

# Photonenenergieabhängigkeit des Interatomic Coulombic Decay in Helium-Dimeren

Bachelorthesis

am Institut für Kernphysik der Goethe-Universität Frankfurt am Main

Phillip Burzynski

Erstgutachter: Prof. Dr. Reinhard Dörner

Zweitgutachter: PD Dr. Till Jahnke

27. September 2013



*„Die Vernunft muß mit ihren Prinzipien, nach denen allein  
übereinkommende Erscheinungen für Gesetze gelten können, in einer  
Hand, und mit dem Experiment, das sie nach jenen ausdachte, in der  
anderen, an die Natur gehen, zwar um von ihr belehrt zu werden, aber  
nicht in der Qualität eines Schülers, der sich alles vorsagen läßt, was der  
Lehrer will, sondern eines bestellten Richters, der die Zeugen nötigt, auf  
die Fragen zu antworten, die er ihnen vorlegt.“*

Immanuel Kant



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Theoretischer Hintergrund</b>	<b>3</b>
2.1	Dimer- und Molekülbildung . . . . .	3
2.1.1	Möglichkeiten der chemischen Bindung . . . . .	3
2.1.2	Chemische Bindung am Beispiel des Wasserstoffions . . . . .	5
2.1.3	Van-der-Waals-Bindung . . . . .	5
2.1.4	Das Heliumatom . . . . .	6
2.2	Anregungsenergie . . . . .	8
2.2.1	Anregung von Helium . . . . .	8
2.2.2	Anregung von $He^+$ . . . . .	10
2.3	Ionisationsenergie . . . . .	10
2.3.1	Unterschiedliche Ionisationsmechanismen . . . . .	11
2.4	Interatomic Coulombic Decay . . . . .	14
2.5	Konkurrierender Prozess der Doppelionisation . . . . .	18
<b>3</b>	<b>Experimenteller Aufbau</b>	<b>19</b>
3.1	Synchrotron . . . . .	19
3.1.1	BESSY II . . . . .	19
3.1.2	Die verwendete Beamline UE112.PGM-1 . . . . .	21
3.2	COLTRIMS . . . . .	23
3.3	Vakuum . . . . .	25
3.4	Gasjet . . . . .	27
3.5	Spektrometer . . . . .	29
3.6	Detektoren . . . . .	30
3.6.1	Micro-Channel-Plate . . . . .	30
3.6.2	Hexagonale Delayline-Anode . . . . .	32
3.7	Ausleseelektronik . . . . .	33
3.8	Ablauf des Experiments . . . . .	34
<b>4</b>	<b>Auswertung der Daten</b>	<b>35</b>
4.1	Bestimmung der Flugzeiten . . . . .	35
4.2	Berechnung der Impulse . . . . .	40
4.2.1	Einzelteilchenimpulse . . . . .	41
4.2.2	Relativimpulse . . . . .	41
4.3	Kalibrierung der Photonenenergie . . . . .	42
4.4	Betrachtung der Detektorwinkel . . . . .	43
4.5	Kalibrierung des Detektors mittels KER - Eichung . . . . .	46
4.6	Nachweis ICD . . . . .	49

<b>5</b>	<b>Ergebnisse</b>	<b>52</b>
<b>6</b>	<b>Ausblick</b>	<b>63</b>
<b>7</b>	<b>Danksagungen</b>	<b>65</b>
<b>8</b>	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>67</b>

## 1 Einleitung

Die Experimente der modernen Physik haben sich im Vergleich zu den ersten Experimenten in ihrer Komplexität stark weiterentwickelt. Während bei den frühen Aufbauten oftmals Messungen von Zeit, Länge oder Temperatur mit doch sehr überschaubaren Hilfsmitteln ausgereicht haben, wird heute für Versuchsaufbauten auf eine Vielzahl von Sekundäreffekten zurückgegriffen. Um beispielsweise experimentell die Geschwindigkeit eines Körpers zu bestimmen

$$s = vt \tag{1.1}$$

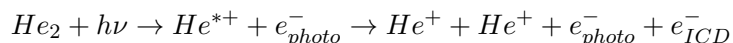
reicht es aus, eine Strecke bekannter Länge abzumessen und einen ausreichend genauen Zeitmesser zur Verfügung zu haben. Mit diesen Hilfsmitteln ist es nun dem Experimentator möglich, im Rahmen eines gewissen Fehlers, die Geschwindigkeit zu bestimmen. Teilt man die Strecke nun in beliebig viele, gleich große Teilabschnitte und bestimmt auf jedem Abschnitt die Geschwindigkeit, kann man nun, unter Voraussetzung einer gleichbleibenden Kraft (z.B. Gravitationskraft), die Beschleunigung des Körpers bestimmen und somit das zweite Newtonsche Gesetz experimentell untersuchen.

In der modernen Atomphysik sind solche Experimente, bei denen der Experimentator selbst noch Teil des Messapparates ist und einfache Basisgrößen gemessen werden, nicht mehr ausreichend, um neue Erkenntnisse zu gewinnen. Dabei darf jedoch keinesfalls der Eindruck entstehen, dass die modernen Experimente schwieriger oder eine größere Leistung als die fundamentalen Experimente vor knapp 350 Jahren (1687, Newtonsche Gesetze) sind. Im Gegenteil, ohne diese wichtigen Erkenntnisse der Physik könnten heutige Messungen gar nicht vorgenommen werden. Jedes in dieser Messung benutzte Bauteil, ist das Ergebnis der Forschung zahlreicher, namhafter Physiker und hat eine lange zeitliche Entwicklung hinter sich. Fest steht sowohl heutige, wie auch historische Experimente wollen zum Verständnis weiterer Teile der Natur beitragen und eventuell daraus technischen Nutzen ziehen, um das menschliche Leben zu verbessern. Definition des Experimentes nach Kant:

*„Die Vernunft muß mit ihren Prinzipien, nach denen allein übereinkommende Erscheinungen für Gesetze gelten können, in einer Hand, und mit dem Experiment, das sie nach jenen ausdachte, in der anderen, an die Natur gehen, zwar um von ihr belehrt zu werden, aber nicht in der Qualität eines Schülers, der sich alles vorsagen läßt, was der Lehrer will, sondern eines bestellten Richters, der die Zeugen nötigt, auf die Fragen zu antworten, die er ihnen vorlegt.[1]“*

Das mittelfristige Ziel dieses Experimentes ist es, den Aufbau und die Kräfte, die auf Atome und Moleküle wirken, genauer zu verstehen. Dazu wird versucht zwei Heliumatome zu einer Dimerbildung zu bringen. Von diesem Paar

wird nun mittels Strahlung ein Elektron entfernt, also ionisiert. Die Folge ist, dass sich beide Atome auf Grund der geänderten Ladungsverteilung näher kommen. Die Energie wurde so gewählt, dass außer für die Ionisation auch noch genügend Energie für die Anregung des zweiten Elektrons des ionisierten Heliumatoms vorhanden ist. Da ein angeregter Zustand metastabil ist, wird das Elektron in den Grundzustand zurückkehren. Die dabei freiwerdende Energie wird nun auf ein Elektron des zweiten Heliumatoms übertragen. Nun liegen zwei positiv geladene  $He^+$  Atome in relativ geringem Abstand vor und es kommt auf Grund der Coulomb-Wechselwirkung zu einer Abstoßung und beide Heliumionen erhalten einen gegensätzlichen Impuls. Dieser Prozess wird **Interatomic Coulombic Decay** genannt.



Das erste Mal theoretisch vorhergesagt wurde dieser Prozess vor ca. 15 Jahren von L. Cederbaum et al.[2]. Nachweisen kann man ihn nun mittels des in Frankfurt entwickelten COLTRIMS Aufbaus. Dabei wird die Zeit, die die Fragmente bis zum Detektor zurücklegen und deren Auftreffort auf dem Detektor bestimmt. Unter Berücksichtigung der Maße und Felder, können nun Masse, Impuls und Energie der Teilchen bestimmt werden. Die Fragmente selbst lassen sich natürlich nicht mit dem Auge erkennen, sondern werden mittels Prozessen der Elektrodynamik nachgewiesen und mit moderner Computertechnik für den Menschen wahrnehmbar aufbereitet.

Im Rahmen der bekannten Theorien und Annahmen erhält man somit Erkenntnisse und ein tieferes Verständnis dieses Prozesses.

Nachdem der ICD-Prozess in den vergangenen Jahren an verschiedenen Dimeren nachgewiesen werden konnte, ist nun die Aufgabe, genauer zu untersuchen, inwieweit eine Abhängigkeit von der Photonenenergie vorliegt. Wenn man davon ausgeht, dass der ICD-Schritt eigentlich gar nichts von der Photonenenergie direkt spürt, sondern eigentlich nur die Energie aus der Abregung des Dimerpartners aufnimmt, so sollte keine Abhängigkeit vorliegen. Um dies zu untersuchen wird eine Photonenenergie nahe der Schwelle gewählt, ab der ICD energetisch möglich ist. Vielleicht können bei dieser Untersuchung neue und interessante Ergebnisse erzielt werden.

Die Messungen sind im Februar 2013 am BESSY II an der Beamline UE112-PGM-1 vorgenommen worden.



## 2 Theoretischer Hintergrund

Um den eigentlichen Prozess des Interatomic Coulombic Decay (ICD) zu untersuchen, wird deutlich, dass eine ganze Menge mehr theoretischer Betrachtungen vorausgehen müssen.

### 2.1 Dimer- und Molekülbildung

Verschiedene oder auch gleiche Atome streben in der Regel den energetisch günstigsten Zustand an. Das kann in vielen Fällen zu einem Zusammenschluss zu einem Paar oder zu einer Gruppe von Atomen als Molekül oder Polymer führen. Eine klare Abgrenzung oder Definition, wann man von einem Molekül und wann von einem Polymer spricht, ist nicht festzustellen. Meistens wird der Begriff Molekül jedoch für Zusammenschlüsse, die auf der kovalenten oder ionischen Bindung basieren, verwendet. Werden vor allem identische Atome ausschließlich durch Van-der-Waals-Kräfte zusammengehalten, werden diese als Di-, Tri- oder Polymere bezeichnet.

#### 2.1.1 Möglichkeiten der chemischen Bindung

Je nachdem welche Wechselwirkungen zwischen den Atomen dominieren, kommen unterschiedliche Arten der Bindung zu Stande. Dabei unterscheidet man zwischen folgenden vier Bindungstypen:

##### Ionische Bindung

Bei der ionischen Bindung wechselt ein Elektron von einem Atom zu einem anderen Atom. Dies kann nur passieren, wenn einer der Bindungspartner ein relativ schwach gebundenes Elektron besitzt und der andere Bindungspartner mit wenig Aufwand seine äußere Schale mit diesem Elektron füllen kann. Üblicherweise ist einer der Bindungspartner in einer niedrigen Hauptgruppe (z.B. I oder II) und der andere Bindungspartner in einer hohen Hauptgruppe (z.B. VI oder VII) zu finden. Diese Bindung ist nicht unter identischen Atomen möglich oder mit Atomen der VIII. Hauptgruppe (Edelgase), da eine Umverteilung der Elektronen keinen energetisch günstigeren Zustand liefert. Oftmals bilden ionisch gebundene Moleküle Kristallgitterstrukturen, die durch Wasser leicht zu dissoziieren sind.

### **Kovalente Bindung**

Anders als bei der ionischen Bindung, in der ein Elektron komplett zu einem anderen Atom wechselt, werden hier die Elektronen aufgeteilt. Bei der kovalenten Bindung besetzen die Elektronen der Bindungspartner gemeinsame Molekülorbitale und somit entsteht eine feste Einheit. Oftmals haben die Valenzelektronen der Bindungspartner gleiche Quantenzustände und es kommt somit zur Paarbildung. Aus diesem Grund wird diese Art der Bindung auch Elektronenpaarbindung genannt. Aufgrund der Allokation der Elektronen kann es zu einer Ladungsumverteilung kommen, die eine Polarisation mit sich bringt.

### **Metallische Bindung**

Wie der Name schon vermuten lässt, tritt diese Art der Bindung nur bei metallischen Elementen auf. Bei zweiatomigen Molekülen ist diese Bindung nicht umsetzbar. Die Atomrümpfe bilden eine Gitterstruktur, zwischen der die Valenzelektronen frei beweglich sind. Die Bindung wird durch die Wechselwirkung des Gitters mit den freien Elektronen zusammengehalten. Die Elektronen können als freies Elektronengas approximiert werden. Folge dieser Art der Bindung sind die typischen Eigenschaften von Metallen (z.B. Leitfähigkeit).

### **Van-der-Waals-Bindung**

Die Van-der-Waals-Bindung resultiert aus der Dipol-Dipol-Wechselwirkung. Es kann sich dabei wahlweise um einen permanenten Dipol handeln ( $H_2O$ ) oder um einen induzierten Dipol (Edelgase). Oftmals kann die Van-der-Waals-Bindung negiert werden, da sie im Vergleich zu den anderen Wechselwirkungstypen vernachlässigbar schwach ist. Wenn jedoch die anderen Bindungstypen nicht praktikabel sind, wird die Van-der-Waals-Bindung relevant (z.B. bei Edelgasen).

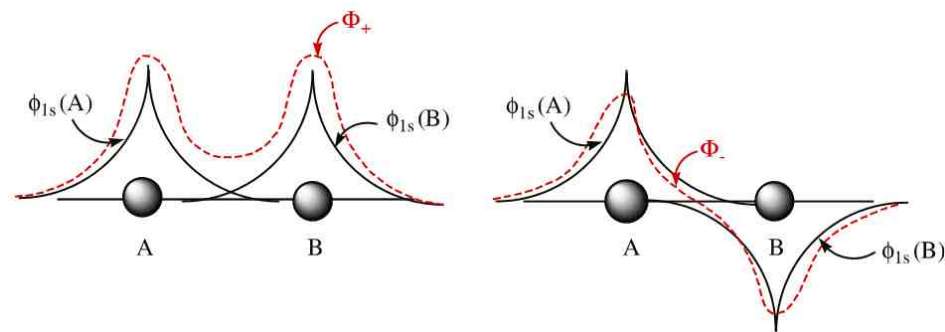
### 2.1.2 Chemische Bindung am Beispiel des Wasserstoffions

Das einfachste Molekül besteht aus zwei Protonen und einem Elektron. Hierbei werden zwei Wasserstoffatome durch eine ionische Bindung zusammengehalten. Die Bindung basiert auf der elektromagnetischen Wechselwirkung von Proton und Elektron. Wegen der räumlichen Nähe der zwei Wasserstoffatome, kann es zu einem Überlapp der radial symmetrischen Wellenfunktion im  $1s$  Orbital kommen. Die Wellenfunktion der Wasserstoffatome A und B ( $\Phi_{1s}(A)$  und  $\Phi_{1s}(B)$ ) können dabei entweder einen symmetrischen ( $\Phi_+$ ) oder einen antisymmetrischen ( $\Phi_-$ ) Zustand bilden. Das Elektron kann sich entweder beim einen oder beim anderen Kern befinden. Bei den beiden Zuständen handelt es sich um eine Linearkombination von beiden Möglichkeiten.

$$\Phi_+ \propto \Phi_{1s}(A) + \Phi_{1s}(B) \quad (2.1)$$

$$\Phi_- \propto \Phi_{1s}(A) - \Phi_{1s}(B) \quad (2.2)$$

Im symmetrischen Fall ist die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektrons zwischen beiden Atomkernen größer. Die einzelnen Atomorbitale bilden zusammen ein bindendes Molekülorbital. In dieser Anordnung wird die Coulombenergie reduziert und die Bindungsenergie maximiert. Man erhält einen stabilen Zustand: Das  $H_2^+$  Ion.



**Abbildung 1:** Die Überlappung der beiden  $1s$  Orbitale führt zu einem bindenden/symmetrischen (links) und antibindenden/antisymmetrischen (rechts) Zustand [3].

### 2.1.3 Van-der-Waals-Bindung

Die Van-der-Waals-Bindung ist die schwächste Möglichkeit der chemischen Bindung und resultiert aus den Van-der-Waals-Kräften. Diese basiert auf Dipol-Dipol-Wechselwirkungen in insgesamt neutralen Atomen. Es kann sich dabei entweder um zwei Dipole handeln oder ein (oder beide) Wechselwirkungspartner sind polarisierbar (haben also ein induziertes Dipolmoment).

Experimentell konnte die potentielle Energie nach dem Gesetz

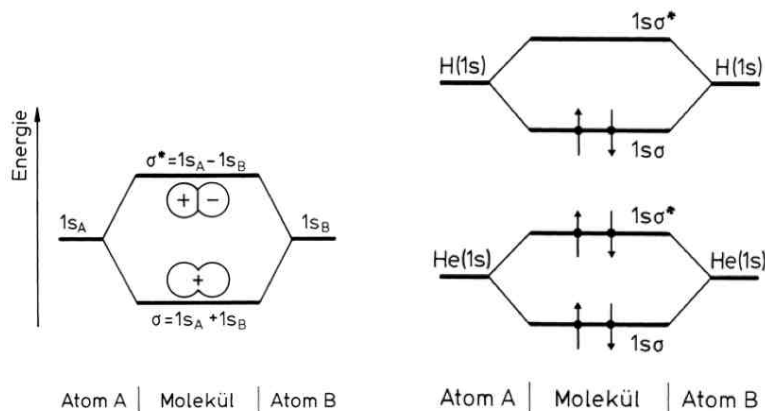
$$V(R) = -\frac{A}{R^6} \quad (2.3)$$

bestimmt werden, wobei  $R$  der Atomabstand ist und  $A$  eine positive Konstante. Rechnerisch lässt sich diese Konstante mittels Störungstheorie bestimmen. Für neutrale Atome ist die Korrektur der Energie in erster Ordnung dabei null. Erst die Korrektur zweiter Ordnung liefert einen Beitrag [7].

Für die anderen Bindungsarten können die Van-der-Waals-Kräfte vernachlässigt werden, da sie sehr viel schwächer sind. Wenn jedoch beispielsweise bei der kovalenten Bindung der Abstand größer wird und der Überlapp der Elektronenwellenfunktionen verschwindend klein, nehmen die Kräfte exponentiell ab und die mit  $\propto R^6$  abnehmenden Van-der-Waals-Kräfte werden relevant. In einigen Fällen treten jedoch ausschließlich die Van-der-Waals-Kräfte auf und sind damit nicht mehr vernachlässigbar.

#### 2.1.4 Das Heliumatom

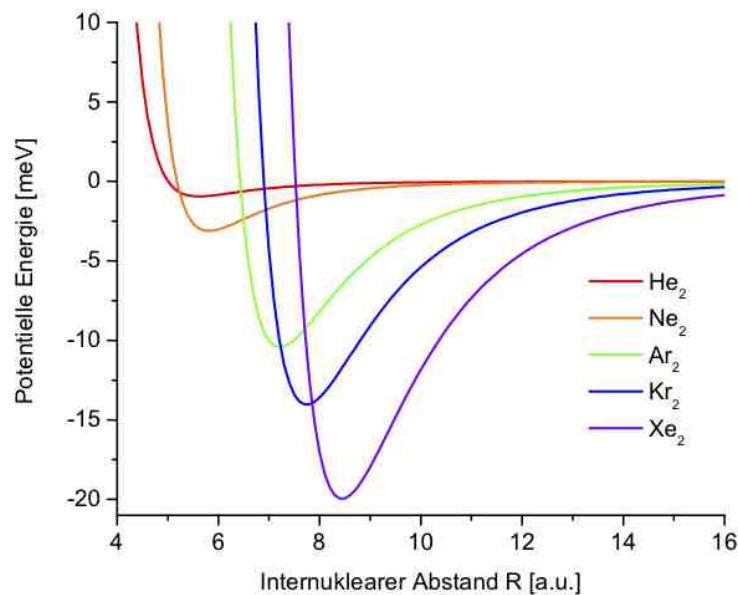
Das Heliumatom kann keine kovalente Bindung eingehen, da auf Grund des Vierelektronensystems sowohl der bindende, wie auch der antibindende Zustand besetzt sind. Der antibindende Zustand bestimmt jedoch überwiegend die Eigenschaften und das Molekül ist somit nicht stabil. Auf Grund der vollbesetzten Schalen gilt dies für alle Edelgase [4].



**Abbildung 2:** Die linke Abbildung zeigt ein Molekül mit einem symmetrischen und einem antisymmetrischen Zustand. Beim Wasserstoff ist der bindende (symmetrische) Zustand energetisch günstiger, weswegen dieser bevorzugt besetzt wird (rechts oben). Beim Helium ist es wegen des Pauliprinzipts nicht möglich, dass sich alle Elektronen in dem bindenden Zustand befinden. Je zwei besetzen den symmetrischen und zwei den antisymmetrischen Zustand. Der antisymmetrische dominiert dabei, weswegen dieses System instabil ist [4].

Die Möglichkeit, dennoch ein Molekül oder ein sogenanntes Dimer zu bilden, ist die Van-der-Waals-Bindung. Obwohl die Heliumatome im Mittel kein Dipolmoment besitzen, besteht jedoch statistisch die Möglichkeit, dass sich in einem Atom zufällig ein Dipol ausbildet und in diesem Moment im Nachbaratom ebenfalls ein Dipol induziert. Wie oben festgestellt hängt die Energie mit der 6. Potenz vom Abstand ab und um eine Bindung zu erzielen, ist es nötig, den Abstand zwischen den Atomen zu minimieren.

Das Potential wird durch ein Lennard-Jones-Potential approximiert.



**Abbildung 3:** Lennard Jones Potential für Van-der-Waals-Kräfte in Edelgasen [5]

Wie der Grafik zu entnehmen ist, ist die Tiefe des Potentialtopfes für Helium sehr gering. Die Existenz von Heliumdimeren wurde deswegen lange angezweifelt. Die Tiefe des Potentialtopfes wird mit 0,94668 meV berechnet, was nur geringfügig größer als die Nullpunktsenergie von Helium mit 0,94658 meV ist [5]. Somit ist es notwendig, die thermische Energie zu minimieren, und möglichst nah an die Nullpunktsenergie heranzukommen, sodass die thermische Energie nicht ausreicht, um den Potentialtopf zu überwinden. Aus diesem Grund wurde in unserem Experiment der Gasjet auf ca. 21K heruntergekühlt und ein Vordruck von 1,8 bar angelegt, was zu einem Dimeranteil von ca. 1-2% führt. Der Trimeranteil liegt bei weit unter einem Prozent und höhere Cluster (Tetramere etc.) kommen in vernachlässigbar geringem Anteil vor [5]. Beim Helium-Dimer handelt es sich um das schwächste, bekannte, gebundene System im Grundzustand [6]. Die Bindungsenergie beträgt gerade mal 95 neV und der Abstand kann zwischen 5 Å bis hin zu einem mittleren Abstand von 52 Å liegen.

## 2.2 Anregungsenergie

Allgemein spricht man bei der Anregung von Atomen von Zuständen, bei denen die Elektronen sich nicht mehr im Grundzustand befinden, sondern auf Grund von einer äußeren Anregung in einem höheren, nicht stabilen Zustand vorliegen.

### 2.2.1 Anregung von Helium

Die Anregung von Helium wird quantenmechanisch betrachtet [7]. Dazu wird in nullter Näherung angenommen, dass sich beide Elektronen des Heliumatoms im 1s Zustand befinden. Für die erste Anregung befindet sich ein Elektron im 1s Zustand und das andere im 2s Zustand. Somit ergeben sich zwei möglich Wellenfunktionen:

$$\psi_s = \frac{1}{\sqrt{2}}[\phi_{1s}(1)\phi_{2s}(2) + \phi_{1s}(2)\phi_{2s}(1)] \quad (2.4)$$

$$\psi_a = \frac{1}{\sqrt{2}}[\phi_{1s}(1)\phi_{2s}(2) - \phi_{1s}(2)\phi_{2s}(1)] \quad (2.5)$$

Dabei beschreibt der Index den Zustand und die Zahl unterscheidet, um welches der beiden Elektronen es sich handelt. Aus dem Pauli-Prinzip folgt, dass die gesamte Wellenfunktion antisymmetrisch sein muss. Aus diesem Grund entspricht die Ortsfunktion  $\psi_s$  dem Spinzustand mit antiparalleler Spinausrichtung. Diese Zustände werden Parazustände genannt. Der Grundzustand des Heliumatoms ist ein Parazustand. Die Ortsfunktion  $\psi_a$  hat eine parallele Spinausrichtung (Gesamtspin  $S=1$ ). Diese Zustände werden Orthozustände genannt.

Vernachlässigt man die Wechselwirkung, haben Ortho- und Parazustände die gleiche Energie. Betrachtet man die Energien jedoch unter der ersten Ordnung der Störungstheorie und berücksichtigt die Wechselwirkung zwischen den Elektronen, stellt man fest, dass die Energie des Parazustandes leicht über der Energie des Orthozustandes liegt. Dazu wird die erste Ordnung der Störungstheorie betrachtet und für  $\psi_{1s}$  und  $\psi_{2s}$  Wasserstoff ähnliche Energien  $\epsilon_{1s}$  und  $\epsilon_{2s}$  angenommen. Somit ergeben sich für die Energien von Para- und Orthozustand:

$$\int \psi_s H \psi_s d\tau = \epsilon_{1s} + \epsilon_{2s} + Q + A \quad (2.6)$$

$$\int \psi_a H \psi_a d\tau = \epsilon_{1s} + \epsilon_{2s} + Q - A \quad (2.7)$$

Wobei es sich bei  $Q$  um das Coulomb-Integral handelt, das den Mittelwert für die Energie der Coulombwechselwirkung zwischen den Elektronen angibt. Das Integral  $A$  beschreibt die Austauschenergie, die im Coulomb-Integral

vernachlässigt wurde und stammt aus Korrelation der Elektronen aus der Symmetrie der Konfiguration.

$$Q = \int \phi_{1s}^2(1)\phi_{2s}^2(2)\frac{e^2}{r_{12}}d\tau_1d\tau_2 \quad (2.8)$$

$$A = \int \phi_{1s}(1)\phi_{2s}(2)\frac{e^2}{r_{12}}\phi_{1s}(2)\phi_{2s}(1)d\tau_1d\tau_2 \quad (2.9)$$

Die gleiche Rechnung lässt sich für Helium mit einem Elektron im 1s und dem anderen im 2p Zustand durchführen. Die Energieniveaus des Heliumatoms bestehen aus zwei möglichen Systemen. Es gibt Orthozustände mit antisymmetrischen Ortsfunktionen und drei möglichen Spinfunktionen (Triplet) und Parazustände mit symmetrischer Ortsfunktion und einer Spinfunktion (Singulett). Auf Grund der Orthogonalität der Spinfunktionen sind Übergänge zwischen Triplet und Singulett Zuständen in erster Näherung verboten. Die vernachlässigte Spin-Bahn-Wechselwirkung erlaubt dennoch eine langsame und schwer umzusetzende Änderung der Spinausrichtung.

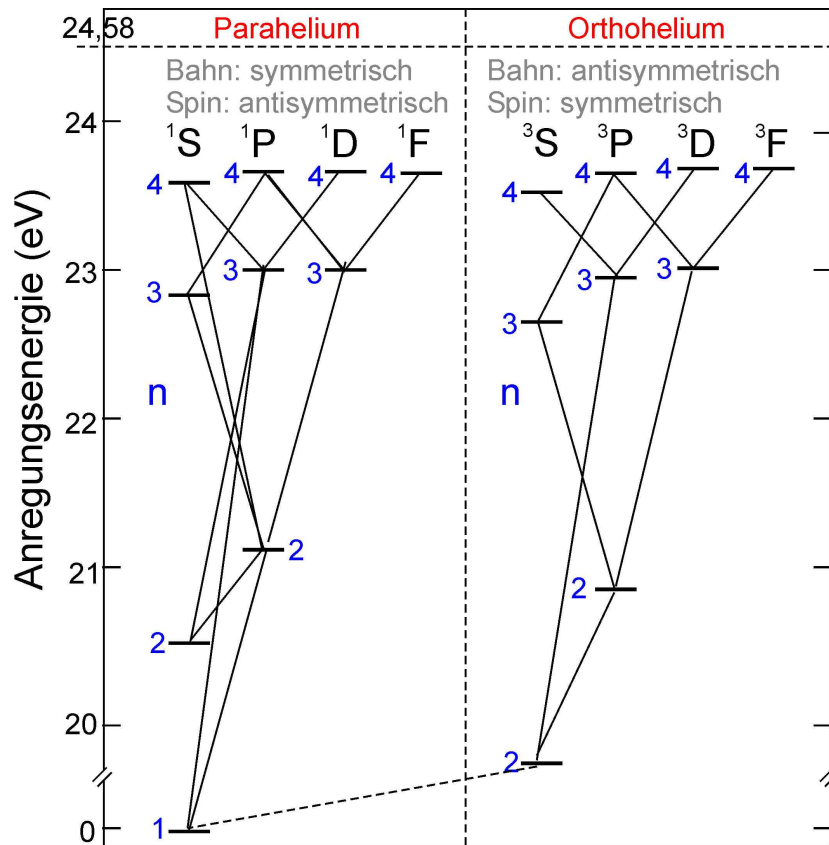


Abbildung 4: Anregungsenergien Ortho- und Parahelium [8]

Bei Systemen mit mehr als einem Elektron können auch mehrere Elektronen angeregt werden, wenn ausreichend Energie zur Verfügung steht. Falls das erste Elektron angeregt wurde und die Anregungsenergie ausreicht, um ein weiteres (oder mehrere weitere) Elektronen in einen angeregten Zustand zu heben, so kommt es zur Autoionisation. Durch diese Konfiguration kann sich ein angeregter Zustand oberhalb der Ionisationsenergie befinden. Fällt nun ein angeregtes Elektron zurück in den Grundzustand und überträgt seine Energie dabei auf das andere angeregte Elektron, so kann dieses ins Kontinuum gehoben werden.

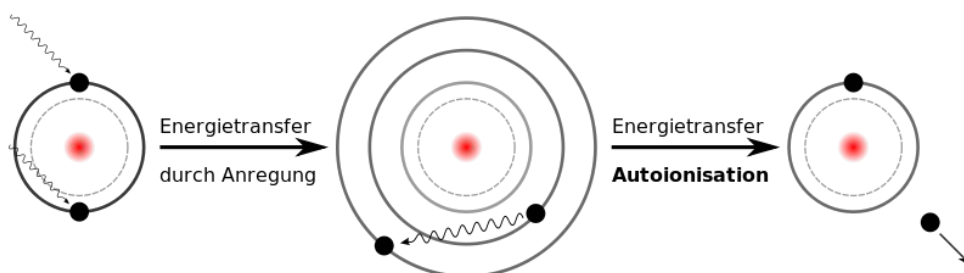


Abbildung 5: Schematischer Ablauf der Autoionisation bei Helium [9].

### 2.2.2 Anregung von $He^+$

Die eben gemachten Betrachtungen für die Anregung von Heliumatomen treffen in diesem Experiment nur bedingt zu, da wir keine Heliumatome, sondern einfach ionisierte Heliumionen anregen möchten. Durch das Fehlen eines Elektrons ist das zweite Elektron stärker gebunden, da ein anderes Potential vorliegt. Dies führt zu einer Erhöhung der Anregungsenergie. Um neutrales Helium von  $n=1$  in  $n=2$  anzuregen benötigt man 19,82 eV, während zur Anregung von  $He^+$  40,813 eV notwendig sind [10].

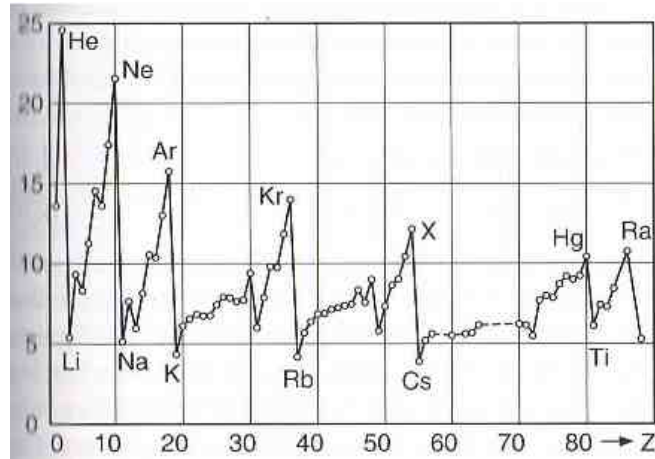
## 2.3 Ionisationsenergie

Bei der Ionisation handelt es sich eigentlich um eine Anregung eines Elektrons ins Unendliche. Es wird Energie auf das Elektron übertragen, sodass es in einen höheren Zustand wechselt. Wenn dies ausreichend oft geschieht, spürt das Elektron dann im Unendlichen keine Anziehung mehr und man erhält ein freies Elektron und ein positiv geladenes Ion. Die Arbeit, die dabei zu verrichten ist, hängt von der Schalenkonfiguration und dem Ionisationsgrad ab. Um das am schwächsten gebundene äußere Elektron vom Abstand  $r_n$  ins Unendliche zu bringen, ist folgende Energie  $W_{ion}$  notwendig:

$$W_{ion} = \int_{r_n}^{\infty} \frac{Z_{eff}e^2}{4\pi\epsilon_0 r^2} dr - E_{kin}(r_n) = \frac{1}{2} \frac{Z_{eff}e^2}{4\pi\epsilon_0 r_n} = R_y \frac{Z_{eff}^2}{n^2} \quad (2.10)$$



Dabei handelt es sich bei  $Z_{eff}$  um eine angepasste Kernladungszahl. Es muss berücksichtigt werden, dass die vom Elektron wahrgenommene Kernladung durch Abschirmung abgeschwächt wird. Aus diesem Grund hängt die Ionisationsenergie auch nicht ausschließlich von der Größe des Kernes ab, sondern auch von der Schalenbesetzung.



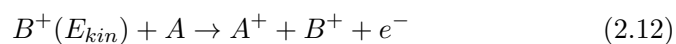
**Abbildung 6:** Abhängigkeit der Ionisationsenergie (y-Achse in eV) von der Kernladungszahl  $Z$  und Schalenbesetzung [11]

### 2.3.1 Unterschiedliche Ionisationsmechanismen

Es gibt verschiedene Möglichkeiten, die notwendige Energie auf die gebundenen Elektronen zu übertragen.

#### Elektronen- und Ionenstoßionisation

Eine gute Möglichkeit der Ionisation ist durch Stöße mit beschleunigten Elektronen oder Ionen. Dabei müssen die Projektile mit ausreichend kinetischer Energie ausgestattet sein, um die Bindungsenergie des gebundenen Elektrons aufzubringen. Außerdem gibt es keine Garantie, dass jedes Projektil eine Ionisation durchführt, da diese auch mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit einfach durch das Target hindurchfliegen können ohne dabei zu stoßen. Der Wirkungsquerschnitt  $\sigma(E_{kin})$  gibt die Wahrscheinlichkeit an, in der eine Ionisation stattfindet. Er hängt unter anderem von der Energie der Projektile ab. Als Projektile können dabei entweder Elektronen oder Ionen dienen.



### Ladungsaustauschstöße

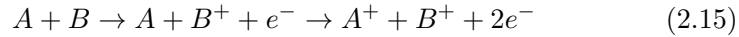
Falls ein Ion B durch ein Gas hindurchfliegt, kann es zu einem Ladungsübergang vom Ion B zu einem neutralen Gasatom A kommen. Je größer die Ionisationsenergie von B im Vergleich zu A ist, desto wahrscheinlicher findet die Ladungsübertragung statt.

Alternativ können auch freie Elektronen mit relativ niedriger kinetischer Energie beim Passieren eines neutralen Gases sich an die neutralen Atome anlagern und somit ionisieren.



### Thermische Ionisation

Durch die thermische Bewegung der Atome kann es ebenfalls zu Zusammenstößen mit anschließender Ionisation kommen. Dieser Effekt tritt jedoch erst bei ausreichend hohen Temperaturen und hohe kinetischen Energien auf. Ein solcher Zustand wird als Plasma bezeichnet.



### Photoionisation bei Atomen

Bei der Photoionisation wird die Energie aus der Absorption von Licht bzw. elektromagnetischer Strahlung genügend kleiner Wellenlänge gewonnen. Die Grenzen der Anregung konvergieren für  $n \rightarrow \infty$  gegen die Ionisationsenergie. Sobald das Photon ausreichend Energie hat, um die Bindungsenergie zu überwinden, kann das Elektron den Atomkern verlassen.

$$h\nu + A = A^+ + e^- \quad (2.16)$$

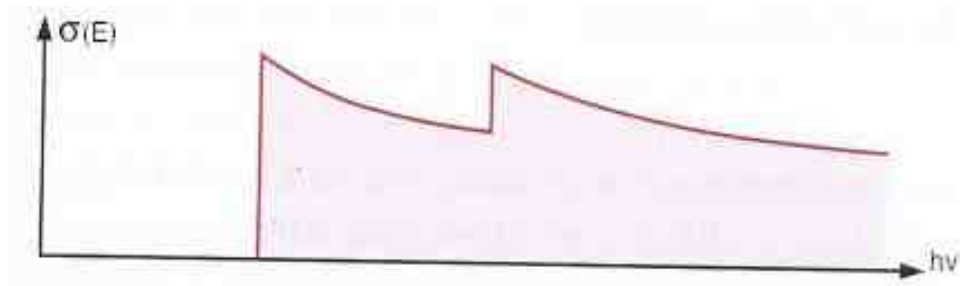
Die überschüssige Energie wird dann hauptsächlich zur kinetischen Energie des Elektrons, da die Masse des Ions viel größer ist und kaum kinetische Energie erhält.

$$h\nu = E_{kin_{e^-}} + E_{ionisation} + (E_{kin_{ion}}) \quad (2.17)$$

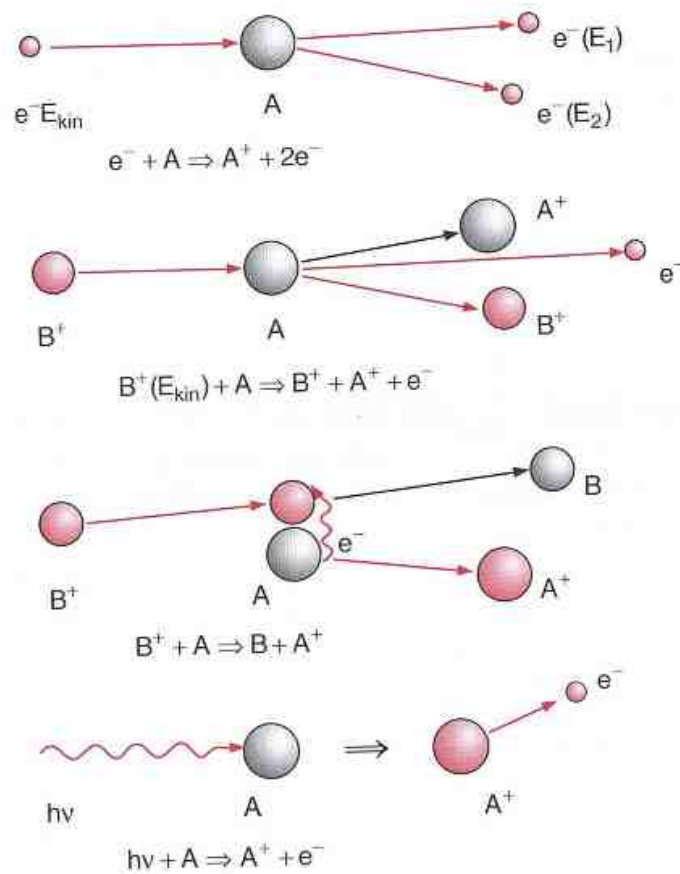
Der Wirkungsquerschnitt dieses Prozesses hängt von der Energie des Photons ab und fällt bei steigender Energie. Dies lässt sich mit dem Überlapp der beiden Wellenfunktionen für das gebundene Elektron und das ionisierte und beschleunigte Elektron erklären. Je mehr kinetische Energie das Elektron dabei aufnehmen würde, desto geringer ist der Überlapp und somit das Matrixelement, das die Wahrscheinlichkeit angibt.

$$\sigma(E_{photon}) = |\langle \Psi_{bound} | \Psi_{acc} \rangle|^2 \quad (2.18)$$

Für dieses Experiment ist die Photoionisation der relevante Prozess, mit dem die Heliumdimere ionisiert werden, da Anregung und Ionisation mittels Synchrotronstrahlung erreicht werden.



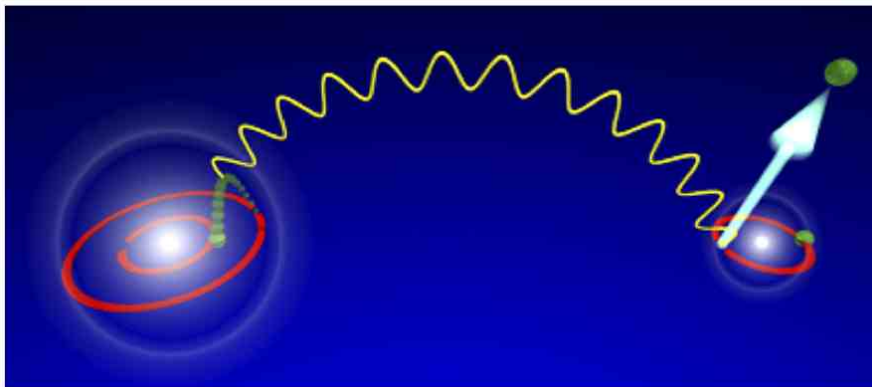
**Abbildung 7:** Wirkungsquerschnitt gegen die Photonenenergie aufgetragen. Die sogenannten Absorptionskanten entstehen durch die Tatsache, dass bei dieser Photonenenergie ein Elektron aus der nächsten Schale entfernt werden kann. modifizierter Plot, Original aus [11]



**Abbildung 8:** Überblick über die verschiedenen Ionisationsprozesse [11].

## 2.4 Interatomic Coulombic Decay

Beim Interatomic Coulombic Decay (ICD) handelt es sich um einen interatomaren Abregungsprozess. Beim Zerfall des angeregten Zustands in den Grundzustand wird ein virtuelles Photon emittiert, das zu einer Ionisation bei einem vorhandenen Nachbaratom führen kann. Dieser Prozess wurde vor gut 15 Jahren das erste Mal von Cederbaum et al. [2] als Abregungsmechanismus in schwach gebundenen Systemen theoretisch betrachtet. Mittlerweile konnte der Prozess unter anderem bei Ne-Clustern [12] und Ne-Dimeren [13] nachgewiesen werden.



**Abbildung 9:** Schematische Darstellung des ICD-Prozesses im Heliumdimer [5].

Für dieses Experiment liegen zwei Heliumatome als schwach gebundenes System vor. Die Elektronen befinden sich beide im 1s Grundzustand. Im ersten Schritt wird durch Photoionisation ein Elektron entfernt und das zweite angeregt ( $n=2$ ). Das angeregte Ion möchte in den 1s Zustand zurückkehren und emittiert dabei ein virtuelles Photon. Im zweiten Schritt ionisiert das virtuelle Photon bei seinem Partneratom im Dimer ein Elektron ins Kontinuum. Nun liegen zwei positiv geladene  $He^+$ -Ionen bei relativ geringen Abständen vor und die Coulomb-Abstoßung führt zu einem explosionsartigen Auseinanderfliegen der beiden Ionen.

## 0.Step: He-Dimer

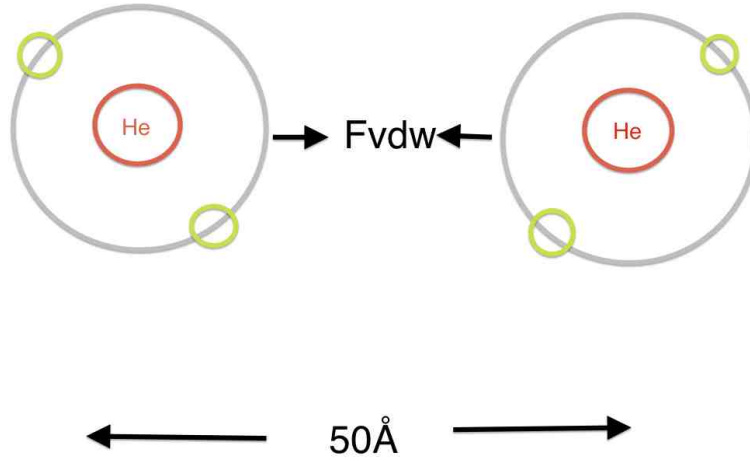


Abbildung 10: Helium-Dimer mit einem Abstand von ca. 50 Angström

## 1. Step: Ionization &amp; Excitation by synchrotron radiation

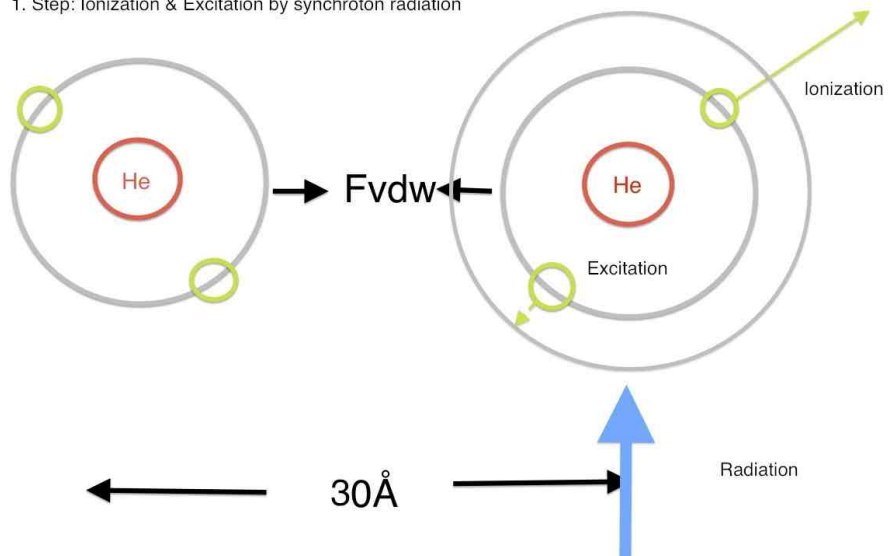


Abbildung 11: Beim rechten Atom regt die Synchrotronstrahlung ein Elektron an und hebt das andere ins Kontinuum

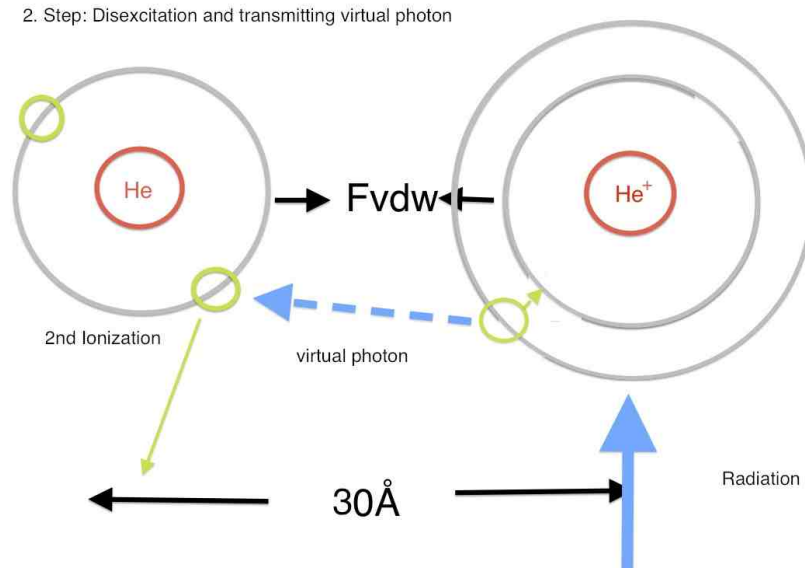


Abbildung 12: Die Abregung führt zum Transfer eines virtuellen Photons

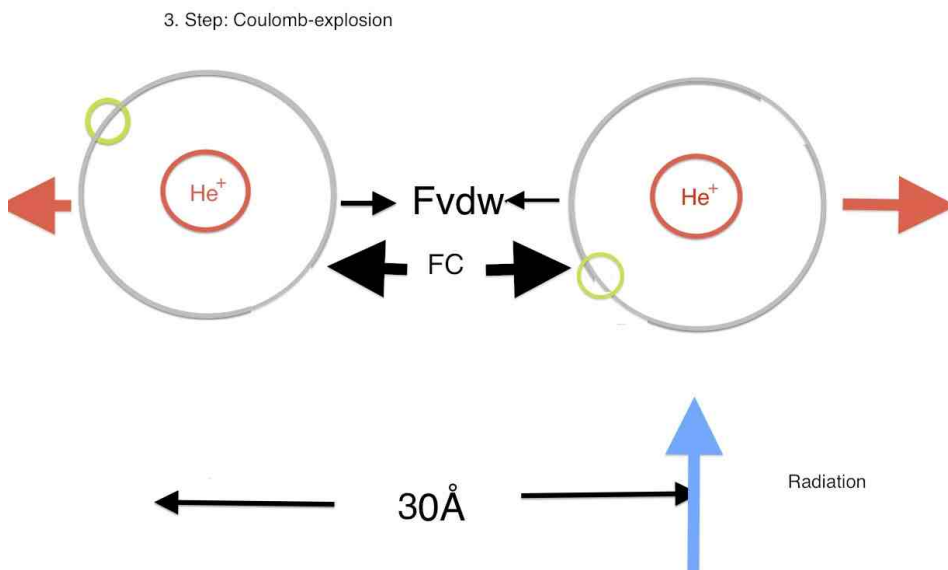
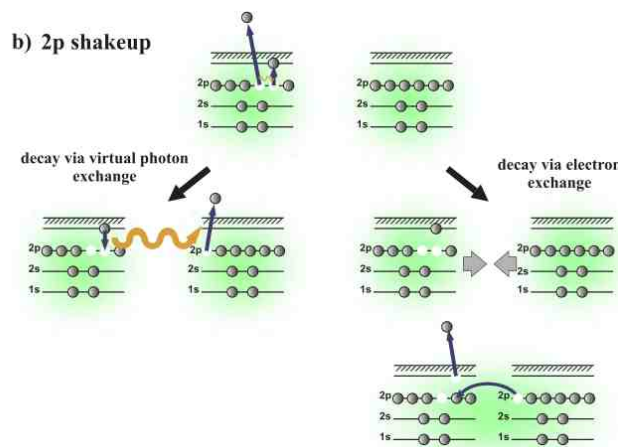


Abbildung 13: Die beiden positiven Atomrümpfe fliegen explosionsartig auseinander

Alternativ könnte jedoch auch ein Elektron des Nachbaratoms den freien Platz des angeregten Elektrons einnehmen. Es kann theoretisch also entweder ein Photon oder ein Elektron ausgetauscht werden. Quantenmechanisch betrachtet jedoch ergibt die Auswertung der Matrixelemente, dass beide Prozesse einer unterschiedlichen Abhängigkeit des internuklearen Abstandes unterliegen [5]. Aufgrund des großen Abstandes ist der Überlapp der Wellenfunktionen gering und beim Heliumdimer dominiert der Übertrag eines virtuellen Photons. Beide Prozesse können prinzipiell durch Betrachtung des Kinetic-Energy-Release (KER) unterschieden werden.



**Abbildung 14:** Betrachtung des ICD-Prozesses (links) und des Elektronenaustauschs (rechts) bei Neondimeren [5]

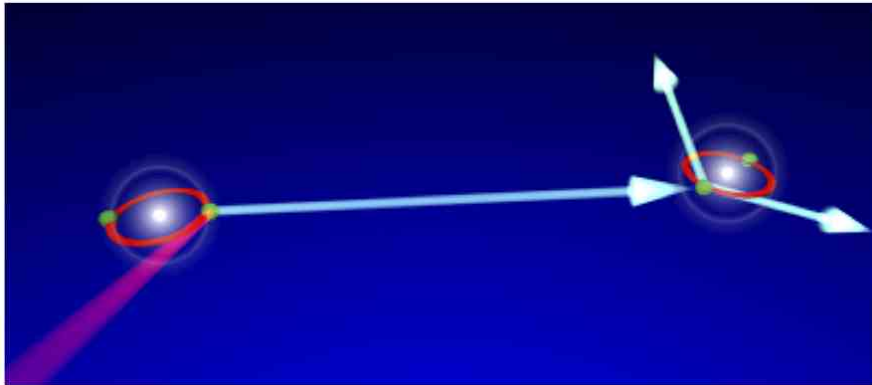
Damit ICD stattfinden kann, muss die Energie für eine Ionisation und Anregung ausreichen. Experimentell wurde die Anregung in  $n=2$  untersucht. Ab folgenden Schwellenwerten der Photonenenergie tritt ICD auf:

Anregung	Ionisation + Anregung	Photonenenergie ICD - Schwelle
$n=2$	24,587 eV + 40,813 eV	65,4 eV
$n=3$	24,587 eV + 48,37 eV	72,957 eV

**Abbildung 15:** Schwellen für ICD-Prozess, experimentell wurde die Schwelle für  $n=2$  untersucht. Die Schwellen setzen sich aus der Ionisationsenergie und der Anregungsenergie des Ions zusammen. Werte von [10]

## 2.5 Konkurrierender Prozess der Doppelionisation

Es ist ebenfalls möglich, mit einem Photon direkt zwei Atome zu ionisieren. Zum Einen ist es möglich, dass das durch Photoionisation herausgelöste Elektron ausreichend kinetische Energie besitzt, um beim Nachbaratom eine Stoßionisation durchzuführen, wenn es in dessen Richtung emittiert wird. Dieser Vorgang wird Two-Step-1 Prozess genannt.



**Abbildung 16:** Schematische Darstellung des Two-Step-1 Prozesses beim Heliumdimer [5]

Außer dem Two-Step-1 Prozess ist es ebenfalls möglich per Shake-Off eine Doppelionisation durchzuführen. Beim Shake-Off wird auch erst ein Elektron durch Photoionisation herausgelöst. Dem zweiten Elektron stehen nun neue Zustände im ionisierten System offen und es kann selbst emittiert werden. Beide Prozesse sind bei den verwendeten Photonenenergien jedoch unwahrscheinlich und es kann eindeutig ICD nachgewiesen werden [5].



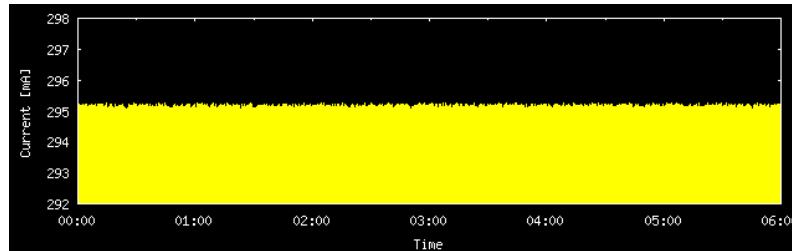
## 3 Experimenteller Aufbau

### 3.1 Synchrotron

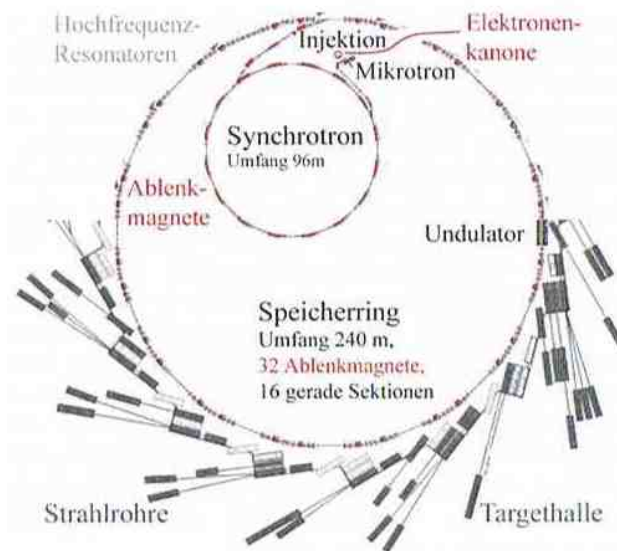
Um hochenergetische, stark fokussierte elektromagnetische Strahlung zu erzeugen, reicht eine einfache Röntgenröhre nicht mehr aus. Für die Spektroskopie mit solcher Strahlung wurden deswegen weltweit Forschungseinrichtungen zur Erzeugung von Synchrotronstrahlung gebaut.

#### 3.1.1 BESSY II

Bei BESSY II handelt es sich um einen Speicherring der dritten Generation, bei dem hochrelativistische gebündelte Elektronenstrahlen zur Synchrotronstrahlungserzeugung genutzt werden. Die Elektronen verlassen die Elektronenkanone und werden anschließend in einem kleinen Vorbeschleuniger, dem Mikrotron, auf die notwendige Energie gebracht. Ist diese erreicht, können sie in den großen Speicherring mit 240 m Umfang injiziert werden. In diesem Ring durchlaufen die Elektronen diverse magnetische Strukturen zur Fokussierung und werden auf eine Kreisbahn beschleunigt. Die Beschleunigung mit konstant gehaltener Energie führt zu einem Abstrahlen von elektromagnetischer Strahlung, die an den insgesamt 52 Strahlrohren für Experimente genutzt werden kann. Die nominale Betriebsenergie beträgt 1,7 GeV und wird mit einem Strom zwischen 100 - 400 mA betrieben. Die technischen Daten beziehen sich hierbei auf den Multi-Bunch-Modus, bei dem mehrere Elektronenpakete in den Ring geschickt werden. Für dieses Experiment wurde allerdings der Single-Bunch-Modus gewählt, bei dem nur ein Elektronenpaket im Speicherring beschleunigt wird. Dieser Unterschied ist wichtig, da nur im Single-Bunch-Modus Flugzeiten berechnet werden können. Wie später in der Auswertung beschrieben, ist von Interesse, wann der Startpunkt der Reaktion war. Wenn sich nur ein Elektronenpaket im Ring befindet, kann aus dem Signal, wann eine Umrundung stattgefunden hat, dieser Zeitpunkt bestimmt werden. Bei mehreren Paketen wäre dies nicht möglich. Die Stromstärke ist im Single-Bunch-Modus deutlich geringer bei etwa 30 mA. In der Vergangenheit mussten einmal am Tag Elektronen nachgefüllt werden und die Intensität ist nach den Füllungen abgefallen. Inzwischen wird im Top-Up-Modus gearbeitet, was bedeutet, dass ständig Elektronen nachgefüllt werden und die Intensität konstant gehalten wird.

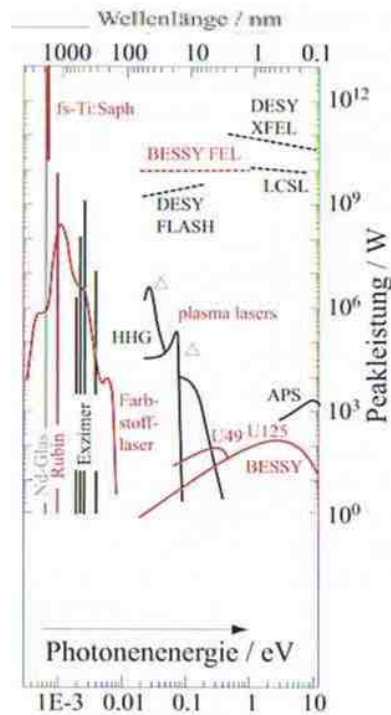


**Abbildung 17:** Zeitlicher Verlauf der Intensität von BESSY II im Top-Up und Multi-Bunch-Modus. Die Stromstärke wird nahezu konstant gehalten [14].



**Abbildung 18:** Schematische Darstellung von BESSY II. Die Strahlrohre sind der Übersichtlichkeit wegen nur in der unteren Bildhälfte eingezeichnet [15].

Der Vorteil einer solchen Synchrotronstrahlungsquelle ist das breite Spektrum an elektromagnetischen Wellen, die von den Nutzern an den Strahlrohren individuell eingestellt und abgegriffen werden können. Die Bandbreite reicht von weichen Röntgenstrahlen bis in die Terahertzregion. Die passenden Monochromatoren an den Beamlines sorgen für eine optimale Einstellung eines monochromatischen Strahls mit gewünschter Energie und geringer Divergenz.

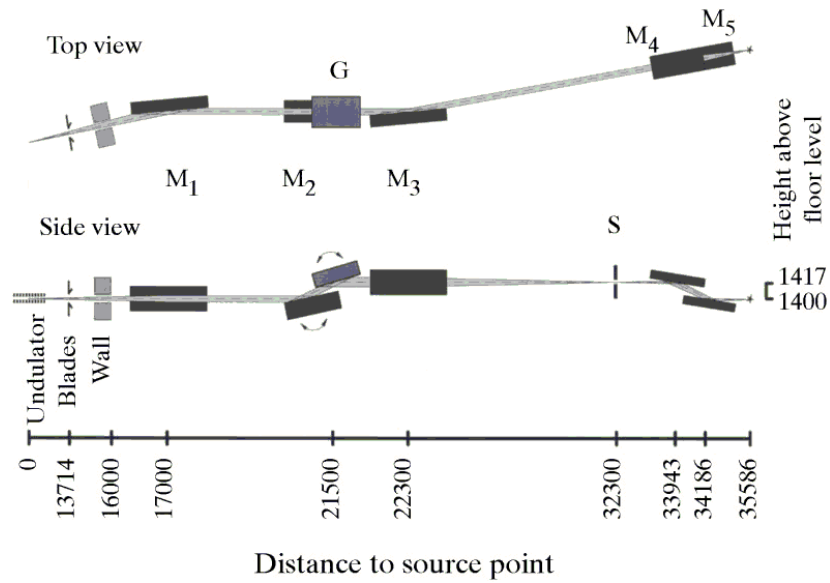


**Abbildung 19:** Vergleich der Spitzenleistung mit einigen Laserquellen aufgetragen gegen die Photonenenergie [15]

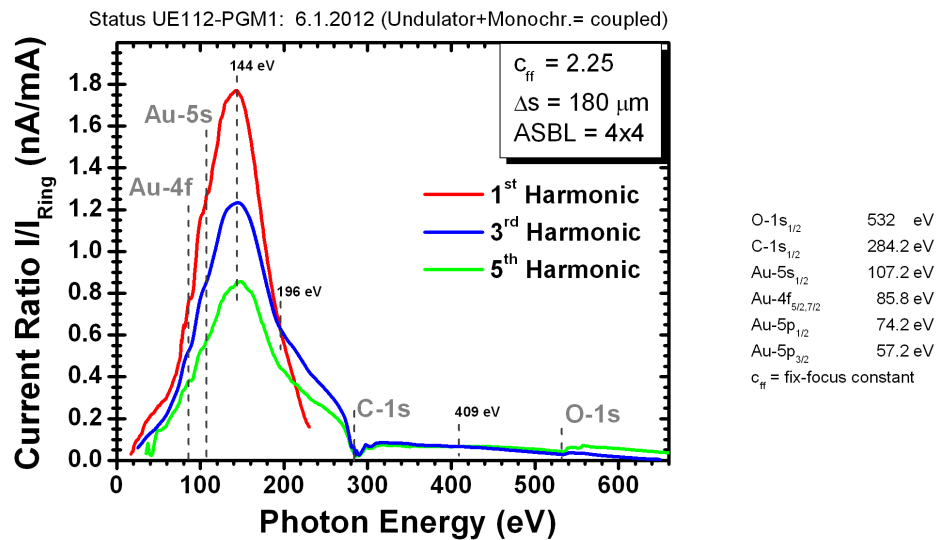
### 3.1.2 Die verwendete Beamline UE112\_PGM-1

Charakteristische Daten zu der für dieses Experiment verwendeten Beamline:

Beamline - Daten[16]	
Energiespektrum	20-700 eV
Energieauflösung	30000 (20-150 eV)
Polarisation	beliebig
Fokus	0,1 x 0,1 mm
Flux	$> 10^{12} ph/s(20 - 280eV)$
Horizontale Divergenz	1.4 @ 63,5 eV mrad
Vertikale Divergenz	0,6 @ 63,5 eV mrad



**Abbildung 20:** Schematische Darstellung der Beamline. Alle Werte in mm.  $M_1$  ist ein Spiegel, der das Licht horizontal und vertikal kollimiert. Bei  $M_2$  handelt es sich um einen Spiegel, der den Ablenkwinkel am Gitter  $G$  beeinflusst.  $M_3$  ist ein Spiegel, der den Strahl auf den Ausgangsschlitz  $S$  fokussiert. Die Spiegel  $M_4$  und  $M_5$  dienen der Refokussierung. [16]



**Abbildung 21:** Flusskurve der Beamline UE112.PGM-1 [16]

### 3.2 COLTRIMS

In diesem Experiment wurde das relativ neue Verfahren zur Messung der Impulse geladener Reaktionsfragmente mit dem Namen COLTRIMS verwendet. COLTRIMS ist dabei ein Akronym für **C**old **T**arget **R**ecoil **I**on **M**omentum **S**pectroscopy. Eine geschickte Anordnung von elektrischen und magnetischen Feldern und ortsauflösenden Detektoren macht es möglich, die Impulse der Teilchen aus der Flugzeit und dem Auftreffort zu rekonstruieren.

Nachdem die Reaktion stattgefunden hat und geladene Fragmente vorliegen, werden die positiv geladenen Ionen auf einen ortsauflösenden Detektor und die negativ geladenen Elektronen auf einen zweiten ortsauflösenden Detektor beschleunigt. Aus Flugzeiten und Auftrefforten können nun die Trajektorien rekonstruiert werden und es lassen sich die Impulse der Reaktionspartner berechnen. Durch Wahl geeigneter Spektrometerlänge ist es so möglich, die Fragmente mit Impulsen in alle Raumrichtungen zu messen.

Problematisch wird jedoch ein Nachweis hochenergetischer Elektronen, die das elektrische Feld schnell genug verlassen können, ohne vorher ausreichend in Richtung Detektor beschleunigt worden zu sein. Dieses Problem lässt sich lösen, indem ein homogenes Magnetfeld parallel eingesetzt wird. Das Feld zwingt die Elektronen auf eine Spiralbahn, woraufhin sie das elektrische Feld nicht schnell genug verlassen können und somit auf den Detektor treffen.

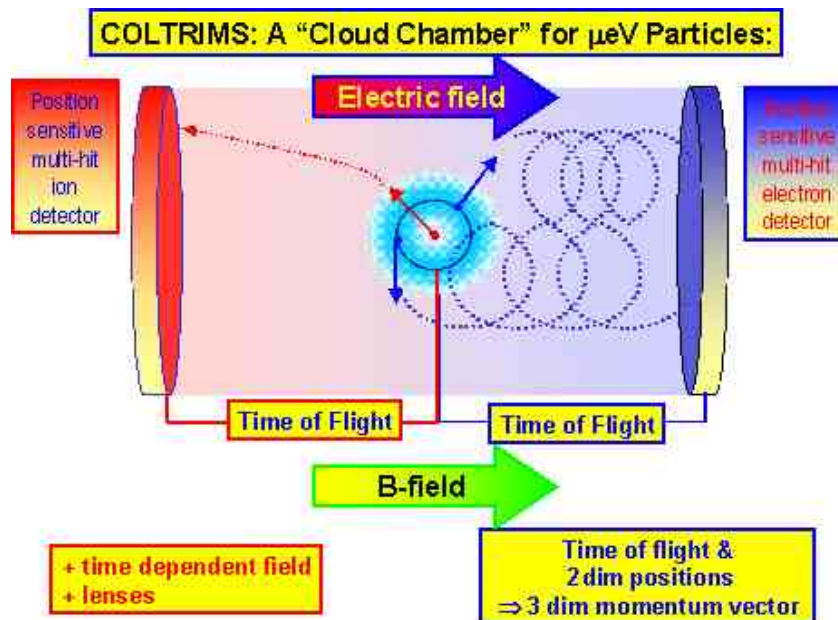


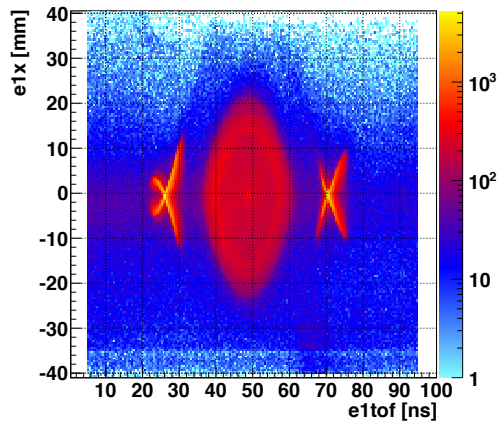
Abbildung 22: Schematische Darstellung des COLTRIMS-Verfahrens [17]

Es gibt verschiedene Modifikationen, die am Experiment vorgenommen werden können. So wurde in diesem Fall auf der Elektronenseite die sogenannte Wiley-McLaren-Konfiguration verwendet, die aus einer Beschleunigungsstrecke (hier 75 mm) und einer doppelt so langen feldfreien Driftstrecke (hier 150 mm) besteht. Durch diese Anordnung kommt es nicht mehr zu unterschiedlichen Flugzeiten für gleiche Startwinkel innerhalb des Targetvolumens. Man spricht daher von einer flugzeitfokussierenden Anordnung. Gedanklich lässt sich das Ziel dieser Anordnung mit einer Rutsche vergleichen, bei dem die benötigte Zeit fürs Rutschen unabhängig von der Startposition sein soll. Auf der Ionenseite wurde eine kurze Beschleunigungsstrecke von 40 mm ohne anschließende Driftstrecke gewählt.

Es wurde ein elektrisches Feld von 7,5 V/cm angelegt. Das homogene magnetische Feld wurde mittels Helmholtzspulenpaar erzeugt und hatte eine Stärke von 7,4 Gauß, was äquivalent zu einer Gyrationperiode ( $t_g$ ) von 45,8 ns ist. Die Knoten können aus dem Spektrum Elektronenflugzeit gegen Elektronenortskordinate abgelesen werden ( auf Grund des Aussehens auch Fisch-Spektrum genannt). Da das Magnetfeld die Elektronen auf eine Gyrationbahn zwingt, kann man aus der Periode das Magnetfeld bestimmen, was genauer ist, als das Magnetfeld aus Spulenabmessungen und Stromstärke zu berechnen [5].

$$t_g = \frac{2\pi m}{qB} \iff t_g [ns] \approx \frac{357,22}{B[G]} \quad (3.1)$$

Es wurde bei Raten am Elektronendetektor von 8000 Hz und am Ionendetektor von 3000 Hz gemessen.



**Abbildung 23:** Die x-Koordinate gegen die Flugzeit des Elektrons. Der Abstand der Knoten liefert die Magnetfeldstärke.



Abbildung 24: Anordnung mit Helmholtz-Spulenpaar für homogenes Magnetfeld

### 3.3 Vakuum

Für ein derart präzises Experiment ist es nötig, in einem Ultrahoch-Vakuum zu arbeiten. Die Reaktionsfragmente sollen möglichst alle unverfälscht auf den Detektor auftreffen. Abgesehen davon, dass die MCPs erst ab einem Vakuum von etwa  $10^{-5}$  mbar arbeiten, würden zum Einen die gewünschten Fragmente eventuell gar nicht auf dem Detektor auftreffen, wenn sie vorher mit Restgasatomen stoßen, und zum Anderen neue Fragmente entstehen, die aus Sekundärkollisionen entstanden sind. Ebenso besteht die Möglichkeit, dass Restgasatome ionisiert werden und die zu beobachtenden Fragmente in diesem Untergrund untergehen. Ziel des Vakuumsystems ist es, möglichst nur den Heliumgasjet in der Targetkammer zu haben, also die Restgasatome zu minimieren. Außerdem soll der Gasjet, nachdem er mit Photonen beschossen wurde und die Ionen und Elektronen der Reaktion durch das elektrische Feld auf die Detektoren beschleunigt wurden, schnell aufgefangen werden, damit das Vakuum der Targetkammer nicht negativ beeinflusst wird. Erreicht wird dies mit einem Jetdump, in dem restliche Gasjet von

einer Pumpe abgepumpt wird. Um ein derart gutes Vakuum zu erreichen, werden Turbomolekularpumpen benötigt. Nachteil dieser Pumpen ist jedoch, dass sie nicht gegen Atmosphärendruck arbeiten können. Daher werden Vorpumpen eingesetzt, die ein Vorvakuum im Bereich von  $10^{-2}$  bis  $10^{-4}$  mbar für die Turbopumpen erzeugen. Um das Vakuum in der Targetkammer zu optimieren, wird außerdem noch eine Kühlfalle mit flüssigem Stickstoff betrieben, in der die Restgasatome, wie beispielsweise Wasser, ausfrieren sollen. Diese Kühlfallen müssen dafür regelmäßig nachgefüllt werden. Um zu vermeiden, dass das hohe Vakuum in der Beamline ( $10^{-10}$  mbar) durch das geringere Vakuum in der Targetkammer beeinflusst wird, befindet sich zwischen Beamline und dem eigentlichen Experiment noch eine differentielle Pumpstufe. Es handelt sich hierbei um zwei Lochblenden, zwischen denen eine Turbopumpe geschaltet ist.

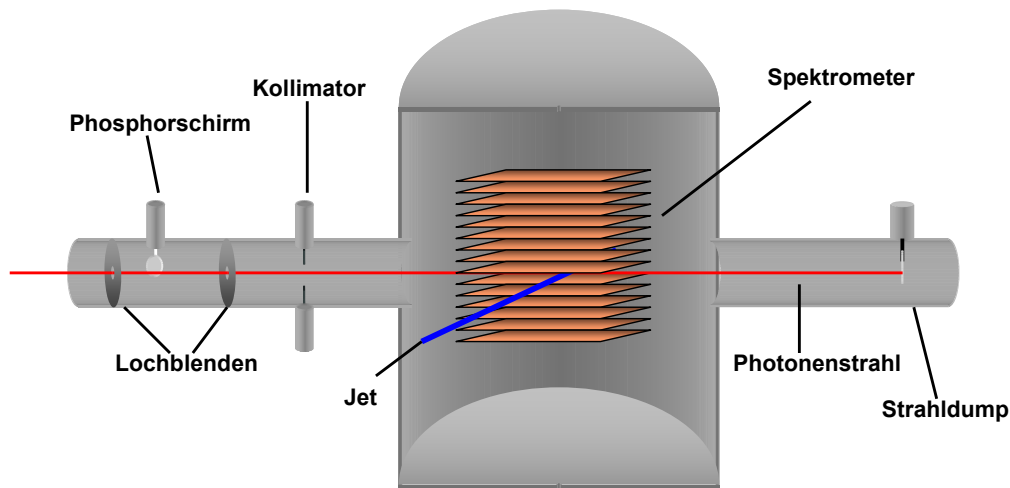


Abbildung 25: Schematischer Aufbau des Experiments [18].

Insgesamt können die Vakua in 5 Segmente unterteilt werden. Nachfolgend ein Überblick über die Segmente mit Druckangabe während einer Messung mit Gasjet:

Segment	Druck[mbar]
1. Expansionskammer	$1,13 * 10^{-5}$
2. Expansionskammer	$3,13 * 10^{-7}$
Targetkammer	$\approx 5 * 10^{-9}$
Beamdump	$1,23 * 10^{-8}$
Differentielle Pumpstufe	$< 5 * 10^{-10}$

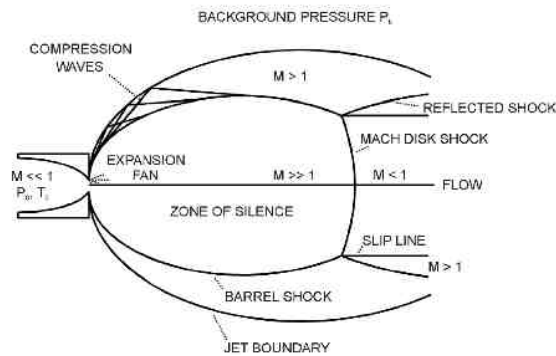
Experimentell ist wichtig, dass die Messzelle in der Targetkammer während der Messung ausgeschaltet ist, da sie sonst das Vakuum verunreinigen würde (Vakuum-Messung mittels Ionisation).



### 3.4 Gasjet

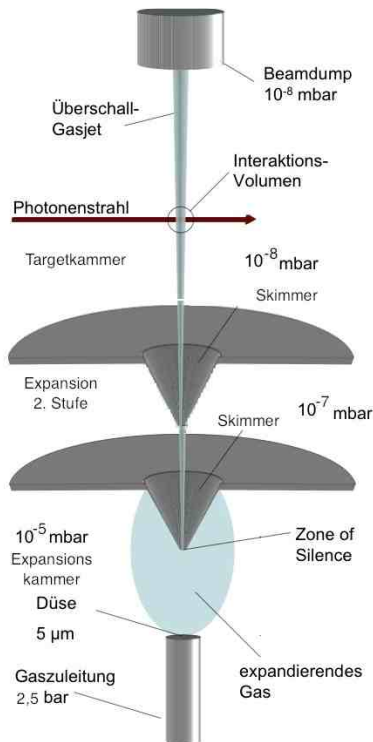
Um das Experiment optimal umzusetzen, soll ein möglichst kollimierter Strahl mit einem hohen Anteil an Dimeren in die Targetkammer strömen und nach Auftreffen der Strahlung schnell wieder abgesaugt werden.

Aus bisherigen Experimenten ist bekannt, dass sich Heliumdimere bei geringem Düsendurchmesser besser als bei großem Durchmesser bilden [5]. Aus diesem Grund arbeiten wir mit einer Düse von  $5\ \mu\text{m}$  Durchmesser. Bei diesen Temperaturen besteht jedoch die Gefahr, dass die Düse aufgrund von Verunreinigungen verstopft oder sogar zufriert. Um dieses Risiko zu minimieren, wird die Gaszuleitung ebenfalls durch eine Stickstoffkühlfalle geleitet, damit Verunreinigungen ausfrieren. Mittels flüssigem Helium wird das Gas nun auf rund  $21\ \text{K}$  herabgekühlt und es wird ein Druck von etwa  $2,5\ \text{bar}$  eingestellt. Folge dieser kleinen Düse ist eine adiabatische Expansion des Gases. Die Gasatome strömen von einem unter Druck stehenden Bereich ins Vakuum und erhöhen dabei ihre Geschwindigkeit. Bei der Berechnung dieser Expansion müssen die Kollisionen der Gasatome untereinander berücksichtigt werden. Dennoch ist es möglich in der Strahlmitte (Zone of Silence) Temperaturen um  $1\ \text{mK}$  [5] zu erreichen. Das Prinzip, dass ein Gas unter einem bestimmten Druck durch eine enge Düse in einen Bereich mit geringerem Druck strömt und dabei eine adiabatische Expansion stattfindet, wird als Überschall Gasjet (Supersonic Jet) bezeichnet. Diese Bedingungen sind optimal für die Dimer-Bildung.



**Abbildung 26:** Schematische Darstellung eines Gasjets, der sich bei der Expansion eines Gases durch eine Düse ins Vakuum bildet [5]

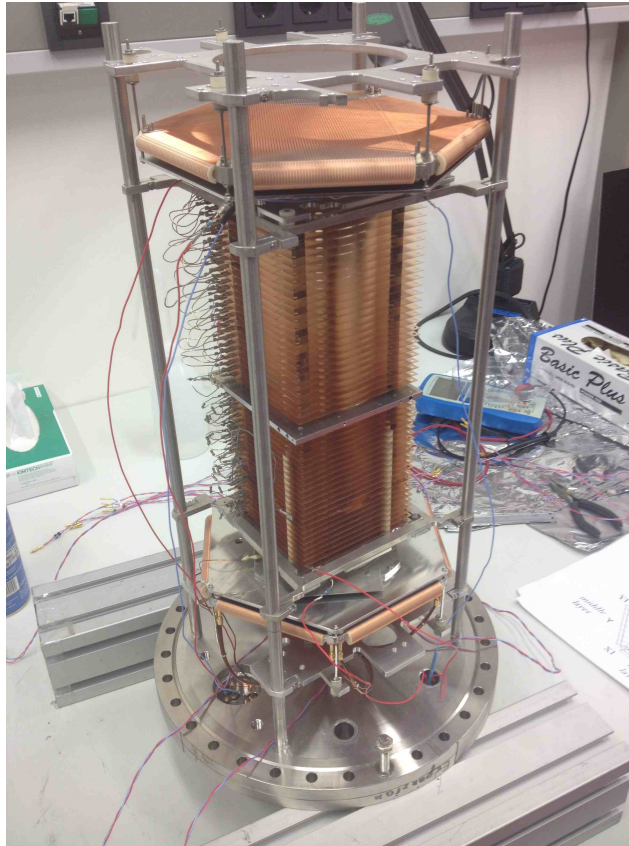
Im Anschluss an die Düse befinden sich zwei Skimmer. Diese Skimmer sind wie kegelförmige Trichter, bei denen der Jet auf die Kegelspitze auftrifft und aus der Zone of Silence ein gerichteter Gastrahl ausgeschnitten wird.



**Abbildung 27:** Schematische Darstellung der einzelnen Komponenten. Skizze modifiziert aus [5]

### 3.5 Spektrometer

Beim Spektrometer handelt es sich um hintereinander gebaute Kupferplatten mit einer runden Aussparung in der Mitte. Die Platten sind quadratisch und haben eine Kantenlänge von etwa 10 cm und eine Dicke von einem halben Millimeter. Sie werden durch 4 Keramikstangen fixiert und mit einem elektrischen Isolator im Abstand von 5 mm voneinander getrennt. Verbunden werden die einzelnen Platten über einen hochohmigen Widerstand (ca. 100 k $\Omega$ ). Diese Anordnung führt nun bei Anlegen einer Spannung zu einem fast homogenen elektrischen Feld, das Elektronen auf den einen Detektor und Ionen auf den anderen Detektor beschleunigt. Bei den Ionen gab es nur eine kurze Beschleunigungsstrecke, während bei den Elektronen die Wiley-McLaren-Konfiguration mit Driftstrecke gewählt wurde (siehe 3.2).



**Abbildung 28:** Zusammengebautes Spektrometer mit MCPs und Anode oben und unten

Elektronen - Beschleunigung	75 mm
Elektronen- Drift	150 mm
Recoil - Beschleunigung	40 mm
Elektrisches Feld	7,5 V/cm
Magnetisches Feld	7,4 Gauß

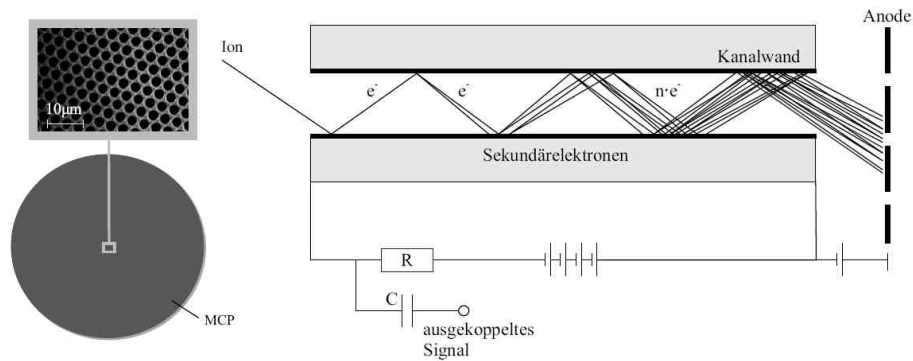
Abbildung 29: Maße des Spektrometers

### 3.6 Detektoren

Die verwendeten Detektoren, um sowohl Elektronen, wie auch Ionen zu messen, setzen sich aus zwei Komponenten zusammen: Micro-Channel-Plates(MCP) und einer hexagonalen Delayline-Anode. Die MCPs dienen dabei als Verstärker und sind für die Messung der Flugzeit wichtig. Die Anode erlaubt eine ortsauflösende Messung.

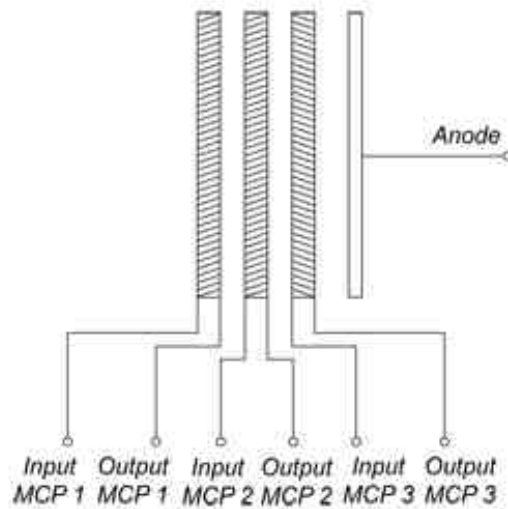
#### 3.6.1 Micro-Channel-Plate

Um einzelne geladene Teilchen nachzuweisen, ist es nötig deren Auftreffen zu einem messbaren Signal zu verstärken. Dies wird mit dem MCP erreicht. Es handelt sich dabei um eine Glasscheibe von 80 mm Durchmesser und einer Dicke von ca. 1 mm. Die Platte ist von Kanälen mit wenigen  $\mu\text{m}$  Durchmessern durchsetzt. Das Innere der Kanäle besteht aus einem hochohmigen Material mit einer geringen Austrittsarbeit für Elektronen. Die Kanäle sind um wenige Grad geneigt und verlaufen schräg durch den Querschnitt des MCPs, damit eventuell herausgelöste Ionen nicht ins elektrische Feld zurückfliegen und somit als neue Ionen detektiert werden. Die Oberfläche des MCPs besteht zu ca. 60 Prozent aus Kanalöffnungen und ist mit einer niederohmigen Schicht bedampft. Zwischen Vorder- und Rückseite wird eine Spannung im kV-Bereich angelegt. Falls nun ein Teilchen auf das MCP trifft und dabei auf eine Kanalwand trifft, wird dort eine Folge von Sekundärelektronen ausgelöst, die sich beim Durchlaufen des Kanals zu einer Lawine verstärken.



**Abbildung 30:** Linkes Bild: Vergrößertes Foto der Oberfläche eines MCPs. Rechts: Schematischer Ablauf der Elektronenvervielfachung in einem MCP-Kanal [19]

Auf diese Art und Weise ist eine Verstärkung um  $10^3$  bis  $10^4$  möglich. Falls weiter verstärkt werden soll, besteht die Möglichkeit mehrere MCPs nacheinander zu betreiben. Zum Einen können zwei MCPs (Chevron Stack) oder wie in diesem Experiment sogar drei MCPs (Z-Stack) übereinander betrieben werden. Dabei sind die MCPs und damit ihre Kanäle um wenige Grad zueinander gedreht, damit unerwünschtes Feedback minimiert wird.



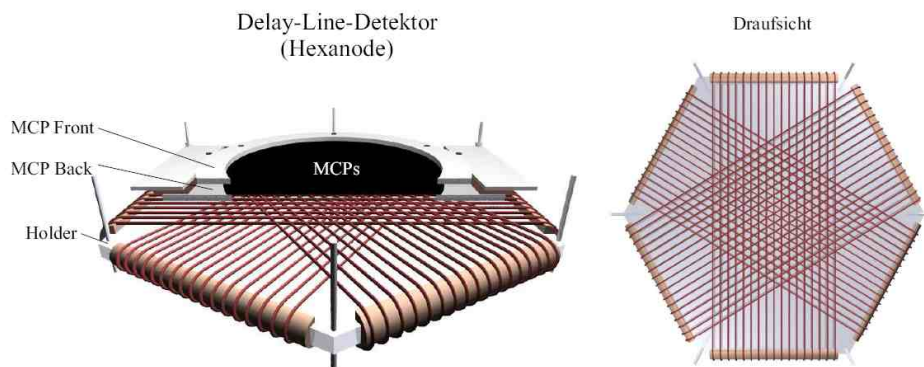
**Abbildung 31:** Drei MCPs in Reihe in einer sogenannten Z-Stack-Anordnung [20]

Nachdem im MCP eine Elektronenlawine ausgelöst wurde, wird das MCP kurzzeitig mittels Kondensator von der Hochspannung entkoppelt und

es entsteht sowohl an der Vorder- wie auch an der Rückseite ein messbares Zeitsignal. Die folgende Elektronenlawine kann dann mit der Anode nachgewiesen werden.

### 3.6.2 Hexagonale Delayline-Anode

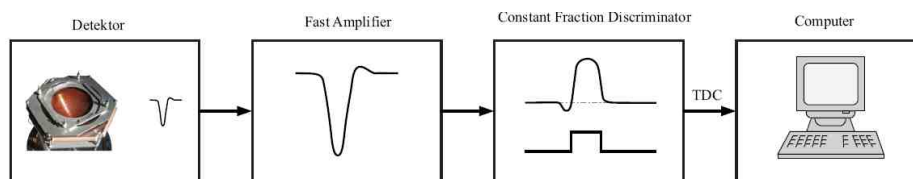
Bei der hexagonalen Anode (kurz Hex-Anode) handelt es sich um eine sich ca. 10 mm hinter dem MCP befindliche ortsauflösende Messapparatur. Es handelt sich dabei um drei im Abstand von 1 mm mit Draht umwickelte Keramikrahmen. Jede Drahtebene wird als Layer bezeichnet. Diese drei Layer sind nun um jeweils  $60^\circ$  versetzt übereinander angeordnet. Die Elektronenlawine trifft, nachdem sie die MCPs verlassen hat, in einer Wolke von ca. 1 mm Durchmesser auf die Drahtebenen. Mittels Schwerpunktbildung ist es nun möglich, dennoch einen Auftreffort in der Größe der Drahtwicklung zu bestimmen. Nachdem die Lawine aufgetroffen ist, breitet sich ein Impuls in beide Richtungen des Layers aus und kann an den Enden als Signal abgegriffen werden. Um die Signale möglichst unverändert abzugreifen, wird immer ein Paar parallel laufender Drähte zur Signalweiterleitung genutzt (Lecherleitung). Zusammen mit dem MCP-Signal kann nun aus den Signalen der drei Layer der genaue Auftreffort rekonstruiert werden. Prinzipiell können dafür auch nur zwei Layer verwendet werden, jedoch minimieren die zusätzlichen (redundanten) Informationen das technische Rauschen (Untergrund), die das Layersignal stören. Außerdem ermöglichen die zusätzlichen Informationen eine Rekonstruktion unvollständiger Signale und die Statistik kann somit erhöht werden. Wie in 4.1 beschrieben, lässt sich durch die beiden Signale, die jeder Layer liefert (Laufzeiten) und durch das MCP-Signal ein orts aufgelöstes Detektorbild erzeugen.



**Abbildung 32:** Schematische Darstellung der hexagonalen Delayline-Anode mit dem darüber angeordneten MCP. Jede Ebene liefert eine Ortsmessung senkrecht zur Drahtrichtung [19].

### 3.7 Ausleseelektronik

Bis jetzt sind zwar Signale gemessen worden, jedoch handelt es sich dabei um analoge Signale, die erst noch weiterverarbeitet werden müssen, bevor sie am Computer ausgewertet werden können. Um die schnellen Impulse im Nanosekundenbereich zu verstärken, bedarf es eines schnellen Verstärkers, dem Fast Amplifier (FAMP). Anschließend müssen die analogen Pulse zu digitalen Normpulsen mit fester Pulshöhe umgewandelt werden. Dazu wird der Constant Fraction Discriminator (CFD) benutzt, der zu Beginn feststellt, ob es sich bei dem Puls um ein tatsächliches Signal oder nur Untergrundrauschen handelt. Die Selektion erfolgt dabei mittels einer vom Experimentator eingestellten Schwelle (Threshold), ab der Signale erkannt werden sollen. Handelt es sich um ein tatsächliches Signal, wird auf die ansteigende Flanke getriggert und ein normierter Rechteckpuls ausgegeben. Als Nächstes wird das Signal mit zwei Time-to-Digital Converter (TDC)-Karten in den Computer eingelesen. Diese Karten sind in der Lage mit einer Koinzidenzlogik schon einen Teil der Signale zu sortieren, um die Elektronik nicht mit einer Rate im MHz-Bereich, verursacht durch Untergrund oder andere Reaktionen, zu überlasten. Außerdem wird durch Ignorieren falscher Signale erheblich Speicherplatz gespart. Die Bedingung, mit deren Hilfe selektiert wird, kann dem Experiment angepasst gewählt werden. In diesem Fall ist es sinnvoll, nur Ereignisse weiterzuleiten, wenn innerhalb einer kurzen Zeitspanne zwei Signale auf dem Ionen MCP detektiert wurden. Diese Bedingung spiegelt den Dimeraufbruch nach ICD wider. Es werden jedoch zusätzlich die Daten, die eine kurze Zeitspanne vor und nach diesem Ereignis liegen, gespeichert. Außerdem wird das vom Synchrotron gesendete Bunchmarker-Signal für die relevanten Ereignisse gespeichert. Beim Bunchmarker-Signal handelt es sich um den Zeitpunkt, zu dem das Elektronenpaket (Single Bunch) den Ring umrundet hat und es erlaubt den Startzeitpunkt der Reaktion zu bestimmen.



**Abbildung 33:** Schematische Darstellung der Stationen, die das Signal vom Detektor zum Computer durchläuft [19]

Am Computer werden die Daten mit Hilfe des Programms Cobold, entwickelt von der Firma Roentdek, in Listmode-Files auf der Festplatte abgespeichert. Diese Daten können dann in der Offline-Analyse weiter bearbeitet werden.

### 3.8 Ablauf des Experiments

Nachdem das Experiment in Frankfurt vorbereitet worden ist, ist der ganze Aufbau per LKW nach Berlin zu BESSY II transportiert worden. Im Rahmen der zweiwöchigen Strahlzeit an der Beamline UE112\_PGM-1 im Februar und März 2013 wurden dabei Messungen an Helium und an Neon vorgenommen. Die tiefen Temperaturen (21 K) wurden mit einem Heliumdurchflusskryostaten erreicht. Zu Beginn wurde die differentielle Pumpstufe ausgeheizt. Durch Erhöhung der Temperatur lösen sich Restgasatome von den Wänden und können abgepumpt werden. Um für das Überlappen von Gasjet und Synchrotronstrahlung eine möglichst gute Deckung und somit eine hohe Ausbeute Daten erreicht wurden, konnte die Düse mit Manipulatoren dreidimensional bewegt werden. Es wurde die Position gewählt, bei der eine möglichst hohe Rate (3000Hz Rec./8000Hz Elec) erreicht wurde. Die Rate hängt zum Einen von der gewählten Schlitzöffnung der Beamline (Auflösung) ab, zum Anderen aber auch von der Deckung des Gasjets mit der ionisierenden Strahlung. Da die Öffnung der Schlitze vorab gewählt wurde, muss nun nur noch die Rate mittels räumlicher Manipulation der Düse maximiert werden. Bevor ein Scan über die beiden relevanten ICD-Schwellen durchgeführt wurde, wurden Messungen bei bekannten Prozessen gemacht, um diese mit den Literaturwerten zu vergleichen und somit den Unterschied zwischen der angegebenen Energie der Beamline und dem tatsächlich vorliegenden Wert zu erhalten. Während der Messungen musste regelmäßig manuell die Kühlfalle nachgefüllt werden.



## 4 Auswertung der Daten

Die in Listmode-Files gespeicherten Daten können nun in einer Offline-Analyse genauer untersucht und die relevanten Prozesse extrahiert werden. Aus den gespeicherten Informationen lassen sich Ortskoordinaten, Impulse und Energien berechnen. Außer diesen Berechnungen ist es zusätzlich noch notwendig, den Detektor und die Photonenenergie zu eichen. Dies geschieht, indem bekannte Resonanzen mit Literaturwerten verglichen werden. Normalerweise wird aus diesem Grund vor der eigentlichen Messung eine Eichmessung, z.B. mit Stickstoff, durchgeführt, jedoch ist dies im untersuchten Fall nicht zwingend nötig gewesen, da ausreichend Daten für Helium vorliegen.

### 4.1 Bestimmung der Flugzeiten

Die Flugzeit entspricht der Zeit, die das Ion oder Elektron vom Reaktionsort zum Detektor braucht. Um diese zu bestimmen, ist es nötig, den Startzeitpunkt der Reaktion zu wissen. Prinzipiell kann dies über das Bunchmarkersignal bestimmt werden, also den Zeitpunkt, zu dem das Elektronenpaket einen Photonenblitz ausgesendet hat. Diese Rate liegt jedoch im MHz Bereich und es wird, wenn man die Rate der Elektronen betrachtet, nicht einmal bei jedem 100. Blitz eine Reaktion ausgelöst. Nun ist es also notwendig zu wissen, welcher Blitz eigentlich die Reaktion ausgelöst hat. Da für Elektronen die Flugzeit kleiner ist als die Zeit zwischen zwei Blitzen, kann man die Flugzeit relativ einfach bestimmen [21]

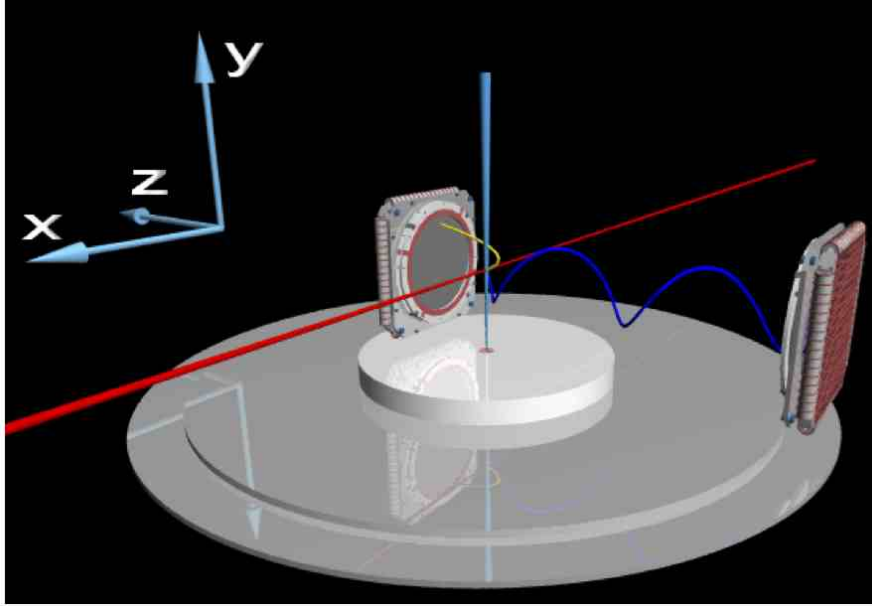
$$t_e = \text{mod}[t, t_{rep}] - t_0 \quad (4.1)$$

Dabei ist  $t$  die zu einem beliebigen Bunchmarkersignal gemessene Flugzeit. Die Modulo-Funktion zieht nun von dieser Zeit so oft die Synchrotron-Repetitionszeit ab, bis  $t \leq t_{rep}$ . Diese Zeit entspricht dann der Flugzeit, die zusätzlich jedoch noch mit einem durch die Signalkabel verursachten Offset  $t_0$  korrigiert werden muss.

Obige Rechnung eignet sich jedoch nur zur Bestimmung der Elektronenflugzeit  $t_e$ , da die Ionenflugzeit deutlich länger als die Zeit zwischen zwei Photonenblitzen ist. Die Ionenflugzeit  $t_r$  erhält man, indem man die Zeitdifferenz  $\Delta t_{e,r}$  zwischen dem Auftreffen von Elektron und Ion auf dem Detektor bestimmt und diese Differenz anschließend auf die bereits berechnete Elektronen-Flugzeit addiert [21].

$$t_r = \Delta t_{e,r} + t_e \quad (4.2)$$

Nachdem die Flugzeit nun bestimmt worden ist, soll außerdem noch ein Ortsbild erstellt werden. Dabei ist es sinnvoll, ein Koordinatensystem einzuführen mit dem Ursprung im Kreuzpunkt von Jet und Photonenstrahl.



**Abbildung 34:** Skizze des verwendeten Koordinatensystems. Der Ursprung ist der Schnitt von Gasjet (hellblau) und Photonenstrahl (rot). Elektronen (blau) werden in Richtung der negativen Z-Achse auf den Detektor beschleunigt und die Ionen (gelb) in Richtung der positiven Z-Achse. Die räumliche Ausrichtung von Apparatur und Koordinatensystem entspricht jedoch nicht dem Experiment, sondern ist um 90 Grad um die x-Achse gedreht. Die Skizze macht jedoch deutlich, dass die Z-Achse senkrecht auf den Detektoren steht und X- und Y- Achse die Detektorebene bilden [5].

Die Ortskoordinaten in X- und Y-Richtung können aus den Laufzeitdifferenzen der verschiedenen Layer bestimmt werden. Addiert man beide Laufzeiten zum Ende der Layer ergibt sich die Zeitsumme. Folgende Rechnung aus [19] bezeichnet das MCP-Signal mit  $t_{MCP}$  und die Signale der beiden Anoden-Enden (von je einem der drei Layer u, v, w) mit  $t_{u1}, t_{u2}, usw.$  Es gilt für die Zeitsummen der drei Layer:

$$t_{u,sum} = (t_{u1} - t_{MCP}) + (t_{u2} - t_{MCP}) = t_{u1} + t_{u2} - 2t_{MCP} \quad (4.3)$$

$$t_{v,sum} = (t_{v1} - t_{MCP}) + (t_{v2} - t_{MCP}) = t_{v1} + t_{v2} - 2t_{MCP} \quad (4.4)$$

$$t_{w,sum} = (t_{w1} - t_{MCP}) + (t_{w2} - t_{MCP}) = t_{w1} + t_{w2} - 2t_{MCP} \quad (4.5)$$

Die Ortsberechnung in den drei Raumrichtungen der Drahtebenen erfolgt aus der Zeitdifferenz der Signale

$$u = c_u(t_{u1} - t_{u2}) \quad (4.6)$$

$$v = c_v(t_{v1} - t_{v2}) \quad (4.7)$$

$$w = c_w(t_{w1} - t_{w2}) + w_0 \quad (4.8)$$

Bei  $c_u, c_v, c_w$  handelt es sich um die Ausbreitungsgeschwindigkeit des Signals entlang der Layer. Dieser Wert unterscheidet sich für die drei Layer nur geringfügig. Wie bereits im Kapitel 3.6.2 zur Anode erwähnt, liefern drei Layer redundante Informationen und es wäre prinzipiell möglich, auch aus je zwei Layern den Ort zu bestimmen. Aus diesem Grund ist es nötig, einen Versatz  $w_0$  der Layer untereinander einzuführen. Ohne Beschränkung der Allgemeinheit kann nun die X-Achse in Richtung des u-Layers gewählt werden. Es kann nun mit jedem Layerpaar X- und Y-Koordinate bestimmt werden:

$$X_{uv} = u \iff X_{uw} = u \iff X_{vw} = v + w \quad (4.9)$$

$$Y_{uv} = \frac{1}{\sqrt{3}}(u - 2v) \iff Y_{uw} = \frac{1}{\sqrt{3}}(2w - u) \iff Y_{vw} = \frac{1}{\sqrt{3}}(w - v) \quad (4.10)$$

Obige Rechnung liefert optimale Ergebnisse, wenn alle Signale vorhanden sind. Auf Grund der empfindlichen Elektronik ist es jedoch möglich, dass einige Signale fehlen. Mittels eines Programmcodes ist es möglich, die fehlenden Signale zu rekonstruieren und relativ zuverlässig komplette koinzidente Ereignisse (Events) zu erkennen und zu berechnen.

Somit kann aus den vorhandenen Daten ein Ortsbild erstellt werden.

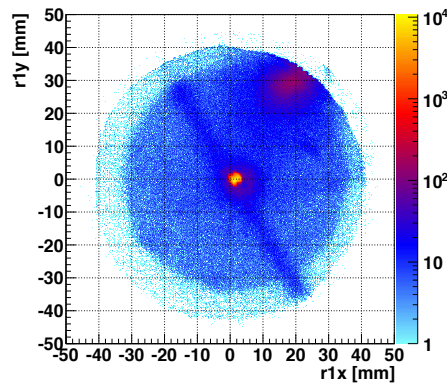


Abbildung 35: Ortsbild des Ionendetektors (logarithmische Farbskala)

In der Mitte befindet sich das Reaktionszentrum. Der Fleck am Rand hat keine physikalische Bedeutung und ist auf Untergrundstörungen beim Detektor zurückzuführen. Deutlich lässt sich diagonal der Photonenstrahl erkennen, der entlang seines Weges Restgasatome ionisiert. Da diese Lage nicht der Realität entspricht (entstanden durch die Wahl eines Layers als X-Achse), ist es nun sinnvoll mittels einer Drehmatrix das Ortsbild zu drehen, sodass die X-Achse horizontal und parallel zum Photonenstrahl verläuft.

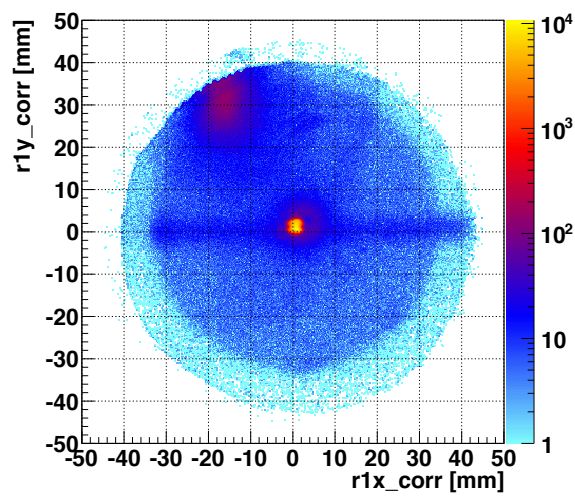
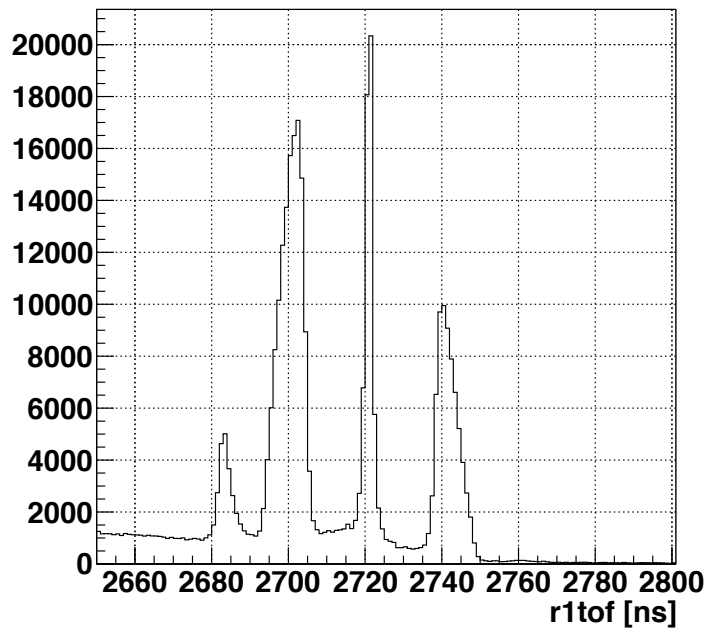


Abbildung 36: Gedrehtes Ortsbild des Ionendetektors(logarithmische Farbskala)

Interessant ist es auch ein Spektrum zu erstellen, bei dem die Flugzeit geplottet ist. Dies erlaubt einzelne Fragmente zu identifizieren.



**Abbildung 37:** Flugzeit der Ionen gemessen in Koinzidenz mit einem Elektron. Photonenenergie 65,4 eV (knapp über der  $He^+(n=2)$  Schwelle).

Der scharfe Peak bei 2720 ns sind dabei die  $He^+(n=2)$  Ionen. Die Energie von 65,4 eV hat dort ausgereicht, um zu ionisieren und das zweite Elektron anzuregen. Das ionisierte Elektron überträgt dabei nur einen geringen Impuls auf das Mutterion. Der alternative Prozess besteht aus dem ionisierten Elektron, dass die überschüssige Energie in Form von kinetischer Energie aufnimmt. In diesem Fall bleibt ein  $He^+$  im Grundzustand ( $n=1$ ) zurück. Das Elektron, dass den Kern verlassen hat, überträgt auf das Mutterion einen Impuls entgegen seiner Flugrichtung. Dieser Impuls des Ions kann nun vom Detektor weg oder auf den Detektor zu gerichtet sein (andere Impulse werden negliert, da das Elektron durch seine Flugrichtung den Aufbau verlassen kann und so das Ion im Vorsortieren nicht berücksichtigt wird). Im Impulsraum erhält man nun einen Kreis, dessen Mittelpunkt die angeregten  $He^+(n=2)$  Ionen mit einem verschwindend geringen Startim-

puls darstellen und auf dessen Oberfläche die  $He^+(n=1)$  Ionen mit einem Impuls  $p_{ion} = -p_{e^-}$  liegen. Ein Schnitt, senkrecht zum Detektor durch den Mittelpunkt des Kreises, liefert an den Schnittpunkten die Maxima in der Flugzeitkurve.

$$He + h\nu \rightarrow He^+(n=2) + e^- \rightarrow p_{ion} \approx 0 \quad (4.11)$$

$$He + h\nu \rightarrow He^+(n=1) + e^- \rightarrow p_{ion} = -p_{e^-} \quad (4.12)$$

$$p_{e^-} = \sqrt{2m(E_\gamma - E_b)} = \sqrt{2m(65,4eV - 24,587eV)} \approx 1,7a.u. \quad (4.13)$$

Der Peak bei 2700 ns ist schärfer als die beiden Peaks rechts und links, da er aus den Ionen mit Startimpuls null entsteht. Bei den beiden anderen Peaks werden nur Ionen detektiert, deren Impuls in einem Kreissegment in Richtung Detektor liegt, bei dem die koinzidenten Elektronen gemessen wurden. Elektronen, die in einem sehr stumpfen Winkel (in Relation zur Detektorebene) emittiert werden, können den Aufbau verlassen, ohne gemessen zu werden. Der Peak bei etwa 2680 ns resultiert vermutlich aus Untergrund.

## 4.2 Berechnung der Impulse

Da für die Fragmente Orte und Zeiten bekannt sind, ist es nun möglich, Bewegungsgleichungen zu lösen, um die entsprechenden Impulse und Energien zu berechnen. Für die Elektronen ist diese Rechnung relativ kompliziert, da es sowohl eine Beschleunigungs-, als auch eine Driftstrecke gibt. Erschwert wird das Ganze zusätzlich noch durch die Überlagerung eines homogenen Magnetfeldes. Prinzipiell lassen sich diese Bewegungsgleichungen dennoch analytisch lösen [5], es wird an dieser Stelle darauf jedoch verzichtet, da für die Untersuchung in diesem Fall einzig die Ionenimpulse relevant sind. Diese lassen sich verhältnismäßig einfach berechnen (folgende Rechnungen aus [5]).

### 4.2.1 Einzelteilchenimpulse

Da nur eine Beschleunigungsstrecke  $s_b$  vorliegt und Einflüsse des äußeren (schwachen) Magnetfeldes auf Grund der hohen Ionenmasse  $m_i$  vernachlässigt werden können, lauten die Bewegungsgleichungen wie folgt:

$$x(t) = \frac{P_x}{m_i} t \quad (4.14)$$

$$y(t) = \frac{P_y}{m_i} t \quad (4.15)$$

$$s_b(t) = \frac{qEt^2}{2m_i} + \frac{p_z}{m_i} t \quad (4.16)$$

Die Impulse lassen sich direkt berechnen durch:

$$P_x = \frac{m_i x}{t} \quad (4.17)$$

$$P_y = \frac{m_i y}{t} \quad (4.18)$$

$$P_z = \frac{m_i s_b}{t} - \frac{qEt}{2} \quad (4.19)$$

### 4.2.2 Relativimpulse

Alternativ können die Relativimpulse berechnet werden. Man kann dabei davon ausgehen, dass die Masse der beiden Ionen ausreichend groß ist und der Rückstoßimpuls der Elektronen vernachlässigt werden kann. So lässt sich ein Schwerpunktssystem wählen, in dem gilt:

$$p_{rel} = \frac{P_{i1} + P_{i2}}{2} \implies P_{i1} = P_{i2} = \frac{p_{rel}}{2} \quad (4.20)$$

Somit wäre es jetzt möglich, den Relativimpuls aus beiden Einzelimpulsen zu berechnen. Aus diesem Relativimpuls kann dann die Aufbruchenergie bestimmt werden. Alternativ ist es nun auch möglich die Relativimpulse ohne Wissen des genauen Reaktionsortes zu bestimmen [5]:

$$p_{rel,x} = \frac{m_{i1} m_{i2} (x_1 - x_2)}{m_{i1} t_2 + m_{i2} t_1} \quad (4.21)$$

$$p_{rel,y} = m_{i1} m_{i2} \frac{(y_1 - y_2) + v_{jet}(t_1 - t_2)}{m_{i1} t_2 + m_{i2} t_1} \quad (4.22)$$

$$p_{rel,z} = \frac{E}{2} \frac{t_2^2 q_2 m_{i1} - t_1^2 q_1 m_{i1}}{t_1 m_{i2} + t_2 m_{i1}} \quad (4.23)$$

mit

$$v_{jet} = \sqrt{\frac{5}{2} \frac{kT}{m}} \quad (4.24)$$

### 4.3 Kalibrierung der Photonenenergie

Die Photonenenergie kann an der Beamline mittels Monochromator eingestellt und auch durchgeföhren werden. Allerdings entsteht dabei ein systematischer Fehler und die Photonenenergie kann zum Ersten vom angezeigten Wert abweichen und zum Zweiten entspricht der Scan in der Realität meist keiner perfekten Stufenfunktion. Das Problem kann gelöst werden, indem man eine neue, angepasste Photonenenergie berechnen lässt. Dabei wird die unregelmäßige Stufenfunktion durch einen linearen Fit approximiert. Die Steigung  $m$  erhält man durch Ablesen von zwei gemessenen Punkten in einem Scan (am Besten Maxima und Minima bzw. Anfangs- und Endpunkte eines Scans). Den Y-Achsenabschnitt  $b$  kann man durch Abgleich mit bekannten Resonanzen ermitteln.

$$E_{\gamma} = m * t_{abs} + b \quad (4.25)$$

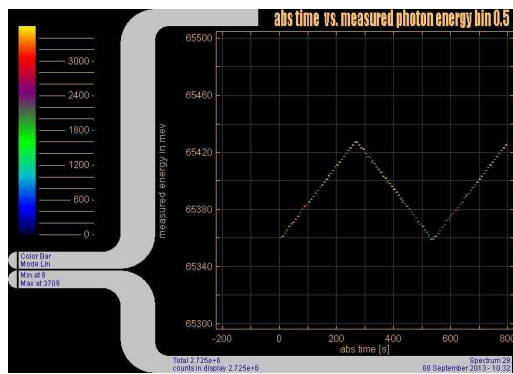


Abbildung 38: Messzeit gegen gemessene Photonenenergie

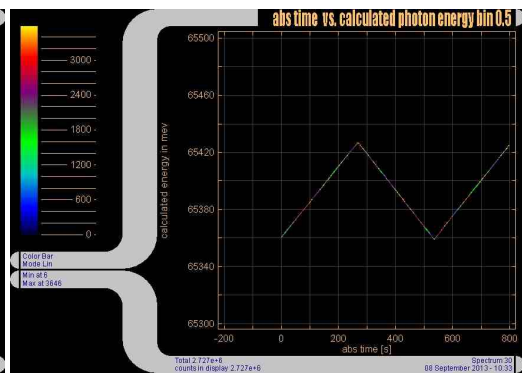


Abbildung 39: Messzeit gegen berechnete Photonenenergie

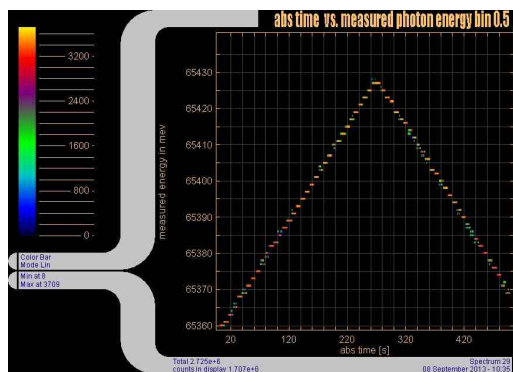


Abbildung 40: Ausschnitt Messzeit gegen gemessene Photonenenergie

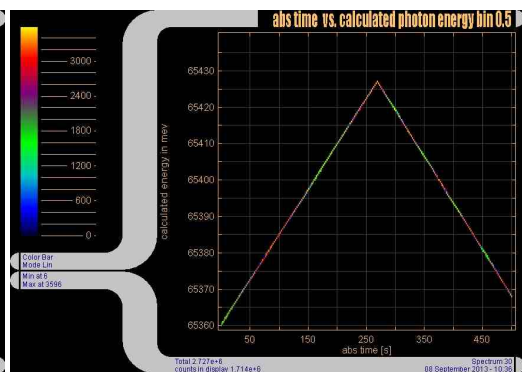


Abbildung 41: Ausschnitt Messzeit gegen berechnete Photonenenergie



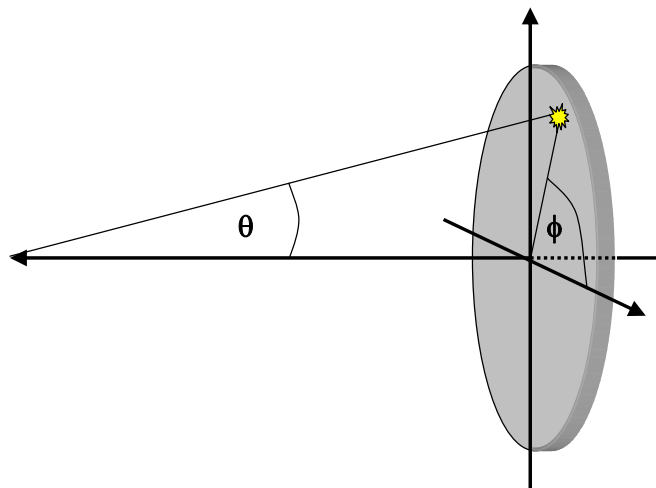
Der Parameter  $b$  wurde nicht verändert, da gemessene Resonanzen mit den Literaturwerten übereinstimmen.

Experimentell wurde für den Scan bei 65,4 eV eine Energieauflösung von 5 meV (Schlitzbreite  $34\mu\text{m}$ ) und bei dem Scan beginnend bei 68,8 eV eine Energieauflösung von 26 meV (Schlitzbreite  $180\mu\text{m}$ ) gewählt.

#### 4.4 Betrachtung der Detektorwinkel

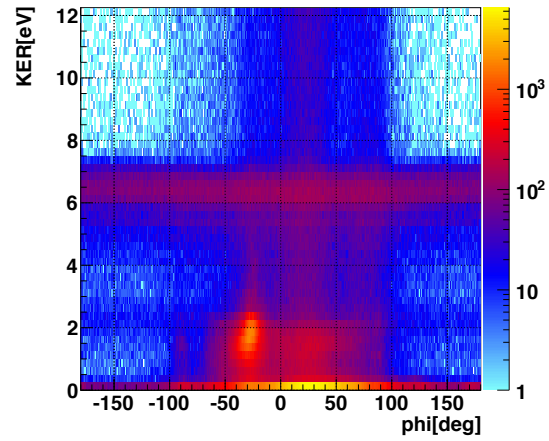
Für die folgenden Betrachtungen wird der Kinetic Energy Release (KER) eingeführt. Es handelt sich dabei um die kinetische Energie der Fragmente.

Des Weiteren wird ein Polarkoordinatensystem mit den Winkel  $\theta$  und  $\phi$  eingeführt. Die Flugzeitachse wird als Referenzachse gewählt und der Winkel  $\theta$  ist der Winkel zur Flugzeitachse. Bei  $\phi$  handelt es sich um den Azimutwinkel in der Detektorebene. Die folgend betrachteten Winkel beziehen sich immer auf dieses Koordinatensystem.

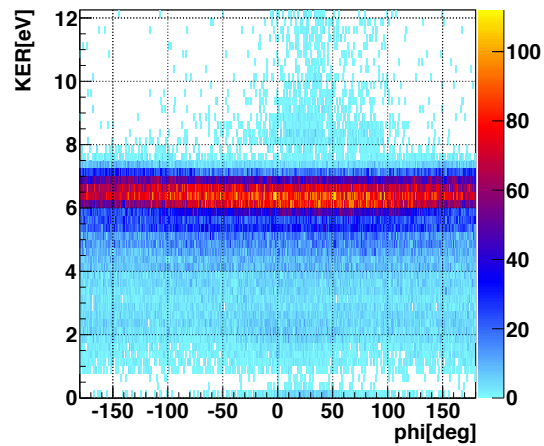


**Abbildung 42:** Azimutwinkel  $\phi$  und Winkel zur Flugzeitachse  $\theta$  [18]

Da der KER auf Grund der Symmetrie nicht von den Winkeln  $\phi$  und  $\theta$  abhängt, kann durch Betrachtung der Spektren KER gegen jeweils einen der beiden Winkel eine Überprüfung der Ausmaße des Aufbaus und der anliegenden Feldstärke vorgenommen werden. Begonnen wird in hierbei mit dem  $\phi$  Winkel. Dieser Winkel ist in der Detektorebene und hängt vom Nullpunkt bzw. von der Detektormitte ab. So kann überprüft werden, ob der Nullpunkt des Koordinatensystems exakt in die Detektormitte geschoben wurde. Ist dies der Fall, so ist der KER eine zur x-Achse parallele Linie. Wenn dies nicht der Fall ist, müssen die Koordinaten mit einem Offset versehen werden, bis der Nullpunkt mit der Detektormitte übereinstimmt.

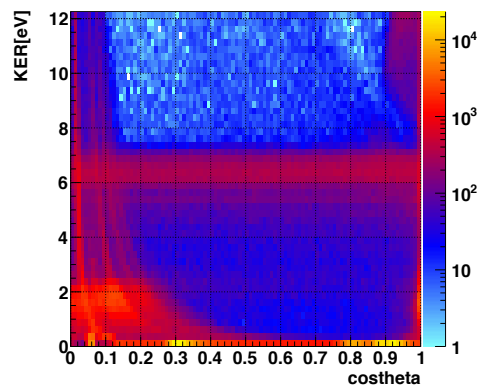


**Abbildung 43:** Bei korrekter Wahl des Nullpunktes ist der KER [eV] eine parallele Linie zur x-Achse, da er nicht vom Winkel  $\phi$  in der Detektorebene abhängen darf. (logarithmierte Farbskala)

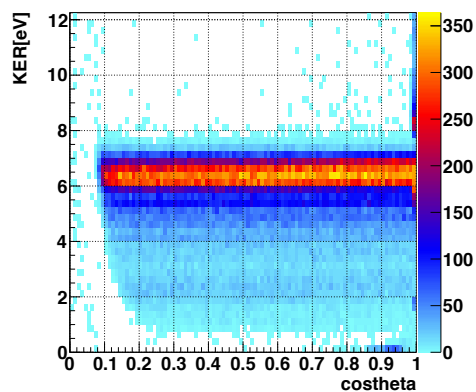


**Abbildung 44:** Detektorwinkel  $\phi$  gegen KER [eV] unter der Bedingung der Impulserhaltung auf die Einzelteilchenimpulse, um Untergrund zu unterdrücken. Genaue Definition der Bedingung siehe 4.6

Ebenso sollte der KER unabhängig von der Ausrichtung der Molekülachse sein und somit nicht vom  $\theta$  Winkel abhängen. Liegt dennoch eine Abhängigkeit vor, so stimmen die Spektrometermaße nicht exakt oder das elektrische Feld weicht vom gewählten Wert ab. Durch Variation dieser Parameter wird ebenfalls erreicht, dass im Spektrum  $\cos(\theta)$  gegen KER der KER eine waagrechte Linie ist.



**Abbildung 45:** Bei korrekter Wahl von elektrischer Feldstärke und Spektrometermaßet ist der KER [eV] eine parallele Linie zur x-Achse. (logarithmierte Farbskala)



**Abbildung 46:** Cosinus von  $\theta$  gegen KER [eV] unter der Bedingung der Impulserhaltung auf die Einzelteilchenimpulse, um unerwünschten Untergrund zu unterdrücken. Die Unterdrückung des KERs bei  $\cos(\theta)$  kleiner 0,1 resultiert aus der Vernachlässigung der kleinen Impulse in Flugzeitrichtung (siehe 4.6)

### 4.5 Kalibrierung des Detektors mittels KER - Eichung

Nachdem nun die Maße des Spektrometers korrekt ermittelt wurden und der Nullpunkt geeignet gewählt wurde, muss der Detektor auf eine geeignete Energie geeicht werden. Üblicherweise werden zu diesem Zweck der KER eines bekannten Gases (z.B. Stickstoff) gemessen und der Detektor entsprechend angepasst. In diesem Fall kann der Detektor direkt auf den KER vom Helium ICD geeicht werden, da Literaturdaten vorliegen. Zu diesem Zweck wird ein 1D KER Spektrum erstellt und das Maximum auf den Literaturwert von 8,5 eV [5] geeicht. Dabei wird ein Stretchfaktor auf die Impulse der Teilchen gegeben, sodass der KER mit der Literatur übereinstimmt. Der Stretchfaktor  $f_{stretch}$  berechnet sich wie folgt:

$$f_{stretch} = \sqrt{\frac{KER_{Literatur}}{KER_{Messung}}} \quad (4.26)$$

Der KER ohne Eichung lag bei etwa 6,5 eV wodurch sich ein Stretchfaktor von 1,15 ergab.

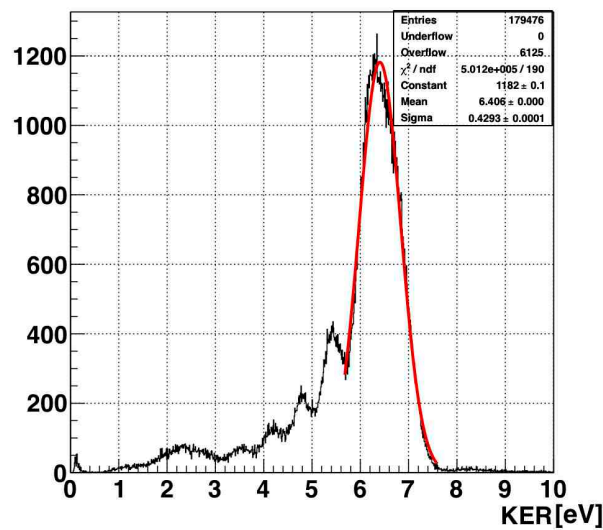


Abbildung 47: 1D KER Spektrum [eV] mit einem Fit des Maximums bei etwa 6,5 eV

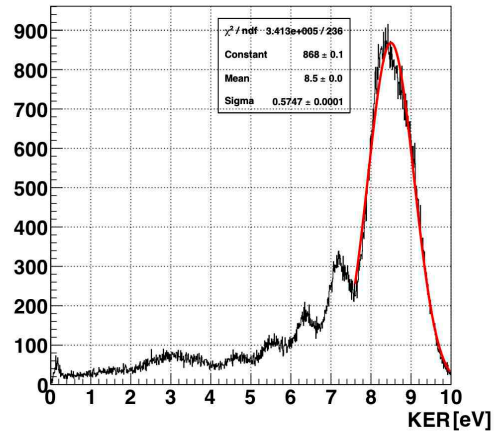


Abbildung 48: 1D KER Spektrum [eV] mit einem Fit des neuen Maximums bei 8,5 eV (bei einer Photonenenergie von etwa 65,4 eV)

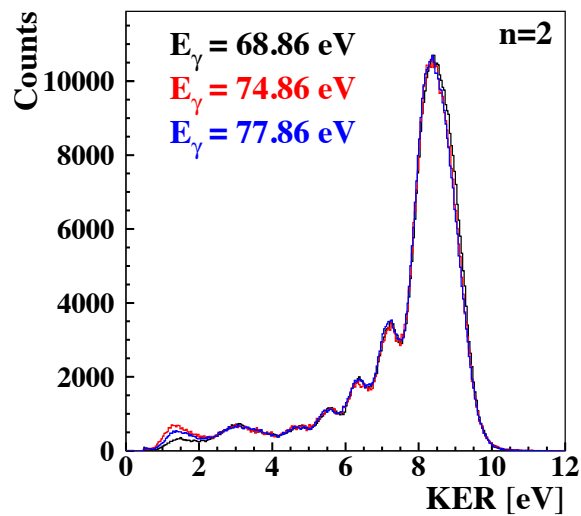


Abbildung 49: 1D KER für verschiedene Photonenenergien auf den geeicht wurde aus [5]

Die Spektren  $\phi$  bzw.  $\cos(\theta)$  gegen KER haben nun eine waagrechte Linie bei 8,5 eV statt bei 6,5 eV.

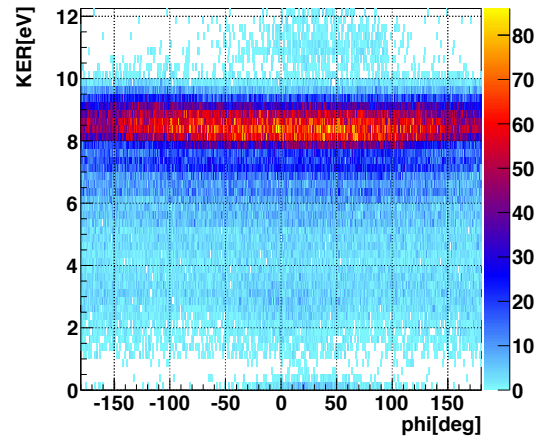


Abbildung 50:  $\phi$  gegen geeichtes KER [eV]

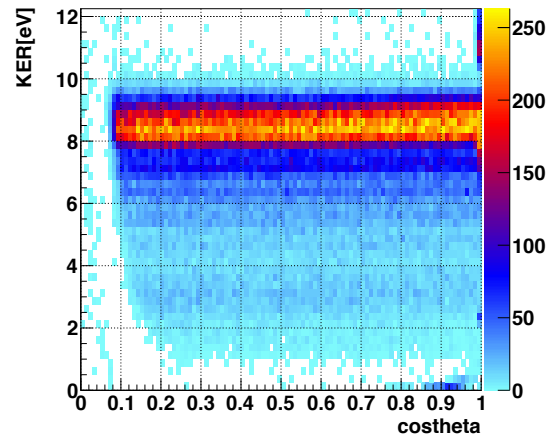
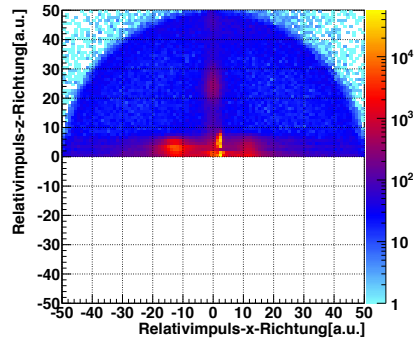


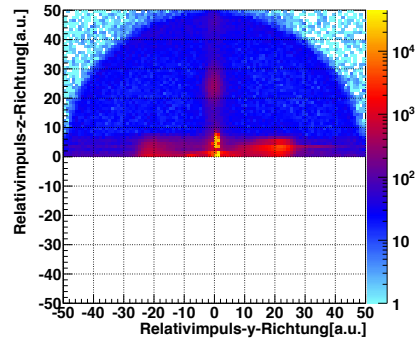
Abbildung 51:  $\cos(\theta)$  gegen geeichtes KER [eV]. Unterdrückung der Einträge für  $\cos(\theta)$  kleiner 0,1 durch Ignorieren kleiner Impulse in Flugzeitrichtung

#### 4.6 Nachweis ICD

Nachdem nun Detektor und Photonenenergie geeicht worden sind, kann mit dem eigentlichen Nachweis des ICD begonnen werden. Charakteristisch für den ICD Prozess sind zwei  $He^+$  Ionen, die zeitnah auftreffen und an ihren Impulsen zu identifizieren sind. Die Folge des explosionsartigen Auseinanderfliegens sind Fragmente, deren relative Impulse, in den verschiedenen Raumrichtungen, sich auf einer Kugeloberfläche befinden. Da die Relativimpulse in Flugzeitrichtung aus der Differenz Impuls erstes Teilchen minus Impuls zweites Teilchen berechnet wurden und die Teilchen ununterscheidbar sind, erhält man nur positive Relativimpulse in Richtung Flugzeitachse (z-Achse).



**Abbildung 52:** Relativimpuls x gegen z (logarithmierte Farbskala)



**Abbildung 53:** Relativimpuls y gegen z (logarithmierte Farbskala)

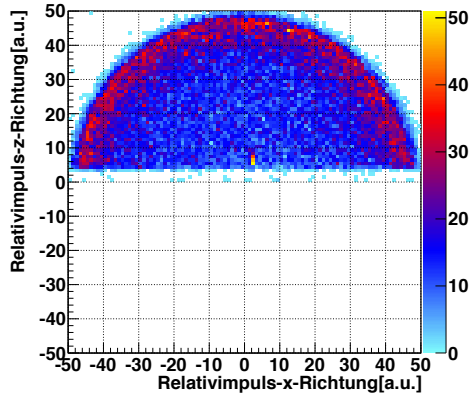
Wie schon bei den Spektren für die Detektorwinkel gegen den KER ist es notwendig eine Bedingung auf die Impulserhaltung zu setzen. Da es sich um eine Explosion handelt, müssen sich die Einzelimpulse zu null addieren, da sie gleichen Betrages in entgegengesetzte Richtung sind. Es wurde eine Toleranz von 7,5 a.u. gewählt und Teilchen mit einem Impuls von 0 in Flugzeitrichtung ignoriert.

$$P_{x1} + P_{x2} \leq 7,5 a.u. \quad (4.27)$$

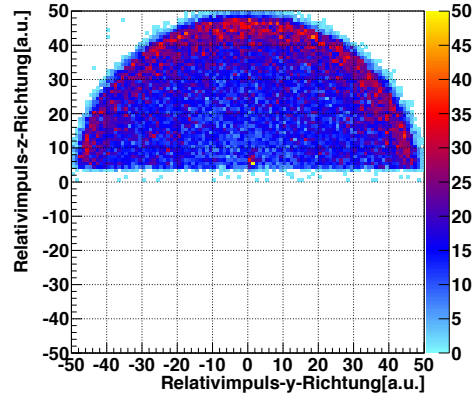
$$P_{y1} + P_{y2} \leq 7,5 a.u. \quad (4.28)$$

$$P_{zrel} \geq 2 a.u. \quad (4.29)$$

Unter dieser Bedingung ergaben sich die Relativimpulsspektren zu:



**Abbildung 54:** Relativimpuls x gegen z unter gewählter Bedingung der Impulserhaltung



**Abbildung 55:** Relativimpuls y gegen z unter gewählter Bedingung der Impulserhaltung

Das explosionsartige Auseinanderfliegen charakterisiert auch die Einzelteilchenimpulse. Die relevanten Impulse sollten auf der Winkelhalbierenden des 2. und 4. Quadranten liegen, da gilt:

$$P_{x1} = -P_{x2} \quad (4.30)$$

$$P_{y1} = -P_{y2} \quad (4.31)$$



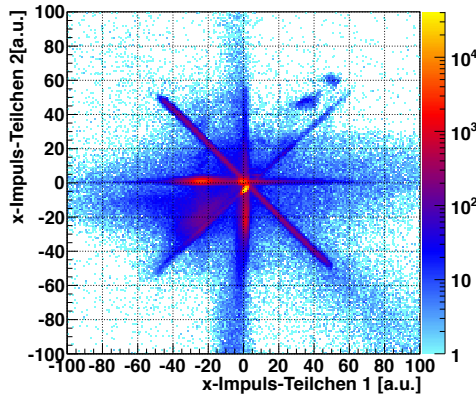


Abbildung 56: Einzelteilchenimpulse in x-Richtung (logarithmierte Farbskala)

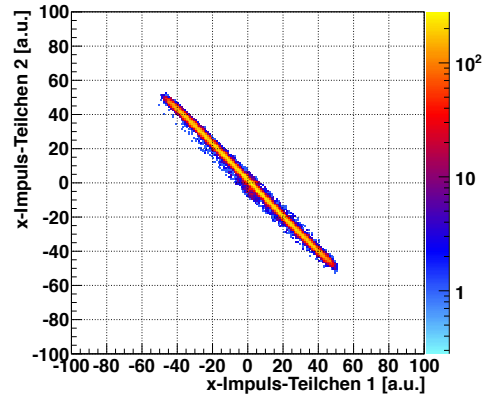


Abbildung 57: Einzelteilchenimpulse in x-Richtung unter gewählter Bedingung der Impulserhaltung (logarithmierte Farbskala)

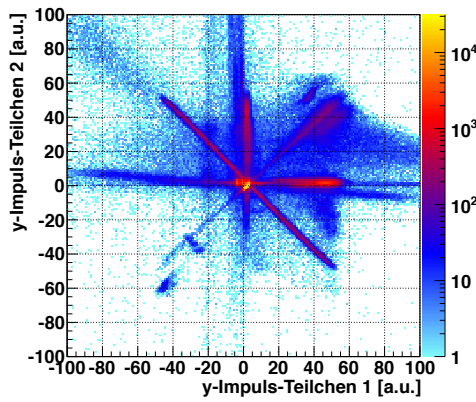


Abbildung 58: Einzelteilchenimpulse in y-Richtung (logarithmierte Farbskala)

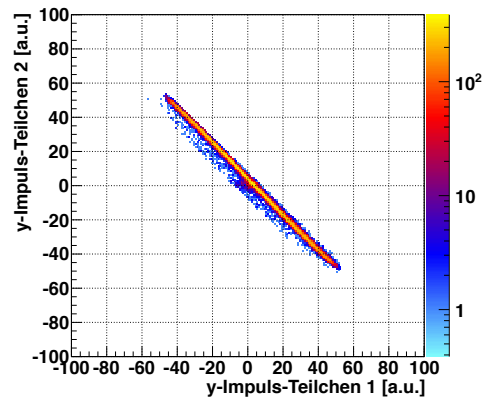
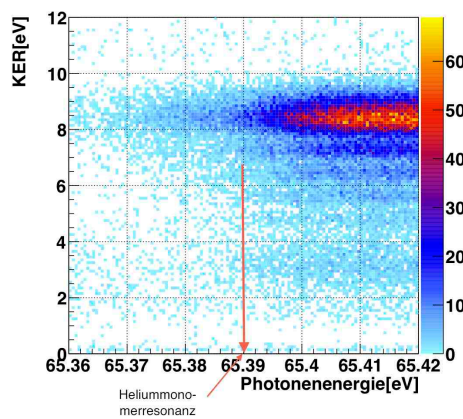


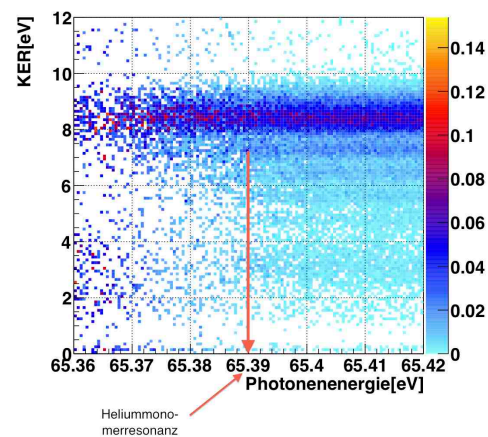
Abbildung 59: Einzelteilchenimpulse in y-Richtung unter gewählter Bedingung der Impulserhaltung (logarithmierte Farbskala)

## 5 Ergebnisse

Nachdem nun der Nachweis des ICD erfolgt ist, kann mit der eigentlichen Untersuchung der Photonenenergieabhängigkeit begonnen werden. Dazu ist es sinnvoll sich das Spektrum Photonenenergie gegen den KER anzuschauen. Um statistisch signifikante Schwankungen und auch Unterschiede, die durch die unterschiedliche Intensität verborgen sind, mit dem Auge erkennen zu können, bietet es sich an, das Spektrum zu normieren. (normierung der Farbskala, sodass das Integral an jeder Stelle 1 ist)



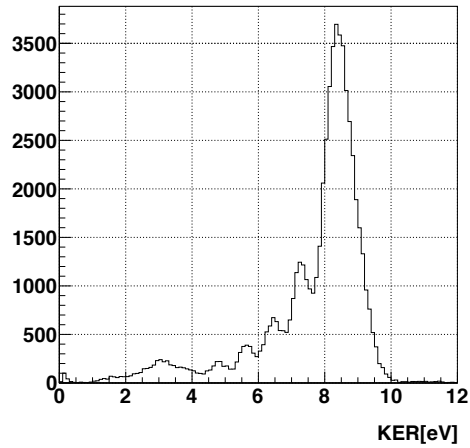
**Abbildung 60:** Photonenenergie [eV] gegen KER [eV]



**Abbildung 61:** Photonenenergie gegen KER unter Normierung

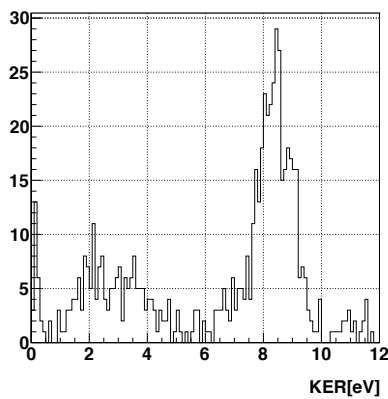
Man kann die bekannte Vibrationsstruktur bei höherer Photonenenergie gut erkennen. Für niedrigere Energien sind diese unterdrückt. Auffällig ist jedoch, dass KERs zwischen etwa 4 eV und 7 eV bei einer Photonenenergie kleiner 65,38 eV nicht auftreten. Folglich ist anzunehmen, dass es bei der Energieverteilung für Photonenenergien, knapp unterhalb der Schwelle, eine Einschränkung bei diversen KERs gibt. Stattdessen treten bei einer Photonenenergie von 65,36 eV bis 65,37 eV KERs von 2 bis 4 eV auf, die nicht erwartet wurden.

Nimmt man nun eine Projektion des KER auf die KER - Achse vor, so erhält man ein eindimensionales Spektrum, bei dem der KER gegen die Intensität aufgetragen ist.

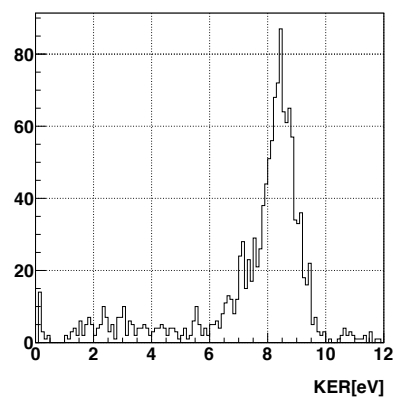


**Abbildung 62:** KER [eV] gegen Counts als Projektion aus Abbildung 60 für Photonenergie zwischen 65,36 eV und 65,42 eV

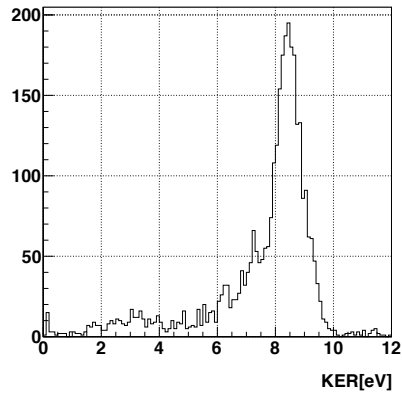
Dieses Spektrum weist ebenfalls, wie die KER - Spektren aus der Eichung, bei 8,5 eV ein Maximum auf. Um zu untersuchen, ob dieses Spektrum von der Photonenergie abhängt, kann man die Projektionen auch segmentweise vornehmen und vergleichen.



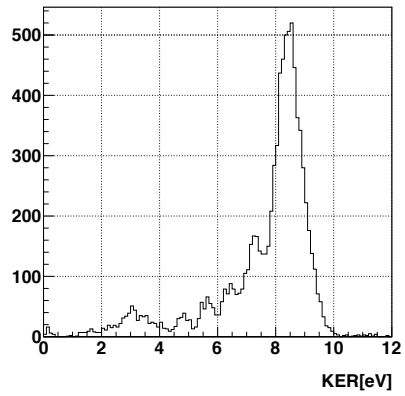
**Abbildung 63:** Projektion auf die KER-Achse zwischen der Photonenergie 65,36 eV bis 65,37 eV



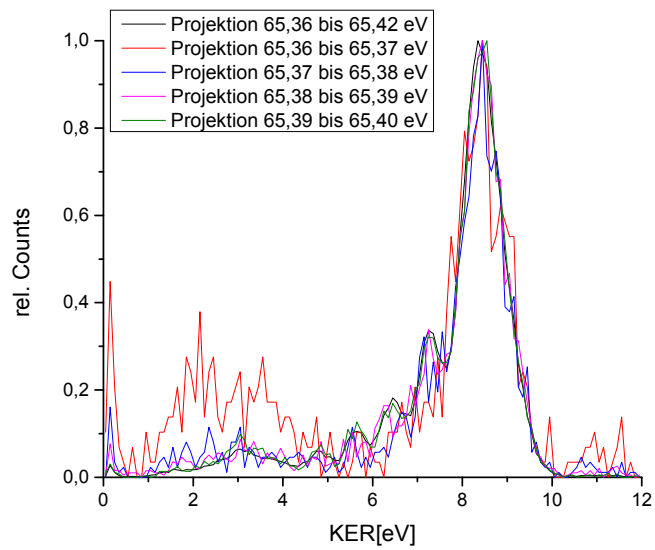
**Abbildung 64:** Projektion auf die KER-Achse zwischen der Photonenergie 65,37 eV bis 65,38 eV



**Abbildung 65:** Projektion auf die KER-Achse zwischen der Photonenenergie 65,38 eV bis 65,390 eV

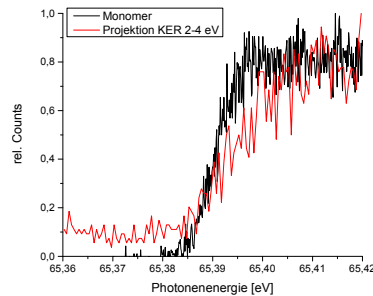


**Abbildung 66:** Projektion auf die KER-Achse zwischen der Photonenenergie 65,39 eV bis 65,4 eV

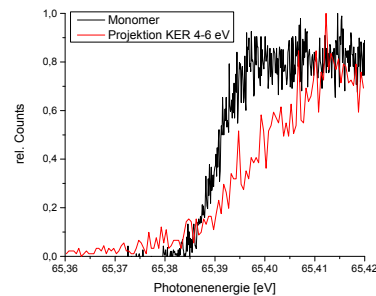


**Abbildung 67:** Die verschiedenen Bereiche der Photonenenergie auf die KER-Achse projiziert

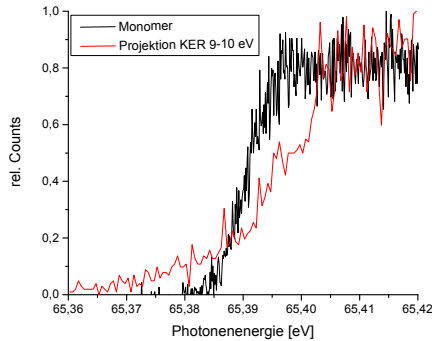
Man kann den Projektionen entnehmen, dass die Vibrationsniveaus (als Nebenmaxima) nur bei höheren Photonenenergien angeregt sind. Für den Peak bei 2 eV bei der Photonenenergie zwischen 65,36 eV und 65,37 eV lässt sich noch keine plausible Erklärung finden. Dem zweidiimensionalen Photonenenergie - KER - Spektrum kann man deutlich entnehmen, dass ICD erst ab einer gewissen Energie - Schwelle in Erscheinung tritt. Nimmt man nun Projektionen auf die Photonenenergie - Achse vor, so erhält man die Intensität, die ab der Schwelle von etwa 65,4 eV deutlich ansteigen sollte. Entgegen der Erwartung handelt es sich jedoch nicht um ein stufenartiges Einsetzen, sondern einen kontinuierlichen Anstieg, der in die Sättigung übergeht. Zum Vergleich die Photonenenergie gegen die Intensität der Monomere ( $n=2$ ) geplottet. Die Monomere ( $n=2$ ) lassen sich durch eine Selektion in der Flugzeit extrahieren (siehe Abb. 38).



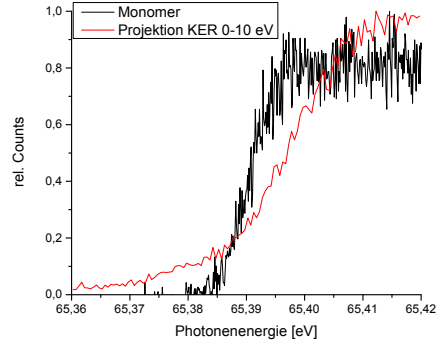
**Abbildung 68:** Photonenenergieabhängigkeit des ICD: Rote Linie: Projektion der Daten aus Abbildung 60 für einen Bereich KER = 2-4 eV  
Schwarze Linie: Zählrate von  $He^+(n=2)$  Ionen (aus Monomeren)



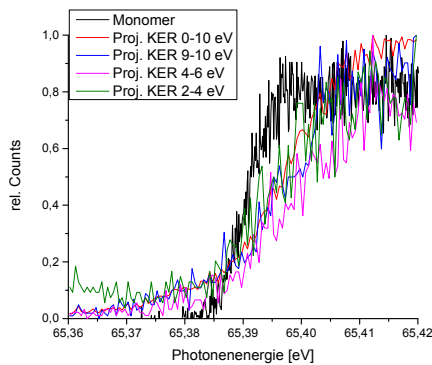
**Abbildung 69:** Photonenenergieabhängigkeit des ICD: Rote Linie: Projektion der Daten aus Abbildung 60 für einen Bereich KER = 4-6 eV  
Schwarze Linie: Zählrate von  $He^+(n=2)$  Ionen (aus Monomeren)



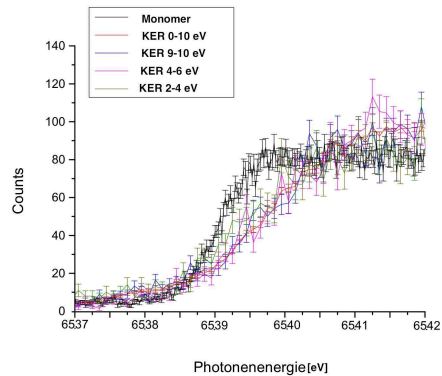
**Abbildung 70:** Photonen energieabhängigkeit des ICD: Rote Linie: Projektion der Daten aus Abbildung 60 für einen Bereich KER = 9-10 eV  
Schwarze Linie: Zählrate von  $He^+(n=2)$  Ionen (aus Monomeren)



**Abbildung 71:** Photonen energieabhängigkeit des ICD: Rote Linie: Projektion der Daten aus Abbildung 60 für einen Bereich KER = 0-10 eV  
Schwarze Linie: Zählrate von  $He^+(n=2)$  Ionen (aus Monomeren)



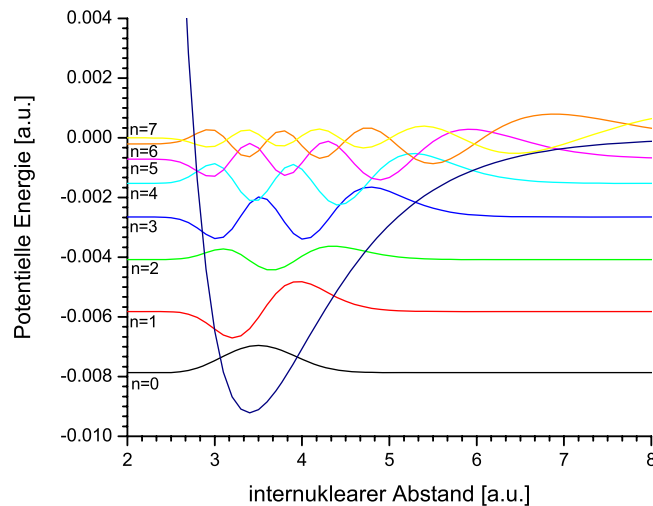
**Abbildung 72:** Projektion auf die Photonenenergie - Achse für verschiedene Projektionsbereiche im Vergleich zum Monomer (auf das Maximum normiert)



**Abbildung 73:** Projektion auf die Photonenenergie - Achse für verschiedene Projektionsbereiche im Vergleich zum Monomer (normiertes Integral unter der Kurve)

Man kann deutlich den Unterschied zwischen der scharfen Absorptionskante des Monomers und dem verzögerten Anstieg des Dimers erkennen. Zum einen beginnt der ICD Prozess bevor er theoretisch durch Addition der Ionisationsenergie und Anregungsenergie erlaubt wäre und zum anderen hat er keine scharfe Kante, wenn er die Schwelle erreicht hat. Das frühzeitige Ansteigen der Intensität unterhalb der Schwelle kann durch die verschiedenen Vibrationsniveaus des Heliumdimers erklärt werden. Beim Monomer ist eine scharfe Energie notwendig, ab der die Ionisation einsetzt. Das Dimer

hingegen unterliegt einem anderen Potential und es existieren verschiedene räumliche Anordnungen der beiden Atome. Je nach internuklearem Abstand existieren somit verschiedene Energieniveaus, sodass für die Ionisation weniger Energie benötigt wird und der Prozess früher stattfinden kann.

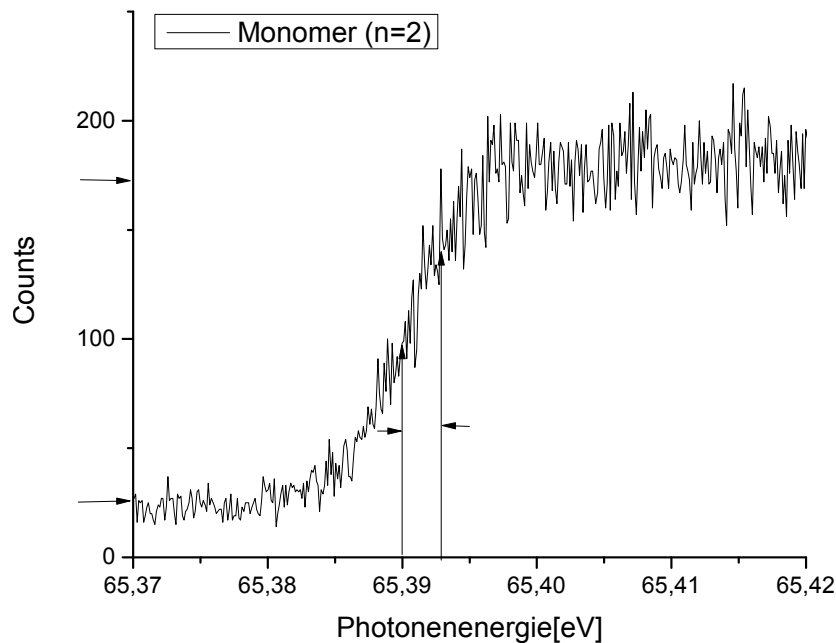


**Abbildung 74:** Übersicht der Potentialkurven des Heliumdimers in Abhängigkeit des Abstandes und der Anregung[5]

Des Weiteren spielen die höher Harmonischen der Beamline eine Rolle für das verfrühte Ansteigen. Im unteren Prozentbereich treten Energien oberhalb der am Monochromator gewählten Einstellung auf. Ebenso tritt bei KER-Werten zwischen etwa 1 eV und 5 eV Untergrund auf, der durch den TS1 - Prozess verursacht wird.

Die Erklärung für das verzögerte Ansteigen der Intensität bei ausreichender Photonenenergie lässt sich durch Post Collision Interaction erklären. Je nach kinetischer Energie des Photoelektrons, kann es zu einem Abbremsen oder sogar Wiedereinfang, verursacht durch das zweite (ICD) Elektron, kommen. Falls das Photoelektron zu langsam ist, wird es vom schnelleren ICD-Elektron eingeholt und spürt daraufhin ein geändertes (negatives) Potential, dass es bremst oder im Extremfall wieder an das Heliumatom bindet. Dadurch ist eine zeitaufgelöste Messung möglich [22].

Mit der Resonanzkurve des Monomers lässt sich nun die Auflösung des Monochromators überprüfen. Aus [23] ist bekannt, dass die Auflösung des Detektors bei einer Glockenkurve (wie z.B. die Intensitätsverteilung hinter einem Einzelspalt) durch die Halbwertsbreite (FWHM) bestimmt werden kann. Des Weiteren wird dieses Verfahren für stufenartig ansteigende Daten, wie sie bei der Intensitätskurve des Monomers auftreten übertragen. Dazu werden bei der ansteigenden Flanke zwei Punkte bestimmt. Beim ersten Punkt handelt es sich um 50% des Maximums und beim zweiten Punkt um 75% des Maximums. Die Differenz der beiden Punkte in x-Richtung wird nun mit 1,4 multipliziert und liefert somit die Auflösung der Beamline.



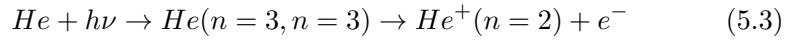
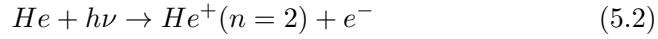
**Abbildung 75:** Äquivalent zur Halbwertsbreite liefert das in [23] beschriebene Verfahren das benutzte Auflösungsvermögen, wenn man die x-Koordinate der beiden beschriebenen Punkte subtrahiert und mit 1,4 multipliziert.

$$(65,3936eV - 65,3901eV) * 1,4 = 4,9meV \quad (5.1)$$

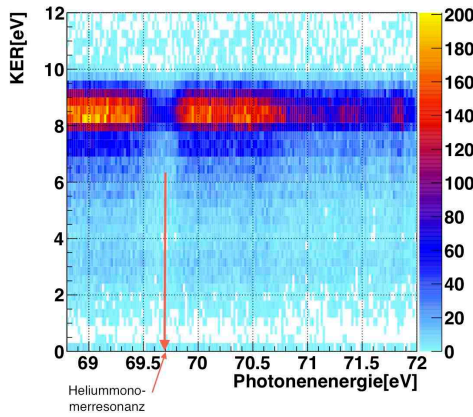
Somit ergibt sich für die Beamline eine Energieauflösung von etwa 4,9 meV. Dies entspricht etwa der eingestellten Auflösung von 5 meV.



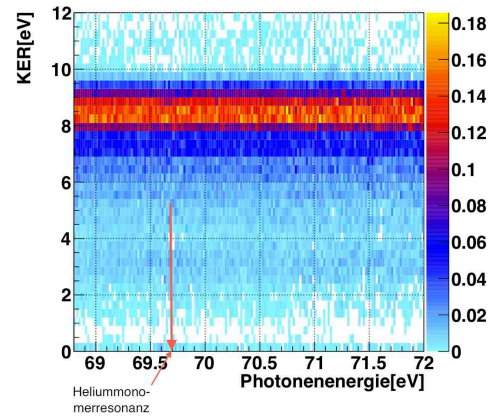
Für die weiteren Untersuchungen erhöhen wir die Photonenenergie auf 68,8 eV, was dem ersten autoionisierenden Zustand entspricht. Bei Autoionisation handelt es sich um einen Prozess, bei dem die Anregungsenergie eines Elektrons der Inneren Schale ausreicht, um eine weiter außen (schwächer) gebundenes Elektron ins Kontinuum zu heben. Für Helium erhält man so zwei Zustände, die sich konstruktiv oder destruktiv überlagern können. Die von uns gewählte Photonenenergie reicht aus, um entweder Helium zu ionisieren oder um die zwei Elektronen des Heliums in den ersten angeregten Zustand zu bringen, bei dem anschließend ein Elektron einen energetisch niedrigeren Zustand zurückfällt und die dabei frei werdende Energie auf das zweite Elektron überträgt, dass dadurch ins Kontinuum gehoben wird.



Die beiden Prozesse sind durch die vorgenommenen Messungen nicht zu unterscheiden. Wie für die Photonenenergie 65,4 eV, betrachten wir auch hier wieder das Spektrum Photonenenergie gegen KER.



**Abbildung 76:** Photonenenergie [eV] gegen KER [eV]



**Abbildung 77:** Photonenenergie [eV] gegen KER [eV] (Integral normiert)

Wie zu erwarten ist der KER eine waagrechte Linie bei 8,5 eV mit abnehmender Intensität bei hohen Photonenenergien. Auch hier werden Projektionen des KER auf die KER - Achse für verschiedene Bereiche der Photonenenergie betrachtet:

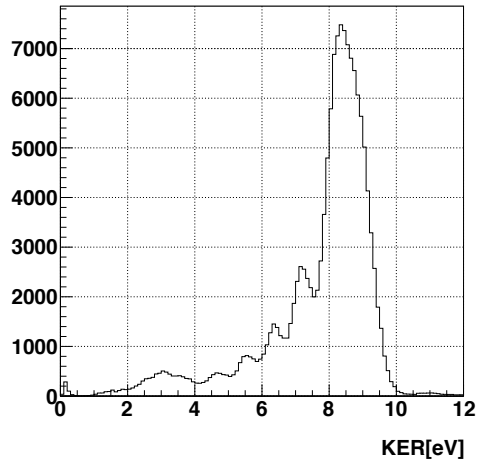


Abbildung 78: Projektion des gesamten Scans von 68,8 eV auf die KER - Achse.

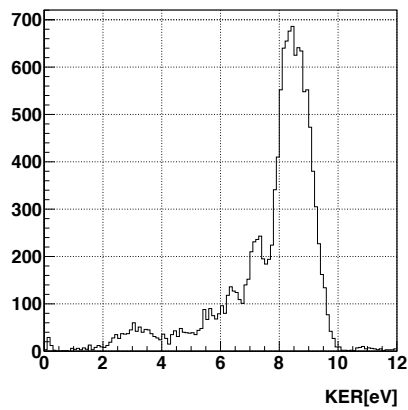


Abbildung 79: Projektion auf KER - Achse bei einer Photonenenergie zwischen 69,3 eV bis 69,6 eV

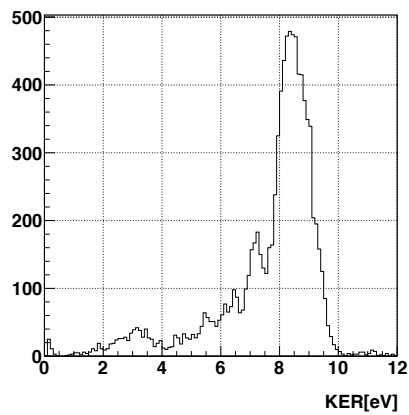
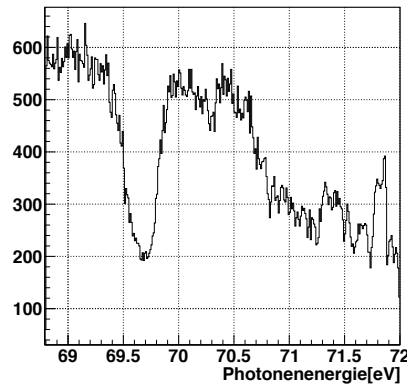


Abbildung 80: Projektion auf KER - Achse bei einer Photonenenergie zwischen 69,3 eV bis 69,6 eV

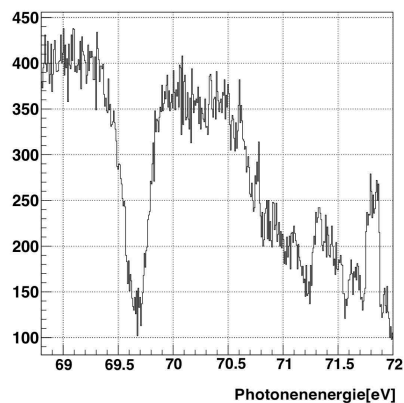
Die Projektionen sind nahezu identisch mit den Projektionen bei der niedrigeren Photonenenergie. Wieder kann man die verschiedenen Vibrationsniveaus als Nebenmaxima neben dem Peak bei 8,5 eV sehen. Es lässt sich keine Verschiebung des KERs bei Variation der Photonenenergie feststellen.

Wesentlich interessanter hingegen erscheint eine Projektion auf die Achse der Photonenenergie. Bei etwa 69,6 eV sinkt die Intensität auf etwa 1/3 ab.

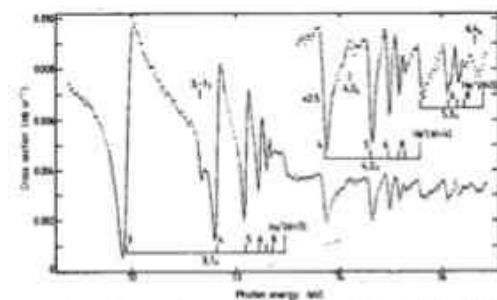


**Abbildung 81:** Projektion des KER auf die Photonenenergie - Achse

An dieser Stelle kommt es zur destruktiven Interferenz der autoionisierenden Zustände. Dieses Intensitätsminimum ist bei den Daten der Dimere aufgetreten. Ändert man die Selektion nun und untersucht die Monomere, sollte insgesamt ein ähnliches Spektrum entstehen. Durch Vergleichen der beiden Spektren lässt sich feststellen, inwieweit es zu einer Abweichung dieser Kurve, verursacht durch das beim Dimer benachbarte neutrale Heliumatom, kommt. Dazu wird die gleiche Projektion für die Monomere vorgenommen.

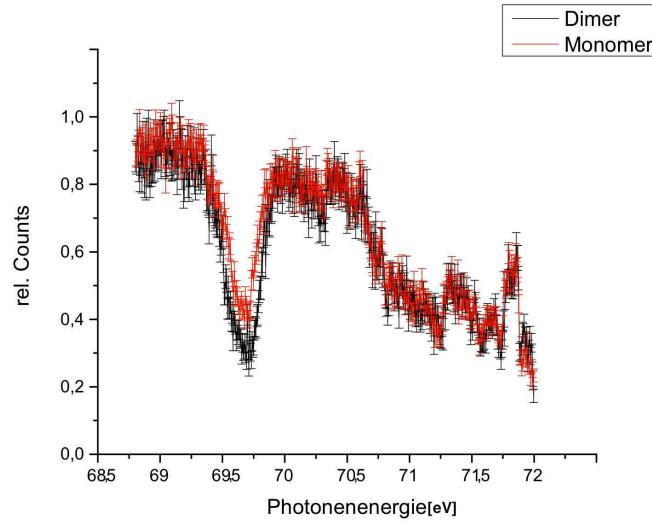


**Abbildung 82:** Photonenergie gegen Intensität des Monomers

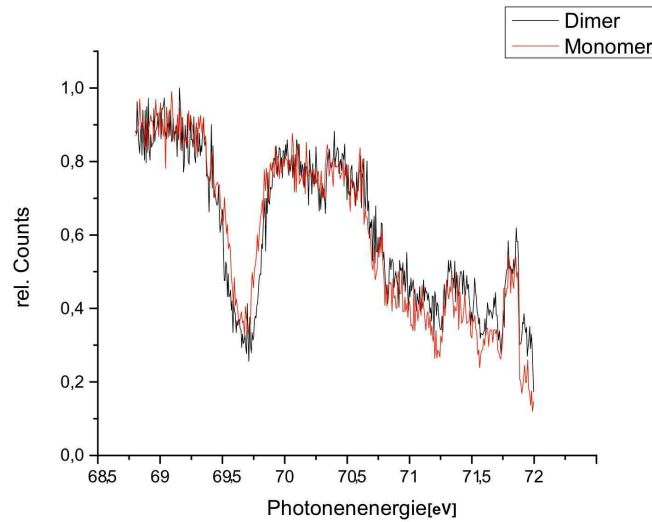


**Abbildung 83:** Photonenergie gegen Wirkungsquerschnitt für das Helium - Monomer. Das Minimum liegt auch bei etwa 69,6 eV [24]

Auf den ersten Blick scheinen die beiden Spektren keine großen Unterschiede aufzuweisen. Eine Überlagerung macht kleine Unterschiede deutlich:



**Abbildung 84:** Überlagerung der Photonenergie gegen die Intensität für Monomer und Dimer (normiert auf das Maximum).



**Abbildung 85:** Überlagerung der Photonenergie gegen die Intensität für Monomer und Dimer (normiert auf das Maximum) und Offset auf den Dimerplot von +0,1 auf die y-Achse

Eine Verschiebung des Peaks zu einer anderen Photonenenergie lässt sich nicht beobachten. Die Breite des Peaks wird jedoch beim Dimer breiter als beim Monomer. Die destruktive Interferenz findet also während einem breiteren Spektrum an Photonenenergie statt. Ein Erklärungsansatz für dieses Phänomen ist, dass der Dimerpartner die angeregten Zustände beeinflusst und sich somit die Stabilität des metastabilen Zustands der doppelten Anregung ändert. Diese Beeinflussung fehlt beim Monomer, sodass die Stabilität des Zustandes und damit den Peak für destruktive Interferenz diskretisiert.

## 6 Ausblick

Ein Vergleich der autoionisierenden Resonanz von Monomer und Dimer konnte geprüft werden und es gibt einen plausiblen Erklärungsansatz.

Für den unterdrückten Bereich des KER zwischen 4 eV und 7 eV knapp unterhalb der ICD - Schwelle lässt sich jedoch keine plausible Begründung finden. Um hierbei neue Erkenntnisse zu gewinnen, sind weitere theoretische Betrachtungen und Simulationen notwendig. Um experimentell die Qualität der Daten zu verbessern, wäre es sinnvoll die Messung mit mehr Statistik zu wiederholen und dabei vielleicht schon bei 65,3 eV mit dem Scannen zu beginnen. Eine Erhöhung der Statistik kann erreicht werden, indem länger gemessen wird oder indem die Auflösung der Beamline verringert wird.



## 7 Danksagungen

An erster Stelle gebührt mein Dank Professor Reinhard Dörner, zu dem ich völlig orientierungslos kam, um mich über Themen für eine Bachelorarbeit zu erkundigen und nun, ein paar Monate später, mit einer neu entfachten Begeisterung für experimentelle Atomphysik diese Arbeit vollende und gespannt bin auf die nächste Aufgabe. Ich möchte dir außerdem danken, dass du immer ein offenes Ohr für meine Einsteigerprobleme hattest und mir bei der Lösungssuche geholfen hast - egal wie beschäftigt du mit anderen Dingen warst.

Florian Trinter danke, für die gute Betreuung meiner Arbeit. Ich konnte dich jederzeit um Rat fragen, wenn ich nicht weiterkam oder meine erstellten Spektren einfach seltsam aussahen, weil ich einen Fehler gemacht hatte. Als erster Korrekturleser hattest du auch ohne Zweifel keinen einfachen Job - Danke!

Dankend erwähnen möchte ich an dieser Stelle Dr. Till Jahnke, Dr. Markus Schöffler und Carl Schober, die mir bei ein paar Schwierigkeiten entscheidend weiterhelfen konnten.

Vielen Dank auch an unsere Administratoren Klaus Ullmann-Pfleger und Hong-Keun Kim, die meine Computerprobleme fast instantan beheben konnten.

Danke Dr. Achim Czasch, dass ich jederzeit zu dir kommen konnte, wenn mein Programmcode mal wieder nicht gemacht hat, was ich wollte.

Der Arbeitsgruppe Atomphysik danke ich für die tolle Atmosphäre, in der man sich von Anfang an wohl fühlt und eine tolle Umgebung zum Arbeiten vorfindet. Außerdem haben die Helfer bei der Strahlzeit den Teil der Daten, den ich auswerten durfte und der dieser Arbeit zu Grunde liegt, erst möglich gemacht.

Meiner Freundin Ricarda möchte ich danken, dass sie Verständnis dafür hatte, dass ich in unserer 1,5 Zimmerwohnung teilweise bis spät in die Nacht nicht von der Arbeit zu trennen oder beim Frühstück schon wieder bei meiner Auswertung war. Danke, dass ich immer total doof sein durfte!

Abschließend möchte ich meinen Eltern, Silvia und Thomas, und meiner Schwester Alexandra für die moralische Unterstützung beim Lösen der Probleme danken. Auch die aufmunternden Worte meiner Großeltern möchte ich an dieser Stelle nicht unerwähnt lassen - Danke!





## 8 Literaturverzeichnis

### Literatur

- [1] Immanuel Kant, Werkausgabe, hrg. von Wilhelm Weischedel, Bd. III, Frankfurt 4. Aufl. 1982, S. 23
- [2] L.S Cederbaum, J. Zabeley, and F. Tarantelli, Phys. Rev. Lett. 79, 4778 (1997)
- [3] WEBER, THORSTEN: Untersuchung der verschränkten Bewegung freier Elektronenpaare emittiert aus Ein- und Zweizentren Coulomb-Potentialen in Photoabsorptionsprozessen. Dissertation, Feb 2003.
- [4] H. Haken, H.C. Wolf Atom- und Quantenphysik - Eine Einführung in die experimentellen und theoretischen Grundlagen 5. Auflage, Springer Verlag, Berlin Heidelberg (1993)
- [5] Dissertation Tilo Havermeier, Photoionisation von Heliumdimeren, Goethe Universität Frankfurt am Main (2010)
- [6] W. Schöllkopf and J. Peter Toennies. SCIENCE, 266, 1345 (1994).
- [7] Rechnung aus Quantenmechanik, A.S. Dawydow, VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin, 1. Auflage 1967
- [8] [http://www.ipf.uni-stuttgart.de/lehre/online-skript/f40\\_03.html](http://www.ipf.uni-stuttgart.de/lehre/online-skript/f40_03.html)
- [9] <http://upload.wikimedia.org/wikipedia/commons/d/de/Autoionisation.svg>
- [10] [www.nist.gov](http://www.nist.gov)
- [11] W. Demtröder Experimentalphysik 3 - Atome, Moleküle und Festkörper, 4. Auflage, Springer Verlag, Berlin Heidelberg (2009)
- [12] S. Marburger, O. Kugeler, U. Hergenhahn, T. Möller. Phys. Rev. Lett., 93, 203401 (2003)
- [13] T. Jahnke, A. Czasch, M. S. Schöffler, S. Schössler, A. Knapp, M. Käsz, J. Titze, C. Wimmer, K. Kreidi, R. E. Grisenti, A. Staudte, O. Jagutzki, U. Hergenhahn, H. Schmidt - Böcking, R. Dörner. Phys. Rev. Lett., 93, 163401 (2004) .
- [14] [http://www.helmholtz-berlin.de/forschung/grossgeraete/beschleunigerphysik/bessy2/top-up\\_en.html](http://www.helmholtz-berlin.de/forschung/grossgeraete/beschleunigerphysik/bessy2/top-up_en.html)

- [15] I.P. Hertel, C.P. Schulz *Atome, Moleküle und optische Physik* 1, 1. Auflage, Springer Verlag, Berlin Heidelberg (2008)
- [16] [http://www.helmholtz-berlin.de/pubbin/igama\\_output?modus=einzel&sprache=en&gid=1649&typoid=37587](http://www.helmholtz-berlin.de/pubbin/igama_output?modus=einzel&sprache=en&gid=1649&typoid=37587)
- [17] [www.atom.uni-frankfurt.de/research/coltrims/](http://www.atom.uni-frankfurt.de/research/coltrims/)
- [18] Diplomarbeit Hendrik Sann, Photodoppelionisation von Wassermolekülen, Goethe Universität Frankfurt am Main (2009)
- [19] Anleitung zum Fortgeschrittenenpraktikum Universität Frankfurt, Versuch Ionenimpulsspektroskopie, Stand 12/2012
- [20] [http://www.baspik.com/eng/products/mkp/mcp\\_detectors\\_specification\\_eng.php/](http://www.baspik.com/eng/products/mkp/mcp_detectors_specification_eng.php/)
- [21] Dissertation Till Jahnke, Interatomic Coulomb Decay, Goethe Universität Frankfurt am Main (2005)
- [22] F. Trinter, J. Williams, M. Weller, M. Waitz, M. Pitzer, J. Voigtsberger, C. Schober, G. Kastirke, C. Müller, C. Gohl, P. Burzynski, F. Wiegandt, T. Bauer, R. Wallauer, H. Sann, A. Kalinin, L. Schmidt, M. Schöffler, N. Sisourat and Till Jahnke, *Phys. Rev. Lett.* 111, 093401 (2013)
- [23] G. Fraser, M. Barstow and J. Pearson, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 273 (1988) 667-672
- [24] M. Zubek, G. Dawbert, R. Hall, L. Avaldi, K. Ellis and G. King, *J. Phys. B. At. Mol. Opt. Phys.* 24 (1991) L337-L342