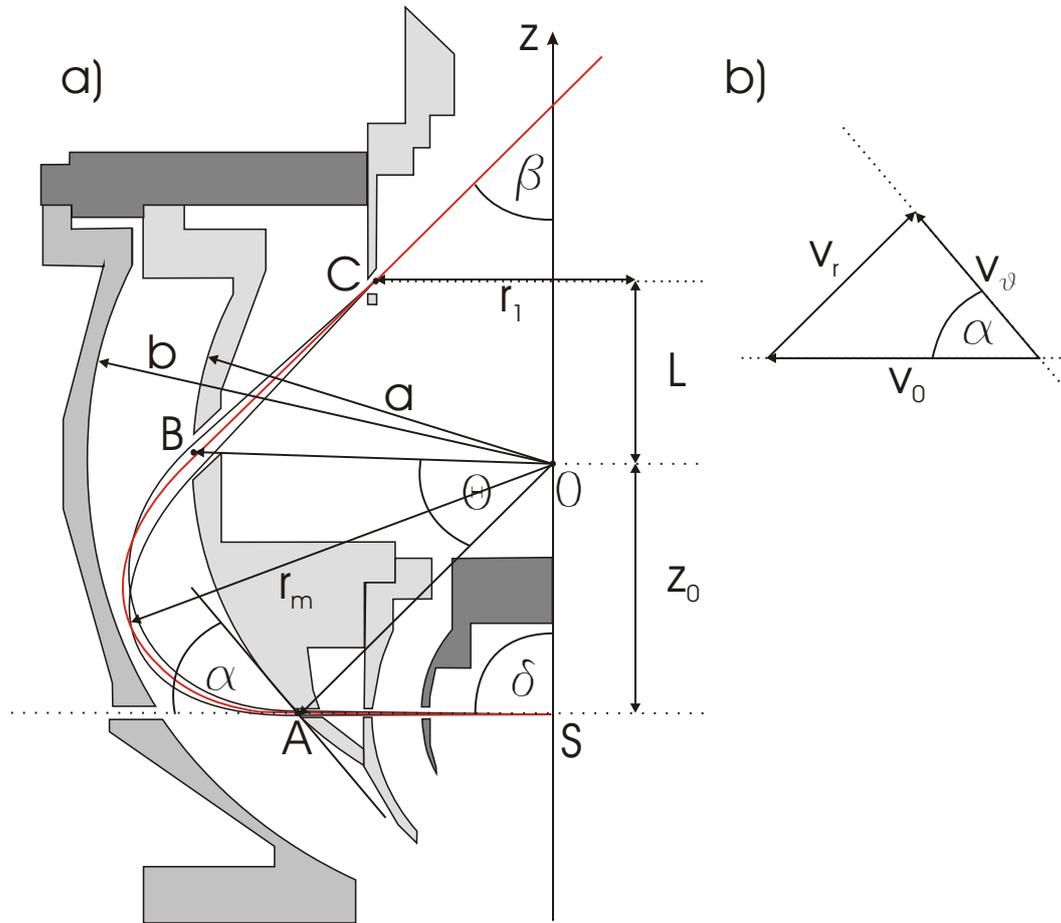
$$\ddot{r} = \frac{c_1^2}{r^3} - \frac{e}{m} \overbrace{\frac{Ub}{b-a}}^{\kappa_1} \frac{a}{r^2} \quad (4.5)$$

Integriert man diesen Ausdruck unter Verwendung der Randbedingung, dass das Elektron zur Zeit  $t = 0$  sich bei  $r = a$  befinde, so erhält man:

$$\dot{r}^2 = v_0^2 - \frac{v_0^2 a^2 \cos^2 \alpha}{r^2} - \frac{2\kappa_1 e}{m} \left(1 - \frac{a}{r}\right) \quad (4.6)$$

Mit  $k = 2e\kappa_1/mv_0^2$  erhält man aus Gl. (4.6) eine Beziehung für den maximalen Wert  $r_m$  der Radialkomponente:

$$r_m = \frac{a}{2(k-1)} \left( k + \sqrt{k^2 - 4(k-1)\cos^2\alpha} \right) \quad (4.7)$$



**Abbildung 4.2:** a) Sphärischer Spiegelfeldanalysator. Elektronen, die in der Ebene AS emittiert werden und am Punkt A in den SMA eintreten, werden durch das radialsymmetrische Spiegelfeld bei passender gewählter Spannung so abgelenkt, dass sie den SMA am Punkt B verlassen und auf den Punkt C fokussiert werden. Die Winkelakzeptanz des Spektrometers wird durch die maximale Variation von  $\delta$  beschrieben.  $\Theta$  kann als Polarwinkel zwischen den Punkten A und B interpretiert werden.  $\alpha$  bezeichnet den Winkel zwischen der Streuebene und der Tangente an die innere Kugel am Punkt A senkrecht zum zugehörigen Radiusvektor  $\vec{OA}$ . Die rote Trajektorie beschreibt die Sollbahn der Elektronen. a und b stehen für die Radien von innerer und äußerer Kugelfläche. b) Zerlegung der Eintrittsgeschwindigkeit  $v_0$  in die Komponenten  $v_\vartheta$  und  $v_r$ .

Die Koordinate wird über  $v_r = dr/dt = (dr/d\vartheta)\dot{\vartheta}$  mit dem Winkel  $\vartheta$  parametrisiert. Daraus folgt:

$$\int_0^{\Theta/2} d\vartheta = \int_a^{r_m} \frac{a \cos \alpha dr}{\sqrt{r(1-k)r^2 + kra - a^2 \cos^2 \alpha}} \quad (4.8)$$

Durch Lösen dieses Integrals erhält man eine Beziehung für  $\Theta$  in Abhängigkeit von  $\alpha$ :

$$\tan \frac{\Theta}{2} = \frac{\sin 2\alpha}{k - 2 \cos^2 \alpha} \quad (4.9)$$

Nachdem die Elektronen den SMA im Punkt B verlassen, kann ihre Bewegung durch die Größen  $r_1$  und  $L$  charakterisiert werden. Letztere gibt die in  $z$ -Richtung zurückgelegte Distanz an und wird beschrieben durch:

$$L(z, \delta) = \frac{a \cos \alpha}{\sin \beta} - r_1 \cot \beta \quad (4.10)$$

Dabei gilt  $\beta = \Theta + 2\alpha - \delta$ . Der Winkel  $\alpha$  hängt mit dem Winkel  $\delta$  über  $\cos \alpha = z/a \sin \delta$  zusammen. Die Einführung der Größe  $L(z, \delta)$  über Gl. (4.10) hat den Vorteil, dass man mit ihr die Fokussierung des SMA beschreiben kann. Fokussierung in erster Ordnung liegt vor, wenn eine Variation des Winkels  $\delta$  keine Veränderung  $\Delta L$  in  $L$  bewirkt, d.h. wenn  $\partial L / \partial \delta = 0$  für ein festes  $\delta_0$  ist. Die Geometrie des SMA ist so beschaffen, dass für die Sollbahn der Elektronen  $\delta_0 = 90^\circ$  gilt. Daraus folgt:

$$r_1 = a \cos \alpha_0 \cos \beta_0 = z_0 \cos \beta_0 \quad (4.11)$$

$$L_0(\delta_0) = a \cos \alpha_0 \sin \beta_0 \quad (4.12)$$

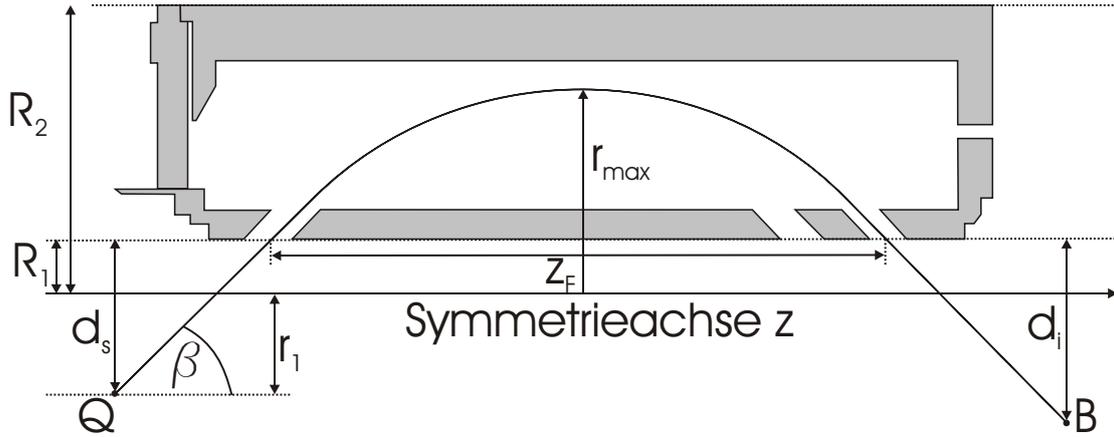
Für  $\alpha = 45^\circ$ , wie es bei ESA-22 durch die Geometrie vorliegt, ist nach Varga et al. (1992) ebenfalls die Bedingung  $\partial^2 L / \partial \delta^2 = 0$  erfüllt. Das Spektrometer fokussiert Elektronen, die im Quellpunkt entstehen und in den SMA eintreten in zweiter Ordnung auf eine um die  $z$ -Achse konzentrische Linie mit Abstand  $r_1$  von der  $z$ -Achse.

## 4.2.2 Der zylindrische Spiegelfeldanalysator

Für die Beschreibung der Trajektorien im CMA werden Zylinderkoordinaten  $\vec{r} = (r, \varphi, z)$  verwendet. Wie in Abb. 4.3 dargestellt, treten Elektronen vom Quellpunkt Q unter einem Winkel  $\beta$  in den CMA ein und werden dort so reflektiert, dass sie auf den Bildpunkt B abgebildet werden. Der Quellpunkt Q entspricht dabei dem Punkt C aus Abb. 4.2, gleiches gilt für den Winkel  $\beta$ . Eine ausführliche Diskussion der Bewegungsgleichungen findet man bei Schmidt (1997). Dort wird die Bewegung durch die Projektion der Trajektorie auf die  $z$ -Achse beschrieben und in drei Abschnitte aufgeteilt.  $z_v$  steht für den zurückgelegten Weg auf der  $z$ -Achse vom Quellpunkt bis zum Eintritt in den CMA,  $z_n$  entsprechend für die Strecke vom Punkt des Austritts bis zum Bildpunkt B. Beide Größen lassen sich durch  $z_{v,n} = d_{s,i} / \tan \beta$  ausdrücken. Für die Bewegung innerhalb des CMA formuliert man zunächst für jede Komponente die Bewegungsgleichung. Für die  $\varphi$ -Koordinate gilt:

$$2mr\dot{\varphi} + mr^2\ddot{\varphi} = 0 \quad (4.13)$$

Da die  $z$ -Komponente des Drehimpulses  $l_z$  durch  $mr^2\dot{\varphi}$  gegeben ist, entspricht Gl. (4.13) der zeitlichen Ableitung dieser Komponente. Dies ist gleichbedeutend mit  $l_z = \text{const.}$  woraus unmittelbar  $\varphi = \text{const.}$  folgt. Ebenso folgt aus  $m\ddot{z} = 0$  die Erhaltung der  $z$ -Komponente des Impulses.



**Abbildung 4.3:** Schematische Darstellung des zylindrischen Spiegelfeldanalysators und der Sollbahn. Elektronen vom Quellpunkt Q treten unter einem Winkel  $\beta$  in den felderfüllten Raum des CMA ein und werden auf den Bildpunkt B abgebildet. Die maximale Eindringtiefe in den CMA wird durch  $r_{\max}$  beschrieben.  $z_F$  ist die zurückgelegte Distanz im CMA in z-Richtung.  $R_{1,2}$  steht für den Radius von innerem und äußerem Zylinder.

Die Bewegungsgleichung für die radiale Komponente bei angelegter Spannung  $U_c$  lautet:

$$m\ddot{r} - \underbrace{m\dot{\phi}r}_{=0} + \underbrace{\frac{eU_c}{\ln \frac{R_2}{R_1}} \frac{1}{r}}_{=\lambda} = m\ddot{r} + \frac{\lambda}{r} = 0 \quad (4.14)$$

Integration von Gl. (4.14) liefert einen Ausdruck für die radiale kinetische Energie  $E_{\text{rad}}$ :

$$E_{\text{rad}}(r) = \frac{1}{2}m\dot{r}^2 = -\lambda \ln r + \text{const.} \quad (4.15)$$

Beim Eintritt der Elektronen in den CMA gilt  $E_{\text{rad}}(r = R_1) = E_0 \sin^2 \beta$ , am Punkt maximaler Eindringtiefe  $E_{\text{rad}}(r = r_{\max}) = 0$ . Beide Bedingungen sind erfüllt mit:

$$\begin{aligned} \frac{1}{2}m\dot{r}^2 &= \lambda \ln \frac{r_{\max}}{r} \\ r_{\max} &= R_1 e^{E_0 \sin^2 \beta / \lambda} \end{aligned} \quad (4.16)$$

Die maximale Eindringtiefe  $r_{\max}$  wird üblicherweise durch einen Parameter  $k_0$  beschrieben (Sar-El, 1967), der folgendermaßen definiert ist:

$$k_0 = \frac{E_0}{eU_c} \ln \frac{R_2}{R_1} \quad (4.17)$$

Die Flugzeit  $T$  für die Durchquerung des CMA erhält man aus:

$$T = 2 \int_{R_1}^{r_{\max}} \frac{dr}{v_r} = \frac{R_1}{\sqrt{2\lambda/m}} \int_{R_1}^{r_{\max}} \frac{R_1}{\sqrt{\ln \frac{R_1}{r}} e^{k_0 \sin^2 \beta}} dr \quad (4.18)$$

Nach einiger Rechenarbeit erhält man für die im Feld zurückgelegte Wegstrecke  $z_F$ :

$$z_F = \frac{2kR_1}{\tan \beta} e^{0.5k^2} \int_0^k e^{-0.5u^2} du \quad (4.19)$$

Die obere Integrationsgrenze  $k$  ist dabei definiert als  $k = \sqrt{2k_0} \sin \beta$ , die Variable  $u$  als  $u = \sqrt{k^2 - 2 \ln \frac{r}{R_1}}$ . Eine analytische Auswertung von Gl. (4.19) ist wegen des Fehlerintegrals nicht möglich, jedoch ist dieses einer numerischen Auswertung leicht zugänglich. Gl. (4.19) gibt somit einen geschlossenen Ausdruck für die Projektion der Elektronenbahn auf die  $z$ -Achse in Abhängigkeit des Eintrittswinkels  $\beta$  in den CMA und der Energie  $E_0$ , die durch den Parameter  $k_0$  ausgedrückt wird.

### 4.2.3 Fokussierung und Dispersion

Addiert man zu Gl. (4.19) die Wegstrecken  $z_v$  und  $z_n$  dazu, hat man die gesamte projizierte Wegstrecke in  $z$ -Richtung als Funktion der Energie  $E_0$  und des Eintrittswinkels ausgedrückt. Das Verhalten dieser Funktion bei Variationen der Energie um Potenzen von  $\Delta E$  und des Eintrittswinkels um  $\Delta \beta$  wird beschrieben durch eine Taylor-Entwicklung:

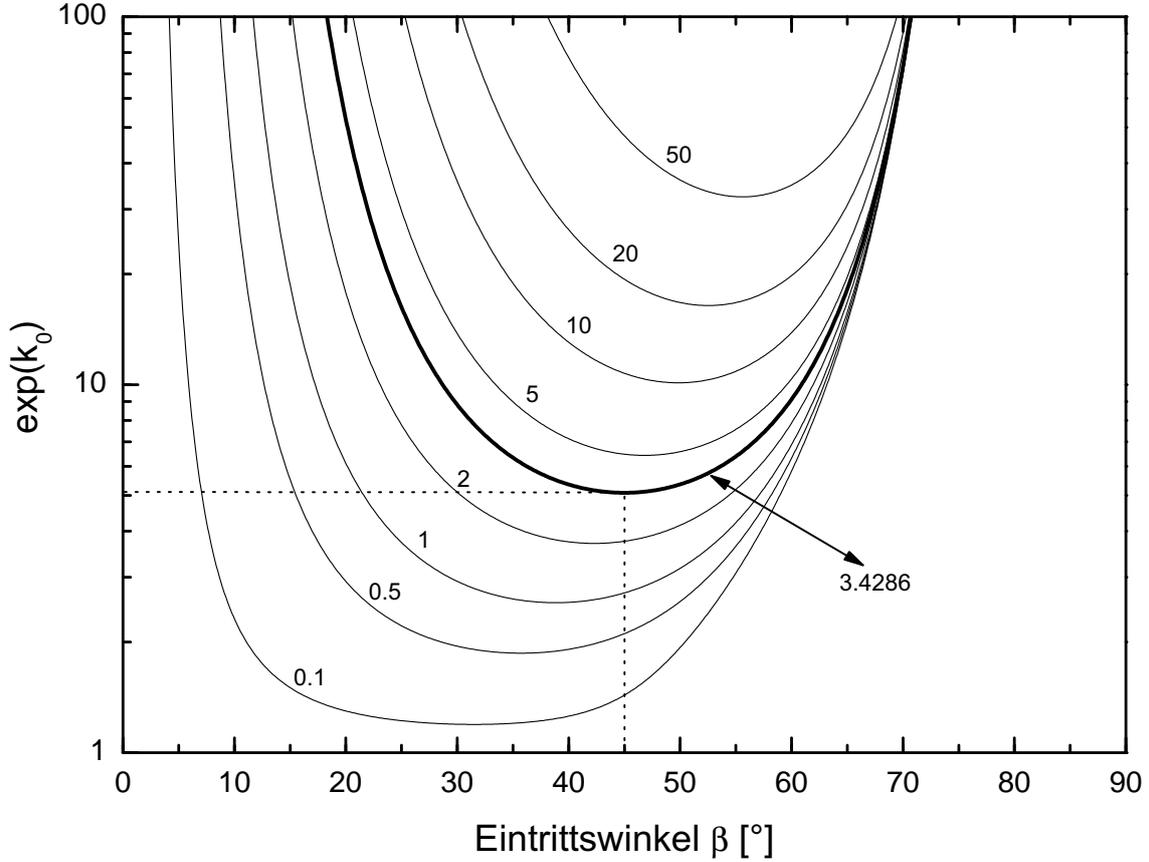
$$\begin{aligned} z &= z_0 + \sum_{n=1}^{\infty} \left( \Delta \beta \frac{\partial}{\partial \beta} + \Delta E \frac{\partial}{\partial E} \right)^n z(\beta, E) \Big|_{\beta=\beta_0, E=E_0} \\ &= z_0 + \sum_{i=1}^{\infty} \frac{1}{i!} \frac{\partial^i z}{\partial \beta^i} \Big|_{z_0} (\Delta \beta)^i + \sum_{j=1}^{\infty} \frac{1}{j!} \frac{\partial^j z}{\partial E^j} \Big|_{z_0} + \\ &\quad + \sum_{i,j=1}^{\infty} \frac{c_{ij}}{(i+j)!} \frac{\partial^{i+j} z}{\partial \beta^i \partial E^j} \Big|_{z_0} (\Delta \beta)^i (\Delta E)^j \end{aligned} \quad (4.20)$$

Hält man in Gl. (4.20) die Energie fest und vernachlässigt die gemischten Terme ihrer Größe wegen, so erhält man:

$$z = z_0 + \sum_{i=1}^{\infty} \frac{1}{i!} \frac{\partial^i z}{\partial \beta^i} \Big|_{z_0} (\Delta \beta)^i \quad (4.21)$$

Aus Gl. (4.21) kann man die Geometrie des CMA so festlegen, dass die Ableitungen bis zur  $n$ -ten Ordnung verschwinden, d.h. dass eine Fokussierung bis zur  $n$ -ten Ordnung vorliegt. Mit der Abkürzung

$$A = k \cdot e^{0.5k^2} \int_0^k e^{-0.5u^2} du = \sqrt{\frac{\pi}{2}} \cdot k \cdot e^{0.5k^2} \operatorname{erf} \left( \frac{k}{\sqrt{2}} \right) \quad (4.22)$$



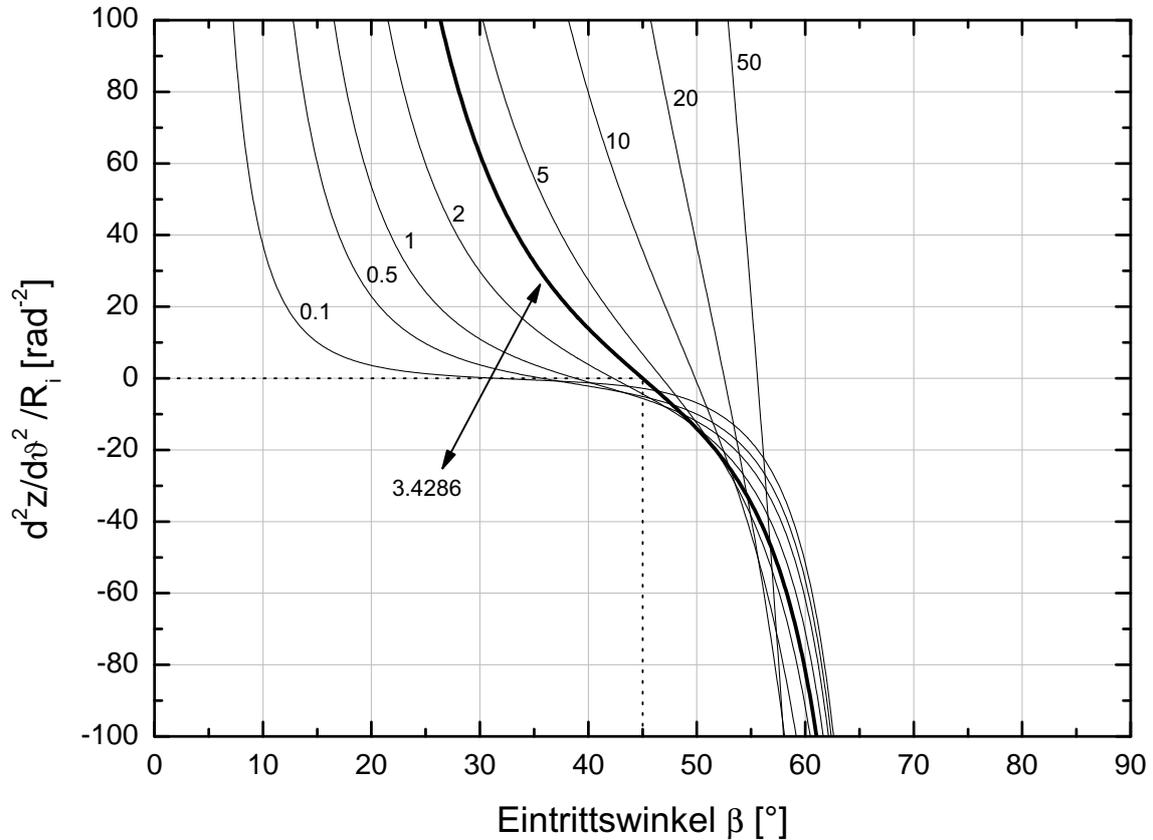
**Abbildung 4.4:**  $e^{k_0}$  als Funktion des Eintrittswinkels  $\beta$  für verschiedene Parameter  $d = (d_v + d_n)/R_1$  mit Fokussierung in erster Ordnung. Der Parameter  $d$  sei vorgegeben durch bestimmte geometrische Bedingungen, die erfüllt sein müssen (z.B. beschränktes Platzangebot). Der Eintrittswinkel  $\beta$  ist damit direkt verknüpft mit  $e^{k_0}$  und somit mit der Gesamtlänge  $z$  vom Quell- bis zum Bildpunkt des CMA (vgl. auch Risley (1972)). Im Fall des ESA22-Spektrometers ist  $d = 3.4286$ .

folgt für die erste und zweite Ableitung von  $z$ :

$$\frac{dz}{d\beta} = -\frac{d_{\text{tot}}}{\sin^2 \beta} + \frac{2R_1 k^2}{\tan^2 \beta} + 2R_1 A \left( -\frac{1}{\sin^2 \beta} + \frac{1+k^2}{\tan^2 \beta} \right) \quad (4.23)$$

$$\begin{aligned} \frac{d^2 z}{d\beta^2} = & \frac{2d_{\text{tot}}}{\sin^2 \beta \tan \beta} + 2R_1 \left( \frac{3k^2 + k^4}{\tan^3 \beta} - \frac{3k^2}{\sin^2 \beta \tan^2 \beta} + \right. \\ & \left. + A \left( \frac{1 + 4k^2 + k^4}{\tan^3 \beta} - \frac{1 + 3k^2}{\sin^2 \beta \tan \beta} \right) \right) \end{aligned} \quad (4.24)$$

Die Bestimmung der Größe  $k_0$  als Funktion des Eintrittswinkels für verschiedene Parameter  $d$  ist in Abb. 4.4 dargestellt. Für das ESA22-Spektrometer nimmt auf Grund seiner Geometrie dieser Parameter den Wert  $d = 3.4286$  an. Die Bedingung für eine Fokussierung in zweiter



**Abbildung 4.5:** Fokussierung in zweiter Ordnung für verschiedene Parameter  $d$ . Man sieht, dass für den vorgegebenen Parameter  $d = 3.4289$  beim Spektrometer ESA22 eine Fokussierung in zweiter Ordnung für einen Eintrittswinkel von  $45^\circ$  möglich.

Ordnung als Funktion des Eintrittswinkels ist in Abb. 4.5 aufgetragen. Für  $\beta = 45^\circ$  fokussiert ESA22 in zweiter Ordnung.

Variiert man nun in Gl. (4.20) die Energie und hält dabei den Eintrittswinkel konstant, so erhält man einen Ausdruck, der für die Angabe der Dispersion des Spektrometers benötigt wird. Die Dispersion ist allgemein definiert als:

$$D = E_{\text{kin}}^0 \frac{\Delta z}{\Delta E} \quad (4.25)$$

Sie beschreibt, wie sich ein Energieintervall  $\delta E$  auf ein Längenelement  $\delta z$  verteilt, ist somit ein Maß für die Fähigkeit eines Spektrometers, Elektronen unterschiedlicher Energie räumlich zu trennen.  $E_{\text{kin}}^0$  steht dabei für die mittlere Energie dieses Energieintervalls. Nach Schmidt

**Tabelle 4.1:** Designparameter des Elektronenspektrometers. Die angegebenen Größen sind in Kapitel 4 und speziell in Abb. 4.2 und Abb. 4.3 definiert.

Parameter	Abkürzung	Wert
Radius innere Kugel	a	88 mm
Radius äußere Kugel	b	114 mm
Radius innerer Zylinder	R <sub>1</sub>	36 mm
Radius äußerer Zylinder	R <sub>2</sub>	101 mm
Spektrometerkonstante SMA (Theorie)	k <sub>s</sub>	0.779
Spektrometerkonstante CMA (Theorie)	k <sub>c</sub>	0.580
Winkel zw. Streuebene und Kugeltangente	α	45°
Polarwinkel zw. A und B	Θ	90°
Abstand zw. z-Achse und Fokus im SMA	r <sub>1</sub>	44 mm
Fokalabstand bzgl. z-Achse	L	44 mm
Parameter d	d/R <sub>1</sub>	3.4286
Parameter k <sub>0</sub>	e <sup>k<sub>0</sub></sup>	5.0863
Dispersion D	D/R <sub>1</sub>	9.1807
Eingesehener Raumwinkel	ΔΩ	0.1257
Blende 1	h <sub>1</sub>	2.6 mm
Blende 2	h <sub>2</sub>	15.8 mm
Blende 3	h <sub>3</sub>	7.4 mm
Blende 4	h <sub>4</sub>	2.6 mm
Auflösung	ΔE/E	4.78 · 10 <sup>-3</sup>
Vertikaler Winkelbereich	Δδ	±0.8°
Horizontaler Winkelbereich	Δφ	±1°

(1997) gilt:

$$D = R_1 \tan^{-1} \beta_0 \left[ k^2 + \frac{1 + k^2}{\sin^2 \beta_0} \frac{d_{\text{tot}} (2R_1)^{-1} - k^2 \cos^2 \beta_0}{k^2 \tan^{-2} \beta_0 - 1} \right] \quad (4.26)$$

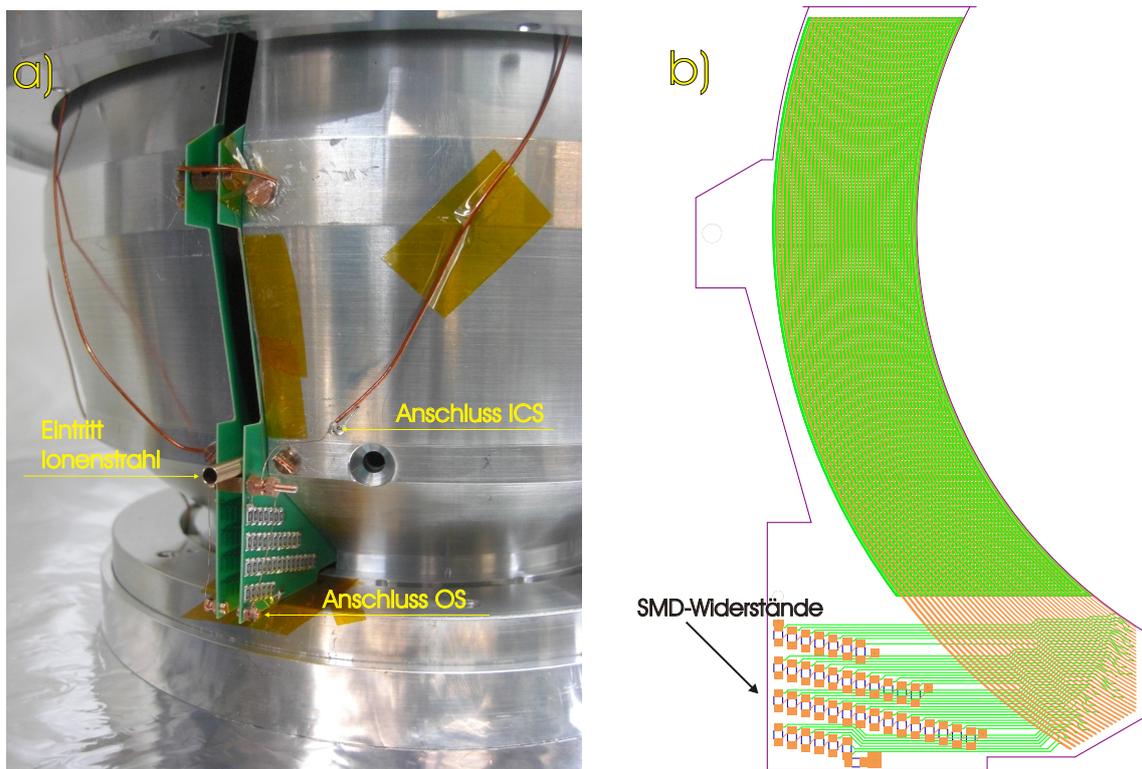
Die Dispersion hängt also sowohl von geometrischen Größen des Spektrometers ab, als auch über den Parameter k von der Ordnung der Fokussierung.

### 4.3 Feldkorrekturolektroden

Auf Grund der Geometrie des Spektrometers kann der Ionenstrahl nur so in die Wechselwirkungszone gebracht werden, dass er auf Höhe des sphärischen Feldes in das Spektrometer eindringt. Dies würde eine Ablenkung des Strahls zur Folge haben, so dass eine Abschirmung des Feldes bei Ein- und Austritt notwendig ist. Eine Abschirmung z.B. durch ein Metallröhrchen, das auf dem Potential der inneren Kugel liegt, würde jedoch das radial-symmetrische Feld stören, wodurch die Funktionsfähigkeit des SMA eingeschränkt wird. Der  $1/r$ -Abfall des elektrischen Feldes wird daher durch sog. Feldkorrekturolektroden gewährleistet, eine weitere Möglichkeit wird in Abschnitt 4.6 beschrieben. Dabei handelt es sich um vierzig Metallstreifen auf einer Leiterplatte, die der Geometrie des Spektrometers entsprechen und jeweils verschiedene Radien haben (vgl. Abb. 4.6). Die Leiterplatte besteht aus einem Glasfasergewebe, das mit Epoxidharz gehärtet wurde (Materialbezeichnung Hochtemperatur FR4), die Metallteile aus Kupfer. Auf eine Schicht aus Lötstopplack, die standardmäßig auf Leiterplatten aufgebracht wird, wurde verzichtet. Zwischen jedem Streifen ist ein elektrischer Widerstand von  $1\text{ M}\Omega$  angebracht, d.h. der Gesamtwiderstand einer Feldkorrekturolektrode beträgt  $40\text{ M}\Omega$ . Jeweils zwei Elektroden werden für Ein- und Ausgang gebracht. Die Elektroden sind parallel zueinander geschaltet. Da zwischen innerer und äußerer Kugel ein Kontakt besteht, ergibt sich zwischen den Kugelelektroden ein Gesamtwiderstand von  $10\text{ M}\Omega$ , welcher z.B. an den BNC-Durchführungen nach Verkabelung des Spektrometers gemessen werden kann. Dies ist zugleich eine wichtige Kontrolle, da es beim Einbau des Spektrometers in die Vakuumkammer leicht zu Beschädigungen der Elektroden kommen kann. Die Innenseiten der Feldkorrekturolektroden haben keine Streifenstruktur, sondern eine durchgängige leitende Oberfläche gleicher Geometrie wie die Außenseite. Diese Oberfläche wird auf das ICS-Potential gelegt. Die Feldkorrekturolektroden haben eine Glasfließtemperatur von  $160 - 190^\circ\text{C}$ . Diese Temperatur kann vom Material nur kurzzeitig aufgehalten werden, bei längerer Belastung kommt es zu Formveränderungen. Ein Ausheizen der Kammer ist daher nur eingeschränkt möglich, d.h. bis zu Temperaturen von ca.  $120^\circ\text{C}$ .

### 4.4 Detektorsystem und Auflösung

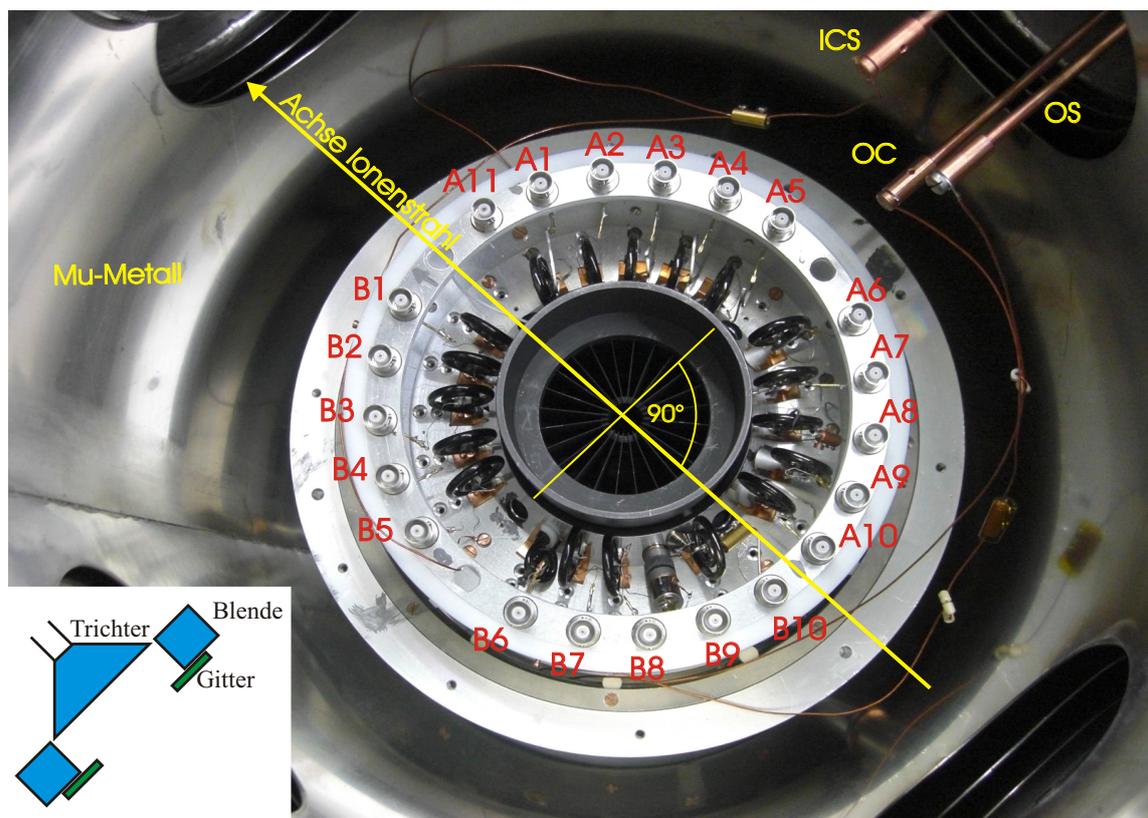
Die Detektion der Elektronen erfolgt über eine zur Spektrometerachse symmetrische Anordnung von Channeltron-Detektoren (CEM), die folgende Winkel abdecken:  $\pm 15^\circ$ ,  $\pm 30^\circ$ ,  $\pm 45^\circ$ ,  $\pm 60^\circ$ ,  $\pm 75^\circ$ ,  $\pm 105^\circ$ ,  $\pm 120^\circ$ ,  $\pm 135^\circ$ ,  $\pm 150^\circ$ ,  $\pm 165^\circ$ . Jeder Detektor deckt einen vertikalen Bereich von  $\pm 0.8^\circ$  und einen horizontalen Bereich von  $\pm 1^\circ$  ab. Der Ausgang der Channeltrons ist dabei an eine Hochspannung von  $2.2 - 2.5\text{ kV}$  angeschlossen, Bezugspunkt ist der Trichter der CEMs, der auf dem gleichen Potential wie der innere Zylinder liegt. In Abb. 4.7 ist eine Draufsicht auf den Detektorkranz gezeigt. Dieser Kranz bildet eine eigenständige Einheit und kann als Ganzes vom Spektrometer entfernt werden. Detektoren, welche rechts von der Strahlachse



**Abbildung 4.6:** a) Im Spektrometer angebrachte Feldkorrektur Elektroden. b) Schematische Darstellung einer Feldkorrektur Elektrode.

des Projektils liegen, werden mit A, solche, die links liegen, mit B bezeichnet. Auf jeder Seite befinden sich zehn Detektoren. Der Anschluss A11 dient zur Kontaktierung eines Gitters, das üblicherweise auf dem Potential des äußeren Zylinders liegt und die Funktion eines Repellers hat. Die Auskopplung der Signale der CEMs erfolgt in speziellen Vorverstärkern außerhalb der Vakuumkammer. Diese Signale können daraufhin von einem *Scaler* gezählt werden.

Die Auflösung des Spektrometers wurde in Holste (2006) unter Verwendung eines positionsempfindlichen Detektorsystems bestimmt. Bei der Verwendung von Channeltron-Detektoren legen die Elektronen eine andere Trajektorie im CMA zurück, was eine Veränderung der Auflösung zur Folge haben kann. Um die Auflösung experimentell zu bestimmen, wurde das KLL-Autoionisations-Spektrum von  $C^{3+}$  unter einem Emissionswinkel von  $165^\circ$  im Laborsystem, welches in Kapitel 6 näher beschrieben wird, verwendet. An die Peaks wurden Voigt-Funktionen angefitzt, wobei für die Lorentzbreiten die natürlichen Linienbreiten der Übergänge aus Prior et al. (1993) verwendet wurden. Die Gaussbreite der Voigt-Funktion wird als Breite der Spektrometerfunktion angesehen. Die relative Auflösung  $\Delta E/E$  erhält man, wenn man diese Breite durch die Energie des Übergangs im Laborsystem teilt. Das Ergebnis

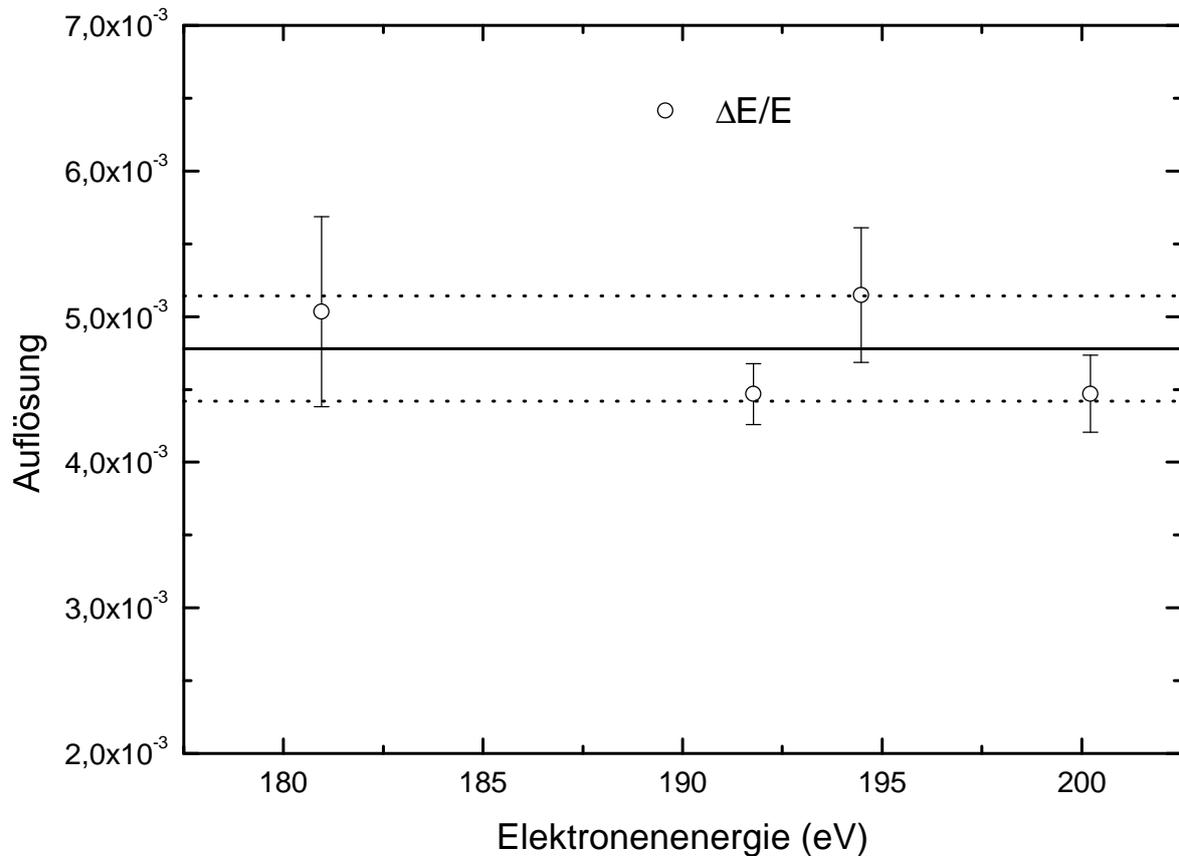


**Abbildung 4.7:** Draufsicht auf das Detektorsystem des Spektrometers. Gezeigt ist die Benennung der einzelnen Anschlüsse relativ zur Strahlachse des Projektils sowie der Spannungsversorgung des Spektrometers (OS: *outer sphere*, OC: *outer cylinder*, ICS: *inner cylinder sphere*). Eine axialsymmetrische Anordnung von Blenden, die im inneren des Detektorkranzes sitzt, soll verhindern, dass gestreute Elektronen andere Detektoren erreichen können. Das Gehäuse des Detektors liegt auf dem Potential des inneren Zylinders. Ein Gitter zwischen CEM-Trichter und Spektrometer dient als Repeller. Dieses Gitter wird üblicherweise auf das Potential des äußeren Zylinders gelegt. Der Anschluss A11 wird für die Spannungsversorgung dieses Gitters verwendet.

ist in Abb. 4.8 dargestellt. Die mittlere Auflösung beträgt demnach  $4.78 \cdot 10^{-3} \pm 3.61 \cdot 10^{-4}$ .

## 4.5 Spannungsversorgung

Das Elektronenspektrometer wird über ein Iseg-HV-Modul (Modell EHQ High Precision 8 210 Floating) mit Spannung versorgt. Dieses verfügt über acht separat ansteuerbare Ausgänge, die mit maximal 1 kV und 5 mA belastet werden können. Das HV-Modul kann nur Spannungen negativer Polarität ausgeben. Angesteuert wird es mit einem CAN-Bus. Die Spannungsauflösung beträgt nach Herstellerangaben zwischen 1 und 10 mV, die Rampengeschwindigkeit 100 V/s. Das Spektrometer muss mit drei Spannungen versorgt werden (OS, OC, ICS). Es hat sich gezeigt, dass das Iseg-Modul Probleme hat, Spannungen unter 20 V stabil zu halten. Dies



**Abbildung 4.8:** Auflösung des Spektrometers. Zur Bestimmung von  $\Delta E/E$  wurde das Spektrum A10 der Autoionisation von  $C^{3+}$  verwendet ( $165^\circ$  Emissionswinkel im Laborsystem). An die Peaks wurden Voigt-Funktionen angefitet, wobei die Gaussbreite als Breite der Spektrometerfunktion interpretiert wird. Die Lorentzbreiten entsprechen den natürlichen Linienbreiten der Übergänge. Die mittlere Auflösung beträgt  $4.78 \cdot 10^{-3} \pm 3.61 \cdot 10^{-4}$ .

hat anfänglich zu Problemen geführt, wenn die ICS-Elektrode über das Iseq auf Masse gelegt werden sollte. In dieser Betriebsweise ist das Kurzschließen dieser Elektrode mit einem entsprechenden Stecker notwendig.

Die Spannungsausgabe kann über ein Parameterfile beeinflusst werden, insbesondere werden dort die Spektrometerkonstanten eingetragen. Für die verwendeten Ausgänge, die das Spektrometer versorgen, sind folgende Beziehungen bei konstantem ICS-Potential in das Parameterfile eingetragen:

$$\begin{aligned}
 U_0 &= P_0 \cdot (E - D) + P_2 + D \\
 U_1 &= P_1 \cdot (E - D) + P_2 + D \\
 U_2 &= D
 \end{aligned}
 \tag{4.27}$$

$P_0$  und  $P_1$  sind die im Parameterfile verwendeten Bezeichnungen für die Spektrometerkon-

stanten von SMA und CMA, E ist die Energie der Elektronen, D die Abbremsspannung und  $P_2$  ein einstellbarer Offset-Wert. Das Spektrometer kann in zwei verschiedenen Betriebsweisen betrieben werden. Bei konstanter Spannung an der ICS-Elektrode werden o.g. Beziehungen zur Regelung der Spannung verwendet. Will man Elektronen mit konstanter Durchlassenergie (*Pass*-Energie) detektieren, so werden folgende Beziehungen verwendet:

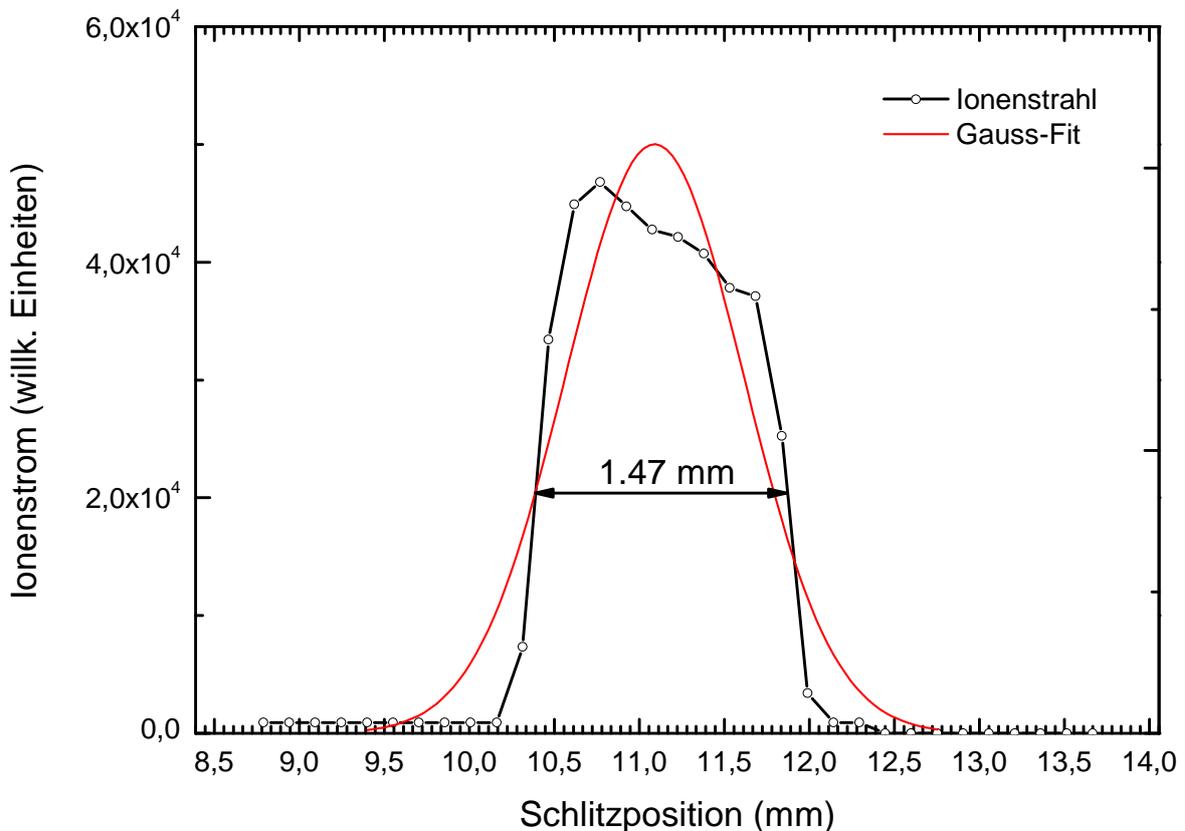
$$\begin{aligned} U_0 &= P_0 \cdot D + P_2 + E - D \\ U_1 &= P_1 \cdot D + P_2 + E - D \\ U_2 &= E - D \end{aligned} \tag{4.28}$$

Zwischen beiden Betriebsweisen kann im Messprogramm durch Wahl des verwendeten Parametersatzes gewechselt werden. Vor dem Start einer Messung kann dort dieser Satz ausgewählt werden (esa22-2 für konstantes ICS-Potential, esa22-3 für konstante *Pass*-Energie).

## 4.6 Formfaktor

Das Spektrometer verfügt über die Möglichkeit, ein Profil des Ionenstrahls in der Wechselwirkungszone aufzunehmen. Aus Platzgründen muss dazu jedoch das Gastarget ausgebaut werden. Über einen rechnergesteuerten Schrittmotor wird dabei ein Schlitz (0.15 mm) in äquidistanten Abständen durch das Wechselwirkungsgebiet des Spektrometers gefahren. Das Interface des Schrittmotors wird über das *Control-Routing* (siehe Kapitel 5) angesteuert, das Interface selbst ist bei Schacht (1992) beschrieben. Steuerung des Schrittmotors und Datenaufnahme gelingt über das Programm ESA22f. Der Ionenstrom wird in dem Faraday-Cup hinter dem Spektrometer gemessen. Eine ausführliche Beschreibung des experimentellen Aufbaus findet man in der Bedienungsanleitung des Messprogramms.

Im Spektrometer kann senkrecht zum Ionenstrahl und in der Streuebene ein weiterer Teilchenstrahl (z.B. Elektronen) gebracht werden. In zukünftigen Experimenten, in denen z.B. Elektronen aus Elektron-Ion-Stößen untersucht werden, ist eine Messung der Strahlprofile zur Bestimmung des Überlapps beider Strahlen notwendig. In Abb. 4.9 ist das Strahlprofil eines  $\text{Cs}^{1+}$ -Strahls gezeigt. Bei dieser Messung wurde der Strahl durch ein spezielles Glasröhrchen in das Spektrometer gebracht und dabei zugleich kollimiert. Dieses Röhrchen hat eine Länge von 92 mm und ist auf seiner Außenseite mit einer hochohmigen Schicht bedampft ( $1 \cdot 10^7$  bis  $1 \cdot 10^8 \Omega$ ), welche mit der OS- und IS-Elektrode an der jeweiligen Stelle verbunden ist. Die hochohmige Schicht soll gewährleisten, dass kein Kurzschluss zwischen diesen beiden Elektroden auftritt sowie ein Spannungsabfall entsteht, der das elektrische Feld des SMA nicht wesentlich stört. Die Innenseite ist sandgestrahlt und entsprechend nichtleitend. Um eine Aufladung zu vermeiden, wurde ein dünnes geerdetes Bronzeröhrchen im Inneren verwendet. Das Glasröhrchen hat einen Innendurchmesser von 1.5 mm, der Außendurchmesser beträgt



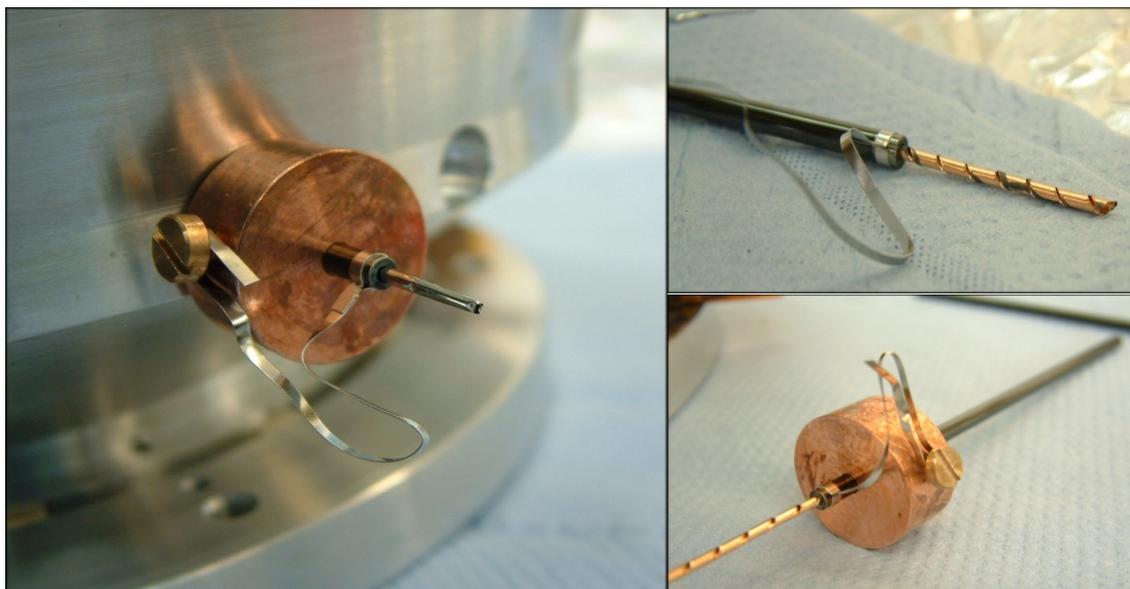
**Abbildung 4.9:** Aufgenommenes Strahlprofil eines  $\text{Cs}^{1+}$ -Strahls in der Wechselwirkungszone des Spektrometers. Eine Beschreibung des Profils durch eine Gaussfunktion ergibt eine Gaussbreite von  $1.05 \pm 0.08$  mm. Man sieht, dass das Strahlprofil signifikant von einem Gaussprofil abweicht. Der starke Anstieg an den Flanken und eine weitgehend konstante Intensität deuten auf einen parallelen Strahl mit homogener Ladungsverteilung hin. Einen präziseren Wert für die Strahlbreite erhält man, wenn man den Abstand zwischen den Flanken bestimmt. Als Bezugspunkt wurde hier willkürlich der linke Schnittpunkt mit der Gausskurve gewählt. Der Durchmesser ergibt sich damit zu 1.47 mm.

2.873 mm. Mit dem Bronzeröhrchen beträgt der effektive Innendurchmesser ideal 1.3 mm. Da es sich als schwierig herausgestellt hat, ein Röhrchen aus dünnem Bronzeblech zu formen, welches einen annähernd konstanten Innendurchmesser in der geforderten Größenordnung hat, wurde das Blech so zugeschnitten, dass es als Spirale aufgerollt werden konnte. Diese Spirale konnte ohne größere Probleme in das Glasröhrchen eingesetzt werden (siehe Abb. 4.10).

## 4.7 Allgemeines zur Analyse der Spektren

### 4.7.1 Transmissions- und Raumwinkelkorrektur

Alle in dieser Arbeit gezeigten Spektren wurden ohne Abbremsung der Elektronen gemessen. Es hat sich gezeigt, dass bei Abbremsung jeder Peak eine Substruktur aufzeigt. Dieses Verhal-



**Abbildung 4.10:** Das Spektrometer verfügt über insgesamt drei Möglichkeiten, Teilchenstrahlen in die Wechselwirkungszone zu bekommen. In Richtung der Spektrometerachse kann ein Gasstrahl oder eine Elektronenkanone verwendet werden. In der Streuebene können zwei zueinander senkrechte Teilchenstrahlen kollidieren. Da nur ein Strahlensystem über ein durch die Feldkorrekturoden abgeschirmtes Eintrittssystem verfügt, muss der andere Teilchenstrahl durch ein dünnes Glasröhrchen transportiert werden, das auf der Außenseite mit einer hochhohmigen Schicht bedampft ist. Im Inneren ist ein aus einer Spirale geformtes Bronzeblech platziert, welches auf Erdpotential liegt.

ten konnte nicht eindeutig erklärt werden (siehe Abschnitt 4.9). Bei der Betriebsweise ohne Abbremsung des Spektrometers ist die absolute Auflösung nicht konstant, daher ist eine Transmissionskorrektur erforderlich. Bei höheren Energien ist das vom Spektrometer abgebildete Energiefenster  $\Delta E$  größer, daher wird jeder Messpunkt durch den Wert der jeweiligen Energie im Laborsystem geteilt. Weiterhin ist nach Dahl et al. (1976) eine Raumwinkelkorrektur notwendig, da auf Grund der Geschwindigkeit der Elektronen für verschiedene Emissionswinkel der eingesehene Raumwinkel im Emittersystem verschieden ist. Diese Raumwinkelkorrektur ist unabhängig davon, in welcher Betriebsweise das Spektrometer benutzt wird. Sei  $\vec{v}_E$  die Geschwindigkeit im Emitter-,  $\vec{v}_L$  die Geschwindigkeit im Laborsystem und  $\vec{u}$  die Geschwindigkeit des Ions. Für den eingesehenen Raumwinkel im Laborsystem gilt dann:

$$d\Omega_L = 2\pi \sin \vartheta_L d\vartheta_L = -2\pi d(\cos \vartheta_L) = -2\pi \frac{d(\cos \vartheta_L)}{d(\cos \vartheta_E)} \frac{d(\cos \vartheta_E)}{d\vartheta_E} d\vartheta_E \quad (4.29)$$

Gesucht ist also eine Beziehung der Form  $\cos \vartheta_L = f(\cos \vartheta_E)$ . Mit

$$\cos \vartheta_L = \frac{u + v_{E,x}}{v_L} = \frac{u + v_E \cos \vartheta_E}{v_L} \quad (4.30)$$

folgt

$$\frac{d \cos \vartheta_L}{d \cos \vartheta_E} = \overbrace{\frac{d}{d \cos \vartheta_E} \left( \frac{u}{v_L} \right)}^{=0} + \frac{d}{d \cos \vartheta_E} \left( \frac{v_E \cos \vartheta_E}{v_L} \right) = \frac{v_E}{v_L} \quad (4.31)$$

Die Anzahl der Teilchen, die in ein bestimmtes Raumwinkelelement emittiert wird, muss unabhängig von der Wahl des Bezugssystems sein, dass man zur Beschreibung heranzieht. Für diese Teilchenzahl gilt (mit Wirkungsquerschnitt  $\sigma$ ):

$$\sigma(\vartheta_L) d\Omega_L = \sigma(\vartheta_E) d\Omega_E \quad (4.32)$$

Mit den Intensitäten  $I_E$  und  $I_L$  folgt daraus für die Raumwinkelkorrektur:

$$I_E = I_L \sqrt{\frac{E_E}{E_L}} \quad (4.33)$$

Die Auflösung des Spektrometers liegt bei etwa  $4.78 \cdot 10^{-3}$ . Dies bedeutet, dass die natürliche Linienbreite der KLL-Übergänge signifikant kleiner ist als die Auflösung des Spektrometers. Der  $^2\text{S}$ -Übergang der KLL-Autoionisation von  $\text{C}^{3+}$  bei 226.35 eV hat z.B. eine natürliche Linienbreite von ca. 55 meV, die Auflösung des Spektrometers liegt in der Größenordnung von 1 eV. Somit können die Peaks durch Gaußfunktionen beschrieben werden, deren Breite sich mit zunehmender Energie leicht erhöht.

### 4.7.2 Dopplerverschiebung

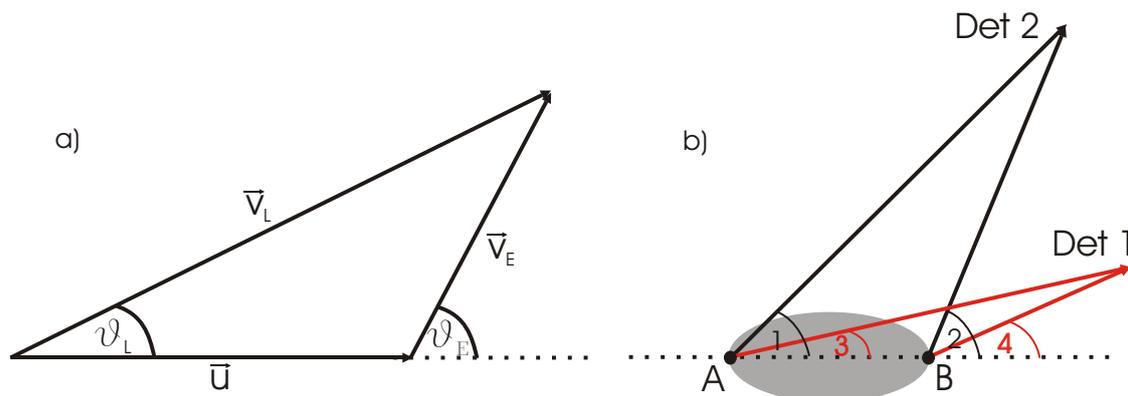
Nach durchgeführter Transmissions- und Raumwinkelkorrektur wird eine Transformation der Spektren in das Emittersystem, d.h. in das System des ruhenden Ions, durchgeführt. Aus der in Abb. 4.11 dargestellten Galilei-Transformation zwischen den Geschwindigkeiten im Laborsystem L und im Emittersystem E folgt für die Energie  $E_E$ :

$$E_E = E_L + \frac{m_e}{m_I} E_I - 2 \sqrt{\frac{m_e}{m_I} E_I E_L} \cos \vartheta_L \quad (4.34)$$

Die nichtrelativistische Addition der Geschwindigkeiten ist gerechtfertigt, da die Geschwindigkeit der Ionen bei ca. 1% der Lichtgeschwindigkeit liegt. Die Bahn der Ionen wird als geradlinig angenommen, der Rückstoß der Elektronen bei der Emission also vernachlässigt. Dies bedeutet, dass der Emissionswinkel im Laborsystem mit dem Beobachtungswinkel identisch ist.

### 4.7.3 Dopplerverbreiterung

Neben der Verschiebung der Spektrallinien kommt es zusätzlich zu einer Verbreiterung dieser Linien auf Grund der endlichen Ausdehnung der Wechselwirkungszone. Der Effekt ist in Abb. 4.11 dargestellt. Werden Elektronen gleicher Energie im Emittersystem unter verschie-

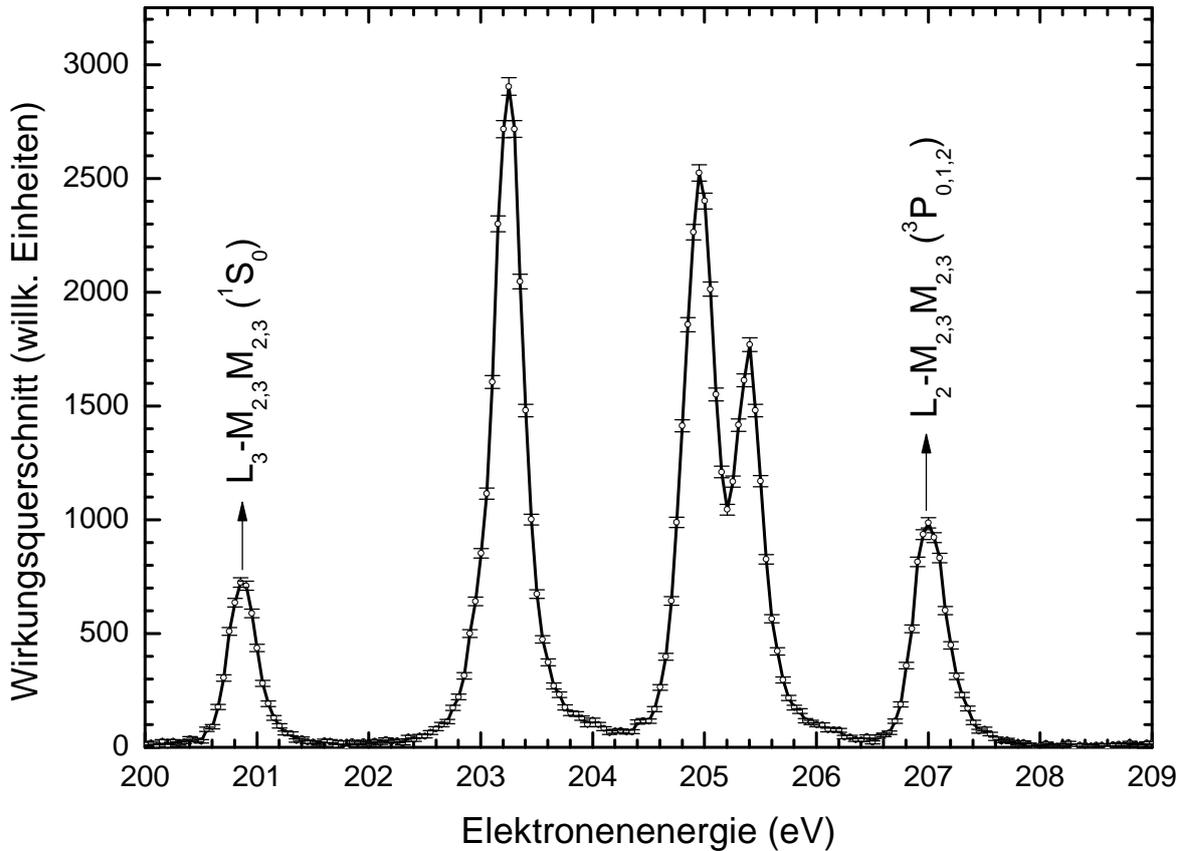


**Abbildung 4.11:** a) Zusammenhang zwischen der Geschwindigkeit der emittierten Elektronen im Labor- und im Emittersystem.  $\vec{u}$  ist die Ionengeschwindigkeit,  $\vec{v}_L$  die Geschwindigkeit der Augerelektronen im Labor- und  $\vec{v}_E$  die Geschwindigkeit im Emittersystem. Zu beachten ist, dass der Emissionswinkel relativ zur Geschwindigkeit des Ions in beiden Systemen verschieden ist. b) Dopplerverbreiterung: Seien A und B zwei Punkte des Wechselwirkungsbereich, der vom Spektrometer abgebildet werden kann. Von diesen Punkten werde nun jeweils ein Elektron gleicher Energie im Emittersystem so emittiert, dass sie den Detektor 1 (rote Pfeile) bzw. 2 (schwarze Pfeile) erreichen. Durch die Verschiedenheit der Emissionswinkel 1 und 2 bzw. 3 und 4 haben Elektronen gleicher Energie im Emittersystem verschiedene Energien im Laborsystem. Der Effekt wird maximal für den Fall, dass Detektor 2 senkrecht zur Projektillachse steht und verschwindet in Vorwärtsrichtung.

denen Winkeln so emittiert, dass sie auf den gleichen Detektor treffen können, haben sie im Laborsystem nach Gl. (4.34) unterschiedliche Energien. Der Effekt ist umso stärker, je größer der Winkel des Detektors relativ zur Strahlachse des Ions ist. Er wird maximal bei  $90^\circ$  und verschwindet in Vorwärtsrichtung. Dies wird in Abb. 4.11b klar, da die Betragsdifferenz der Winkel 1 und 2 größer ist als die der Winkel 3 und 4. Eine ausführliche Diskussion der Dopplerverbreiterung und -verschiebung findet man bei Gleizes et al. (1976).

#### 4.8 Winkelverteilung der $L_3M_{2,3}M_{2,3}$ -Elektronen von Argon

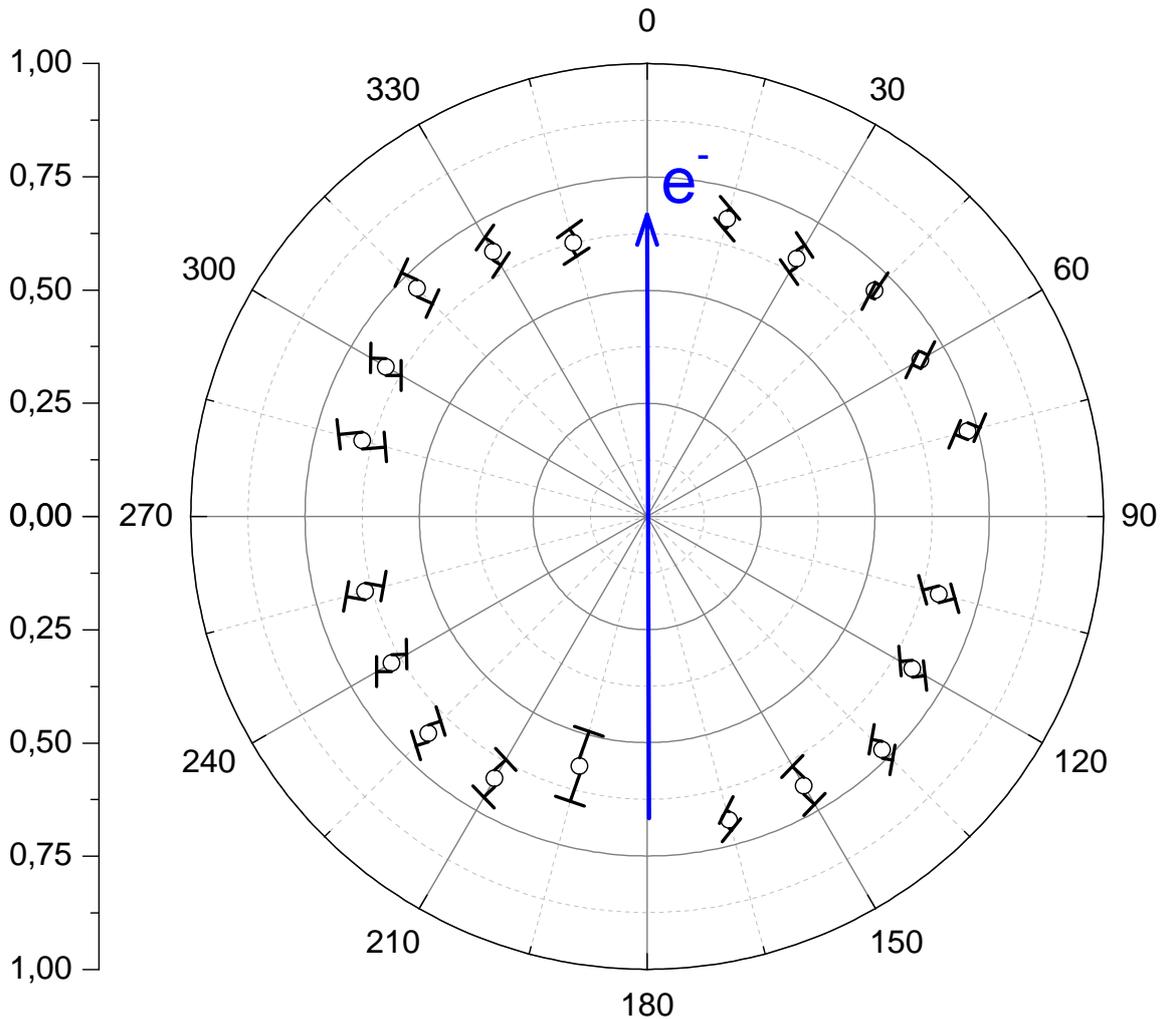
Der bei dieser Arbeit verwendete Spektromertyp wurde ursprünglich für Photon-Atom-Stöße entwickelt und hat sich in einer Reihe von Experimenten an Synchrotronstrahlungsquellen bewährt (Ricz et al., 2010; Ricsoka et al., 2009). In der Wechselwirkungszone des Spektrometers wird dabei ein Gas- mit einem Photonenstrahl gekreuzt und die Winkelabhängigkeit der Photo- und eventuell nachfolgenden Autoionisationselektronen gemessen. Bei diesen Experimenten ist das Target der Elektronenemitter, d.h. kinematische Effekte auf Grund der Bewegung des Projektils sowie Effekte durch nichtaxiale Elektronen treten nicht auf. Um die Funktionsfähigkeit des Spektrometers zu überprüfen und um die optimalen Spektrometerkonstanten zu finden, ist zunächst die Winkelverteilung von Augerelektronen untersucht worden, die von einem Targetgas emittiert wurden. Dazu wurde ein Elektronenstrahl erzeugt, der auf



**Abbildung 4.12:** Argon  $L_{2,3}M_{2,3}M_{2,3}$ -Auger Spektrum. Der  $L_3M_{2,3}M_{2,3}$  ( $^1S_0$ )-Peak wird auf den isotropen  $L_2M_{2,3}M_{2,3}$  ( $^3P_{0,1,2}$ )-Peak normiert, um die Winkelabhängigkeit dieses Übergangs zu erhalten. Die Normierung trägt der Tatsache Rechnung, dass die einzelnen Channeltron-Detektoren über unterschiedliche Ansprechwahrscheinlichkeiten verfügen.

der gleichen Achse wie der Ionenstrahl in das Spektrometer eintritt und mit dem Gastarget kollidiert.

Der  $L_3M_{2,3}M_{2,3}$  ( $^1S_0$ )-Übergang von Argon ist nach Cleff und Mehlhorn (1971) dafür geeignet, eine winkelabhängige Verteilung der Augerelektronen zu beobachten, da die Elektronen in diesem Fall als einfache  $p_{3/2}$ -Welle emittiert werden, was eine einfach zu beschreibende Winkelverteilung zur Folge hat. Emission als einfache Partialwelle ist gleichbedeutend damit, dass der Endzustand des Übergangs einen verschwindenden Gesamtdrehimpuls hat (Cleff und Mehlhorn, 1974). Der Elektronenstrahl wird in einer Elektronenkanone mit Haarnadelfilament erzeugt. Die Energie der Elektronen betrug 5 keV. Bei dieser Energie konnten Ströme von einigen  $\mu\text{A}$  durch die Wechselwirkungszone transportiert werden. Zur Verbesserung der absoluten Energieauflösung wurden alle Elektronen auf eine Durchlassenergie von 50 eV abgebremst. In Abb. 4.12 ist stellvertretend für alle Winkel das Spektrum unter  $15^\circ$



**Abbildung 4.13:** Winkelverteilung der  $L_{2,3}M_{2,3}M_{2,3}$ -Augerelektronen von Argon durch Elektronenstoßionisation. Bei einer primären Elektronenenergie von 5 keV ergibt sich eine isotrope Verteilung der emittierten Elektronen.

gezeigt. Für die Darstellung der Winkelverteilung des  $L_3M_{2,3}M_{2,3}$  ( $^1S_0$ )-Peaks wurde dieser auf den isotropen  $L_2M_{2,3}M_{2,3}$  ( $^3P_{0,1,2}$ )-Peak normiert, um den Einfluss der unterschiedlichen Ansprechwahrscheinlichkeiten der Channeltron-Detektoren zu korrigieren.

Für eine Elektronenenergie von 5 keV erwartet man nach Cleff und Mehlhorn (1971) eine isotrope Verteilung der Augerelektronen, anisotrope Verteilungen beobachtet man bei Elektronenenergien in der Größenordnung von wenigen Vielfachen der Bindungsenergie des  $L_3$ -Elektrons, die bei etwa 248.5 eV liegt. Die normierte Verteilung der  $L_3M_{2,3}M_{2,3}$  ( $^1S_0$ )-Elektronen in Abhängigkeit des Emissionswinkels ist in Abb. 4.13 dargestellt. Die Winkelverteilung ist gemäß den Erwartungen isotrop. Die Spektrometerkonstanten für den sphärischen Teil ergibt sich zu

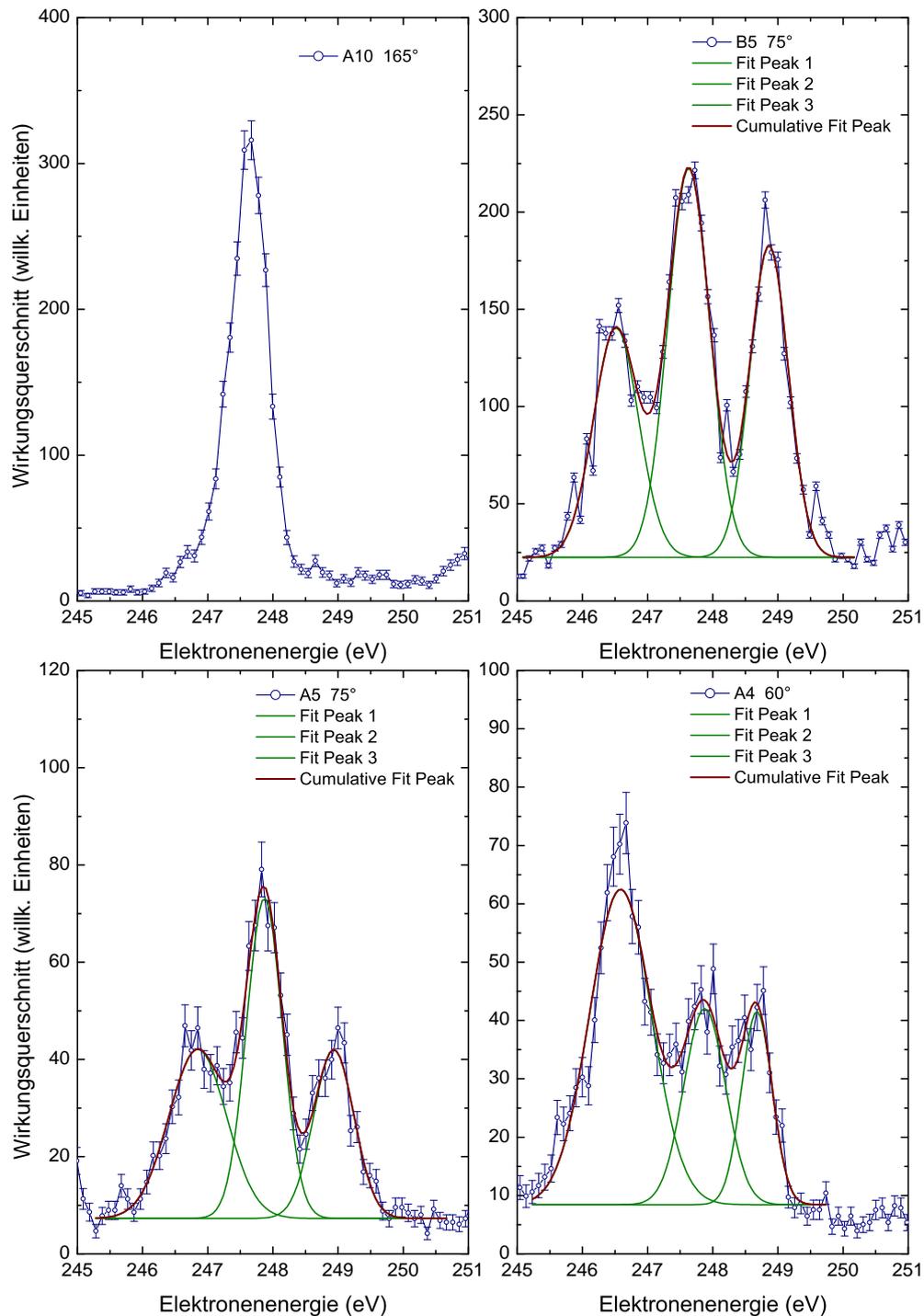
$k_{\text{Sph}} = 0.795$ , für den zylindrischen Teil zu  $k_{\text{Zyl}} = 0.586$ . Die sphärische Konstante lässt sich durch Maximierung der Zählrate, d.h. durch Maximierung der Transmission durch den SMA bestimmen. Für die zylindrische Konstante verwendet man verschiedene Abbremsspannungen und ermittelt, bei welcher Konstanten das Spektrum sich nicht in der Energie verschiebt (siehe dazu auch Holste (2006)).

## 4.9 Messungen mit konstanter Durchlassenergie

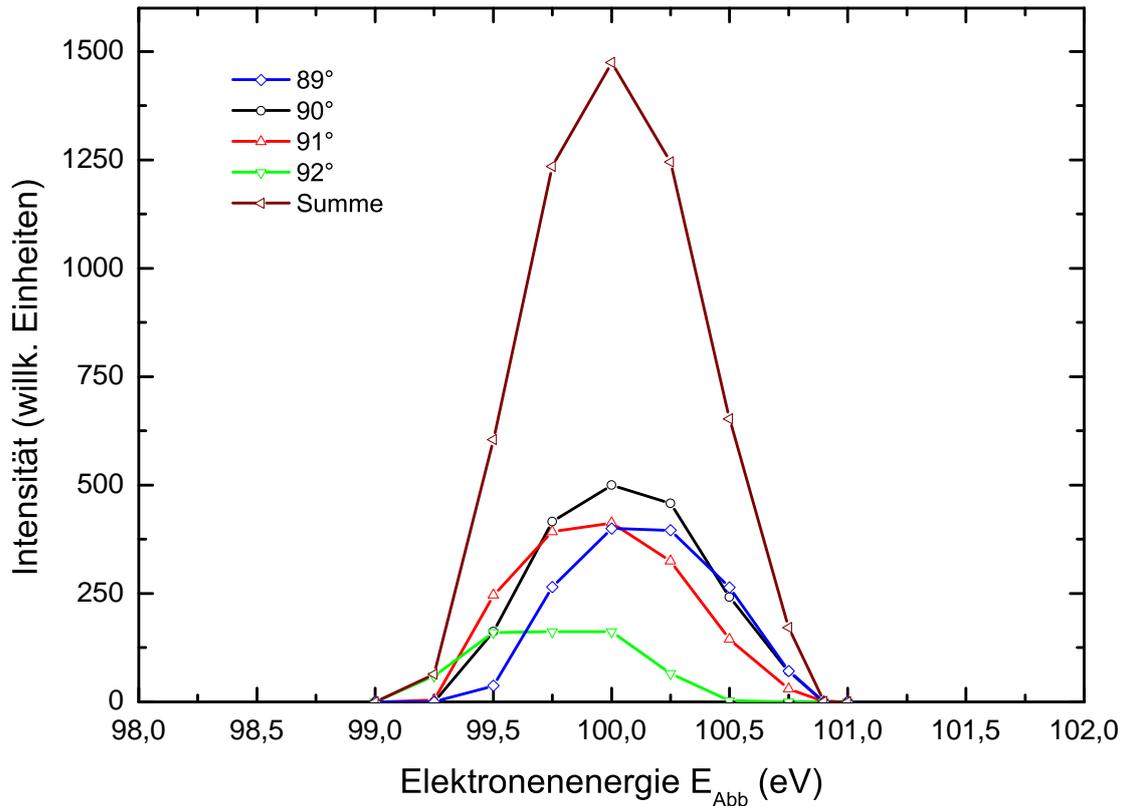
Bei Betrieb des Spektrometers in der Betriebsweise konstanter Durchlassenergie wurde im Fall der Projektil-Autoionisation ein unerwarteter Effekt beobachtet, der in Abb. 4.14 zu sehen ist. Dort ist für das  $\text{C}^{5+} + \text{He}$ -System bei 40 keV Projektilenergie und einer Durchlassenergie von 100 eV stellvertretend die  $1s2p^2 \ ^2\text{S} \rightarrow \ ^1\text{S}_0$ -Resonanz für verschiedene Emissionswinkel dargestellt ( $60^\circ$ ,  $\pm 75^\circ$ ,  $165^\circ$  Laborsystem). Diese Resonanz wurde gewählt, weil sie im Spektrum gut separiert ist, es sich also keine weiteren Resonanzen in unmittelbarer Nähe befinden. Zudem hat dieser Übergang nur eine Komponente. Für den Kanal A10 wird dies bestätigt, die Kanäle A4, A5 und B5 zeigen hingegen eine Multi-Peak-Struktur. Diese zusätzlichen Strukturen sind bei der gemachten Messung bei allen Kanälen und bei allen Resonanzen außer bei  $\pm 15^\circ$  und  $\pm 165^\circ$  zu beobachten, d.h. es muss eine Abhängigkeit vom Emissionswinkel vorliegen.

Messungen mit 50 eV Durchlassenergie sowie für das Stoßsystem  $\text{O}^{7+} + \text{He}$  zeigten das gleiche Verhalten. Werden die Elektronen nur gering abgebremst, tritt dieser Effekt nicht auf, es gibt also eine Einsatzschwelle. Verwendet man Elektronen als Projektil wie in Abschnitt 4.8, kann man bei Abbremsung der Elektronen auf eine konstante Energie vor Eintritt in den SMA diesen Effekt nicht beobachten. Das Spektrum in Abb. 4.12 wurde z.B. mit  $E_p = 50$  eV aufgenommen. Somit kann festgehalten werden, dass dieser Effekt von der Art des Projektils und vom Emissionswinkel abhängt. Auffallend ist zudem, dass alle Multi-Peaks annähernd gleiche Gaussbreiten haben (ca. 1 eV), was in der gleichen Größenordnung mit der Gaussbreite des Peaks im Kanal A10 ist.

Nach Ricz (2011) könnte dieser Effekt auf eine gepulste Struktur des Ionenstrahls zurückzuführen sein, verursacht durch das in der Ionenquelle angekoppelte elektromagnetische Wechselfeld. Die Idee dabei ist, dass es in der vom Spektrometer abgebildeten Wechselwirkungszone, die durch Abbremsung der Elektronen kleiner wird, zu einer inhomogenen Verteilung von Ionen während der einzelnen Messpunkte kommt. Bei der in Abb. 4.14 gezeigten Resonanz, die sich in insgesamt drei Peaks aufteilt, bedeutet dies, dass es drei Zentren hoher Ionenintensität in der Wechselwirkungszone geben muss. Diese emittieren in einen bestimmten Kanal unter verschiedenen Emissionswinkeln. Bei einer homogenen Verteilung von Ionen in dieser Zone würde man eine Verbreiterung der Resonanz durch den Doppler-Effekt beobachten. Bei einer gepulsten Struktur könnte es zu einer Separierung der Emission der einzelnen Bündel kommen.



**Abbildung 4.14:**  $1s2p^2 \ ^2S \rightarrow \ ^1S_0$ -Resonanz bei verschiedenen Emissionswinkeln. Die Energie ist im Emittersystem angegeben. Die angefitzten Gaußskurven besitzen alle annähernd die gleiche Gaußbreite von ca. 1 eV. Sie liegen somit in der gleichen Größenordnung wie die Resonanz im Kanal A10.



**Abbildung 4.15:** *Response*-Funktion des Spektrometers für verschiedene Emissionswinkel  $\delta \pm 0.5^\circ$ . Eine Erklärung der Multi-Peak-Struktur auf Grund einer unterschiedlichen Sensitivität des Spektrometers für verschiedene Emissionswinkel relativ zur Spektrometerachse kann ausgeschlossen werden.

Nach eigener Auffassung sollte eine Bündelung der Ionen zu Paketen jedoch nicht zu diesem Effekt führen, da jedes Paket, das die Wechselwirkungszone durchfliegt im Mittel zu einer homogenen Verteilung der Ionen über diese Zone geführt hat und somit bei vielen durchgeflogenen Paketen dieser Effekt nicht sichtbar sein sollte.

Als weitere Hypothese wurde die unterschiedliche Transmission von Elektronen für verschiedene Emissionswinkel  $\delta$  (siehe Abb. 4.2) relativ zur Spektrometerachse in Betracht gezogen. Um dies zu prüfen, wurde mit dem Programm SIMION die sog. *Response*-Funktion des Spektrometers simuliert. SIMION ist in der Lage, Trajektorien von geladenen Teilchen in elektrischen und magnetischen Feldern durch Lösen der Laplace-Gleichung zu berechnen (Manura und Dahl, 2006). Im Programm wurde ein monoenergetischer Elektronenstrahl mit 100 eV mit einer Ausdehnung von 2 mm von der Wechselwirkungszone unter definierten Emissionswinkeln relativ zur Spektrometerachse ausgesandt. Die Winkelbreite betrug dabei  $\pm 0.5^\circ$ . Simuliert wurde für  $89^\circ$  bis  $92^\circ$  mit jeweils einem Grad Abstand. Die Spannungen am Spektrometer wurden so eingestellt, dass sie unterschiedlichen Energien entsprechen, die zum Detektor gelangen können.

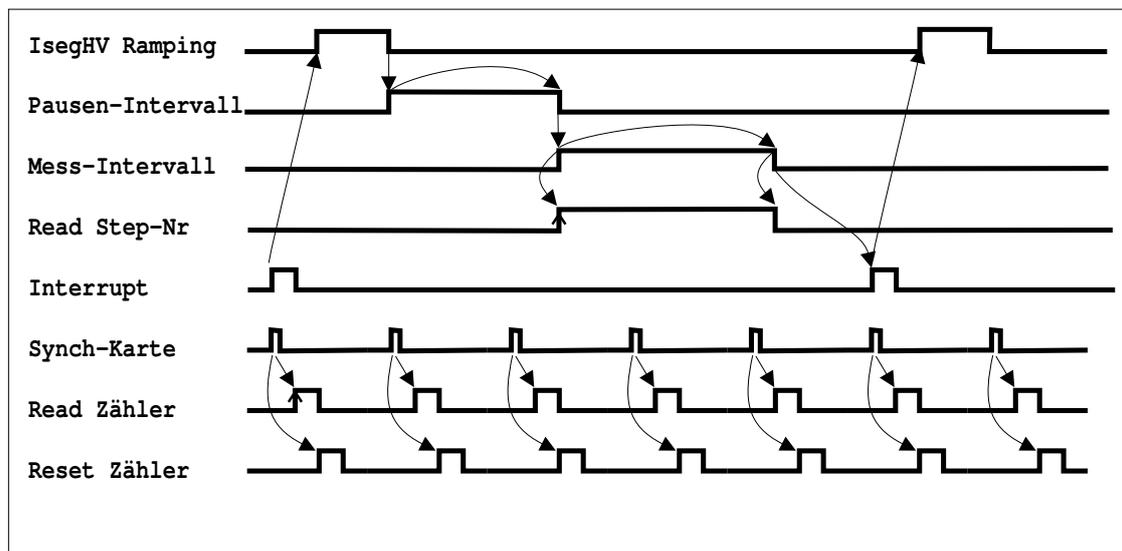
Damit erreicht man eine Abbildung einer scharfen Energie auf einen Energiebereich  $E_{\text{Abb}}$ . Sollte das Spektrometer die auf einen Winkelbereich festgelegten *Response*-Funktionen in ihren Energiepositionen und Intensitäten sehr verschieden abbilden, könnte dies eine Aufspaltung der Resonanz erklären. Wie man Abb. 4.15 jedoch entnehmen kann, liegt eine solche Variabilität nicht vor. Die resultierende *Response*-Funktion zeigt eine gausskurvenförmige Struktur. Eine befriedigende Erklärung konnte bis zur Fertigstellung dieser Arbeit nicht gefunden werden. Sämtliche Messungen wurden daher ohne Abbremsung der Elektronen vor Eintritt in den SMA durchgeführt.

## 5 Datenaufnahme

Im folgenden Kapitel wird die Steuerung des Experiments und die Datenaufnahme unter Benutzung eines Sets von Channeltron-Detektoren erklärt. Die Funktionsweise bei Betrieb mit einem positionsempfindlichen Detektor (*position sensitive detector*, PSD) ist bei Holste (2006) beschrieben. Die Verwendung von CEMs begründet sich in der geringen Untergrundrate. Mikrokanalplatten, die bei PSDs zum Einsatz kommen, haben bei sehr guten Vakuumbedingungen in Chevron-Anordnung nach Wiza (1979) eine Dunkelzählrate von einem Ereignis pro Quadratzentimeter und Sekunde. Bei Drücken höher als  $10^{-6}$  mbar kommt es jedoch zu einem Anstieg dieser Rate. Der Druck in der Spektrometerkammer bei laufender Messung liegt im Bereich von  $2 \cdot 10^{-5}$  mbar. Die Signalraten aus den Ion-Atom-Stößen liegen in der Größenordnung von einigen Signalpulsen pro Sekunde und sind somit vergleichbar mit der Dunkelzählrate.

Die Beschreibung beschränkt sich auf das Messprogramm ESA22xs, das eine Energie-Scan Messung durchführt. Eine Erweiterung dieses Programms zur koinzidenten Messung von Elektronenspektren mittels der *List-Mode* Technik ist als weiteres Messprogramm vorhanden, kam jedoch nicht zum Einsatz. Das Grundprinzip dieses Programms beruht darauf, ein Energieintervall in äquidistanten Schritten abzufahren und dabei auf jeder Energieposition die Ereignisse der CEMs in verschiedenen Kanälen innerhalb eines definierten Zeitintervalls zu zählen. Das Durchlaufen dieses Energieintervalls wird als Zyklus bezeichnet. Die Richtung des Durchlaufens (*up*, *down*, *up-down*) kann gewählt werden, üblicherweise wird von niedriger zu hoher Energie gescannt und bei Erreichen der oberen Grenze wieder vom Startwert begonnen. Bei einer Spannungsauflösung des Iseg-HV-Moduls von 10 mV ist die kleinste einstellbare Schrittbreite 10 meV. Da die in dieser Arbeit gemessenen Peakbreiten in der Größenordnung eV lagen, wurden entsprechend höhere Schrittbreiten verwendet, üblicherweise 0.05-0.2 eV. Neben der Messung der Channeltron-Ereignisse werden Ionenstrom, Gasdruck, Messzeit und die Anzahl der Zyklen für jeden Kanal aufgenommen.

Die Datenaufnahme wird im bewährten *Data-* und *Control-Routing*-Verfahren durchgeführt und von einem VME-Experiment-Rechner gesteuert. Der zeitliche Ablauf einer Messung ist in Abb. 5.1 verdeutlicht, das Zusammenspiel von *Data-* und *Control-Routing* in Abb. 5.2. Der



**Abbildung 5.1:** Zeitliche Regelung der Datenaufnahme mit dem Messprogramm ESA22xs (entnommen aus der Bedienungsanleitung des ESA22xs-Programms).

Zugriff auf den VME-Rechner erfolgt mit einem Terminalprogramm (z.B. DECterm, teraterm usw.). Die Umrechnung der Spektrometerenergie in die Spektrometerspannung geschieht über die Auswahl eines Parametersatzes im Messprogramm. Diese Parametersätze sind in der unter `~/ex_home/ex_param/esa22.par` zu findenden Datei gespeichert. Nähere Informationen zu diesem Parameter-File findet man in Abschnitt 4.5. Dieser umgerechnete Spannungswert wird über einen CAN-Bus an das Iseg-HV-Modul weitergegeben. Das Einschwingverhalten des Iseg wird vom Messprogramm durch entsprechend langes Pausenintervall berücksichtigt. Das Zählen eines Zeittaktsignals sorgt für die Ermittlung der Messzeit. Dieser Taktzähler sowie die Zähler für Ionenstrom, Gasdruck und Messzeit werden mit einem 100 ms Takt ausgelesen (Read-Signal) und gelöscht (Reset Signal). Ein Interrupt-Signal beendet den Messschritt.

Der Ionenstrom wird mit einem Faraday-Cup über ein Amperemeter (Keithley 414A Picoammeter) gemessen. Das Keithley verfügt über einen Analogausgang, der bei Vollausschlag  $\pm 1$  V ausgibt. Diese Spannung wird über einen Spannung-Frequenz-Wandler (VFC, *voltage to frequency converter*) in logische Signale umgewandelt, die im *Data-Routing* gezählt werden (*Count*-Eingang bei Ionenstrom im *Data-Routing* in Abb. 5.2). Die Frequenz, d.h. die Anzahl der logischen Signale ist dabei proportional zum Betrag der Spannung am Analogausgang des Keithley. Die Messung des Drucks in der Spektrometerkammer erfolgt über eine Extraktor-Messröhre, die über ein IONIVAC IM 520 ausgelesen wird. Das IONIVAC verfügt ebenfalls über einen Analogausgang (0.8 bis 10 V). Die ausgegebene Spannung wird über einen VFC

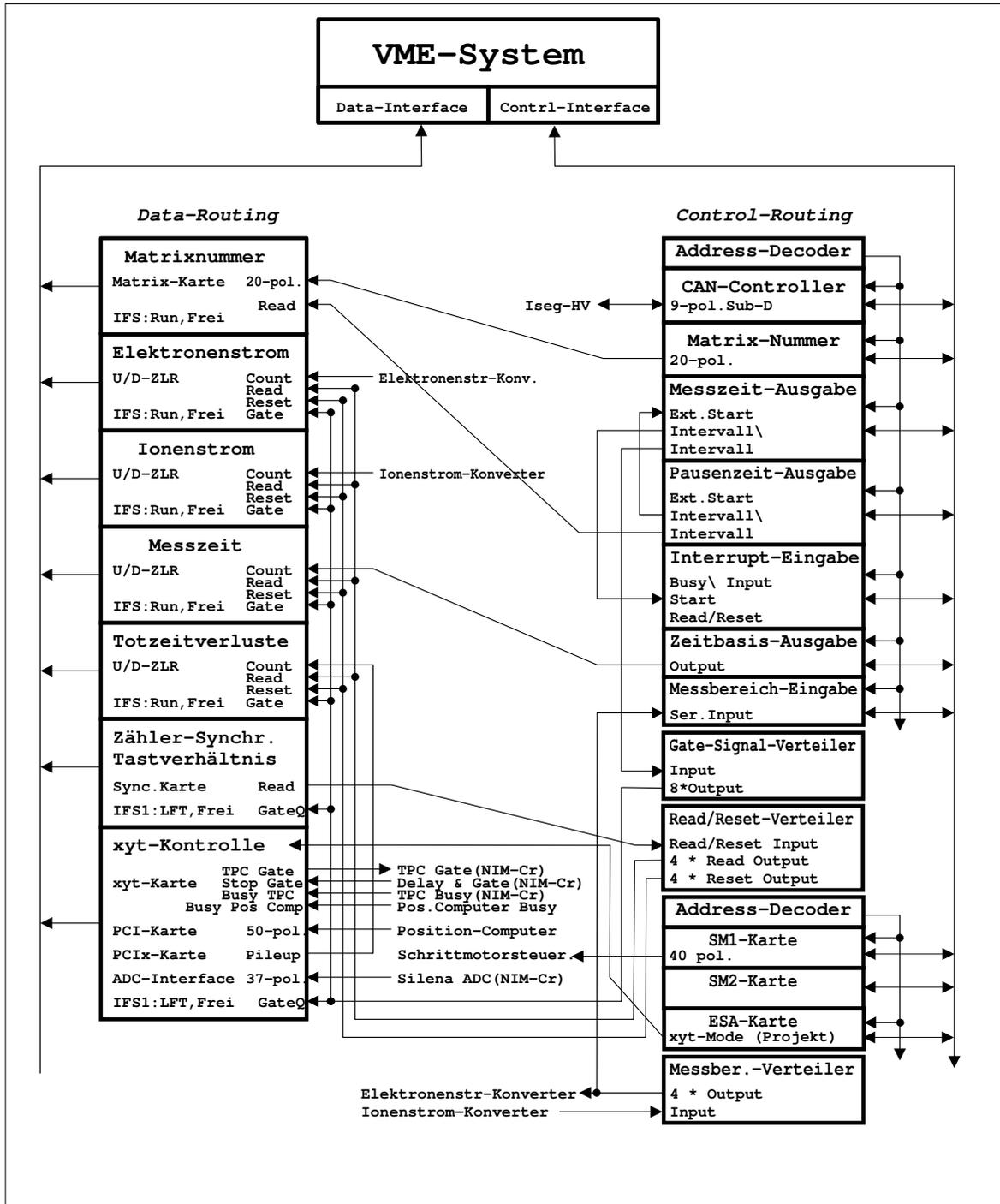
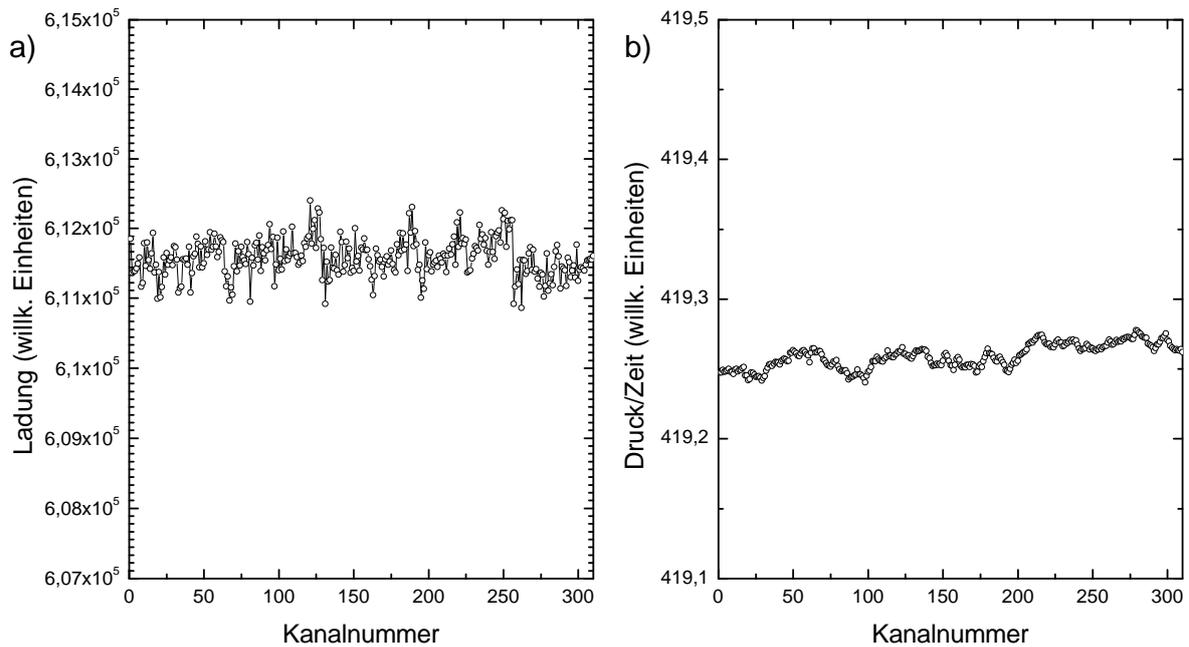


Abbildung 5.2: Data- und Control-Routing (entnommen aus der Bedienungsanleitung des ESA22xs-Programms)



**Abbildung 5.3:** a) Gemessene Pulse, die vom Analogausgang des Keithley über einen VFC an das *Data-Routing* übergeben wurden. Die Anzahl der Ereignisse der Kanäle ist proportional zur detektierten Ladung. b) Normierung der Druckmessung auf die Zeit. Als Zeitsignal wird die vom *Control-Routing* ausgegebene Anzahl von Pulsen pro Kanal der Zeitbasis-Ausgabe verwendet. Ein horizontaler Verlauf dieser Kurve bedeutet, dass der Druck sich während der Messung nicht verändert hat.

an das *Data-Routing* übergeben. Das getaktete Zeitsignal wird direkt vom *Control-* an das *Data-Routing* übergeben.

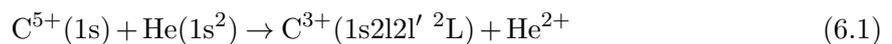
Die Messung von Ladung, Druck und Zeit dient zur Kontrolle der Güte des Experiments (Abb. 5.3)). Die Ladungsmessung kann zudem zur Zeitnormierung verwendet werden. Damit erreicht man, dass Schwankungen des Ionenstroms sich nicht im Spektrum bemerkbar machen. Im Messprogramm kann die Art der Zeitnormierung gewählt werden.

# 6 Ergebnisse

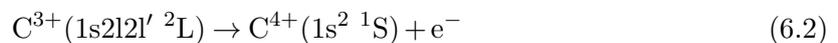
## 6.1 KLL-Autoionisation von $C^{3+}$

### 6.1.1 Doppeleinfang bei Stoß von $C^{5+}$ mit He

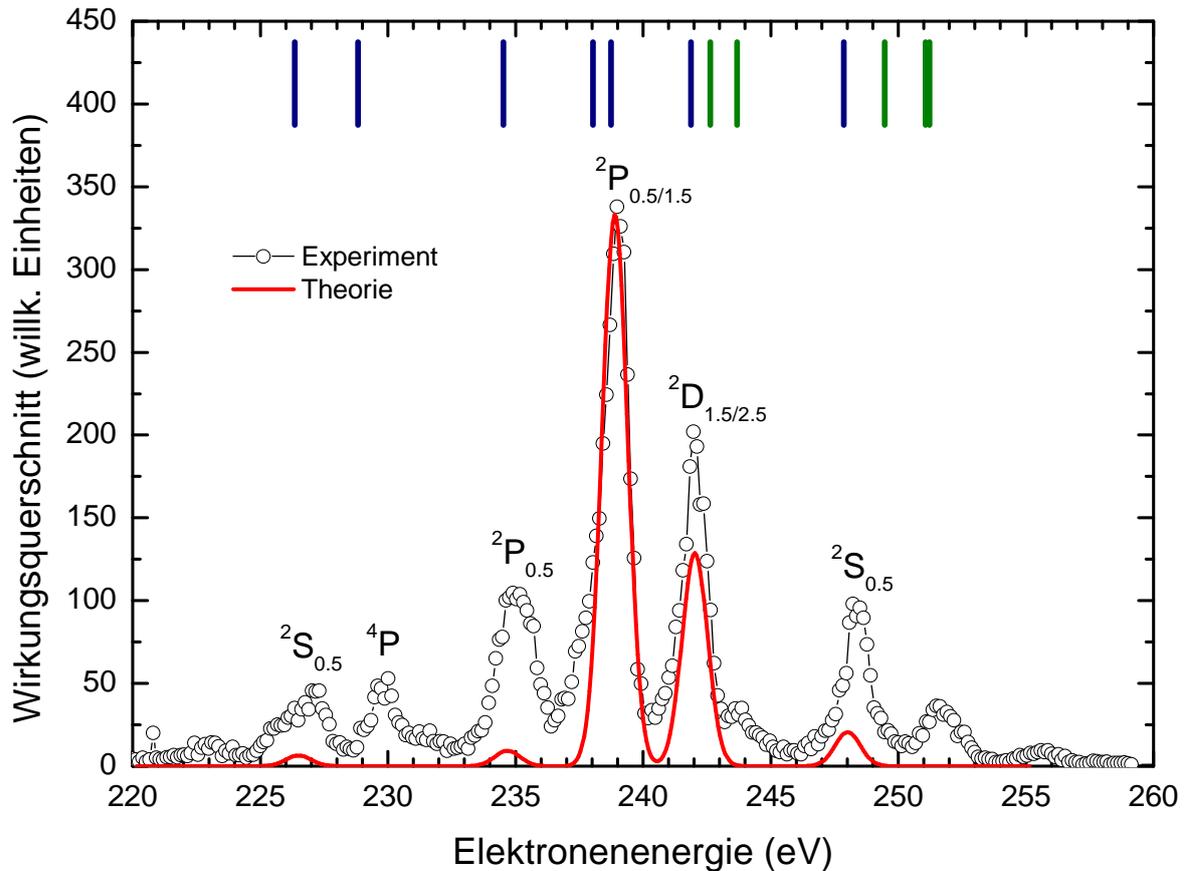
Der erste Teil dieses Kapitels beschäftigt sich mit der Untersuchung der Winkelabhängigkeit von Elektronen, die durch KLL-Autoionisation von doppelt angeregten  $C^{3+}$ -Ionen nach Elektroneneinfang von einem He-Target emittiert werden. Der betrachtete Stoßprozess kann durch folgende Reaktionsgleichung beschrieben werden:



Es werden also zwei Elektronen in die L-Schale eingefangen. Die emittierten Elektronen sind eine Folge des nachfolgenden Auger-Prozesses:



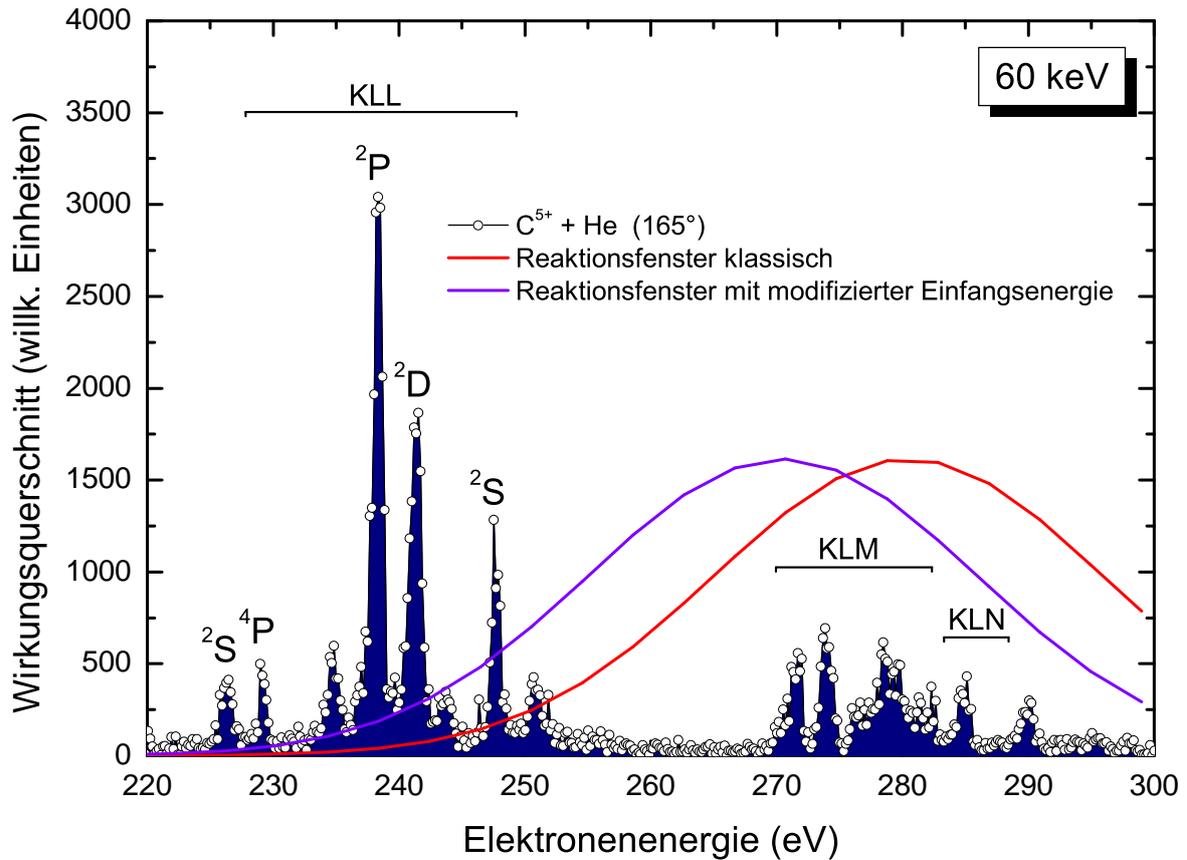
Der Ionenstrahl wird durch zwei Blenden mit jeweils 1 mm Durchmesser in einem Abstand von 9.58 cm kollimiert. Die kollimierten Ionenströme variieren in Abhängigkeit der Ionenenergie von 5 bis 20 nA. Die Energie der Kohlenstoffionen betrug 40 und 60 keV. Der Ionenstrom wurde anfangs in einem Faraday-Cup nach Verlassen des Spektrometers gemessen. Es hat sich gezeigt, dass auf der Wegstrecke zwischen dem ersten Magneten und dem Spektrometer bedingt durch die großen Elektronen-Einfangquerschnitte und der langen Wegstrecke (ca. 2 m) ein signifikanter Anteil der selektierten  $C^{5+}$ -Ionen bereits in niedriger geladene Zustände übergeht. Diese können ebenfalls nach einem Doppelelektroneneinfang durch Autoionisation zerfallen, jedoch liegt der Energiebereich außerhalb des interessierenden KLL-Bereichs. Eine Ausnahme bilden  $C^{4+}$ -Ionen, die nach Einfang eines Elektrons in ein  $C^{5+}$ -Ion in einem metastabilen  $1s2s \ ^1,3S$ -Zustand vorliegen. Da die umgeladenen Ionen ebenfalls in dem Faraday-Cup einen Beitrag zum Ionenstrom leisten, wurde in den nachfolgenden Messungen mit dem zweiten Magneten der  $C^{5+}$ -Strahl selektiert und in einem nachfolgenden Faraday-Cup für die Zeitnormierung verwendet. Da der Druck zwischen dem ersten Magneten und dem Spektrometer als Folge des Gaseinlasses über die Gasdüse deutlich ansteigt, wurde für zukünftige Messungen



**Abbildung 6.1:** KLL-Spektrum des Auger-Zerfalls von  $C^{3+}$  bei  $15^\circ$  nach Einfang zweier Elektronen in  $1s2l2l'$  Niveaus durch Kollision von  $60\text{ keV } C^{5+}$  mit He. Die Position der Resonanzen des KLL-Bereichs (blaue Striche) wurde mit dem LANL-Code (s. Text) berechnet, eine Auflistung der Resonanzen findet man in Tab. 6.1. Die grünen Striche stehen für Resonanzen berylliumartiger Zerfälle ( $C^{2+}(1s2s^22p : 1s2s2p^2 : 1s2p^3) \rightarrow C^{3+}(1s^22p)$ ). Der  $^4P$ -Übergang kann als Indikator dafür gewertet werden, ob Einfachkollisionen mit Doppeleinfang oder Zweifachkollisionen mit Einfacheinfang dominieren. Auf Grund der Spinerhaltung und des verschwindenden Gesamtspins im Heliumatom, kann der  $^4P$ -Zustand nur dann gebildet werden, wenn zwei Elektronen gleichen Spins eingefangen werden, was im Falle eines He-Targets nur bei zwei unabhängigen Kollisionen möglich ist. Das theoretische Autoionisationsspektrum ist auf Grundlage der durch den LANL-Code berechneten Resonanzpositionen und Zerfallsraten bestimmt worden, wobei radiative Zerfälle der angeregten Zustände nicht berücksichtigt wurden.

ein differentielles Pumpsystem vor dem Eintritt in die Spektrometerkammer installiert.

Der Wirkungsquerschnitt für den Einfang von zwei Elektronen innerhalb eines Stoßprozesses (*one-step-capture*) gemäß Gl. (6.1) nach dem OBM beträgt  $716.9\text{ Mb}$ . Unter der Annahme, dass bei einer Teilchendichte von  $10^{12}\text{ cm}^{-3}$  (s. Abschnitt 3.3) die Targetflächenbelegung in der Wechselwirkungszone (Durchmesser:  $2\text{ mm}$ , Länge in Ionenstrahlrichtung  $3\text{ mm}$ )  $3 \cdot 10^{11}\text{ cm}^{-2}$  beträgt, erhält man eine Reaktionswahrscheinlichkeit von ca.  $2.0 \cdot 10^{-4}$ , was hinreichend klein



**Abbildung 6.2:** Reaktionsfenster für autoionisierende Zustände von doppelt-angeregten  $C^{3+}$  ( $165^\circ$ ), berechnet aus dem OBM. Die Bindungsenergie eines K-Schalen-Elektrons im  $1s^2$ -Zustand wurde mit dem LANL-Code (s. Text) berechnet, sie beträgt 393.54 eV. Das Zentrum der gaußförmigen Verteilung des Fensters liegt somit bei 280.47 eV und entspricht dem Wert von Mack (1987). Ein korrigiertes Reaktionsfenster basierend auf der Einführung eines neuen Reaktionskanals nach Mack (1987) ist ebenfalls dargestellt.

für die Erfüllung der Einzelstoßbedingung ist. Die genannte Teilchendichte wurde über das Nadelventil des Gaseinlaßsystems eingestellt, typischerweise lag der Gasdruck in der Spektrometerkammer bei etwa  $2 - 3 \cdot 10^{-5}$  mbar.

Um den Doppeleinfang innerhalb eines Stoßprozesses sicherzustellen, wurden bei mehreren Gasdrücken KLL-Spektren gemessen. Da ein Einfangprozess (doppelt oder einfach) bei niedrigen Targetdichten proportional zum Gasdruck ist, erwartet man bei einem Doppeleinfang innerhalb eines Stoßprozesses eine lineare Abhängigkeit vom Gasdruck, bei zwei unabhängigen Stoßprozessen mit einem jeweiligen Einfacheinfang eine quadratische Abhängigkeit (siehe Mann (1987)).

Eine Darstellung der relevanten Übergänge des KLL-Spektrums sowie der Energie der ent-

**Tabelle 6.1:** KLL-Übergänge von  $C^{3+}$ . Die Energien und Autoionisationsraten wurden mit dem LANL-Code (s. Text) berechnet. Endzustand ist in allen Fällen  $^1S_0$ .

Anfangszustand	Energie (eV)	Autoionisationsrate ( $s^{-1}$ )
$(1s^1 2S)(2s^2 1S)^2S_{0.5}$	226.35	$8.9717 \cdot 10^{13}$
$(1s^1 2S)(2p^2 3P)^4P_{0.5}$	238.03	$2.7945 \cdot 10^6$
$(1s^1 2S)(2p^2 3P)^2P_{0.5}$	242.32	$3.4668 \cdot 10^7$
$(1s^1 2S)(2p^2 1S)^2S_{0.5}$	247.87	$1.3707 \cdot 10^{13}$
$(1s^1 2S)(2p^2 3P)^4P_{1.5}$	238.04	$1.5600 \cdot 10^8$
$(1s^1 2S)(2p^2 1D)^2D_{1.5}$	241.88	$1.0055 \cdot 10^{14}$
$(1s^1 2S)(2p^2 3P)^2P_{1.5}$	242.34	$5.7062 \cdot 10^{10}$
$(1s^1 2S)(2p^2 3P)^4P_{2.5}$	238.05	$9.5255 \cdot 10^8$
$(1s^1 2S)(2p^2 1D)^2D_{2.5}$	241.88	$1.0061 \cdot 10^{14}$
$(1s^1 2S)(2s^1 2S)^3S(2p^1 2P)^4P_{0.5}$	228.82	$1.4805 \cdot 10^7$
$(1s^1 2S)(2s^1 2S)^1S(2p^1 2P)^2P_{0.5}$	234.52	$9.5702 \cdot 10^{12}$
$(1s^1 2S)(2s^1 2S)^3S(2p^1 2P)^2P_{0.5}$	238.74	$5.5761 \cdot 10^{13}$
$(1s^1 2S)(2s^1 2S)^3S(2p^1 2P)^4P_{1.5}$	228.83	$3.7172 \cdot 10^7$
$(1s^1 2S)(2s^1 2S)^1S(2p^1 2P)^2P_{1.5}$	234.53	$9.3828 \cdot 10^{12}$
$(1s^1 2S)(2s^1 2S)^3S(2p^1 2P)^2P_{1.5}$	238.75	$5.5948 \cdot 10^{13}$

sprechenden Auger-Elektronen findet man in Tab. 6.1. Bedingt durch den antiparallelen Spin der eingefangenen Elektronen beobachtet man hauptsächlich Doublett-Übergänge. Prior und Khemliche (1997) führen die Bevölkung von Zuständen mit parallelem Spin auf eine Kopplung von  $2s2p^3P$ - und  $^1P$ -Zuständen zurück bzw. auf einen Austausch der Spinorientierung des  $1s$ -Elektrons mit einem der  $n = 2$ -Elektronen. Die Intensität des  $^4P$ -Übergangs kann nach Mann (1987) auch auf Doppelkollision mit Einfacheinfang zurückgeführt werden. Dies folgt aus der Erhaltung des Elektronenspins beim Elektronentransfer auf das Ion. Beide Elektronen des He-Targets müssen auf Grund des Pauli-Prinzips entgegengesetzten Spin haben. Der  $^4P$ -Zustand kann jedoch nur durch Einfang von zwei Elektronen gleichen Spins gebildet werden, sofern ein Umklappen des Spins beim Transfer (sog. Spin-Flip) ausgeschlossen wird. Beiträge von berylliumartigen Konfigurationen sind nach Mann (1987) ebenfalls möglich.

In Abb. 6.1 ist eine theoretische Abschätzung der Intensitäten der Resonanzen und ein Vergleich zum gemessenen KLL-Spektrum bei einem Emissionswinkel von  $15^\circ$  im Laborsystem dargestellt. Dazu wurde angenommen, dass die Besetzung aller Ausgangszustände mit gleicher Wahrscheinlichkeit erfolgt. Eine statistische Wichtung der Ausgangszustände nach ihrer

Häufigkeit wurde vorgenommen. Für den  $1s2s^2$ -Zustand gibt es nur eine Besetzungsmöglichkeit, für  $1s2p^2$  drei und für  $1s2s2p$  sechs. Diese Besetzungsmöglichkeiten beziehen sich auf den Einfang von zwei Elektronen mit antiparallelem Spin, d.h.  $^4P$ -Zustände sowie solche mit  $^3P$ -Unterschalenkopplung wurden nicht berücksichtigt. Die Intensität der Resonanzen wird proportional zu den Autoionisationsraten gesetzt, welche mit Hilfe des LANL-Codes berechnet wurden (LANL, 2011; Cowan, 1981). Für die Peaks wurde ein Gaußprofil mit konstanter Linienbreite von 1 eV gewählt, was in etwa den Resonanzbreiten im dargestellten Kanal entspricht. Die absolute Höhe des Spektrums wurde o.B.d.A. auf den  $^2P$ -Zustand angepaßt. Der Vergleich zwischen dem experimentellen und dem theoretischen Spektrum zeigt, dass die Lage der Resonanzen und ihre relativen Abstände durch den LANL-Code gut beschrieben werden. Die relativen Intensitäten können durch die gemachten Annahmen in grober Näherung wiedergegeben werden, jedoch wird die Stärke der  $^2S$ -Resonanzen und der niederenergetischen  $^2P$ -Resonanz deutlich unterschätzt. Zudem werden kinematische Effekte nicht berücksichtigt, da durch das *Alignment* die relativen Intensitäten der nicht-isotropen Resonanzen bei verschiedenen Beobachtungswinkeln verschieden sind. Einige Resonanzlagen von berylliumartigen Ausgangszuständen wurden ebenfalls in Abb. 6.1 angegeben (grüne Striche). Diese Lagen treffen sehr gut die unter manchen Beobachtungswinkeln auftretenden zusätzlichen Resonanzen.

Das *over-barrier*-Modell sagt für den String (11) bei Kollision eines fünffach geladenen Ions mit Helium einen bevorzugten Einfang in die L-Schale voraus. Die statischen Parameter dieses Prozesses sind in Tab. 6.2 angegeben. Für die wahrscheinlichste Bindungsenergie des ersten und zweiten eingefangenen Elektrons erhält man 40 eV und 74.08 eV. Zhang et al. (1999) bestätigen diese Voraussage des OBM durch Impulsspektroskopie des Rückstoßions. Demnach ist bei Energien im Bereich 9 bis 90 keV der Einfang in autoionisierende  $(2l2l')$ -Projektilzustände dominant (60% der  $(2l2l')$ -Zustände). Einfänge in  $(3lnl')$ -Zustände mit  $n > 3$  werden erst bei Energien ab 90 keV beobachtet. Kamber et al. (1999) beobachten ebenfalls in diesem Energiebereich einen bevorzugten Einfang in  $(2l2l')$ -Zustände. Besetzungen asymmetrischer Zustände  $(2lnl')$  mit  $n > 2$  spielen erst bei höheren Energien eine Rolle, bei 50 keV/u sind sie der dominante Prozess.

Die Berechnung des Reaktionsfensters durch das OBM zeigt hingegen abweichende Resultate zum Experiment (siehe Abb. 6.2). Eine Berechnung der Bindungsenergie eines  $1s^2$ -Elektrons im einfach angeregten  $C^{4+}$  mit dem LANL-Code ergibt einen Wert von 393.54 eV. Der Mittelpunkt des Fensters folgt durch Abzug der ionischen Bindungsenergien aus dem OBM (Tab. 6.2) und liegt bei 280.47 eV. Das Energiefenster überdeckt den KLL-Bereich nur unwesentlich, jedoch ist - wie bereits erwähnt - die KLL-Autoionisation der dominante Prozess. Mack (1987) hat diese Abweichung ebenfalls gemessen und erklärt sie mit einem weiteren möglichen Reaktionspfad, der auftreten kann: Das erste Elektron geht dabei nicht in einen quasimolekularen Zustand über, sondern bleibt beim Target. Dadurch verkleinert sich der internukleare Abstand  $R_2$  des

**Tabelle 6.2:** Aus dem *over-barrier*-Modell berechnete statische Parameter für die Kollision  $C^{5+} + He$  bei sukzessivem Einfang von zwei Elektronen innerhalb eines Stoßprozesses. Die Parameter sind in Kapitel 2 definiert.  $E_i$  ist die Bindungsenergie der Elektronen im Heliumatom,  $R$  steht für internukleare Abstände zwischen Projektil und Target, bei denen ein Elektron in einen quasimolekularen Zustand übergeht ( $R_{i,max}$ ) bzw. vom Projektil eingefangen wird ( $R_{i,max}^{out}$ ).  $I_i^{qm}$  ist die Bindungsenergie des quasimolekularen Zustands,  $I_i^o$  die des eingefangenen Elektrons im Projektil.

Nr.	String	$E_i$ (eV)	$R_{i,max}$ (a.u.)	$R_{i,max}^{out}$ (a.u.)	$I_i^{qm}$	$I_i^o$
1	1	24.59 <sup>1</sup>	6.06	6.74	47.04	40
2	1	54.42 <sup>1</sup>	4.16	4.16	87.12	74.08

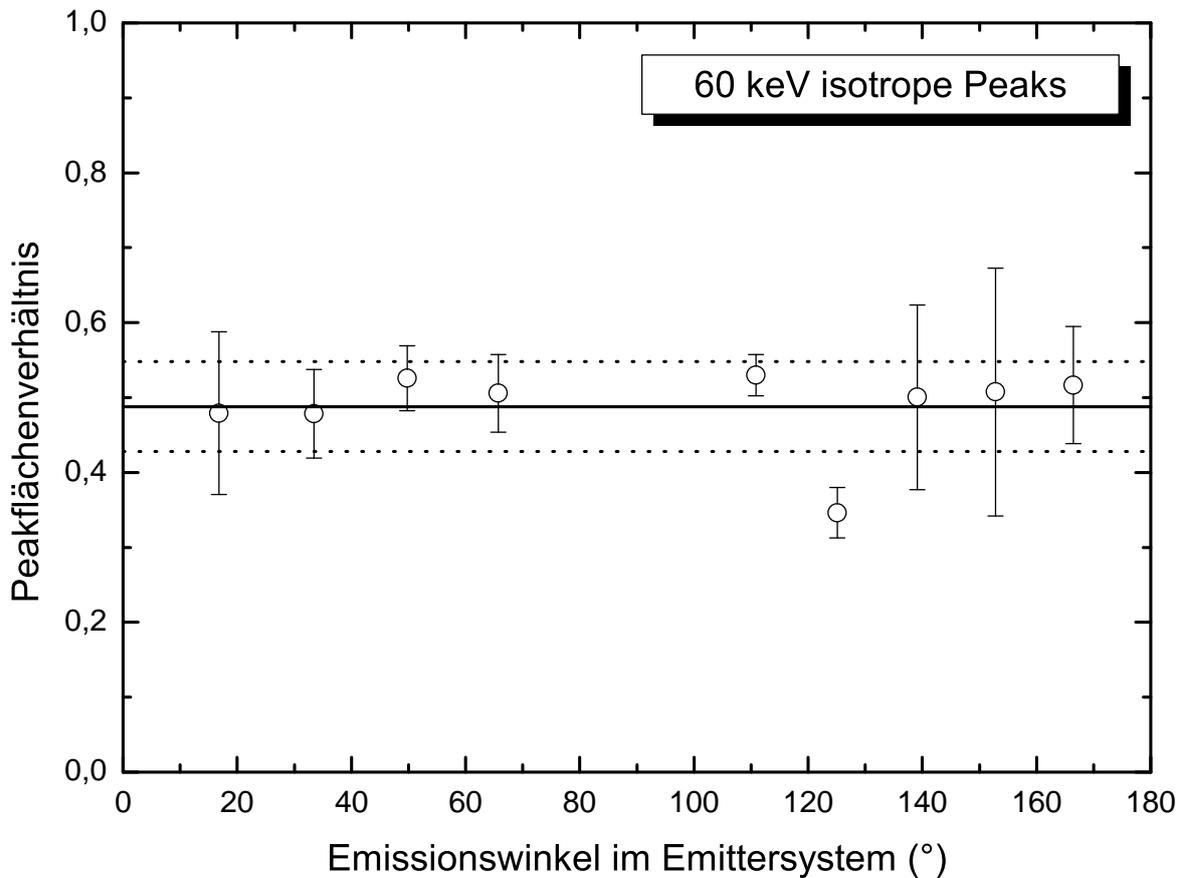
<sup>1</sup> <http://www.nist.gov/pml/data/asd.cfm> (gerundet)

Einfangs des zweiten Elektrons zu  $R_2^*$ . Das zweite Elektron wird daraufhin mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit bei etwas größeren Abständen  $R$  vom Projektil eingefangen. Da das erste Elektron zur Abschirmung des Targets weiterhin beiträgt, erhält man  $R_2^* = 2.74$  a.u. und eine Verschiebung des Energiefensters zu kleinerer Schwerpunktenenergie.

Im KLL-Spektrum gibt es zwei  $^2S$ -Resonanzen mit  $J = 0.5$ . Dies bedeutet, dass sie eine isotrope Verteilung aufweisen müssen. Zudem sind diese Resonanzen durch einen einzigen atomaren Übergang bestimmt. Für die Ermittlung der Winkelverteilung des  $^2P$ -Übergangs bei ca. 238 eV und des  $^2D$ -Übergangs bei 241.88 eV wurden die Intensitäten der Resonanzen auf die Intensität der höherenergetischen isotropen Resonanz normiert. Die Normierung der Intensitäten der isotropen Peaks aufeinander ist in Abb. 6.3 für 60 keV dargestellt, bei 40 keV wurde auf Grund der geringen Intensität des  $1s2s^2$   $^2S$ -Übergangs darauf verzichtet. Der Mittelwert der gemessenen Peakflächenverhältnisse beträgt 0,488 bei einer Standardabweichung von 0.06. Beide Größen sind ebenfalls in der Abbildung eingezeichnet. Wie erwartet erhält man im Rahmen der Messgenauigkeit ein konstantes Verhältnis. Die Ursache der Abweichung der normierten Intensität beim Emissionswinkel  $125.1^\circ$  im Emittersystem konnte nicht eindeutig ermittelt werden. Da bei den Messungen mit  $C^{5+}$  in einigen Spektren zusätzliche Peaks mit hoher Intensität zu sehen sind, deren Ursache unklar ist, wird dies auf eine entsprechende Beimischung zur Gesamtintensität eines einzelnen Übergangs zurückgeführt.<sup>1</sup>

Eine weitere mögliche Erklärung dieser zusätzlich auftretenden Peaks ist, dass berylliumartige Zustände gebildet werden und über Autoionisation zerfallen. So kann z.B. zwischen ersten Magnet und Spektrometer durch Wechselwirkung von  $C^{5+}$  mit dem Restgas der metastabile  $1s2s$   $^3S$ -Zustand von  $C^{4+}$  gebildet werden, der dann durch einen Doppeleinfang in der Wechselwirkungszone mit dem Gastarget in einen  $1s^22p$ -Zustand zerfällt. Die Lebensdauer

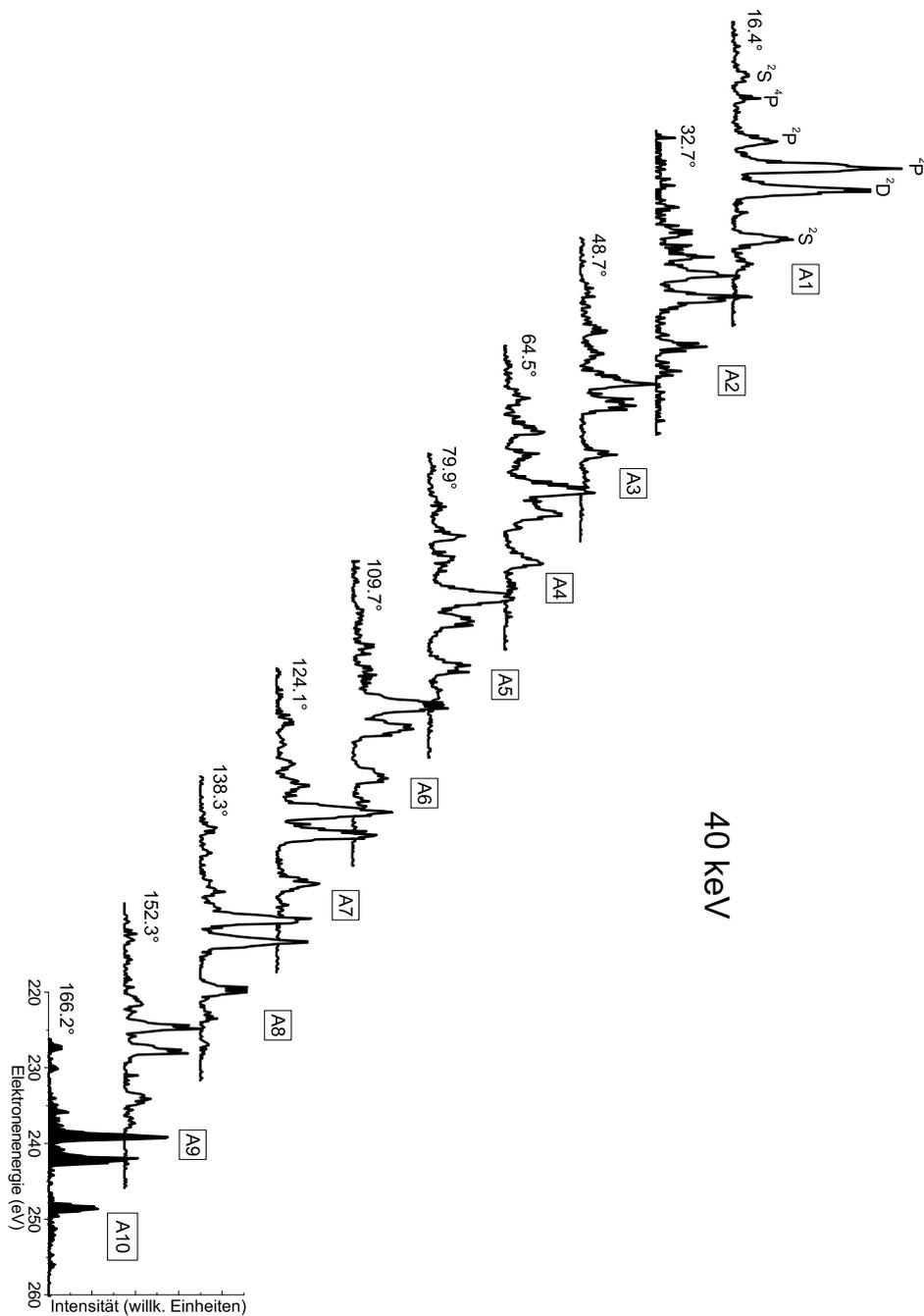
<sup>1</sup>Bei den Kohlenstoffmessungen sind diese zusätzlichen Resonanzen nur bei einigen Beobachtungswinkeln aufgetreten. Hinzu kam, dass sie nicht symmetrisch bzgl. der Ionenstrahlachse aufgetreten sind. Diese zusätzlichen Resonanzen sind nicht zu verwechseln mit der Multi-Peak-Struktur, die beim Abbremsen der Elektronen vor Eintritt in den Analysator auftritt.



**Abbildung 6.3:** Normierte Intensitätsverteilung der beiden isotropen KLL-Resonanzen bei 60 keV Ionenenergie für die verschiedenen Emissionswinkel. Die Normierung wurde durch Bildung des Verhältnisses der Intensität der  $1s2s^2 \ ^2S$ - und  $1s2p^2 \ ^2S$ -Resonanz durchgeführt. Die durchgezogene Linie steht für den Mittelwert der normierten Intensität bei 0.488, die gepunktete Linie für die Standardabweichung von 0.06. Beide Resonanzen müssen unter verschiedenen Emissionswinkeln immer das gleiche Intensitätsverhältnis aufweisen, was mit der experimentellen Beobachtung übereinstimmt.

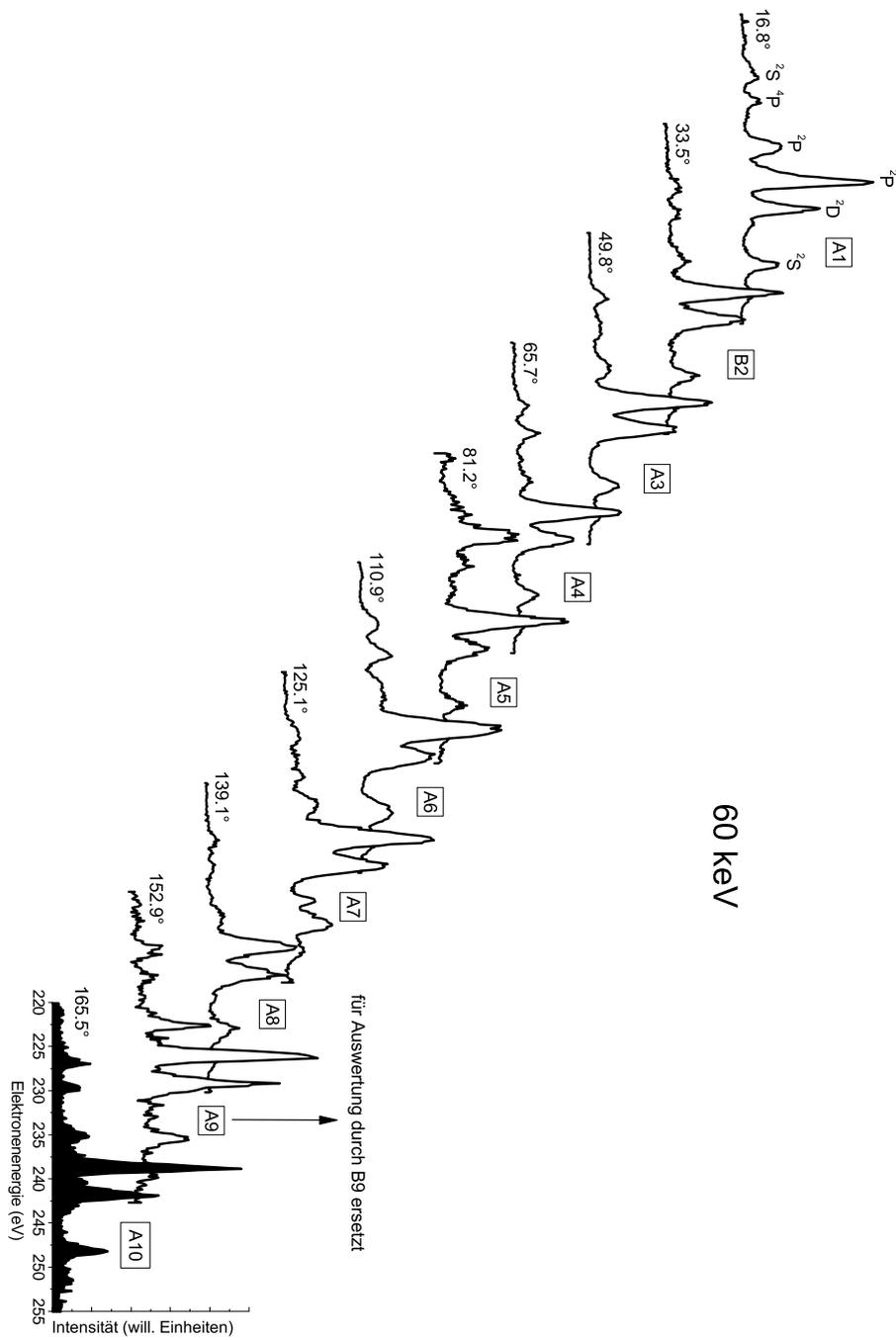
dieses metastabilen Zustands beträgt nach Mack (1987) 20.5 ms. Auger-Energien dieser berylliumartigen Zustände, die sich mit dem KLL-Zerfall der lithiumartigen Zustände überdecken können, liegen nach Mack (1987) zwischen 235.02 und 243.02 eV. Der  $(1s(2s2p^2)^2P)^3P \rightarrow 1s^22p$ -Zustand liegt bei 248.80 eV und dementsprechend nahe beim  $^2S$ -Zustand bei 247.87 eV, was bei schlechterer Auflösung z.B. bei Emissionswinkeln nahe  $90^\circ$  zu Vermischungen führen kann.

In Abb. 6.4 sind die für die Auswertung verwendeten KLL-Spektren in Abhängigkeit des Emissionswinkels im Emittersystem für 40 keV dargestellt, in Abb. 6.5 für 60 keV. Die Schrittbreite der Messung betrug 0.15 eV, die Messzeit wurde auf den Ionenstrom normiert, so dass für jeden Messpunkt die gleiche Anzahl von Primärionen beiträgt. Typische Messzeiten pro Kanal liegen im Bereich einiger Sekunden, um ein möglichst großes Tastverhältnis (*duty cycle*) zu



**Abbildung 6.4:** KLL-Autoionisation von  $C^{3+}$  bei 40 keV. Die angegebenen Winkel sind die Emissionswinkel im Emittersystem. Die Benennungen A1, ..., A10 stehen für die verwendeten CEMs (A bedeutet, dass die rechte Hälfte der Detektoren bzgl. der Achse des Ionenstrahls verwendet wurde).

erhalten.



**Abbildung 6.5:** KLL-Autoionisation von  $C^{3+}$  bei 60 keV. Die angegebenen Winkel sind die Emissionswinkel im Emittersystem.

### 6.1.2 Bestimmung der Anisotropie-Koeffizienten für 40 keV C<sup>5+</sup>-Ionen nach Zwei-Elektroneneinfang von He

Die KLL-Übergänge stellen eine wichtige Klasse von Übergängen dar, da der Endzustand des Ions durch  $L = 0$  gekennzeichnet ist. Die gesamte Information über die anisotrope Besetzung der magnetischen Unterzustände ist daher in den Emissionsprodukten enthalten. Im quantenmechanischen Bild bedeutet dies, dass das emittierte Elektron durch eine und nur eine Partialwelle beschrieben wird, dadurch die Abhängigkeit der Winkelverteilung von den Verhältnissen der Zerfallsamplituden verschwindet (Berezhko und Kabachnik, 1977).

Die normierten Peakflächen des <sup>2</sup>P- und des <sup>2</sup>D-Übergangs sind in Abb. 6.6 als Funktion des Kosinus des Emissionswinkels im Emittersystem dargestellt, eine tabellarische Übersicht der Peakflächen und -breiten der relevanten Übergänge findet man in Tab. 6.3. Der Emissionswinkel  $\vartheta_E$  im Emittersystem ergibt sich aus:

$$\vartheta_E = \arcsin \left( \sqrt{\frac{E_L}{E_E}} \cdot \sin(\vartheta_L) \right) \quad (6.3)$$

Dabei steht  $\vartheta_L$  für den Emissionswinkel im Laborsystem,  $E_E$  für die Emissionsenergie im Emittier- und  $E_L$  für die Emissionsenergie im Laborsystem. Die Intensität  $I(\vartheta_E)$  als Funktion des Polarwinkels wird beschrieben durch:

$$I(\vartheta_E) = C \cdot \left( 1 + \sum_{k \text{ gerade}} D_k \cdot A_k P_k(\cos \vartheta_E) \right) \quad (6.4)$$

Die Indizes der Anisotropie-Koeffizienten  $A_k$  können nur gerade Werte annehmen. Dies ist nach Kabachnik und Sazhina (1990) eine Folge der Paritätserhaltung während des Auger-Prozesses und drückt sich darin aus, dass der Rang des Tensors, der die orbitale Bewegung der Elektronen beschreibt, gerade sein muss. Für den in Abb. 6.6 dargestellten Übergang erhält man nur einen einzigen Beitrag für  $k = 2$ . Nach Mehlhorn und Taulbjerg (1980) kommt es bedingt durch Feinstrukturwechselwirkung zu einer Mischung von  $M_L$ -Unterzuständen in der Zeit zwischen dem Stoßprozess und dem Auger-Zerfall. Die Anisotropie-Koeffizienten sind daher mit sog. Depolarisationsfaktoren  $D_k$  zu korrigieren. Nach Holt et al. (1991) beträgt dieser Faktor für den <sup>2</sup>P-Zustand  $D_2 = 0.9637$ , für den <sup>2</sup>D-Zustand  $D_2 = 0.9863$  sowie  $D_4 = 0.9544$ . Mit diesen Korrekturfaktoren ergibt sich durch Fit von Gl. (6.4) an die gemessene Winkelverteilung des <sup>2</sup>P-Übergangs ein Anisotropie-Koeffizient von  $A_2 = -0.13 \pm 0.03$  (Abb. 6.6). Für den <sup>2</sup>D-Übergang erhält man Beiträge für  $k = 2$  und  $k = 4$ . Der Fit ergibt hier  $A_2 = 0.43 \pm 0.08$  und  $A_4 = -0.42 \pm 0.07$ .

In beiden Verteilungen wurde ein weiterer Fitparameter  $C$  verwendet, der der Skalierung

**Tabelle 6.3:** Peakflächen und -breiten bei 40 keV für die Detektoren A1 bis A10. Die Fläche ist in willkürlichen Einheiten angegeben, die volle Halbwertsbreite (FWHM, *full width at half maximum*) in Elektronenvolt (eV). Detektoren der B-Seite sind nicht verwendet worden, weil zusätzliche Resonanzen primär auf dieser Seite zu finden waren.

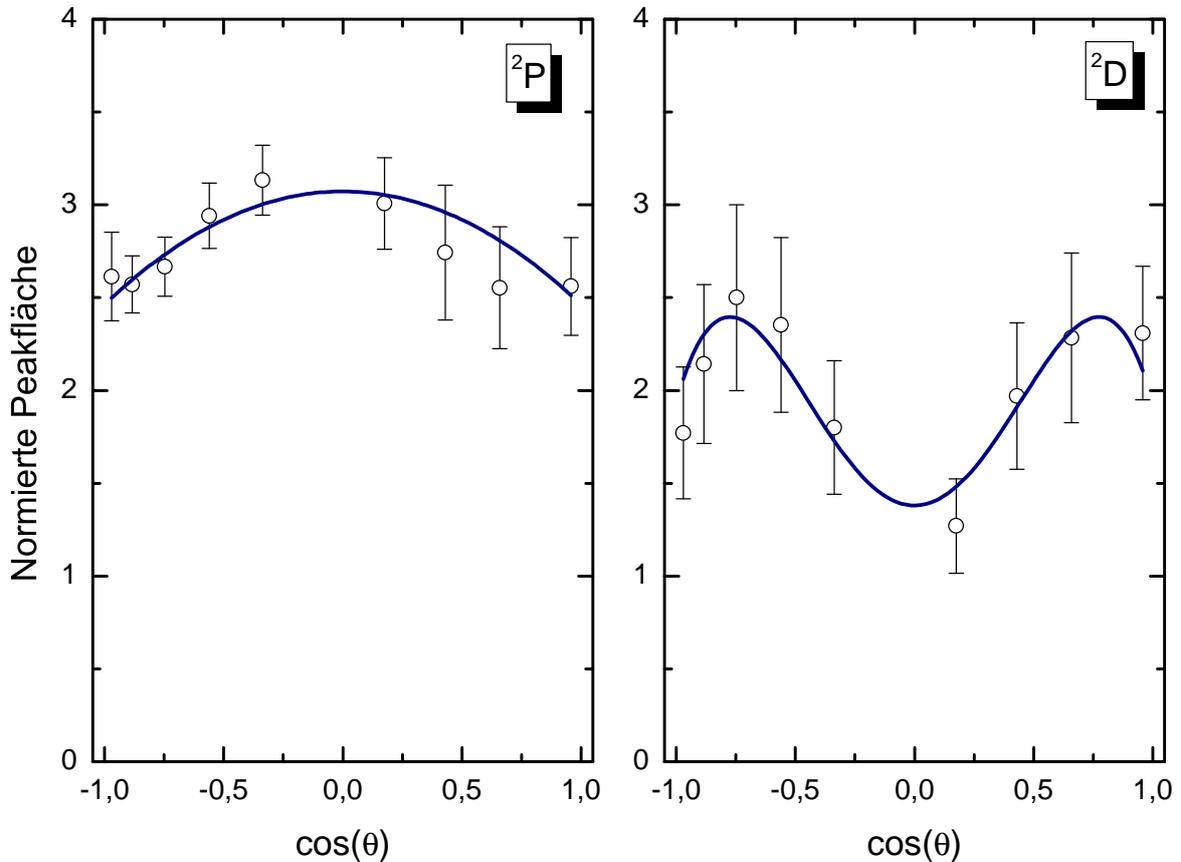
Det.	$^2P$		$^2D$		$^2S$	
	Fläche	FWHM	Fläche	FWHM	Fläche	FWHM
A1	40.17	1.18	36.23	1.25	15.69	1.18
A2	7.22	1.48	—	1.57	—	1.18
A3	21.7	1.55	19.41	1.70	8.5	1.47
A4	32.72	1.80	23.50	1.80	11.93	1.80
A5	55.64	1.80	23.50	1.80	18.50	1.80
A6	47	1.77	27	1.77	15	1.77
A7	50	1.44	40	1.44	17	1.50
A8	32	1.30	30	1.30	12	1.30
A9	18	1.02	15	1.02	7	1.04
A10	34.74	1.01	23.50	1.01	13.29	0.84

der Peakflächen dient (Gl. (6.4)). Nach Prior et al. (1993) kann dieser Faktor durch das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte  $\sigma_L$  und  $\sigma_S$  ausgedrückt werden, d.h.  $C = \sigma_L/\sigma_S$ . Diese Wirkungsquerschnitte beziehen sich auf die Bildung des im Index angegebenen Zustands. Für den  $^2P$ -Zustand erhält man für dieses Verhältnis 2.87(4), für den  $^2D$ -Zustand entsprechend 1.46(2).

### 6.1.3 Bestimmung der Anisotropie-Koeffizienten für 60 keV $C^{5+}$ -Ionen nach Zwei-Elektroneneinfang von He

In Abb. 6.7 sind die normierten Peakflächen als Funktion des Kosinus des Emissionswinkels im Emittersystem dargestellt, eine tabellarische Zusammenfassung der Messdaten findet man in Tab. 6.4. Für die Parameter der angelegten Fitfunktion nach Gl. (6.4) erhält man  $A_2 = -0.14(7)$  für den  $^2P$ -Übergang sowie  $A_2 = 0.38(11)$  und  $A_4 = -0.73(6)$  für den  $^2D$ -Übergang. Für den Parameter  $C$  des  $^2P$ -Zustands erhält man 3.95(6), für  $^2D$  1.47(2).

Wie man Tab. 6.4 entnehmen kann, wurden für die Auswertung teilweise Detektoren der rechten (A) und der linken (B) Seite verwendet. Es hat sich gezeigt, dass Detektor A9 keine brauchbaren Ergebnisse geliefert hat, die normierten Peakflächen waren im Rahmen der Messgenauigkeit signifikant zu klein. Die Ursache dafür ist nicht eindeutig zu klären gewesen, eine Vermutung ist der Beitrag von nicht-axialen Elektronen zur Gesamtpeakfläche des  $^2S$ -Peaks, auf den

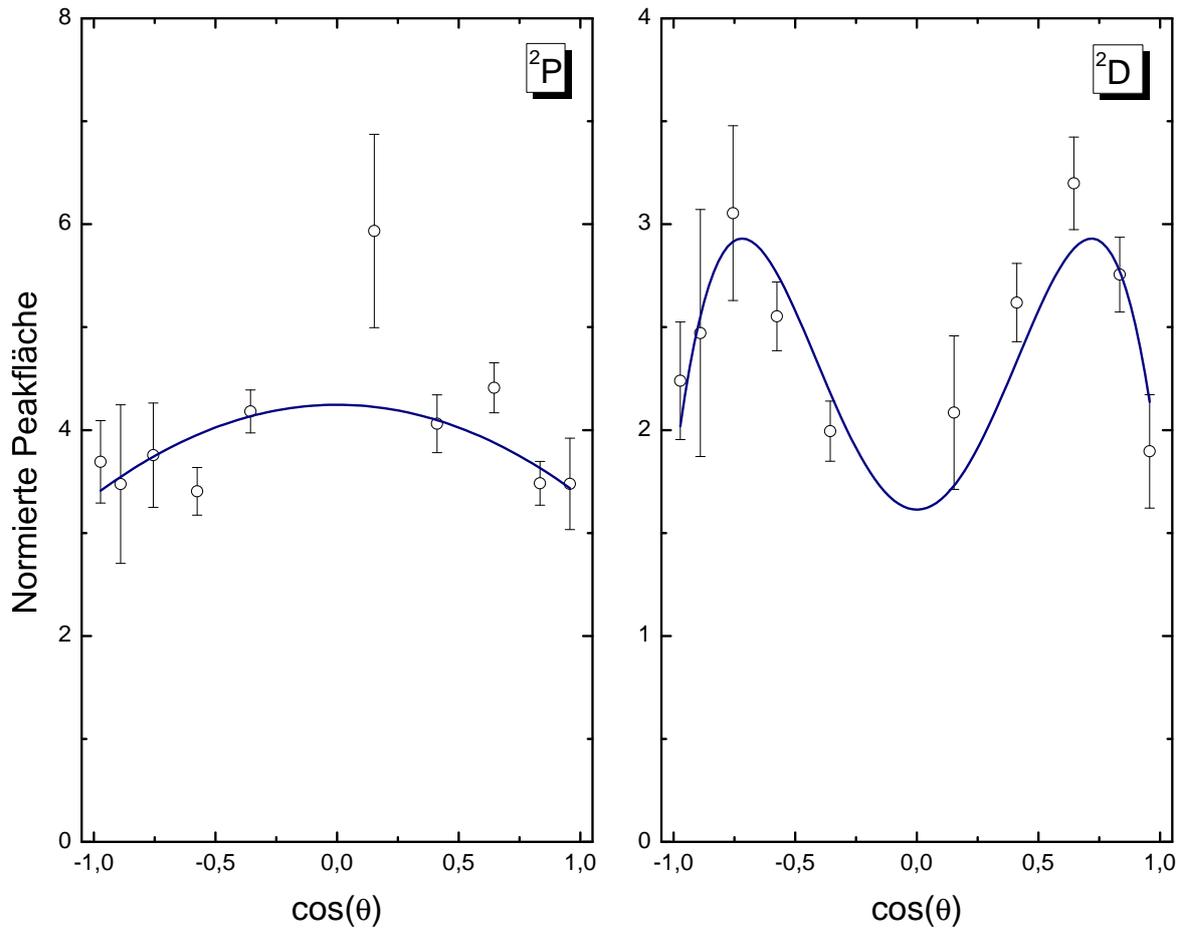


**Abbildung 6.6:** Intensitätsverteilung des  ${}^2P$ - und  ${}^2D$ -Übergangs als Funktion des Kosinus des Emissionswinkels im Emittersystem für 40 keV  $C^{3+}$ -Ionen. Der Anisotropie-Koeffizient  $A_2$  für  ${}^2P$  ergibt sich aus dem *Least-Squares*-Fit zu  $A_2 = -0.13(3)$ . Für  ${}^2D$  erhält man  $A_2 = 0.43 \pm 0.08$  und  $A_4 = -0.42 \pm 0.07$ .

normiert wurde. Die Auswertung der Daten des Detektors B9 lieferte mit den Erwartungen verträgliche Ergebnisse. Es sei an dieser Stelle angemerkt, dass das Auftreten zusätzlicher Peaks in einem bestimmten Kanal auf Grund der Symmetrie des Spektrometers das Auftreten im gegenüberliegenden Kanal (mit gleichem Emissionswinkel) zur Folge haben müßte, was aber auf Grund der unterschiedlichen normierten Peakflächen von B9 und A9 nicht der Fall sein kann. Detektor B2 wurde anstelle A2 verwendet, weil dort eine bessere Statistik vorgelegen hat.

#### 6.1.4 Zusammenfassung und Diskussion

Messungen zur Bestimmung der Anisotropie-Koeffizienten des KLL-Zerfalls von  $C^{3+}$  nach einem Elektronentransfer gemäß Gl. (6.1) für Ionenenergien in der Größenordnung einer atomaren Einheit sind bisher nur von Holt et al. (1991) mittels Elektronenspektroskopie der emittierten Elektronen durchgeführt worden. Die Ergebnisse von Holt et al. (1991) wurden in



**Abbildung 6.7:** Intensitätsverteilung des  ${}^2P$ - und  ${}^2D$ -Übergangs als Funktion des Kosinus des Emissionwinkels im Emittersystem für 60 keV  $C^{3+}$ -Ionen. Die Anisotropie-Koeffizienten ergeben sich durch numerische Anpassung von Gl. (6.4) an die gemessenen Datenpunkte. Man erhält für  $A_2 = -0.14(7)$  für die  ${}^2P$ -Resonanz, sowie  $A_2 = 0.38(11)$  und  $A_4 = -0.73(6)$  für die für  ${}^2D$ -Resonanz.

Prior et al. (1993) mit dem KLL-Zerfall von  $B^{2+}$  verglichen und um einen weiteren Datenpunkt bei 15 keV ergänzt, in Prior und Khemliche (1997) wird eine Erweiterung des Experiments auf Koinzidenzmessung des gestreuten Projektils mit den Augerelektronen diskutiert. Gemessen wurde von Prior et al. (1993) bei Ionenenergien von 75.0, 50.0, 37.5, 20 und 15 keV. Eine graphische Darstellung dieser Anisotropie-Koeffizienten des  ${}^2P$ - und des  ${}^2D$ -Übergangs ist in Abb. 6.8 gegeben, die in der vorliegenden Arbeit ermittelten Koeffizienten sind ebenfalls dort aufgetragen.

Die Anisotropie-Koeffizienten sind mit den Wirkungsquerschnitten der Bevölkerung von  $|L, M_L\rangle$ -Zuständen verknüpft (Holt et al., 1991). Für den P-Zustand ist diese Verknüpfung

**Tabelle 6.4:** Peakflächen und -breiten bei 60 keV für die angegebenen Detektoren. Die Fläche ist in willkürlichen Einheiten angegeben, die volle Halbwertsbreite (FWHM, *full width at half maximum*) in Elektronenvolt (eV).

Det.	<sup>2</sup> P		<sup>2</sup> D		<sup>2</sup> S	
	Fläche	FWHM	Fläche	FWHM	Fläche	FWHM
A1	407.78	1.30	222.41	1.30	117.26	1.05
B2	273.27	1.65	216.16	1.70	78.46	1.72
A3	615.5	1.54	446.38	1.54	139.56	1.54
A4	357.84	1.61	230.76	1.98	88.11	1.93
A5	215.88	1.71	72.54	1.53	36.38	1.53
A6	1607.77	2.38	982.44	2.41	384.51	2.35
A7	698.04	2.35	625.77	2.35	204.97	1.96
A8	374.69	1.71	246.53	1.71	99.77	1.88
B9	59.12	0.82	38.08	0.82	17.01	0.82
A10	183.41	1.06	103.85	1.07	49.83	1.06

gegeben durch:

$$\frac{\sigma_{11}}{\sigma_{10}} = \frac{1 - \frac{A_2}{2}}{1 + A_2} \quad (6.5)$$

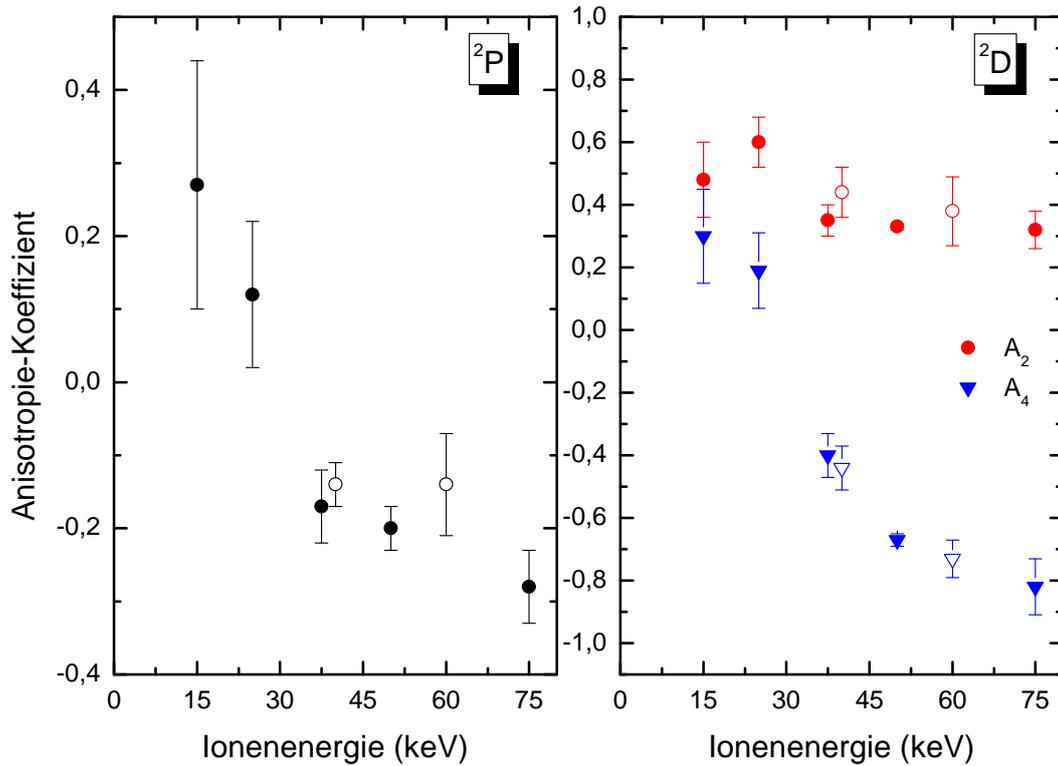
Für D-Resonanzen gilt:

$$\frac{\sigma_{21}}{\sigma_{20}} = \frac{1 + \frac{A_2}{2} - \frac{2A_4}{3}}{1 + A_2 + A_4} \quad (6.6)$$

sowie

$$\frac{\sigma_{21}}{\sigma_{20}} = \frac{1 - A_2 - \frac{A_4}{6}}{1 + A_2 + A_4} \quad (6.7)$$

Daraus lässt sich die Bevölkerung der Zustände mit verschiedenen magnetischen Quantenzahlen einer Resonanz bestimmen. Aus der Beziehung  $\sigma_{10} + \sigma_{11} + \sigma_{1-1} = 100\%$  erhält man die in Abb. 6.9 dargestellte Bevölkerung der  $M_L$ -Niveaus. Die in dieser Arbeit gewonnenen Datenpunkte bestätigen die bevorzugte Bevölkerung von Zuständen mit  $M_L = \pm 1$  bei steigender Projektilenergie im betrachteten Stoßsystem (Prior et al., 1993).

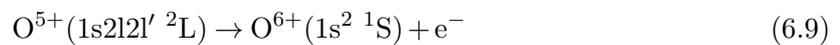
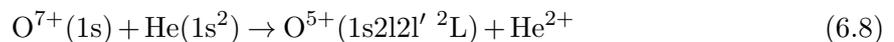


**Abbildung 6.8:** Anisotropie-Koeffizienten des  ${}^2P$ - und  ${}^2D$ -Übergangs. Die ausgefüllten Datenpunkte sind aus Prior et al. (1993) entnommen, die offenen Punkte sind im Rahmen dieser Arbeit ermittelt worden.

## 6.2 KLL-Autoionisation von $O^{5+}$

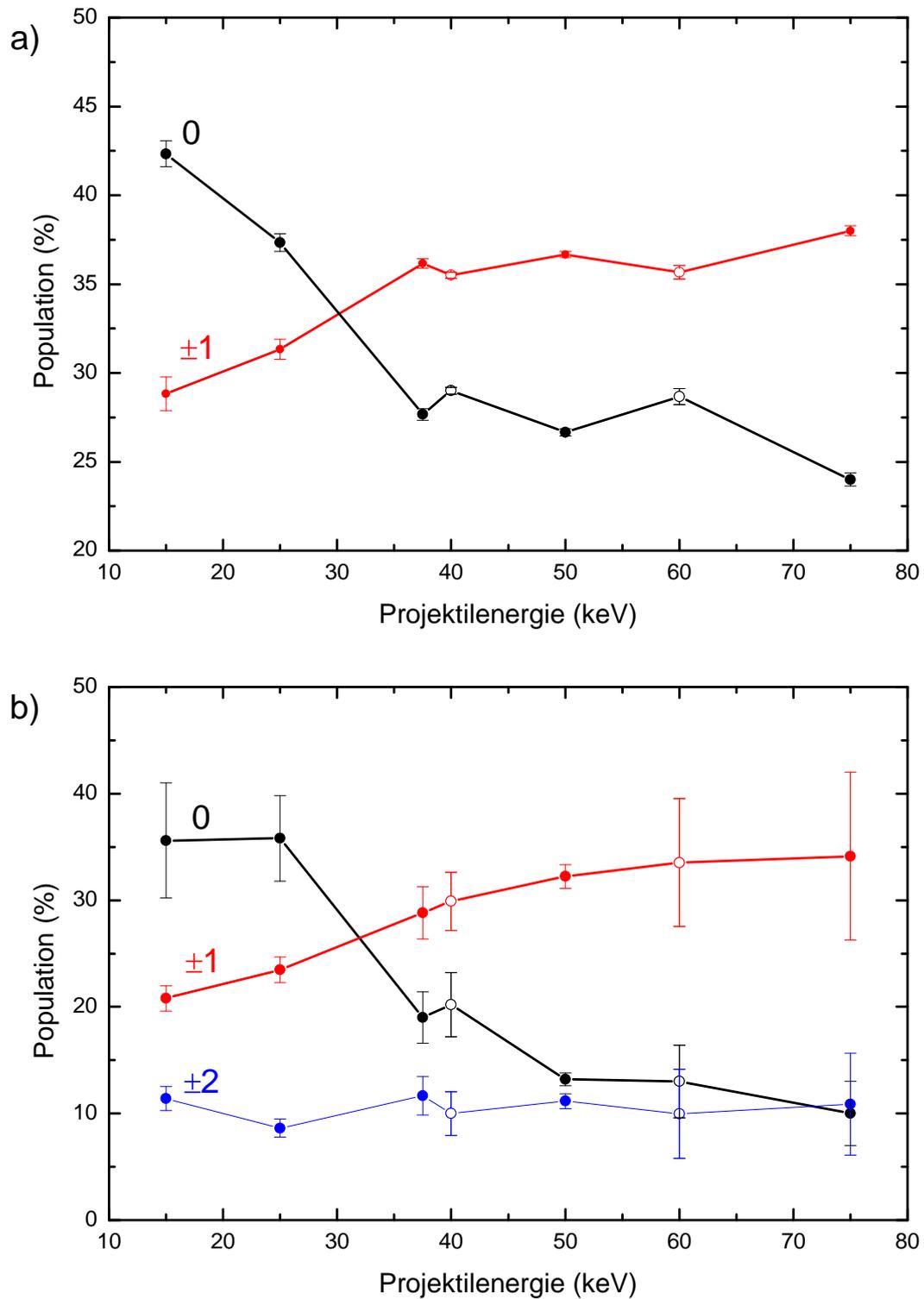
### 6.2.1 Doppeleinfang bei Stoß von $O^{5+}$ mit He

Der in diesem Abschnitt diskutierte Prozess lässt sich in Analogie zu Gl. (6.1) durch folgende Reaktionsgleichungen ausdrücken:

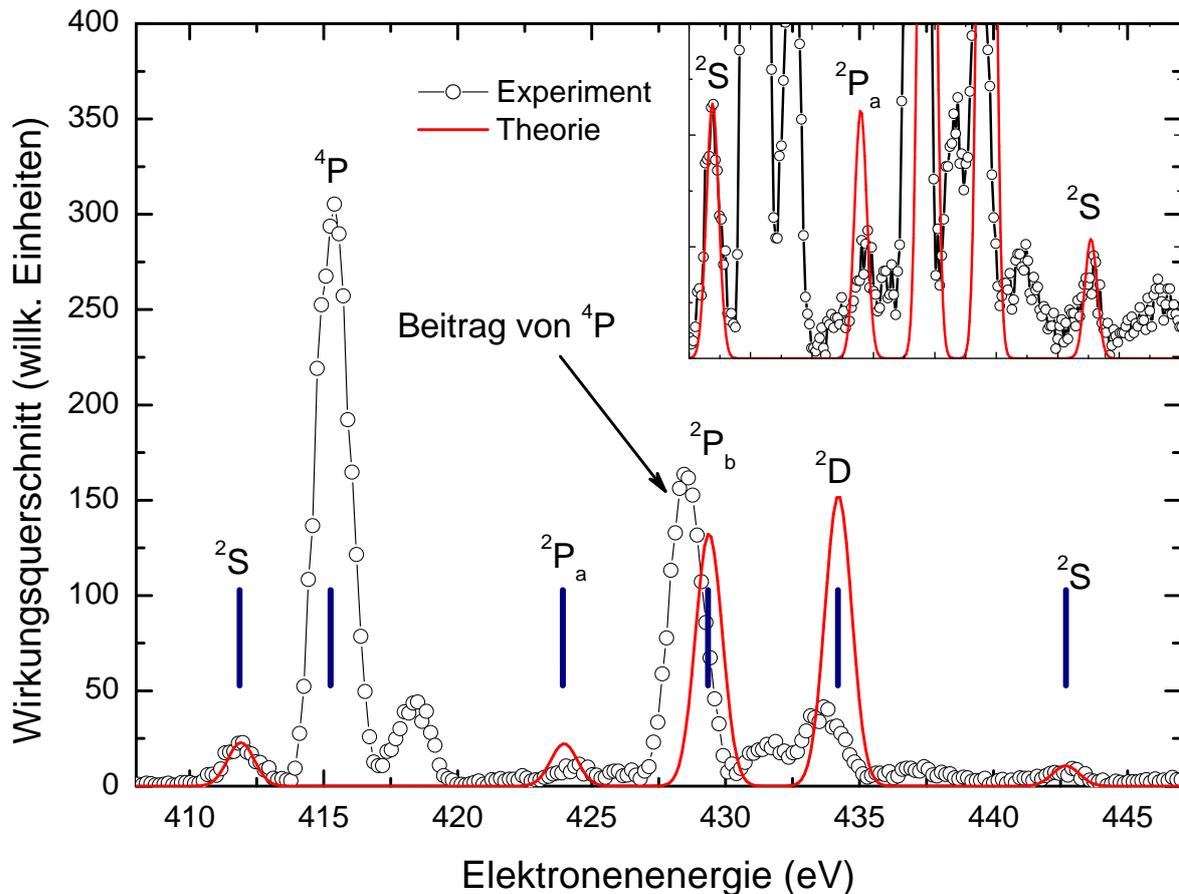


Das  $O^{7+}$ -Ion fängt sich von einem Heliumatom zwei Elektronen in die L-Schale ein und autoionisiert daraufhin. Die Kollimationsbedingungen sind mit denen des vorigen Abschnitts identisch, der Ionenstrom betrug ca. 5 nA.

Die statischen Parameter, die aus dem *over-barrier*-Modell für diesen Stoßprozess errechnet werden, sind in Tab. 6.5 zusammengefasst. Das OBM sagt einen bevorzugten Einfang in die Hauptquantenzahl  $n = 3$  voraus. Die wahrscheinlichste Bindungsenergie des ersten und zweiten



**Abbildung 6.9:**  $M_L$ -Bevölkerung des  $^2P$ - und  $^2D$ -Niveaus. Die Datenpunkte bei 40 und 60 keV sind in dieser Arbeit ermittelt worden (offene Punkte), die anderen aus Holt et al. (1991) entnommen.



**Abbildung 6.10:** KLL-Spektrum des Kanals A10 ( $165^\circ$ ) von  $O^{5+}$  mit theoretischem Spektrum auf Grundlage der Energiepositionen und Autoionisationsraten des LANL-Codes. Das theoretische Spektrum wurde auf die Intensität der niederenergetischen  $^2S$ -Resonanz normiert. Radiative Raten wurden nicht berücksichtigt. Auf Grund der hohen Intensität der niederenergetischen  $^4P$ -Resonanz, liegt die Vermutung nahe, dass die hohe Intensität von  $P_b$  durch einen Beitrag der höherenergetisch gelegenen  $^4P$ -Resonanz verursacht sein könnte.

Elektrons beträgt 44.99 und 83.15 eV. Der Wirkungsquerschnitt für den Einfang von zwei Elektronen innerhalb eines Stoßprozesses beträgt 1106 Mb. Die Wahrscheinlichkeit, dass ein  $O^{7+}$ -Ion in der Wechselwirkungszone über einen Doppeleinfang wechselwirkt, beträgt damit ca.  $3.3 \cdot 10^{-4}$ .

Die Wirkungsquerschnitte für Einzeleinfangreaktionen betragen 407 Mb für den String (10), 356 Mb (01) und 3345 Mb für (1). Die Wahrscheinlichkeit für zwei nacheinander eintredende Stoßprozesse mit Einzeleinfang liegt damit in der Größenordnung von  $10^{-6}$ . In Abb. 6.10 ist das Auger-Spektrum des Kanals A10 ( $165^\circ$  Laborsystem) für eine Projektilenergie von 84 keV gezeigt. Wie man sieht, sind zwei  $^2P$ -Resonanzen zu unterscheiden, die hier mit  $P_a$  und  $P_b$  gekennzeichnet wurden. Bei  $P_b$  hat sich herausgestellt, dass kein zufriedenstellendes

**Tabelle 6.5:** Aus dem *over-barrier*-Modell berechnete statische Parameter für die Kollision  $O^{5+} + He$  bei sukzessiven Einfang von zwei Elektronen innerhalb eines Stoßprozesses. Die Parameter sind in Kapitel 2 definiert.  $E_i$  ist die Bindungsenergie der Elektronen im Heliumatom,  $R$  steht für internukleare Abstände zwischen Projektil und Target, bei denen ein Elektron in einen quasimolekularen Zustand übergeht ( $R_{i,max}$ ) bzw. vom Projektil eingefangen wird ( $R_{i,max}^{out}$ ).  $I_i^{qm}$  ist die Bindungsenergie des quasimolekularen Zustands,  $I_i^o$  die des eingefangenen Elektrons im Projektil.

Nr.	String	$E_i$ (eV)	$R_{i,max}$ (a.u.)	$R_{i,max}^{out}$ (a.u.)	$I_i^{qm}$	$I_i^o$
1	1	24.59 <sup>1</sup>	6.97	7.82	51.93	44.99
2	1	54.42 <sup>1</sup>	4.74	4.74	94.59	83.15

<sup>1</sup> <http://www.nist.gov/pml/data/asd.cfm> (gerundet)

winkelaufgelöstes Ergebniss zu erzielen ist, wenn man die Peakfläche normiert. Dies wird darauf zurückgeführt, dass  $P_b$  einen deutlichen Beitrag der an annähernd gleichen Energieposition sitzenden  $1s2p^2\ ^4P$ -Resonanz enthält, der eine Analyse im Gegensatz zu  $P_a$  nicht möglich macht. Zudem entspricht der experimentell ermittelte energetische Abstand zwischen der ersten  $^4P$ - und  $P_b$ -Resonanz annähernd dem theoretischen Abstand der beiden  $^4P$ -Resonanzen, die über den LANL-Code berechnet wurden (LANL: [13.04 - 13.17] eV; Exp: 13.11 eV).

Die Energiepositionen, die mit dem LANL-Code berechnet wurden, sind in Abb. 6.10 ebenfalls beigefügt. Autoionisationsraten und Energiepositionen sind in Tab. 6.6 zusammengefaßt. Das theoretische Spektrum ist mit der gleichen Vorgehensweise wie in Abschnitt 6.1.1 bestimmt worden. Die  $(1s^1\ ^2S)(2p^2\ ^3P)^2P$ -Zustände werden analog zur Kohlenstoff-Messung vernachlässigt. Dies ist insofern gerechtfertigt, als unter idealisierten Bedingungen ein Doppeleinfang von einem Heliumatom nur den Einfang von Elektronen mit antiparalleler Spinprojektion erlaubt, was eine Ausbildung von  $^3P$ -Zuständen nicht ermöglicht. Die gleiche Argumentation ist auch für die Bildung von  $^4P$ -Übergängen gültig.

Das experimentelle Spektrum ist um ca. 1 eV verschoben worden, damit die theoretischen und experimentellen  $^2S$ -Resonanzen an gleicher Position stehen, die Intensität der Theoriekurve wurde der ersten  $^2S$ -Resonanz angepaßt. Die Entscheidung, das experimentelle Spektrum an das theoretische anzupassen, ist willkürlich gewählt worden, verträgt sich aber mit der Energiegenauigkeit des Spektrometers. Nach Riez (2011) ist die Energiegenauigkeit des Spektrometers bestimmt durch mechanische Unsicherheiten sowie der Spannungsauflösung des Netzgerätes. Die mechanische Ungenauigkeit des verwendeten Spektrometers wurde nicht bestimmt, jedoch wurde für ein baugleiches Spektrometer eine Unsicherheit in der Größenordnung einiger Mikrometer festgestellt. Daraus lässt sich eine Unsicherheit der Energiemessung ableiten, die eine Größenordnung besser ist, als die Energieauflösung. Geht man von einer totalen Spannungsauflösung des Iseg von 20 mV aus (2 Ausgänge zu je 10 mV), so erhält man bei

einer Elektronenenergie von 400 eV eine Unsicherheit, die in der Größenordnung von 0.25 eV liegt. Eine Schwierigkeit bei der Abschätzung der Energiegenauigkeit des Spektrometers besteht zudem in der Unsicherheit der Ionenenergie. In der EZR-Ionenquelle können stationäre Unterschiede des Beschleunigungspotentials, z.B. durch Raumladungseffekte, auftreten, wodurch Ionen mit einer Beschleunigungsspannung aus dem Plasma gezogen werden, die vom eingestellten Wert verschieden ist.

In allen Kanälen befindet sich bei ca. 437.6 eV ein weiterer Peak, der nicht in Tab. 6.6 vortreten und dessen Ursprung nicht bekannt ist. Anhand des theoretischen Spektrums wird ersichtlich, dass das Verhältnis der intensiven Resonanzen  $P_b$  und D sowie deren energetische Lage unzureichend beschrieben wird.

In den gemessenen Spektren ist auffallend, dass es einen dominanten Peak an der theoretischen Position der niederenergetischen  $^4P$ -Resonanz gibt, der im Vergleich zur Messung mit  $C^{5+}$  deutlich intensiver ist. Der Einfluss von Mehrfachkollisionen mit Einfacheinfang, insbesondere nach Population eines metastabilen Zustands, soll daher im Folgenden diskutiert werden. In Betracht kommen der  $1s2s\ ^3S$ -Zustand mit einer Lebensdauer von 0.95 ms, sowie der  $1s2s\ ^1S$ -Zustand mit einer Lebensdauer von 0.43  $\mu s$  (Mack, 1987). Bei einer Ionengeschwindigkeit von  $1.0 \cdot 10^6$  m/s kann der  $^3S$ -Zustand eine Strecke von 1000 m zurücklegen, der  $^1S$ -Zustand eine Strecke von 1 m. Eine Abschätzung der mittleren freien Weglänge  $\lambda$  über die Beziehung  $\lambda = 1/(n \cdot \sigma)$  (Teilchendichte  $n$ , Wirkungsquerschnitt für Einfacheinfang  $\sigma$ ) für eine angenommene Teilchendichte von  $1 \cdot 10^{11}$   $cm^{-3}$  ergibt einen Wert von 24.3 m. Der  $^3S$ -Zustand ist demnach in der Lage, während seiner Lebensdauer ein weiteres Elektron einzufangen und damit zu autoionisieren, jedoch erscheint die mittlere freie Weglänge hinreichend groß, dass dies zwischen dem ersten Magneten und der Wechselwirkungszone keine dominante Rolle spielen sollte. Erst bei Teilchendichten, die um zwei Größenordnungen größer sind, sollten Doppelkollisionen eine Rolle spielen. Zudem ist bei zwei aufeinanderfolgenden Einfangprozessen die Wahrscheinlichkeit eines Einfangs zweier Elektronen mit parallelen und antiparallelen Spin identisch, was eine stärkere Population der Doublett-Resonanzen zur Folge haben sollte. Diese Problematik wird in Abschnitt 6.3 weiter diskutiert.

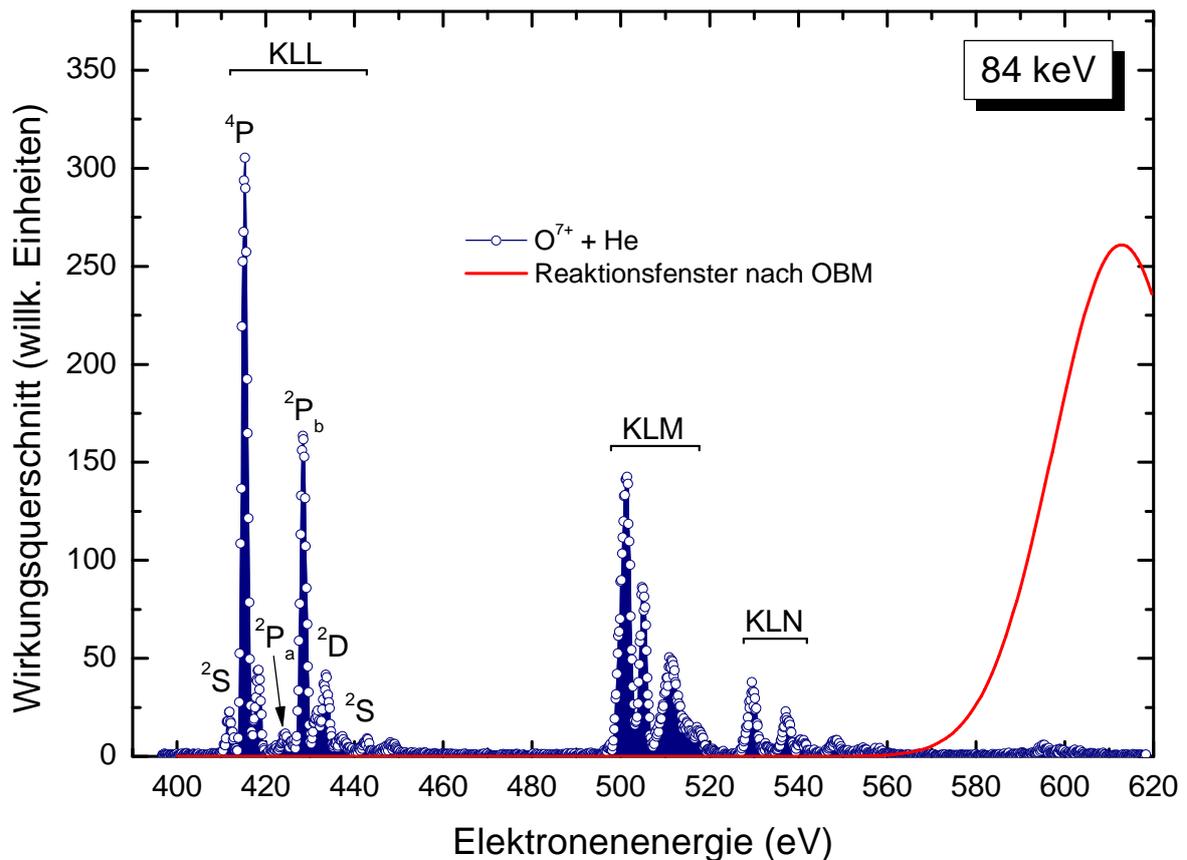
Die Möglichkeit eines Spin-Flips kann in Betracht gezogen werden, jedoch ermöglicht dies auch die Bildung von  $^3P$ -Unterkomplexen, welche sich mit der  $^2D$ -Resonanz überlagern und sich in der Winkelabhängigkeit bemerkbar machen sollten, was jedoch nicht beobachtet wurde. Die  $^2D$ -Resonanz zeigt keine Anzeichen dafür, dass eine weitere winkelabhängige Struktur aufmoduliert ist. Eine Population der Quartett-Zustände durch radiativen Zerfall aus höher angeregten Zuständen ist ebenfalls möglich, dies kann jedoch nicht mit dem experimentellen Setup geklärt werden.

**Tabelle 6.6:** KLL-Übergänge von  $O^{5+}$ . Die Energien und Autoionisationsraten wurden mit dem LANL-Code berechnet. Endzustand ist in allen Fällen  $^1S_0$ .

Anfangszustand	Energie (eV)	Autoionisationsrate ( $s^{-1}$ )
$(1s^1 \ ^2S)(2s^2 \ ^1S)^2S_{0.5}$	411.91	$1.0552 \cdot 10^{14}$
$(1s^1 \ ^2S)(2p^2 \ ^3P)^4P_{0.5}$	428.37	$2.9673 \cdot 10^7$
$(1s^1 \ ^2S)(2p^2 \ ^3P)^2P_{0.5}$	435.22	$4.2620 \cdot 10^8$
$(1s^1 \ ^2S)(2p^2 \ ^1S)^2S_{0.5}$	442.70	$1.6926 \cdot 10^{13}$
$(1s^1 \ ^2S)(2p^2 \ ^3P)^4P_{1.5}$	428.40	$1.3193 \cdot 10^9$
$(1s^1 \ ^2S)(2p^2 \ ^1D)^2D_{1.5}$	434.21	$1.2068 \cdot 10^{14}$
$(1s^1 \ ^2S)(2p^2 \ ^3P)^2P_{1.5}$	435.29	$1.9468 \cdot 10^{11}$
$(1s^1 \ ^2S)(2p^2 \ ^3P)^4P_{2.5}$	428.46	$8.2007 \cdot 10^9$
$(1s^1 \ ^2S)(2p^2 \ ^1D)^2D_{2.5}$	434.21	$1.2087 \cdot 10^{14}$
$(1s^1 \ ^2S)(2s^1 \ ^2S)^3S(2p^1 \ ^2P)^4P_{0.5}$	415.29	$1.5772 \cdot 10^8$
$(1s^1 \ ^2S)(2s^1 \ ^2S)^1S(2p^1 \ ^2P)^2P_{0.5}$	423.95	$9.1246 \cdot 10^{12}$
$(1s^1 \ ^2S)(2s^1 \ ^2S)^3S(2p^1 \ ^2P)^2P_{0.5}$	429.37	$6.9795 \cdot 10^{13}$
$(1s^1 \ ^2S)(2s^1 \ ^2S)^3S(2p^1 \ ^2P)^4P_{1.5}$	415.33	$1.2403 \cdot 10^8$
$(1s^1 \ ^2S)(2s^1 \ ^2S)^1S(2p^1 \ ^2P)^2P_{1.5}$	423.99	$8.4962 \cdot 10^{12}$
$(1s^1 \ ^2S)(2s^1 \ ^2S)^3S(2p^1 \ ^2P)^2P_{1.5}$	429.39	$7.0423 \cdot 10^{13}$

Eine experimentelle Untersuchung der Winkelverteilung autoionisierter Elektronen aus dem in Gl. (6.8) beschriebenen Prozess ist bisher nicht publiziert worden. Ferner findet man nur wenige Publikationen, die sich näher mit diesem Stoßprozess auseinandersetzen. Wu et al. (1994) beschäftigen sich mit der Fragestellung, inwieweit die Bevölkerung asymmetrischer Zustände beim Doppeleinfang ( $n = 2, n' > 10$ ) in  $O^{5+}$  das Verhalten der winkeldifferentiellen Wirkungsquerschnitte für Transferionisation (TI, *transfer ionization*) und Doppeleinfang (DC, *double capture*) für verschiedene Projektilenergien erklären kann. TI steht dabei für Doppeleinfang mit nachfolgender Autoionisation, während DC Doppeleinfang mit nachfolgender radiativen Stabilisation bedeutet. Tsurubuchi et al. (1982) untersuchen ebenfalls den Doppeleinfang mittels Ionenstrahlspektroskopie, jedoch in  $(1s3l3l')$ -Zustände.

Mack (1987) verweist in seiner Arbeit auf den generellen Trend, dass hochgeladene Ionen bevorzugt in höhere Zustände Elektronen einfangen und vergleicht  $KL(X)$ - und  $LM(X)$ -Spektren. In Abb. 6.11 ist das unter  $165^\circ$  gemessene KLL-Spektrum dargestellt, das aus dem OBM errechnete Reaktionsfenster ist ebenfalls geplottet. Wie man sieht, liegt der gesamte KLL-, KLM- und KLN-Bereich außerhalb dieses Reaktionsfensters, während die Vorhersage des OBM



**Abbildung 6.11:** Reaktionsfenster für autoionisierende Zustände von doppelt-angeregten  $O^{5+}$ -Ionen, berechnet aus dem OBM. Die Bindungsenergie eines K-Schalen-Elektrons im  $1s^2$ -Zustand wurde mit LANL berechnet, sie beträgt 740.92 eV. Das Zentrum der gaußförmigen Verteilung des Fensters liegt somit bei 612.77 eV. Der interessierende KLL-Bereich liegt vollständig außerhalb des Reaktionsfensters, was durch den bevorzugten Einfang in die  $n = 3$ -Schale zu erklären ist. Als Folge dessen sind die Zählraten für den KLL-Prozess klein im Vergleich zum LMM-Übergang, was mit entsprechend langen Meßzeiten einhergeht.

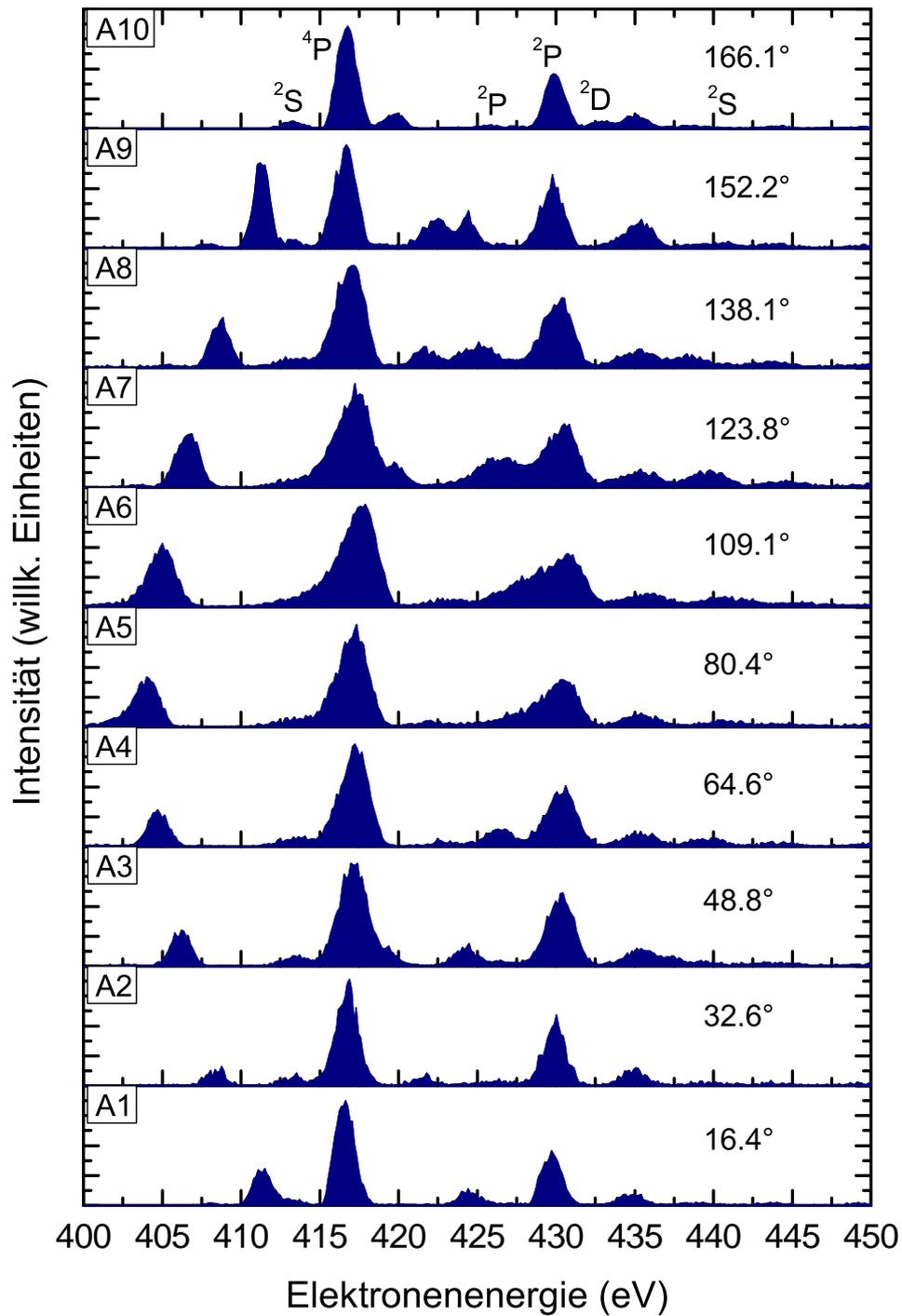
für den LMM-Bereich (Mack, 1987) zutreffend ist. Dieses Verhalten ist durch den bevorzugten Einfang in höhere Hauptquantenzahlen ( $n \geq 3$ ) zu erklären. Die bevorzugte Bevölkung höherer Hauptquantenzahlen bei diesem Stoßprozess im Vergleich zum Einfang in  $C^{3+}$  läßt den Schluss zu, dass die Untersuchung von KLL-Spektren mit steigender Ordnungszahl durch sinkende Signalmraten bzw. steigende Meßzeiten ineffizienter wird.

Bei der Messung der Auger-Elektronen der Autoionisation von  $O^{5+}$  nach Einfang zweier Elektronen durch  $O^{7+}$  von He Atomen sind eine Reihe von Problemen aufgetreten, die eine Auswertung erschwert bzw. teilweise nicht möglich gemacht haben. In Abb. 6.12 sind die KLL-Autoionisationsspektren für die verschiedenen Emissionswinkel der A-Seite im Emittersystem untereinander aufgetragen, die Detektoren der B-Seite zeigen identisches Verhalten. Die

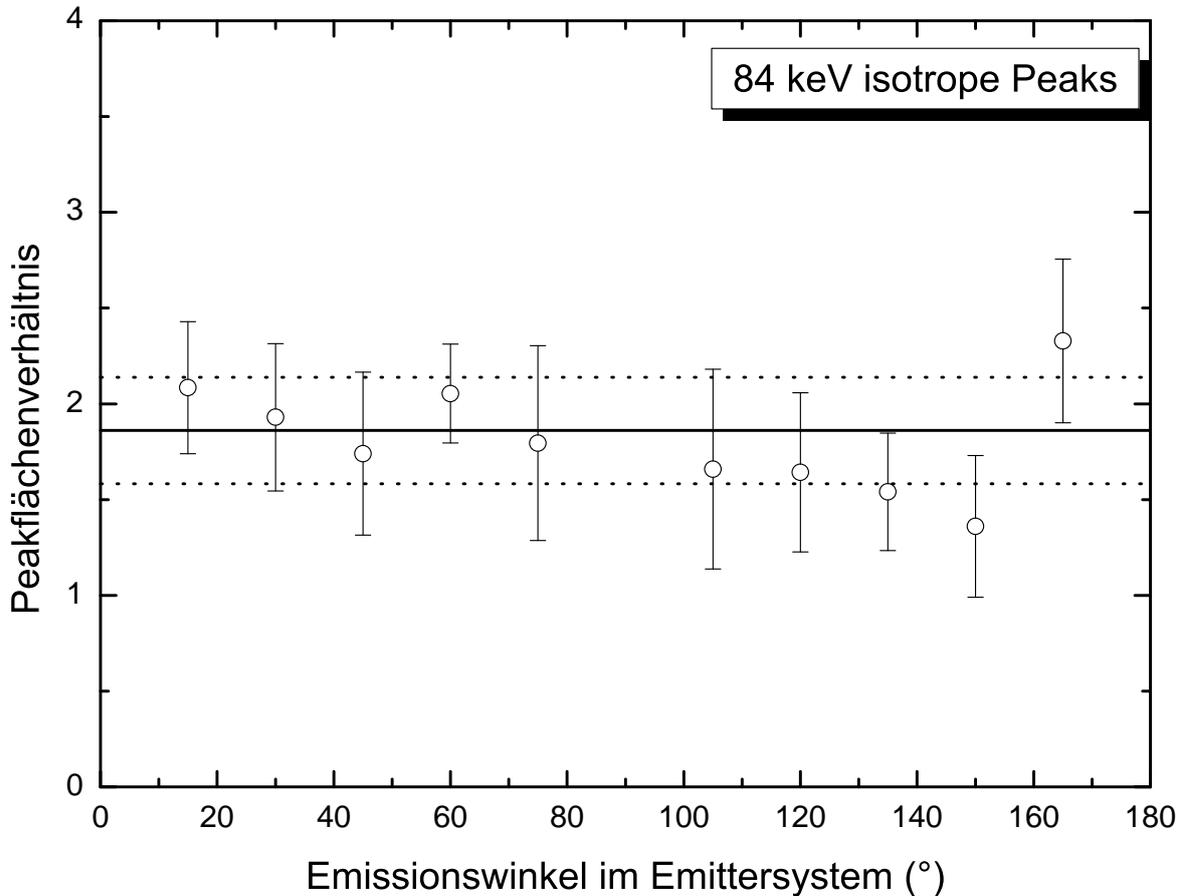
Energieachse ist ebenfalls auf das Emittersystem bezogen. Es ist deutlich zu erkennen, dass es Resonanzen mit konstanter Lage in den Spektren gibt, als auch solche, die für verschiedene Emissionswinkel an verschiedenen Positionen zu finden sind. Dies wird besonders deutlich am Beispiel des ersten Peaks in den gezeigten Spektren, der bzgl. seiner Verschiebung ein symmetrisches Verhalten zeigt. Zwischen den beiden dominanten  $^4P$ -Zuständen gibt es ebenfalls einen sich symmetrisch bewegenden Peak, der jedoch zum vorher genannten ein gespiegeltes Verhalten aufweist. Eine Reihe möglicher Ursachen soll hier kurz diskutiert werden:

- Durch Kollision eines Teils des Ionenstrahls mit einem massiven Teil des Spektrometers oder der Gasdüse können Elektronen die Detektoren erreichen. Für den Fall einer Kollision im Bereich des Ein- und Ausgangs des Targetbereichs des Spektrometers haben diese Elektronen eine hohe Nichtaxialität, was die unterschiedlichen Beiträge in den verschiedenen Detektoren erklären kann. Da es sich jedoch in diesem Fall um Targetionisation, d.h. um einen unbewegten Emitter, handelt, sollten diese zusätzlichen Peaks im Laborsystem bei gleichen Energien auftreten, was jedoch nicht der Fall ist.
- Eine signifikante Umladung des  $O^{7+}$ -Strahls zwischen erstem Magneten und Spektrometer z.B. durch Einfach- und Doppeleinfang könnte dazu führen, dass niedriger geladene Sauerstoff-Ionen in der Wechselwirkungszone Elektronen aus dem Heliumtarget einfangen und durch Autoionisation für zusätzliche Peaks im beobachteten Energiefenster sorgen. Jedoch sollten diese Peaks im Emittersystem ebenfalls an gleicher Position stehen. Die Möglichkeit, dass die Energie dieser umgeladenen Sauerstoff-Ionen verschieden von der des Primärstrahls ist, besteht nur, wenn die Umladung im Feld des Quadrupol-Tripletts passiert. Dies konnte durch Reduzierung des Gasdrucks im Triplet ausgegeschlossen werden, d.h. das beobachtete Auftreten der zusätzlichen Peaks ist unabhängig vom Gasdruck.
- Eine Verunreinigung des Ionenstrahls durch einen anderen Ladungszustand eines anderen Elements konnte durch eine massenspektroskopische Analyse des Primärstrahls nach dem Spektrometer mit Hilfe des zweiten Magneten ebenfalls ausgeschlossen werden.

Um eine erste Aussage über die Qualität der Auger-Spektren zu machen, werden zunächst die Verhältnisse der Intensitäten der isotropen  $^2S$ -Resonanzen betrachtet. Das Peakflächenverhältnis  $F(1s2s^2\ ^2S)/F(1s2p^2\ ^2S)$  als Funktion des Emissionswinkels im Emittersystem ist in Abb. 6.13 dargestellt. Der Mittelwert liegt dabei bei einem Verhältnis von 1.861 mit einer Standardabweichung von 0.278. Dies entspricht einem mittleren Fehler von ca. 15% (zum Vergleich: 12% bei  $C^{5+}$ ). Die annähernde Konstanz dieses Verhältnisses ist ein weiteres Indiz dafür, dass die Identifikation der Resonanzen korrekt ist.



**Abbildung 6.12:** KLL-Autoionisations-Spektren von  $O^{5+}$  der Detektoren A1-A10. Die entsprechenden Emissionswinkel im Emittersystem sind angegeben. Neben Resonanzen, die unter verschiedenen Emissionswinkel auf gleicher Energieposition im Emittersystem stehen, gibt es Peaks, die im Emittersystem eine winkelabhängige Resonanzlage aufweisen.

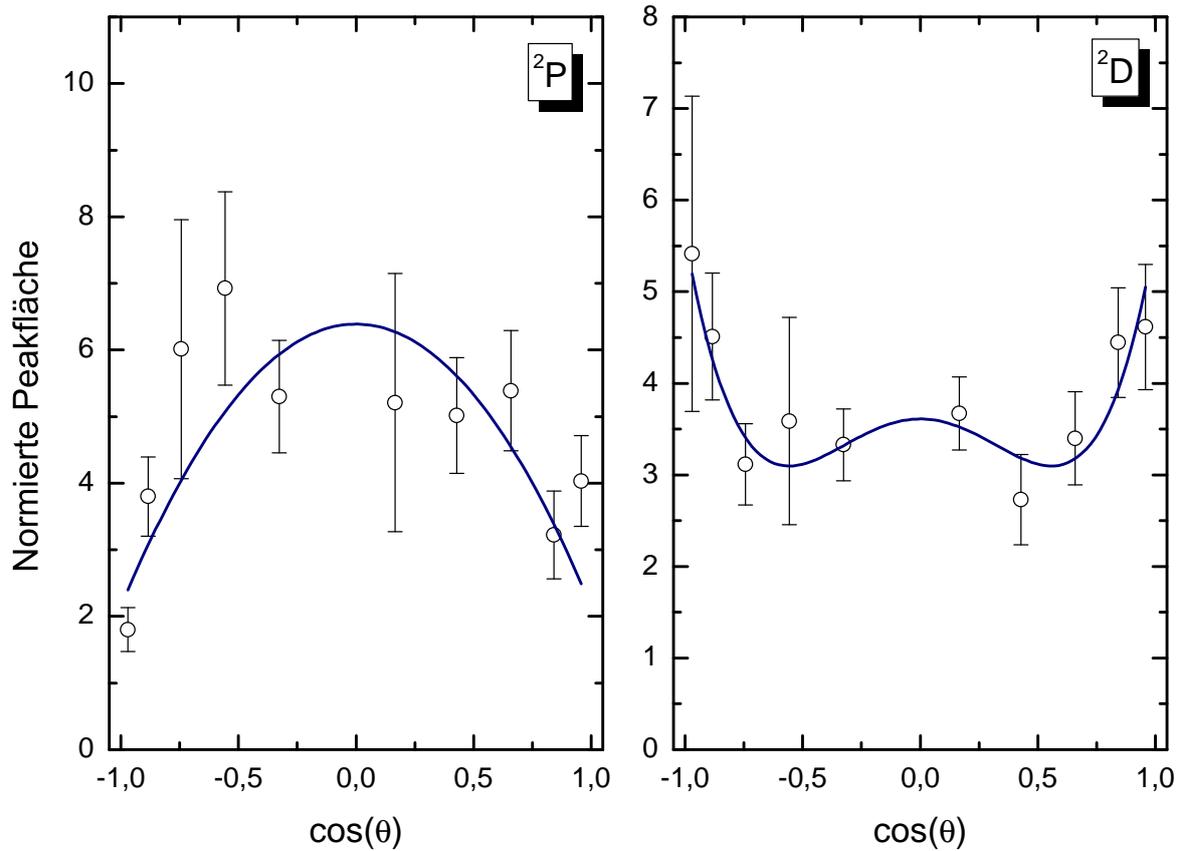


**Abbildung 6.13:** Intensitätsverteilung isotroper KLL-Übergänge von  $O^{5+}$  bei einer Ionenenergie von 84 keV. Die durchgezogene Linie steht für den Mittelwert bei 1.81, die gestrichelte Linie für die Standardabweichung von 0.278.

### 6.2.2 Bestimmung der Anisotropie-Koeffizienten für 84 keV $O^{7+}$ -Ionen nach Zwei-Elektroneneinfang von He

Die Bestimmung der Anisotropie-Koeffizienten erfolgt in Analogie zu Abschnitt 6.1.2. Für die  $^2D$ -Resonanz sind die auf die Intensität des höherenergetisch gelegenen  $^2S$ -Peaks normierten Flächen in Abb. 6.14 dargestellt. Aus dem Fit von Gl. (6.4) an diese Verteilung erhält man für die Anisotropie-Koeffizienten die Werte  $A_2 = 0.18(6)$  und  $A_4 = 0.27(7)$ . Eine theoretische Abschätzung der Depolarisationsfaktoren konnte in der Literatur nicht gefunden werden. Für den Fitparameter  $C$  erhält man einen Wert von  $C = 4.47(31)$ . Für die  $^2P$ -Resonanz erhält man aus dem Fit einen Anisotropie-Koeffizienten von  $A_2 = -0.57(10)$ , der Fitparameter  $C$  beträgt dabei  $C = 4.98(50)$ . Eine grafische Darstellung der normierten Peakfläche findet man ebenfalls in Abb. 6.14.

Eine theoretische Berechnung der Anisotropie-Koeffizienten als Funktion der Projektilenergie



**Abbildung 6.14:** Intensitätsverteilung des  ${}^2D$ - und  ${}^2P$ -Übergangs als Funktion des Kosinus des Emissionswinkels im Emittersystem für 84 keV  $O^{5+}$ -Ionen. Der Anisotropie-Koeffizient für  ${}^2P$  beträgt  $A_2 = -0.57(10)$ , für den  ${}^2D$ -Übergang ergibt sich aus dem *Least-Squares-Fit*:  $A_2 = 0.18(6)$  und  $A_4 = 0.27(7)$ .

für diesen Stoßprozess ist bisher nicht durchgeführt worden, somit ist ein Vergleich zwischen Experiment und Theorie nicht möglich.

### 6.2.3 Zusammenfassung und Diskussion

Eine Analyse der Winkelverteilung von Elektronen der Autoionisation von  $O^{5+}(1s2l2l' {}^2L)$  wurde für eine Projektilenergie von 84 keV durchgeführt. Das Reaktionsfenster des OBM für diesen Zerfall sowie die Vorhersage eines bevorzugten Einfangs in Projektilzustände mit  $n = 3$  sind in Übereinstimmung mit den geringen Zählraten, die beobachtet wurden.

Durch Anwendung von Gl. (6.5), Gl. (6.6) und Gl. (6.7) lassen sich über die Bevölkerung der magnetischen Niveaus folgende Aussagen treffen: Bei der  ${}^2P$ -Resonanz wird das  $M_L = 0$ -Niveau zu 42.8(1.1)%, die  $M_L = \pm 1$ -Niveaus zu 20.1(6)% bevölkert. Für das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte der Besetzung dieser Niveaus erhält man  $\sigma_{11}/\sigma_{10} = 2.99(0.27)$ . Bei der

$^2\text{D}$ -Resonanz erhält man für diese Verhältnisse  $\sigma_{21}/\sigma_{20} = 0.63(0.07)$  sowie  $\sigma_{22}/\sigma_{20} = 0.60(0.09)$ . Die Bevölkerung der magnetischen Niveaus ist entsprechend 29.0(2.6)% für  $M_L = 0$ , 18.2(9)% für  $M_L \pm 1$  sowie 17.3(0.9)% für  $M_L = \pm 2$ .

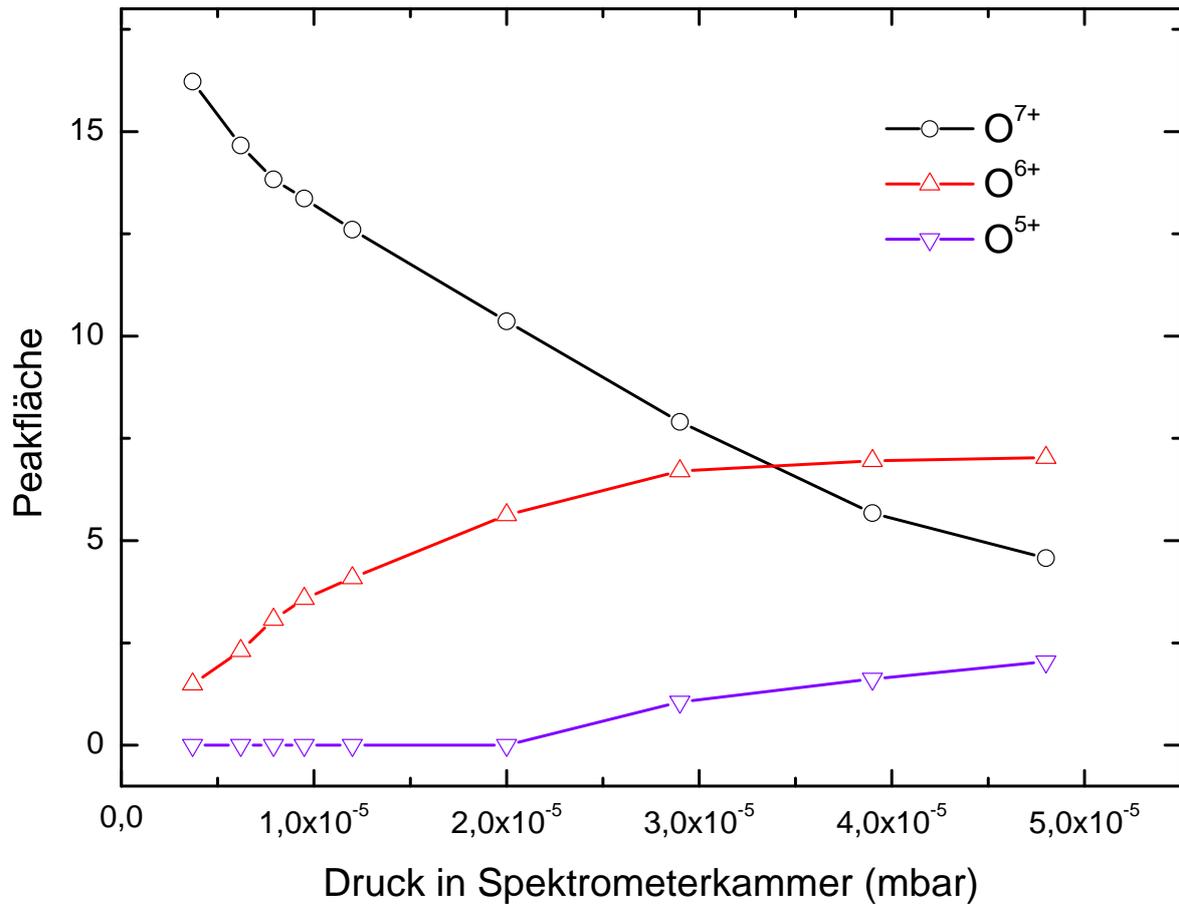
Beim Elektronentransfer des Stoßsystems  $\text{O}^{7+} + \text{He}$  findet bei einer Energie von 84 keV ein bevorzugter Einfang in magnetische Niveaus mit Quantenzahl  $M_L = 0$  statt. Dies steht im Gegensatz zum Stoßsystem  $\text{C}^{5+} + \text{He}$ , das eine Bevölkerung der Quantenzahlen  $M_L = \pm 1$  bevorzugt. Für einen besseren Vergleich beider Systeme ist eine Bestimmung der Energieabhängigkeit der Bevölkerung der lithiumartigen Sauerstoffniveaus notwendig, jedoch kann davon ausgegangen werden, dass beide Systeme ein unterschiedliches Bevölkerungsverhalten als Funktion der Projektilenergie vorweisen. Somit ist das winkelaufgelöste KLL-Spektrum von  $\text{O}^{5+}$  ein weiteres System, das als Test für eine entsprechende theoretische Beschreibung herhalten kann.

### 6.3 Untersuchung der Druckabhängigkeit

Wie sich in Abschnitt 6.2 gezeigt hat, ist die Ursache der Dominanz der  $^4\text{P}$ -Resonanzen nicht eindeutig zu klären gewesen. Daher wurde mit dem zweiten Magneten ein Massenspektrum des primären  $\text{O}^{7+}$ -Ionenstrahls bei verschiedenen Gasdrücken in der Spektrometerkammer durchgeführt. Damit kann festgestellt werden, in welchem Umfang eine Umladung bei verschiedenen Teilchendichten in niedrigere Ladungszustände stattgefunden hat. Das Ergebnis dieser Messungen ist in Abb. 6.15 dargestellt. Wie man sieht, kommt es bereits bei Drücken unterhalb von  $1 \cdot 10^{-5}$  mbar zu einem deutlich messbaren Beitrag von  $\text{O}^{6+}$ -Ionen. Geht man von einem Ionenstrom von 1 nA und einer Wahrscheinlichkeit für Doppeleinfang bei Einzelkollision von  $3.3 \cdot 10^{-4}$  aus, würde man unter der idealisierten Annahme, dass diese Einfangprozesse in der Wechselwirkungszone stattfinden, einen Beitrag von Umladungen im Promille-Bereich erwarten. Das Auftreten von  $\text{O}^{5+}$  deutet darauf hin, dass es sogar zu mehrfachen Stößen in doppeltangeregte Zustände gekommen sein muss. Die Messungen wurden mit einem differentiellen Pumpsystem vor dem Spektrometer durchgeführt. Ein Großteil dieser Umladungen kann daher nur innerhalb der Spektrometerkammer und zwischen Spektrometer und zweitem Magneten geschehen. Zusammenfassend lässt sich festhalten:

- Umladungsprozesse spielen beim Stoßsystem  $\text{O}^{7+} + \text{He}$  eine maßgebliche Rolle, beim System  $\text{C}^{5+} + \text{He}$  sind sie vernachlässigbar.
- Die Umladungen skalieren mit der Teilchendichte, welche über das Gastarget geregelt wird. Die Möglichkeit, dass der Ionenstrahl mit einer Festkörperoberfläche stößt, kann somit ausgeschlossen werden.

Der Wirkungsquerschnitt für einen Einfacheinfang eines Elektrons von He in  $\text{C}^{5+}$  liegt nach dem OBM bei ca. 3066 Mb. Dies entspricht 75% des Wirkungsquerschnitts für einen Einfang



**Abbildung 6.15:** Massenspektrum des primären O<sup>7+</sup>-Ionenstrahls in Abhängigkeit des Gasdrucks in der Spektrometerkammer. Es ist deutlich zu sehen, dass Umladungen in niedrigere Ladungszustände bereits bei geringen Gasdrücken eine Rolle spielen. Diese Messungen wurden mit einem differentiellen Pumpzweig vor dem Eintritt in das Spektrometer durchgeführt.

in O<sup>7+</sup>. Sollte es sich um einen Effekt handeln, der ausschließlich im Gasdruck begründet ist, sollte er auch im C<sup>5+</sup> + He-System zu beobachten sein. Zudem ist nicht verständlich, inwiefern Doppelkollisionen mit Einfacheinfang die Population der <sup>4</sup>P-Resonanzen signifikant erhöht, die Population der Doublett-Übergänge hingegen davon unbeeinflusst zu sein scheint.



## 7 Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Experimentieranlage zum Studium winkelaufgelöster Wirkungsquerschnitte aufgebaut. Untersucht wurden dabei Elektronentransferprozesse zwischen langsamen wasserstoffartigen Projektilteilchen, die mit einem Helium-Gastarget kollidieren. Das Stoßsystem  $C^{5+} + He$  wurde als Untersuchungsobjekt für die Überprüfung der Leistung des experimentellen Aufbaus gewählt, weil es neben einer vergleichbaren Messung mit Bor das einzige bekannte Stoßsystem ist, dessen Autoionisationsspektren winkelabhängig untersucht wurden. Die neu gewonnen Messdaten zeigen für dieses Stoßsystem eine Übereinstimmung mit den Messungen von Holt et al. (1991).

Der Wechsel auf das Stoßsystem  $O^{7+} + He$  brachte eine Reihe von Problemen mit sich. Zunächst waren die Signalraten der Doublett-Übergänge gering, was Messzeiten von mehreren Wochen zur Folge hatte. Gleichzeitig wurde eine hohe Intensität der  $^4P$ -Resonanzen beobachtet. Zusätzlich tauchten in den Spektren Resonanzen auf, die keine feste Position im Emittersystem einnehmen. Ein erstes Ziel zukünftiger Experimente wird es sein, diesen Problemen auf den Grund zu gehen. Dazu wurden bereits Anstrengungen unternommen, die Vakuumbedingungen außerhalb der Wechselwirkungszone des Spektrometers zu verbessern, um zu überprüfen, ob ein Teil dieser Probleme mit Elektroneneinfängen z.B. in metastabile Zustände zusammenhängt. Für das  $O^{7+} + He$ -System wird versucht, die Energieabhängigkeit der Besetzung der magnetischen Niveaus zu bestimmen. Da für wasserstoffartige Ionen mit  $Z > 8$  immer kleinere KLL-Autoionisationsraten erwartet werden, kommen als zukünftige Projektile Li, Be, B und N in Frage. Ebenso ist eine Untersuchung von Doppeleinfängen in vollständig ionisierte Atome möglich. Eine Schwierigkeit könnte jedoch darin bestehen, dass der Energiebereich der autoionisierten Elektronen bei sehr niedrigen Energien liegt. Für Lithium liegt der KLL-Bereich bei 5.05 bis 5.47 eV, für Beryllium bei 9.54 bis 10.7 eV. Hier könnte das kontinuierliche inelastische Spektrum der Elektronen u.U. eine Messung verhindern. Als aussichtsreichster Kandidat bietet sich Stickstoff an. Der KLL-Bereich liegt in diesem Fall bei 312.3 bis 338.45 eV.

Zu Beginn dieser Arbeit war die Zielsetzung, ein *crossed-beam*-Experiment zum Studium der Elektronenstoßionisation aufzubauen. Dabei sollte ein Elektronen- mit einem Ionenstrahl in der Wechselwirkungszone des Spektrometers gekreuzt werden. Die entstehende Autoionisationspro-

dukte sollten mit dem Spektrometer analysiert werden. Durch die gewonnenen Erfahrungen mit den Ion-Atom-Stößen kann u.U. auch darüber nachgedacht werden, das Experiment dahingehend zu optimieren, dass die Spektroskopie von Elektronen aus Elektron-Ion-Stößen wieder vorangetrieben wird. Es hat sich z. B. gezeigt, dass Channelplate-Detektoren für dieses Experiment nicht geeignet sind, da die Dunkelzählrate zu hoch war.

# Literaturverzeichnis

- Aston, F. W.: A positive ray spectrograph, *Phil. Mag.* **38**, 709 (1919).
- Berezhko, E. G. und Kabachnik, N. M.: Theoretical study of inner-shell alignment of atoms in electron impact ionisation: angular distribution and polarisation of x-rays and Auger electrons, *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **10**, 2467 (1977).
- Blum, K.: *Density Matrix Theory and Applications* (Plenum Press, 1996).
- Bodewits, D., McCullough, R. W., Tielens, A. M. und Hoekstra, R.: X-Ray and Far-Ultraviolet Emission from Comets: Relevant Charge Exchange Processes, *Physica Scripta* **70**, C17 – C20 (2004).
- Brink, D. M. und Satchler, G. R.: *Angular Momentum* (Oxford University Press, New York, 1993), 3. Auflage.
- Bárány, A., Astner, G., Cederquist, H., Danared, H., Huldt, S., Hvelplund, P., Johnson, A., Knudsen, H., Liljeby, L. und Rensfelt, K.-G.: Absolute cross sections for multi-electron processes in low energy  $\text{Ar}^{q+} - \text{Ar}$  collisions: Comparison with theory, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **9**, 397 – 399 (1985).
- Browne, C. P., Craig, D. S. und Williamson, R. M.: Spherical Electrostatic Analyzer for Measurement of Nuclear Reaction Energies, *Rev. Sci. Instr.* **22**, 952–965 (1951).
- Bruch, R. und Klar, H.: Hyperfine structure in the angular distribution of electrons from autoionising states, *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* **13**, 1363 – 1379 (1980).
- Chen, Z. und Lin, C. D.: State-selective double capture in collisions of bare ions with helium atoms at low energies: II. Ejected-electron spectra, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **24**, 4231 – 4244 (1991).
- Cleff, B. und Mehlhorn, W.: On the angular distribution of Auger electrons, *Physics Letters* **37A**, 3 – 4 (1971).
- Cleff, B. und Mehlhorn, W.: Angular distribution of  $L_3M_{2,3}M_{2,3}$  ( $^1S_0$ ) Auger electrons of Argon, *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **7**, 605 (1974).

- Cowan, R. D.: *The Theory of Atomic Structure and Spectra* (University of California Press, Berkeley, 1981).
- Cravens, T. E.: Comet Hyakutake X-ray source: Charge transfer of solar wind heavy ions, *Geophysical Research Letters* **24**, 105 – 108 (1997).
- Dahl, P., Rødbro, M., Fastrup, B. und Rudd, M. E.: Auger spectroscopy on heavy-ion-atom collision I. Kinematic effects and apparatus, *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* **9**, 1567 – 1579 (1976).
- de Nijs, G.: *Pathways to charge equilibrium*, Dissertation, Universität Groningen (1996).
- Drawin, H. W.: Atomi Physics and Thermonuclear Fusion Research, *Physica Scripta* **24**, 622 – 655 (1981).
- DuBois, R. D.: Charge transfer leading to multiple ionization of neon, sodium, and magnesium, *Phys. Rev. A* **34**, 2738–2745 (1986).
- Engel, A. V.: *Ionized Gases* (Springer, Berlin, 1993).
- F. T. Rogers, J.: On the Theory of the Electrostatic Beta-Particle Analyzer., *Rev. Sci. Instrum* **22**, 723–726 (1951).
- Fano, U.: Description of States in Quantum Mechanics by Density Matrix and Operator Techniques, *Reviews of Modern Physics* **29**, 74 – 93 (1957).
- Geller, R.: ECRIS: The Electron Cyclotron Resonance Ion-Sources, *Annu. Rev. Nucl. Part. Sci.* **40**, 15 – 43 (1990).
- Gleizes, A., Benoit-Cattin, P., Bordenave-Montesquieu, A. und Merchez, H.: Influence of Doppler and Stark effects on the shape of the autoionization peaks in electron energy spectra produced in ion-atom collisions. Application to  $\text{He}^+$  and  $\text{He}^0$  on He collisions, *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* **9**, 473 – 489 (1976).
- Guevremont, J. M., Sheldon, S. und Zaera, F.: Design and characterization of collimated effusive gas beam sources: Effect of source dimensions and backing pressure on total flow and beam profile, *Review of Scientific Instruments* **71**, 3869 – 3881 (2000).
- H. H. Hubbel, J., McConnell, W. J. und Birkhoff, R. D.: The spherical condenser as a high transmission particle spectrometer: III. Construction and calibration, *Nuclear Instruments and Methods* **31**, 18 – 24 (1964), ISSN 0029-554X.
- Harrower, G. A.: Measurement of Electron Energies by Deflection in a Uniform Electric Field, *Rev. Sci. Instrum.* **26**, 850–854 (1955).

- Hasan, A. A., Eissa, F., Ali, R., Schultz, D. R. und Stancil, P. C.: State-Selective Charge Transfer Studies Relevant to Solar Wind-Comet Interactions, *The Astrophysical Journal* **560**, L201 – L205 (2001).
- Hoekstra, R., Beijers, J., de Heer, F. und Morgenstern, R.: Simultaneous electron capture and target ion excitation in collisions of  $C^{4+}$  and  $N^{5+}$  on He, *Z. Phys.* **D 25**, 209–215 (1993).
- Holste, K.: *Konstruktionsarbeiten und Testmessungen an einem Elektronen-Spektrometer*, Diplomarbeit, Justus-Liebig-Universität Gießen (2006).
- Holt, R. A., Prior, M. H., Randall, K. L., Hutton, R., McDonald, J. und Schneider, D.: Magnetic substates populated by double-electron capture, *Phys. Rev. A* **43**, 607 – 610 (1991).
- Hughes, A. L. und Rojansky, V.: On the Analysis of Electronic Velocities by Electrostatic Means, *Phys. Rev.* **34**, 284–290 (1929).
- Ishii, K., Itoh, A. und Okuno, K.: Electron-capture cross sections of multiply charged slow ions of carbon, nitrogen, and oxygen in He, *Phys. Rev. A* **70**, 042716 (2004).
- Janev, R. und Presnyakov, L.: Collision processes of multiply charged ions with atoms, *Physics Reports* **70**, 1 – 107 (1981), ISSN 0370-1573.
- Kabachnik, N. M. und Sazhina, I. P.: On the problem of a 'complete' experimental characterisation of Auger decay, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **23**, L353 – L357 (1990).
- Kamber, E. Y., Abdallah, M., Cocke, C. L. und Stöckli, M.: State-selective electron capture in (0.5-50)-keV/u  $C^{5+} - He$  collisions studied by cold-target recoil-ion momentum spectroscopy, *Phys. Rev. A* **60**, 2907 – 2916 (1999).
- Knoop, S.: *Electron Dynamics in Ion-Atom Interactions*, Dissertation, Universität Groningen (2006).
- Krasnopolsky, V. A. und Mumma, M. J.: Spectroscopy of comet Hyakutake at 80-700 Å: First Detection of Solar Wind Charge Transfer Emissions, *The Astrophysical Journal* **549**, 629 – 634 (2001).
- LANL: Los Alamos National Laboratory Atomic Physics Codes, Webseite (2011), online verfügbar auf <http://aphysics2.lanl.gov/cgi-bin/ION/runlan108e.pl>.
- Lennon, M., McCullough, R. W. und Gilbody, H. B.: State-selective electron capture by  $C^{2+}$ ,  $C^{3+}$ ,  $N^{2+}$  and  $Ar^{2+}$  ions in rare gases, *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **16**, 2191 (1983).

- Lisse, C. M., Dennerl, K., Engelhause, J., Harden, M., Marshall, F. E., Mumma, M. J., Petre, R., Pye, J. P., Ricketts, M. J., Schmitt, J., Trümper, J. und West, R. G.: Discovery of X-ray and Extreme Ultraviolet Emission from Comet C/Hyakutake 1996 b2, *Science* **274**, 205 – 209 (1996).
- Mack, E. M.: *Electron Capture To Autoionizing States Of Multiply Charged Ions*, Dissertation, Universität Utrecht (1987).
- Mann, R.: High-resolution K and L Auger electron spectra induced by single- and double-electron capture from H<sub>2</sub>, He and Xe atoms to C<sup>4+</sup> and C<sup>5+</sup> at 10 - 100 keV energies, *Phys. Rev. A* **35**, 4988 – 5004 (1987).
- Manura, D. J. und Dahl, D. A.: *SIMION 8.0 User Manual*, Scientific Instrument Services Inc., Idaho National Laboratory (2006).
- Mehlhorn, W. und Taulbjerg, K.: Angular distribution of electrons from autoionising states with unresolved fine structure, *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* **13**, 445 – 451 (1980).
- Neu, R., Dux, R., Kallenbach, A., Pütterich, T., Balden, M., Fuchs, J. C., Herrmann, A., Maggi, C. F., O'Mullane, M., Pugno, R., Radivojevic, I., Rohde, V., Sips, A. C. C., Suttrop, W., Whiteford, A. und the ASDEX Upgrade team: Tungsten: an option for divertor and main chamber plasma facing components in future fusion devices, *Nucl. Fusion* **45**, 209 – 218 (2005).
- Niehaus, A.: A classical model for multiple-electron capture in slow collisions of highly charged ions with atoms, *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **19**, 2925 (1986).
- Niehaus, A.: Extended classical models for multiple charge exchange, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **23**, 17 – 22 (1987), ISSN 0168-583X.
- O'Hara, J. G.: George Johnstone Stoney, F.R.S., and the Concept of the Electron, *Notes and Records of the Royal Society of London* **29**, 265–276 (1975).
- Omet, C., Spiller, P., Stadlmann, J. und Hoffmann, D. H. H.: Charge change-induced beam losses under dynamic vacuum conditions in ring accelerators, *New Journal of Physics* **8**, 1 – 18 (2006).
- Peratt, A. L.: Electric space: Evolution of the plasma universe, *Astrophysics and Space Science* **244**, 89 – 103 (1996).
- Prior, M. H. und Khemliche, H.: Auger anisotropy: A probe of doubly excited product states, *Nucl. Instrum. Meth.* **124**, 243 – 248 (1997).

- Prior, M. H., Holt, R. A., Schneider, D., Randall, K. L. und Hutton, R.: Alignment of magnetic substates in double-electron-capture collisions, *Phys. Rev. A* **48**, 1964 – 1974 (1993).
- Purcell, E. M.: The Focusing of Charged Particles by a Spherical Condenser, *Phys. Rev.* **54**, 818–826 (1938).
- Rausch, J., Becker, A., Spruck, K., Hellhund, J., Jr., A. B., Huber, K., Schippers, S. und Müller, A.: Electron-impact single and double ionization of  $W^{17+}$ , *J. P* **44**, 1 – 6 (2011).
- Rechenberg, H.: The electron (born 1897) - centenary of a star in physics and chemistry, *Eur. J. Phys.* **18**, 131 – 132 (1997).
- Ricsóka, T., Ricz, S., Köver, A., Holste, K., A Borovik, J., Varga, D., Schippers, S. und Müller, A.: Experimental confirmation of left-right asymmetry in photoionization, *Journal of Physics: Conference Series* **194**, 012003 (2009).
- Ricz, S.: Private Kommunikation (2011).
- Ricz, S., Ricsóka, T., Holste, K., Borovik, A., Bernhardt, D., Schippers, S., Kövér, A., Varga, D. und Müller, A.: Interference effect in the dipole and nondipole anisotropy parameters of the Kr 4p photoelectrons in the vicinity of the Kr  $(3d)^{-1} \rightarrow np$  resonant excitations, *Phys. Rev. A* **81**, 043416 (2010).
- Rinn, K., Müller, A., Eichenauer, H. und Salzborn, E.: Development of single-particle detectors for keV ions, *Rev. Sci. Instrum.* **53**, 829 (1982).
- Risley, J. S.: Design Parameters for the Cylindrical Mirror Energy Analyzer, *Rev. Sci. Instrum.* **43**, 95 (1972).
- Roy, D. und Tremblay, D.: Design of electron spectrometers, *Rep. Prog. Phys.* **53**, 1621–1673 (1990).
- Rudd, M. E., Goffe, T. V. und Itoh, A.: Ionization cross sections for 10-300-keV/u and electron-capture cross sections for 5-150-keV/u  ${}^3\text{He}^{2+}$  ions in gases, *Phys. Rev. A* **32**, 2128–2133 (1985).
- Ryufuku, H., Sasaki, K. und Watanabe, T.: Oscillatory behavior of charge transfer cross sections as a function of the charge projectiles in low-energy collisions, *Phys. Rev. A* **21**, 745–750 (1980).
- Samm, U.: Controlled thermonuclear fusion at the beginning of a new area, *Contemporary Physics* **44**, 203 – 217 (2003).
- Santos, A. C. F., Sigaud, G. M., Melo, W. S., Sant’Anna, M. M. und Montenegro, E. C.: Absolute cross sections for electron loss, electron capture, and multiple ionization in collisions of  $C^{3+}$  with noble gases, *Phys. Rev. A* **82**, 012704 (2010).

- Sar-El, H. Z.: Cylindrical Capacitor as an Analyzer I. Nonrelativistic Part, *Rev. Sci. Instrum.* **38**, 1210 (1967).
- Schacht, H.: *Ein automatisierter  $\gamma$ -Meßplatz für Photonenaktivierungsanalyse*, Diplomarbeit, Strahlencentrum der Justus-Liebig-Universität Gießen (1992).
- Schmidt, V.: *Electron Spectrometry of Atoms using Synchrotron Radiation* (Cambridge University Press, 1997).
- Schwadron, N. A. und Cravens, T. E.: Implications of solar wind composition for cometary X-rays, *The Astrophysical Journal* **544**, 558 – 566 (2000).
- Shevelko, V. P., Brînzănescu, O., Jacoby, W., Rau, M. und Stöhlker, T.: Beam lifetimes of low-charged ions in storage rings, *Hyperfine Interactions* **114**, 289 – 292 (1998).
- Shirkov, G. D.: A New Approach to the Interpretation of Gas Mixing (ion mixing) Effect in the ECR Ion Source, *Physica Scripta* **T73**, 384 – 386 (1997).
- Squires, G.: Francis Aston and the mass spectrograph, *J. Chem. Soc., Dalton Trans. S.* 3893–3899 (1998).
- Stern, S. A.: The evolution of comets in the oort cloud and kuiper belt, *Nature* **424**, 639 – 642 (2003).
- Stolterfoht, N.: High Resolution Auger Spectroscopy In Energetic Ion Atom Collisions, *Physics Reports (Review Section of Physics Letters)* **146**, 315–424 (1987).
- T. S. Green, P., G. A.: A parallel plate electrostatic spectrograph, *Rev. Sci. Instrum.* **41**, 1409–1414 (1970).
- Thomson, J. J.: On Rays of Positive Electricity, *Phil. Mag.* **13**, 6 (1907).
- Trassl, R.: *Entwicklung „vollpermanenter“ EZR-Ionenquellen und Untersuchung des Ladungsaustausches in Stößen zwischen 4-fach geladenen Wismut-Ionen*, Dissertation, Institut für Kernphysik, Strahlencentrum der Justus-Liebig-Universität Gießen (1999).
- Tsurubuchi, S., Iwai, T., Kaneko, Y., Kimura, M., Kobayashi, N., Matsumoto, A., Ohtani, S., Okuno, K., Takagi, S. und Tawara, H.: Two-electron capture into autoionising states of  $N^{5+}(3l3l')$  and  $O^{5+}(1s3l3l')$  in collisions of  $N^{7+}$  and  $O^{5+}$ (sic!) with He, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **15**, L733 – L737 (1982).
- Varga, D., Kádár, I., Ricz, S., Végh, J., Kövér, Á., Sulik, B. und Berényi, D.: A spherical mirror - double cylindrical electron spectrometer for simultaneous energy and angular distribution measurements: design, construction and experiences, *Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res.* **A313**, 163–172 (1992).

- W. Bartky, A. J. D.: Path of Charged Particles in Electric and Magnetic Fields, *Phys. Rev.* **33**, 1019–1022 (1929).
- Weber, G., Omet, C., DuBois, R. D., de Lucio, O., Stöhlker, T., Brandau, C., Gumberidze, A., Hagmann, S., Hess, S., Kozhuharov, C., Reuschl, R., Spiller, P., Spillmann, U., Steck, M., Thomason, M. und Trotsenko, S.: Beam lifetimes and ionization cross sections of  $U^{28+}$ , *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **12**, 084201 (2009).
- Weissman, P. R.: The Oort cloud, *Nature* **344**, 825 – 830 (1990).
- Wiza, J. L.: Microchannel Plate Detectors, *Nucl. Instrum. Meth.* **162**, 587 (1979).
- Wu, W., Giese, J. P., Chen, Z., Ali, R., Cocke, C. L., Richard, P. und Stöckli, M.: Evidence for population of highly asymmetric states in double-electron capture by  $O^{7,8+}$  and  $N^{7+}$  colliding with He at low intermediate velocities, *Phys. Rev. A* **50**, 502 – 510 (1994).
- Zhang, H., Fléchar, X., Cassimi, A., Adoui, L., Frémont, F., Lecler, D., Cremer, G., Guillaume, L., Lelievre, D., Lepoutre, A. und Hennecart, D.: Experimental investigation of state-selective single and double electron capture in slow  $C^{5+}$ -He collisions, *Phys. Rev. A* **60**, 3694 – 3701 (1999).
- Zhao, H., Efremov, A. und Kutner, V.: Numerical study on the gas mixing effect in ECR ion sources, *Nucl. Instrum. Meth. B* **98**, 545 – 548 (1995).



## Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde am Institut für Atom- und Molekülphysik der Justus-Liebig-Universität Gießen angefertigt. Herrn Prof. Dr. A. Müller danke ich für die hervorragende Betreuung dieser Arbeit, welche sich in vielen interessanten Diskussionen, der ständigen Gesprächsbereitschaft, dem finanziellen Support und einer ansteckenden Begeisterungsfähigkeit für physikalische Fragestellungen äußert.

Herrn Dr. S. Ricz danke ich für die gute Zusammenarbeit in den letzten Jahren. Sein fortwährendes Interesse an diesem Experiment hat entscheidende Impulse für das Gelingen geliefert.

Herrn Prof. Dr. S. Schippers danke ich für die vielen Anregungen, Verbesserungsvorschläge und Literaturempfehlungen und die allgemein sehr nette Zusammenarbeit.

Herrn Dr. K. Huber danke ich für den vorzüglichen Support bei allen Dingen, die sich um die Datenaufnahme gedreht haben sowie die schnelle Umsetzung von Änderungswünschen.

Herrn Heinz-Jürgen Schäfer bin ich zu besonderem Dank verpflichtet, da der Aufbau des Labors ohne seine Hilfe nicht in dieser Zeit möglich gewesen wäre. Die angenehme Arbeitsatmosphäre wird mir immer in Erinnerung bleiben.

Den Mitarbeitern der Feinmechanischen Werkstatt, insbesondere Herrn W. Schmidt, Herrn K. Feldbusch und Frau Y. Kluckert danke ich für die schnelle und zuverlässige Ausführung zahlreicher Arbeiten und für einige deftige leckere Brotzeiten zu vormittäglicher Stunde.

Allen weiteren und ehemaligen Mitarbeitern des IAMP sei für die gute Zusammenarbeit der letzten Jahre gedankt, insbesondere Herrn Dr. E. W. Schmidt, Herrn Dr. O. Borovyk, Herrn D. Bernhardt und Frau Dr. Ticia Buhr.

Danke auch an meine Familie für die Unterstützung sowie an Christopher, Leni, Sven, meine Mitbewohner und ganz besonders an Katrin für die Geduld.