

Vektorkorrelation
von Auger- und Photoelektron
nach O1s Ionisation von CO₂

Diplomarbeit

von

Sophie Kirschner

Institut für Kernphysik
Johann Wolfgang Goethe Universität
Frankfurt am Main

Juni 2009

“Ich versichere hiermit, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst, keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel verwendet und sämtliche Stellen, die benutzten Werken im Wortlaut oder dem Sinne nach entnommen sind, mit Quellen- bzw. Herkunftsangaben kenntlich gemacht habe.”

Frankfurt am Main, Juni 2009

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung	1
2	Aufbau	3
2.1	Advanced Light Source	3
2.2	ColTRIMS	5
2.3	Spektrometer mit Linse	6
2.4	Detektor	8
2.5	Gasjet und Vakuum	8
3	Messung	13
4	Physikalischer Hintergrund	15
4.1	CO ₂	15
4.2	Prozess	16
4.3	Interferenz und Lokalisation	17
4.4	Ionisation des K-Schalen-Elektrons	17
4.5	Winkelverteilungen des Photoelektrons	19
5	Auswertung	21
5.1	Koinzidenzverschaltung	21
5.2	Linienfehler	22
5.3	Impulse	23
5.3.1	Photoelektronenimpuls	23
5.3.2	Impuls des Augerelektrons	25
5.3.3	Ionenimpuls	25
5.4	KER	25
5.5	Anpassung der Felder	25
5.6	Spektren	26
6	Ergebnisse	33
6.1	Elektronenenergie	34
6.2	Winkelverteilungen	35
6.2.1	Definition der Winkel	35
6.2.2	Augerelektron	36
6.2.3	Photoelektron	36
6.2.4	Photo- und Augerelektron	42
6.3	KER	44

7 Zusammenfassung	51
A Atomare Einheiten	55
B Abbildungen Rohspektren	57
C Abbildungen KER	59
Literaturverzeichnis	65

1

Einführung

Ich möchte Sie auf eine Reise mitnehmen, eine Reise zu den - beinahe - kleinsten Teilchen der Welt.

Tatsächlich beginnt die Geschichte mit einer Reise, einer Reise nach Kanada. Dort schnupperte ich in die Welt der Atomphysik hinein - am NRC in Ottawa werden Moleküle mit Lasern untersucht - und entschied mich für eine Diplomarbeit in der Arbeitsgruppe Dörner.

Die nächste Reise, die mich dieser Arbeit noch sehr viel näher bringen sollte, führte mich nach Berkeley an das Lawrence Berkeley National Laboratory. Dort wurde im März 2008 ein großes Coltrims-Experiment an einem Synchrotron, der ALS, durchgeführt.

Während der Nachtschichten am Experiment begann mich die Arbeit mit Synchrotronstrahlung so zu faszinieren, dass wir Daten für meine Diplomarbeit aufnahmen. Die Ergebnisse dieser Messungen werden hier präsentiert.

Nachdem im Rahmen dieser Strahlzeit mit N_2 und H_2 gearbeitet wurde, ging es an das CO_2 -Molekül. An ihm wurden C1s Ionisation und O1s Ionisation gemessen. Die Ionisation des Kohlenstoffs ist Grundlage der Diplomarbeit von Felix Sturm ([1]), die O1s Ionisation die der vorliegenden Arbeit.

In beiden Fällen konnten wir den Aufbruch des CO_2 in ein O^+ , ein CO^+ , ein Photo- und ein Augerelektron nachweisen und alle Impulse rekonstruieren.

Ziele des Experimentes waren, nach einer quantenmechanischen Verschränkung zwischen den beiden Elektronen zu suchen, zweizentren Interferenzen in der Photo- und Augerwinkelverteilung nachzuweisen, sowie eine Aussage über eine mögliche Lokalisierung des Sauerstoff K-Loches zu gewinnen.

In dieser Arbeit werde ich zuerst den Aufbau des Experiments, die Messung und die physikalischen Hintergründe vorstellen, bevor ich über die Auswertung zu den Ergebnissen gelange.

Im Ergebnisteil werden die Winkelverteilungen des Auger- und des Photoelektrons gezeigt, wobei dies die ersten experimentell gemessenen Winkelverteilungen des Augerelektrons bei O1s Ionisation des CO_2 sind. Außerdem kann anhand der Bewegungsenergie der Molekülfragmente, des sogenannten Kinetic Energy Release, gezeigt werden, dass wir verschiedene, nahe beieinander liegende, Zustände ionisieren.

2

Aufbau

Ein Experiment, über das man in der Experimentalphysik eine Diplomarbeit schreiben kann, ist im Regelfall kein Freihandversuch, sondern sehr komplex. Trotzdem ist es in der Atom- und Molekülphysik möglich, ein ganzes Experiment relativ komplett zu erfassen und zu beschreiben. Ich möchte in diesem Kapitel einige Einblicke geben - von der großen Anlage, an der wir gearbeitet haben, bis zum Spektrometer.

2.1 Advanced Light Source

Die Advanced Light Source - ALS - ist ein Synchrotron am Lawrence Berkeley National Laboratory, USA.

Unter einem Synchrotron versteht man einen Teilchenbeschleuniger, in dem sich Elektronen mit sehr hohen Geschwindigkeiten auf einer Kreisbahn bewegen. Wenn geladene Teilchen beschleunigt werden, strahlen sie Energie ab, die als Synchrotronstrahlung genutzt wird.

An der ALS werden Elektronen zuerst in einem Linearbeschleuniger und dann in einem Ringbeschleuniger fast auf Lichtgeschwindigkeit (1.9 GeV) beschleunigt. Anschließend werden sie in einem Speicherring gespeichert und von dort wird die erzeugte Strahlung an die verschiedenen Strahlrohre geleitet. Synchrotronstrahlung wird immer tangential zur Bewegungsrichtung des Teilchens emittiert. Werden die Teilchen in einem Kreisbeschleuniger beschleunigt, geht der Strahl also geradeaus aus dem Ring heraus und kann verhältnismäßig leicht zum Experimentieren genutzt werden.

In einem Linearbeschleuniger werden Teilchen (in unserem Fall Elektronen) durch elektrische Felder beschleunigt. Da man nur eine begrenzte Spannung anlegen kann, muss der Beschleuniger immer länger werden, wenn die Teilchen schneller werden sollen. **Deshalb nutzt man Ringbeschleuniger.** Dort werden die Elektronen immer wieder im Kreis beschleunigt. Dadurch können die Teilchen eine höhere kinetische Energie erreichen als im Linearbeschleuniger. Allerdings muss viel Energie darauf verwendet werden, die Teilchen auf einer Kreisbahn zu halten. Sie werden durch magnetische Felder auf diese Bahn

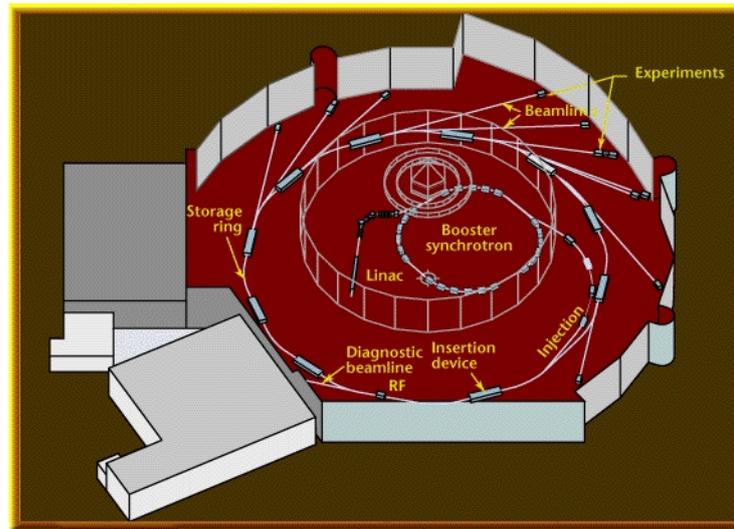


Abbildung 2.1: Aufbau der ALS ([2]) mit einem Umfang von 200 m und einer Elektronenenergie von 1.9 GeV

gezwungen. **Im Speicherring** werden die Teilchen dann zum Experimentieren bereit gehalten. Auch hier werden sie von Magnetfeldern auf der Kreisbahn gehalten. Da die beschleunigten Teilchen Energie in Form von Licht abstrahlen, muss ihnen diese wieder durch anliegende Spannung zugeführt werden. Zu diesem Zweck gibt es kurze Beschleunigungsstrecken.

Die Undulatoren und Wiggler sind Teile des Speicherrings. In ihnen wird die Strahlung emittiert. In den Wiggler werden die Elektronen durch starke Magnete alle auf die gleiche periodische Bahn gezwungen. Dadurch ist die Strahlung wesentlich zielgerichteter und hat eine geringere spektrale Breite, als spontan erzeugte Synchrotronstrahlung ([3]). Der Aufbau von Undulatoren und Wiggler ist prinzipiell gleich. Allerdings ist der Abstand zwischen den Magneten in den Undulatoren kleiner. Daraus ergibt sich eine teilweise Kohärenz zwischen den Elektronen und die Intensität der Strahlung ist wesentlich höher als bei Wiggler, sie erhöht sich beim Undulator quadratisch mit der Zahl der Magnete. Mit Undulatoren wird Strahlung höchster Brillanz erzeugt.

Anders als bei einem Laser ist die emittierte Strahlung nicht monochromatisch, sie deckt also ein gewisses Spektrum ab. Außerdem ist die Strahlung polarisiert, so dass man keine Polarisationsfilter mehr benötigt, die die Leistung minimieren.

Die Wellenlänge der Synchrotronstrahlung geht an der ALS von Infrarot bis Röntgenlicht (0.1 nm - 0.1 μm).

Dort werden Messungen zu Physik, Materialforschung, Chemie, Biologie, und Umweltwissenschaft durchgeführt.

Wir haben an Beamline 11.0.2 gearbeitet. An ihr kann die Polarisation des Lichts mit der richtigen Orientierung der Magnete im Undulator und die Photonenenergie mit einem Monochromator ([4]) einstellen. Dieser kann mit

zwei verschiedenen Gittern arbeiten, die einen Einfluss auf die Auflösung haben. Diese Auflösung hängt von der Breite des zweiten Schlitzes ab und wird deshalb in Energie pro μm angegeben. Bei einer Photonenenergie von 500 eV (600 eV) und einem Gitter mit 150 Linien/mm gehen wir von einer Auflösung von $8.8 \text{ meV}/\mu\text{m}$ ($11.7 \text{ meV}/\mu\text{m}$) aus, bei dem von uns genutzten Gitter mit 12000 Linien/mm von einer Auflösung von $3.4 \text{ meV}/\mu\text{m}$ ($4.4 \text{ meV}/\mu\text{m}$). Die Strahlposition kann mit Spiegeln in horizontaler und vertikaler Richtung verändert werden. Die Strahlgröße liegt in einer Beispielmessung bei $6 \mu\text{m} \times 11 \mu\text{m}$ ([5]). Es ist uns gelungen zu zeigen, dass der Strahl während unserer Messung bei einer Öffnung beider Schlitzte um $100 \mu\text{m}$ nicht größer als $160 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$ war ([1]).

Der Photonenfluss liegt bei 200 mA Ringstrom bei $10^{12} - 10^{13}$ Photonen pro Sekunde, deren Energie zwischen 95 eV und 2000 eV einstellbar ist ([5]).

Eine technische Zeichnung der Beamline findet man unter [6].

Unsere Messungen fanden im sogenannten Double-Bunch-Modus statt, was bedeutet, dass sich immer zwei Elektronenpakete im Umlauf durch den Speicherring befinden. Es werden also bei jedem Umlauf durch den Ring zwei Lichtblitze abgegeben.

Im Gegensatz zu anderen Messungen speisen wir nur zwei Elektronenpakete ein, um einen relativ großen Abstand zwischen den Ereignissen zu gewährleisten, um die einzelnen Teilchen einander richtig zuzuordnen.

Den beiden Paketen wird immer wieder die durch die Strahlung verlorene Energie zugeführt. Allerdings gehen immer Teile des Bündels verloren, so dass nach einigen Stunden neue Elektronen eingeschossen werden.

2.2 ColTRIMS

Das Besondere an Coltrims - Cold Targeted Recoil Ion Momentum Spectroscopy - ist die Möglichkeit, bei einem Atom- oder Molekülaufbruch die Impulse aller Fragmente zu rekonstruieren ([7]).

Ein Coltrims-Experiment besteht im Regelfall aus einem kalten Gasjet und einem Licht- oder Ionenstrahl, die einander kreuzen. Die Reaktionsprodukte werden durch äußere Felder auf Detektoren gelenkt. All dies findet im Vakuum statt. In der Vakuumkammer ist ein Spektrometer eingebaut, das einerseits die Detektoren fixiert, andererseits dazu dient, ein homogenes elektrisches Feld zu erzeugen, das Elektronen und Ionen auf die entsprechenden Detektoren lenkt. Um auch die Elektronen mit einer hohen Transversalgeschwindigkeit auf den Elektronendetektor zu lenken, wird zusätzlich noch ein homogenes magnetisches Feld erzeugt. Mit ihm werden diese Elektronen, die so schnell sind, dass das elektrische Feld für sie nicht ausreicht, auf eine Spiralbahn gezwungen. Die Wirkung des Magnetfeldes auf die viel schwereren Ionen ist vernachlässigbar.

In den meisten Fällen haben die Coltrims-Aufbauten eine 4π -Raumwinkel-Abdeckung, was bedeutet, dass alle Events detektiert werden (also *alle* Teilchen durch die Felder auf die Detektoren gelenkt werden), egal in welche Richtung sie emittiert

wurden und in welche Richtung sie sich anfangs bewegen.

Während dieser Messung mussten wir allerdings sehr hohe Spannungen anlegen, um alle emittierten Photoelektronen detektieren zu können. Der 4π -Raumwinkel-Effekt geht verloren und es werden nur Ionen detektiert, die mit einem Winkel von höchstens 21° parallel zur Flugzeitrichtung (zur Spektrometerrachse) emittiert werden.

2.3 Spektrometer mit Linse

Das Spektrometer bildet mit den Detektoren das Herzstück des Aufbaus. Abbildung 2.2 zeigt eine schematische Zeichnung, Abbildung 2.3 ein Foto des genutzten Spektrometers.

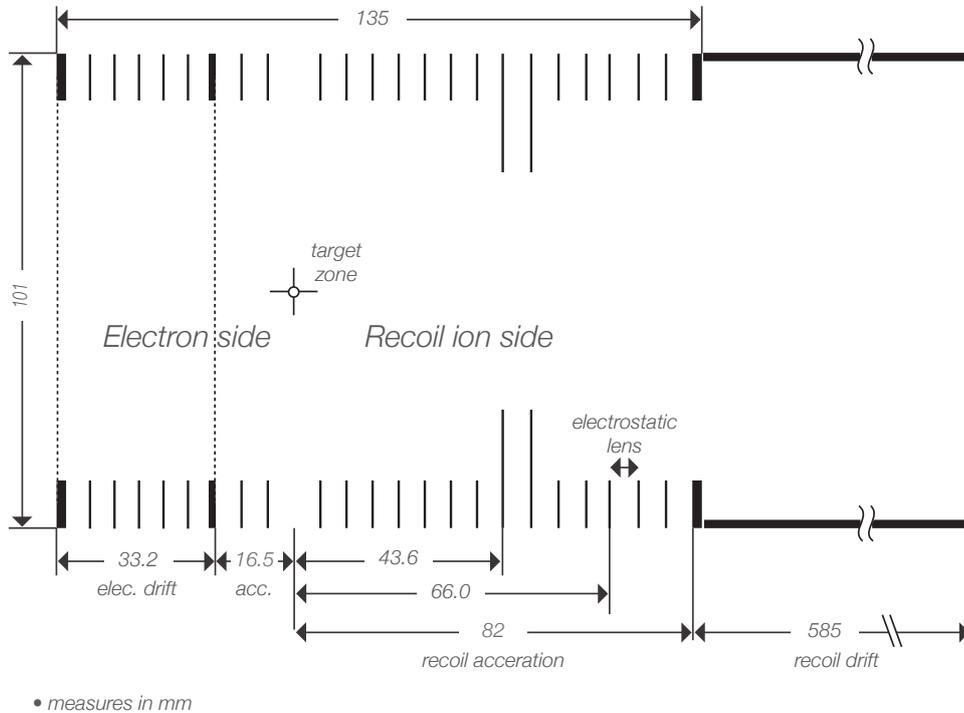


Abbildung 2.2: Das Spektrometer ([1])

Die Achsen sind wie folgt definiert:

- x: Ausbreitungsrichtung des Lichts
- y: Richtung des Gasjets
- z: Flugzeitrichtung, senkrecht zu den Detektoren

Dieses Koordinatensystem ist in Abbildung 2.4 visualisiert.

Während des Experiments zerfällt ein Molekül in zwei Ionen und zwei Elektro-

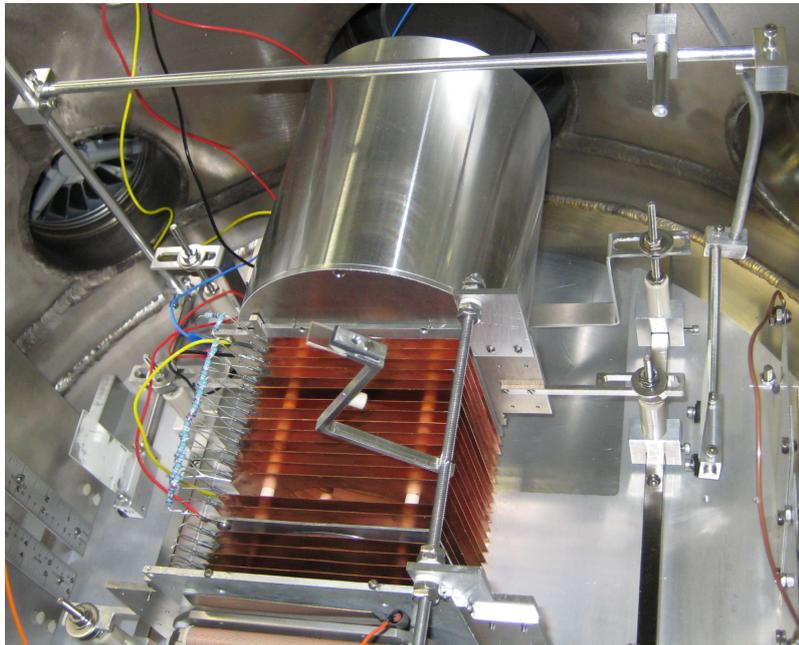


Abbildung 2.3: Foto des Spektrometers
Mittig erkennt man die Spektrometerplatten und den Szintillator samt Halterung, am unteren Rand ist der Elektronendetektor angeschnitten.

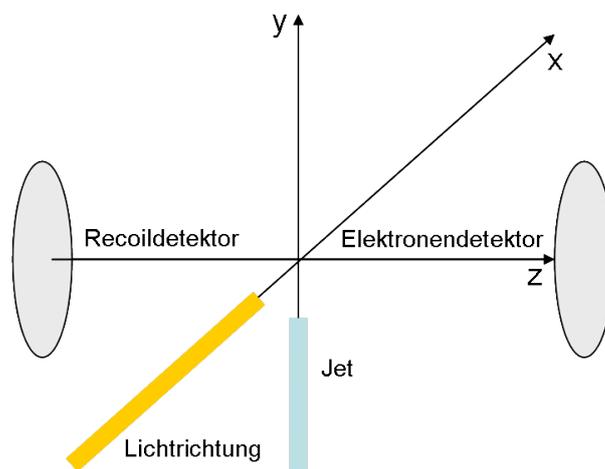


Abbildung 2.4: Das Koordinatensystem
x: Ausbreitungsrichtung des Lichts
y: Richtung des Gasjets
z: Flugzeitrichtung, senkrecht zu den Detektoren

nen, wir arbeiten mit einer Vielteilchen-Koinzidenz. Eines der Elektronen ist so schnell, dass wir es nicht messen können. Allerdings können wir seinen Impuls über die Impulserhaltung rekonstruieren, wenn wir die Impulse der anderen drei Teilchen sehr genau kennen. Um diese Impulse so genau messen zu können ist eine hohe Auflösung auf dem Schwerpunkt nötig.

Wir benötigen eine Orts- und Flugzeitfokussierung. Unter Ortsfokussierung versteht man eine Fokussierung in x- und y-Richtung, unter Flugzeitfokussierung die Fokussierung in z-Richtung. Die Fokussierung hat zur Folge, dass Teilchen, die an unterschiedlichen Orten mit gleichem Startimpuls entstehen, gleichzeitig auf den Detektor treffen.

Für die Ortsfokussierung wird mit einer elektrostatischen Linse gearbeitet, die durch ein hohes elektrisches Feld in einem Abschnitt auf der Ionenseite realisiert wird (siehe Abbildung 2.2).

Auf beiden Seiten des Spektrometers wirkt eine zeitfokussierende Geometrie. Auf der Ionenseite wird diese durch eine besonders lange Driftstrecke ermöglicht. Auf der Elektronenseite wird die Zeitfokussierung durch die Wiley-McLaren Geometrie ([8]) erreicht. Diese zeichnet sich dadurch aus, dass die Driftstrecke doppelt so lang wie die Beschleunigungsstrecke ist.

Das Spektrometer wurde von Markus Schöffler konstruiert und von Felix Sturm aufgebaut. Die besonders lange Form des Spektrometers gewährt eine hohe Auflösung. Am Spektrometer liegt während der Messung ein elektrisches Feld von 41.4 V/cm an. Im Bereich der elektrostatischen Linse liegt ein Feld von 300 V/cm an. Die Linse fokussiert die Ionen auf den Detektor und minimiert damit den Einfluss der Jetgröße. Die Fokussierung durch die Linse muss bei der Auswertung beachtet werden (siehe 5.2).

Mehr zur Elektrostatischen Linse und dem Aufbau des Spektrometers findet man in [1].

Der Strahlfokus kann optisch mit Hilfe eines Szintillators bestimmt werden. Dieser wird in die Reaktionszone geschwenkt und man sieht den Strahl mit bloßem Auge. Im besten Fall kann am Szintillator auch die Strahlgröße abgelesen werden.

2.4 Detektor

Wir haben sowohl als Elektronendetektor, als auch als Ionendetektor zweidimensionale Delay-Line-Detektoren mit MCP (DLD80) der Firma Roentdek verwendet. Weitere Informationen, eine Zeichnung und ein Handbuch sind unter [9] zu finden.

2.5 Gasjet und Vakuum

Die zu untersuchende Reaktion findet zwischen einem Photon und einem CO₂-Molekül statt. Das CO₂-Molekül stammt aus einem kalten Gasjet, der mit einer Überschallgasexpansion erzeugt wird. Während das Gas von einem Reservoir mit hohem Druck durch eine kleine Düse in ein anderes Reservoir mit sehr

viel niedrigerem Druck strömt, findet eine isentrope Expansion statt, wobei alle Energie in eine gerichtete Bewegung umgewandelt wird. Darauf folgt eine „zone of silence“, in der sich die Kenngrößen des Gasjets nicht mehr ändern. Die Gasdüse ist in Abbildung 2.5 dargestellt.

Für diesen Bereich gelten folgende Werte:

- Gasdruck 689,48 mbar
- Temperatur 296 K
- Jetgeschwindigkeit 521 m/s
- Jettemperatur 8.8 K
- Targetdichte $1.7 \cdot 10^{-10} / \text{cm}^{-3}$
- Impulsbreite entlang des Photonenstrahls (x-Richtung) 0.36 au
- Impulsbreite entlang des Gasjets (y-Richtung) 3.15 au
- Impulsbreite in Flugrichtung (z-Richtung) 0.04 au

Die Herleitung dieser Werte ist in [1] aufgeführt, dort wurde mit dem selben Aufbau gearbeitet.

Das gesamte Experiment findet unter Ultrahochvakuum statt, zu diesem Zweck ist die Kammer hermetisch abgedichtet und mit einer großen Anzahl von Vakuumpumpen bestückt.

Die Kammer besteht aus mehreren zusammenhängenden Bauteilen. In Abbildung 2.6 erkennt man, welche Pumpen mit welchen Pumpleistungen wir an welchem Kammerabschnitt benutzt haben. Das beste Vakuum muss in der „target zone“ herrschen, dem Abschnitt, in dem die Reaktion stattfindet. Dort besteht (bei einem Gasdruck von 689,48 mbar) ein Druck von $2.7 \cdot 10^{-8}$ mbar. Ebenfalls ein sehr gutes Vakuum herrschte im „jet dump“. Dorthin wird der Reststrahl nach der Reaktion geleitet. Es herrschte ein Druck von $4 \cdot 10^{-8}$ mbar. Das Vakuum im „second stage“ war nicht mehr ganz so gut ($8 \cdot 10^{-7}$ mbar). Dieser Bereich ist der Übergang zwischen „target zone“ und der Jetquelle. Dort liegt der Druck nur noch bei $1.3 \cdot 10^{-4}$ mbar.

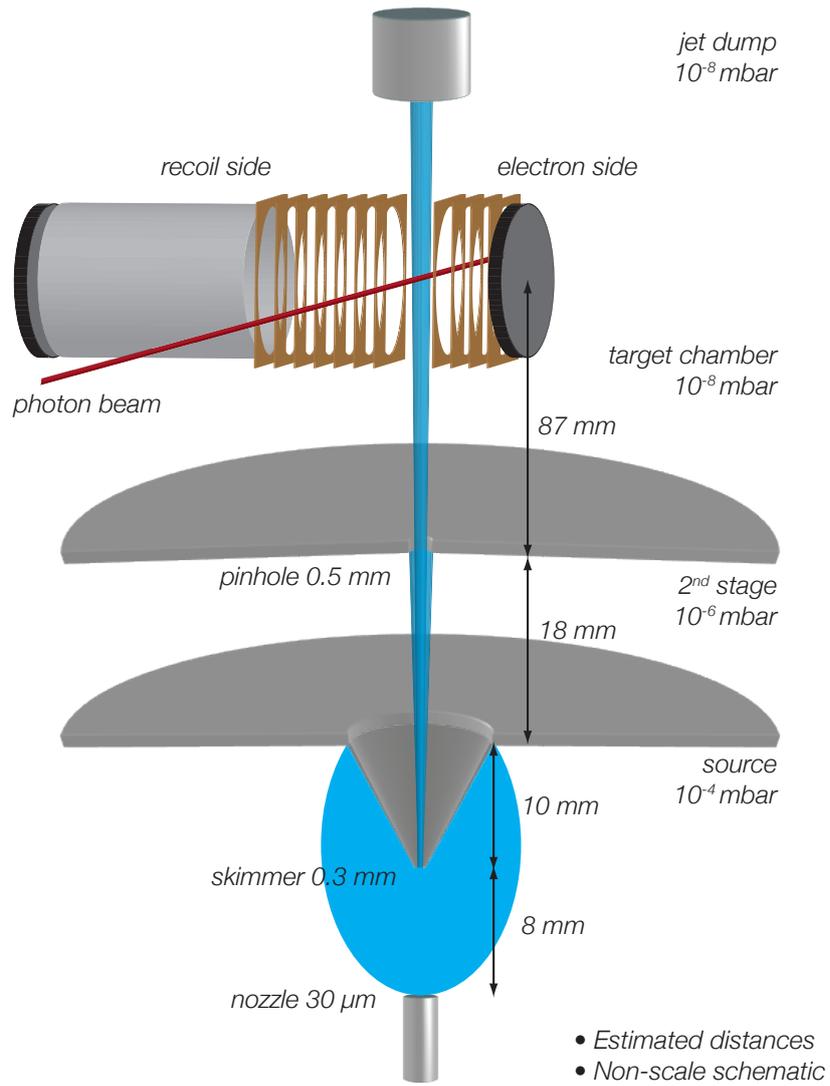


Abbildung 2.5: Geometrie der Gasdüse ([1])

Vacuum system of the Berkeley chamber ALS Beamtime March 2008

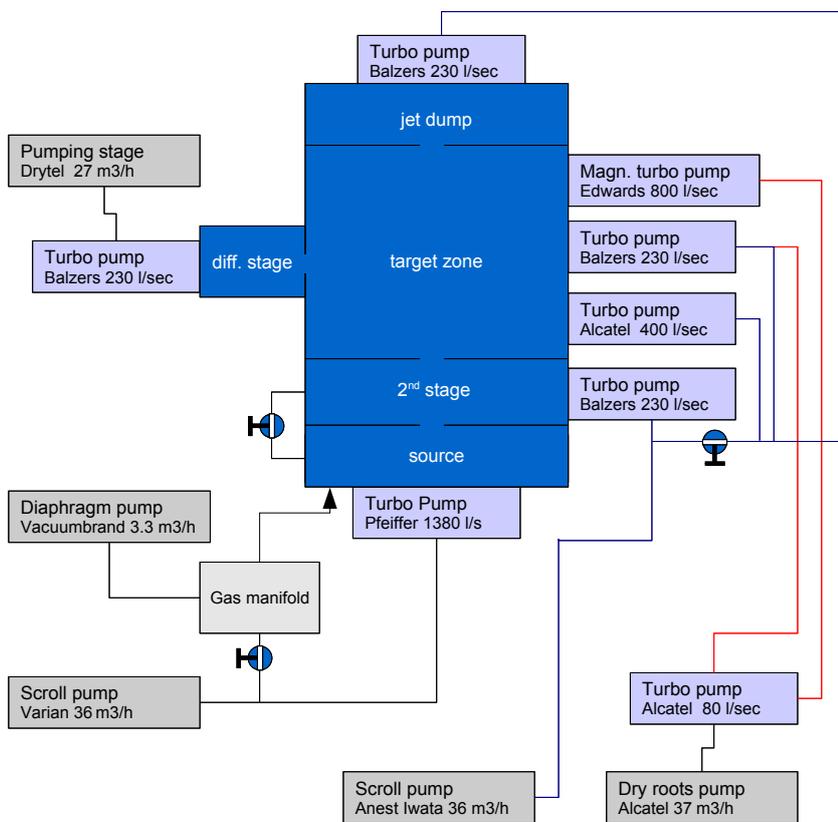


Abbildung 2.6: Vakuumsystem ([1])

3

Messung

Während des Experiments wird ein Photon von einem CO_2 -Molekül absorbiert und ein Photoelektron emittiert; es entsteht ein Loch. Ein weiteres Elektron füllt das Loch und es wird ein Augerelektron emittiert. Das CO_2^{++} dissoziiert. Photoionisation und Augerzerfall werden in 4.2 erläutert.

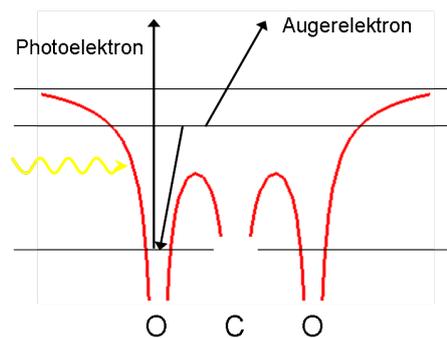


Abbildung 3.1: Prozess



Abbildung 3.2: Aufbruch des CO_2^{++} in CO^+ und O^+

Wir betrachten nur die Fälle, in denen das CO_2^{++} in ein CO^+ und ein O^+ dissoziiert und wir beide Ionen und das Photoelektron messen können.

Die Energie des Photons ist so gewählt, dass ein Elektron aus der K-Schale des Sauerstoffs gelöst wird. Diese Elektronen sind mit 541.254 eV gebunden ([10]). Den Vorgang nennen wir O1s Ionisation, da ein Elektron aus dem 1s Orbital des Sauerstoffs emittiert wird.

Wir arbeiten mit Photonenenergien von 555, 565, 575 und 590 eV, was Photoelektronenenergien von etwa 14, 24, 34 und 49 eV entspricht. Den Impuls des Augerelektrons rekonstruieren wir aus den Impulsen der anderen drei Teilchen. Das Augerelektron hat eine Energie von ca. 135 eV (5 au).

Wir messen mit zirkular polarisiertem Licht.

Eine Einführung zur hochauflösenden Messung der Innerschalen-Spektroskopie mit Synchrotronstrahlung ist unter [\[11\]](#) zu finden.

4

Physikalischer Hintergrund

Nachdem es in Kapitel 2 um den Aufbau des Experiments ging, stelle ich hier unser betrachtetes Molekül, den Prozess und einige betrachtete Effekte vor.

Eines der Ziele des Experimentes war die Weiterführung der Messung von Saito et al. (4.5); als Grundlage dient die Arbeit von Cederbaum und Domcke (4.4). In beiden Quellen wurde mit CO_2 gearbeitet.

Mögliche Ergebnisse des Experimentes wären eine quantenmechanische Verschränkung zwischen den beiden Elektronen, zweizentrierte Interferenzen in der Photo- und Augerwinkelverteilung und eine Aussage über eine Lokalisierung des Sauerstoff K-Loches.

4.1 CO_2

Kohlenstoffdioxid, CO_2 , ist ein durch die Klimadebatte ins Zentrum der Aufmerksamkeit gerücktes Molekül. In unserer Luft liegt die Kohlenstoffdioxidkonzentration bei etwa 0.04%. In dieser Konzentration ist Kohlenstoffdioxid das zweitwirksamste Treibhausgas und damit maßgeblich für die Erderwärmung verantwortlich. In höherer Konzentration, ab ca. 8%, führt Kohlenstoffdioxid beim Menschen zum Atemstillstand.

In diesem Kapitel gehe ich auf den *physikalischen Hintergrund* ein. Wir benutzen für unsere Experimente hochreines -99.9995 prozentiges Kohlenstoffdioxid aus der Druckgasflasche.

CO_2 ist ein dreiatomiges Molekül, das aus zwei Sauerstoffmolekülen und einem Kohlenstoffatom linear und symmetrisch aufgebaut ist und zwei Doppelbindungen besitzt.

In 4.2 sind die besetzten Energieniveaus des Moleküls und ihre Orbitale abge-



Abbildung 4.1: CO_2 , ein lineares, symmetrisches Molekül

bildet.

Kohlendioxid besitzt kein elektrisches Dipolmoment. Wir betrachten nur CO_2

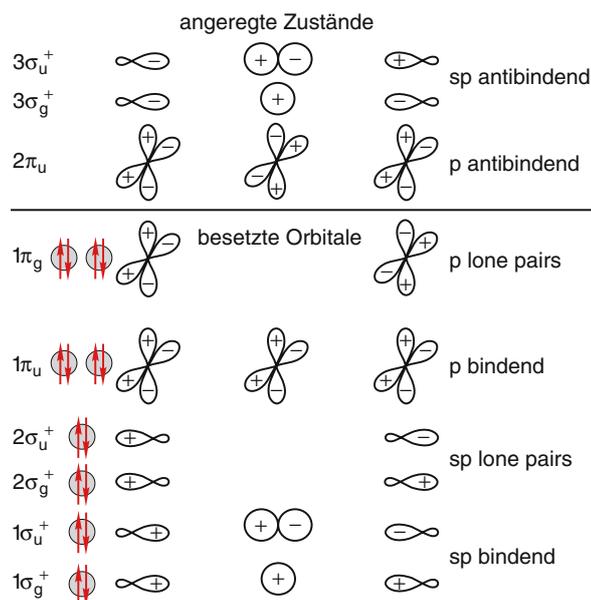


Abbildung 4.2: Die besetzten Energieniveaus des CO_2 und ihre Orbitale ([12], [13])

im Vibrationsgrundzustand.

Sehr nah an der O1s Ionisationsgrenze, bei einer Photonenenergie von etwa 540 eV und bei etwa 559 eV liegen zwei Shape-Resonanzen.

4.2 Prozess

Während des Experiments finden eine Photoionisation und ein Augerzerfall statt.

Bei der Photoionisation wird ein Photon von einem Atom absorbiert. Diese zugeführte Energie führt zur Emission eines Elektrons. Die Photonenenergie, die benötigt wird, muss mindestens so hoch sein wie die Bindungsenergie des Elektrons. Eine höhere Photonenenergie wird in kinetische Energie des Photoelektrons umgewandelt.

Nach der Photoionisation entsteht ein Loch in der Elektronenhülle. Dieses wird durch ein weniger fest gebundenes Elektron gefüllt. Die dadurch frei werdende Energie kann entweder durch Emission eines Photons abgegeben werden oder durch eine Ionisation durch den Auger-Effekt. Bei diesem handelt es sich um einen strahlungslosen Energieübertrag an ein weiteres Elektron, das vom Atom oder Molekül daraufhin emittiert wird.

Als Folge der Emission von Photo- und Augerelektron dissoziiert das zweifach ionisierte Molekül.

4.3 Interferenz und Lokalisation

Elektronen sind Teilchen und Welle zugleich. Daher können sie auch, ganz wie eine Lichtwelle, mit sich selbst interferieren. Wenn ein Elektron von einem Molekül ausgesendet wird, kann das Molekül als Doppelspalt wirken. In diesem Fall sehen wir in der Winkelverteilung ein Interferenzbild, Minima und Maxima. Ein Beispiel dafür ist in [14] zu finden. Im Teilchenbild interessiert uns die Frage, ob das Elektron lokal zu einem Atom des Moleküls gehört oder delokalisiert ist. In diesem Fall kann man in der Winkelverteilung eine Vorzugsrichtung für die Emmission der Elektronen erkennen.

Obwohl bekannt ist, dass die Valenzelektronen in einem Molekül delokalisiert sind, kann man nicht sicher sagen, ob ein in der K-Schale entstehendes Loch lokalisiert ist. Die bekanntesten Rechnungen an O_2^+ zu dieser Frage findet man in [15], Messungen an CO_2 , in [16].

4.4 Ionisation des K-Schalen-Elektrons

Die Veröffentlichung „Vibronic coupling and symmetry breaking in core electron ionization“, von W. Domcke und L.S. Cederbaum ([17]), handelt von der Symmetriebrechung in symmetrischen Molekülen. Diese Veröffentlichung wird an dieser Stelle zusammengefasst.

Es wird gezeigt, dass für hoch symmetrische Moleküle die Symmetrie sinkt, wenn ihr Innerschalenelektron ionisiert wird.

Diese Symmetriebrechung ist eine Konsequenz aus der vibronischen Kopplung¹ zwischen beinahe entarteten Innerschalenorbitalen mit unterschiedlicher Symmetrie.

Die vibronische Kopplung führt zu Anregung der symmetrischen Schwingungsmoden, zusätzlich zu den symmetrischen Moden.

Als Beispiel wurde die vibronische Struktur der $O1s$ Linie von CO_2 auf dem Ein-Teilchen-Level berechnet. Es wird also der von mir experimentell gemessene Fall betrachtet.

Es wird gezeigt, dass es sich bei der Kopplung von nicht vollständig symmetrischen Moden, begleitet von der Verringerung der Symmetrie, um ein gewöhnliches Phänomen in Innerschalen-Ionisationsprozessen mit hoch symmetrischen Molekülen handelt.

Für die elektronische Bewegung wird die Hartree-Fock² Ein-Teilchen-Näherung verwendet und für die Schwingungsbewegung im elektronischen Grundzustand die harmonische Näherung. Sobald die ionischen Zustände betroffen sind, beschränken sich die Autoren nicht mehr auf harmonische Näherungen.

Innerhalb der adiabatischen Näherung gibt es keine lineare Kopplung an nicht vollständig symmetrische Schwingungsmoden.

¹Wechselwirkungen zwischen Elektronen- und Kernbewegung.

²Mit der Hartree-Fock Methode können Orbitalenergien und Wellenfunktionen von Mehrteilchensystemen genährt werden ([18]).

Die σ_g - und σ_u -Innerschalenorbitalenergien von CO_2 liegen sehr nah beieinander, sie haben nur einen Abstand von 1.5 meV eV. Damit können die Energien als gleich angenommen werden. Diese Näherung kann bei anderen Zuständen wie $2\sigma_u$ und $3\sigma_g$ nicht mehr angewandt werden.

Den Autoren gelingt es, einen Hamilton-Operator zu entwerfen, der das Brechen der anfänglichen molekularen Symmetrie beschreibt. Der Hamilton-Operator, der die Schwingungsbewegung im ionischen Zustand charakterisiert, ist der Hamilton-Operator für einen in der symmetrischen und der antisymmetrischen Richtung verschobenen harmonischen Oszillator. Die Verschiebung in der antisymmetrischen Richtung resultiert aus der vibronischen Interaktion zwischen den $1\sigma_g$ - und $1\sigma_u$ -Innerschalenorbitalen.

Die Schwingungsintensität ist das Produkt zweier Poisson-Verteilungen. Von diesen hängt die Stärke der Anregung der symmetrischen und der antisymmetrischen Dehnungsmode ab.

Da die Beugungsmode π -symmetrisch ist, könnte nur eine vibronische Kopplung zwischen einem π - und einem σ -Orbital zur Beugung führen. Da es in der Innerschalenregion kein π -Orbital gibt, bleibt das Molekül linear und wird nicht gebeugt.

Die benötigten Kopplungskonstanten müssen mit Hilfe der SCF-Methode³ berechnet werden. Zusätzlich zu den Rechnungen im Grundzustand wird mit einem leicht veränderten Molekülabstand und einer leicht asymmetrischen Atomkonfiguration gearbeitet. Damit kann die Stärke der Anregung der symmetrischen und der antisymmetrischen Dehnungsmode berechnet werden. Die Rechnung ergibt, dass die symmetrische Dehnungsmode leicht und die antisymmetrische deutlich angeregt wird.

Die deutliche Anregung nach der O1s Ionisation der asymmetrischen Dehnungsschwingung weist darauf hin, dass sich die beiden C-O-Bindungslängen nicht unwesentlich unterscheiden. Die beiden Abstände verändern sich betragsgleich um 0.12 Å⁴, die Gesamtlänge des Moleküls bleibt gleich.

Nach der Innerschalen-Ionisation treten Reorganisationseffekte der äußeren Elektronen auf. Diese reduzieren die Kopplung für die symmetrische Dehnungsmode allerdings nur sehr leicht.

Es gibt gewisse Parallelen zu der Lokalisation eines bei der K-Schalen-Ionisation entstehenden Loches: Diese Lokalisation kann als Korrelationseffekt betrachtet werden. Wenn man annimmt, dass das Loch lokalisiert ist, verringert sich die totale ionische SCF Energie.

Um die Anregung und Symmetrieänderung zu verstehen, ist folgende Erläuterung wichtig: Das Ion wird in einem Schwingungszustand erzeugt. Jedes Schwingungslevel in den ionischen Zuständen ist zweifach entartet. Nur der Schwingungszustand mit gerader Symmetrie kann vom Anfangszustand aus erreicht werden. Trotzdem ist das Molekül im ionischen Zustand nicht symmetrisch. Dass die Wellenfunktion des ionischen Schwingungszustandes symmetrisch ist, zeigt nur, dass wir nicht wissen, welche der beiden Bindungslängen länger und welche kürzer wird.

³Self-consistent field oder Hartree-Fock-Methode

⁴Diese Rechnung dient den Autoren als Illustration und sollte nicht überbewertet werden.

Es ist bemerkenswert, dass der vibronische Kopplungsmechanismus schon auf der Ein-Teilchen-Ebene zu Tage tritt, obwohl es sich bei der Lokalisation des K-Schalen-Loches um ein reines Mehrkörper-Problem handelt.

4.5 Winkelverteilungen des Photoelektrons

Saito et al. haben bereits die O1s Photoionisation von CO_2 mit einer Koinzidenzmessung von Photoelektron und beiden Ionen, CO^+ und O^+ , bearbeitet. Allerdings wurde diese Messung mit linear polarisiertem Licht durchgeführt und der Augerelektronenimpuls konnte nicht rekonstruiert werden.

In „Molecular frame photoelectron angular distribution for oxygen 1s photoemission from CO_2 molecules“ ([10]) konnten schwache Asymmetrien in der Winkelverteilung der Photoelektronen nachgewiesen werden. Ist das Licht parallel zum Molekül polarisiert, wird das Photoelektron eher in Richtung des O^+ emittiert, im Falle des senkrecht zum CO_2 polarisierten Lichtes wird es eher in Richtung des CO^+ emittiert.

Die wichtigen Elemente der Winkelverteilungen werden durch Rechnung mit einer relaxed-core Hartree-Fock Näherung gut reproduziert. Die schwachen asymmetrischen Elemente werden einer Symmetrieschwächung durch antisymmetrische Dehnungsbewegung zugeschrieben (siehe 4.4).

Dazu ist folgende Erklärung möglich: Antisymmetrische Dehnungsschwingungen erschienen im O1s Ionsationszustand (siehe 4.4 und [19]). An die Schwingungsbewegung gekoppelt, hat das CO_2^+ einen asymmetrischen Gleichgewichtszustand. Daher kann man erwarten, dass sich die C-O-Bindungslänge vergrößert und, für den Fall, dass das O das K-Schalen Loch trägt, das CO_2^+ zu einem $\text{O}^+\text{-CO}^+$ aufbricht. In diesem Fall erfährt das Augerelektron ein asymmetrisches Potential, da das K-Schalen Elektron im O^+ fehlt. Dies mündet in einer asymmetrischen Winkelverteilung.

Würde man genau die Lokalisation des K-Schalen Loches messen, müsste die Asymmetrie wesentlich stärker zu sehen sein, als es bei der Messung ([10]) der Fall ist.

Die K-Schalen-Photoemission der zweiatomigen Moleküle CO und N_2 wurde auch erforscht. Die Winkelverteilungen sind bei bestimmten Energien für N_2 symmetrisch ([20], [21], [22], [23]) und für CO asymmetrisch ([24], [25], [26], [27]). Auch diese Ergebnisse wurden theoretisch reproduziert.

Auch die Winkelverteilungen für die C1s Photoionisation von CO_2 sind symmetrisch, obwohl die Photoemission mit dem asymmetrischen Aufbruch $\text{CO}^+\text{-O}^+$ zusammenhängt ([28], [29]). Die Rechnungen für CO_2 stimmen auch gut, aber nicht so ausgezeichnet wie für diatomare Moleküle([29]), mit den experimentellen Ergebnissen überein.

Nun ist es interessant zu erfahren, welche Ergebnisse die Messung mit zirkular polarisiertem Licht ergibt und ob wir am Augerelektron einen Effekt erkennen können.

5

Auswertung

Die Auswertung erfolgte unter C++, die Graphiken wurden mit Root ([30]), einem am CERN entwickelten Programmpaket zur Daten-Visualisierung, erzeugt. Als Grundlage für die Auswertung diente eine Vorlage von Achim Czasch und Till Jahnke.

Grundsätzlich werden im Experiment nur Zeitpunkte gemessen. Aus ihnen wird im ersten Schritt berechnet, wann und wo welches Teilchen detektiert wurde. Es werden Auftrefforte auf dem Detektor und Flugzeiten gespeichert. Im nächsten Schritt werden daraus die Impulse der Elektronen und Ionen berechnet. Aus den Impulsen werden dann abgeleitete Größen wie die Winkel berechnet.

Ein großer Vorteil der hier verwendeten Messmethode liegt in der Möglichkeit, durch Softwarefilter Untergrundereignisse zu erkennen und effektiv zu unterdrücken.

5.1 Koinzidenzverschaltung

Die Koinzidenzverschaltung hat den Zweck, schon während der Messung - vor der Aufnahme auf Festplatten - zu entscheiden, ob ein Event echt sein könnte und ob sich seine Speicherung lohnt. Über die Koinzidenzverschaltung können wir große Zeitintervalle schon vor der Aufnahme aussortieren. Dies spart Speicherplatz und Rechenkapazität bei der Auswertung.

Wir nutzen einen Bunchmarker. Ein Bunchmarker ist ein Signal, das einen festen Abstand zum Lichtblitz hat. Unser Event kann nur echt sein, wenn es in einer bestimmten Zeitspanne, nachdem der Lichtblitz passiert ist, aufgenommen wird.

Wir nutzen eine Elektron-Ion-Ion-Koinzidenz. Dazu werden drei Signale verschaltet.

Zuerst landet das Elektron auf dem Elektronendetektor. Passt der Zeitpunkt der Messung zu der Vorgabe des Bunchmarkers, wird das Elektronensignal um die Zeitspanne verschoben, in der man das zweite Ion erwartet und etwas verbreitert, um die Trefferwahrscheinlichkeit zu erhöhen.

Zwischendurch wird eine Ion-Ion-Koinzidenz festgestellt: Kommt ein Ion an, wird das Signal verbreitert und um eine Zeitspanne verschoben, nach der das

zweite Signal ankommen müsste. Kommt dann ein zweites Ion an, wird geprüft, ob dieses Signal auch zum verschobenen Elektronensignal passt. Wenn ja, wird das Event gespeichert.

Die Abbildungen 5.1 und 5.2 sollen diesen Zusammenhang veranschaulichen, einmal aus zeitlicher, einmal aus technischer Perspektive.

Kommt zu einem der Zeitpunkte kein passendes Signal an, wird das Event nicht aufgezeichnet.

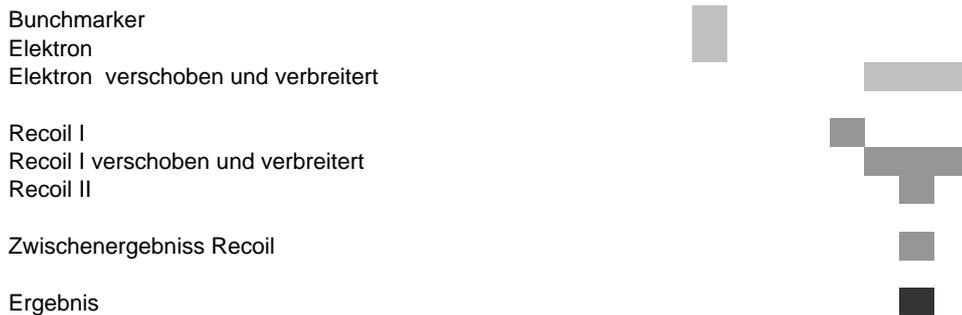


Abbildung 5.1: Zeitliche Abfolge (von links nach rechts) der Signale und ihre logische Verknüpfung

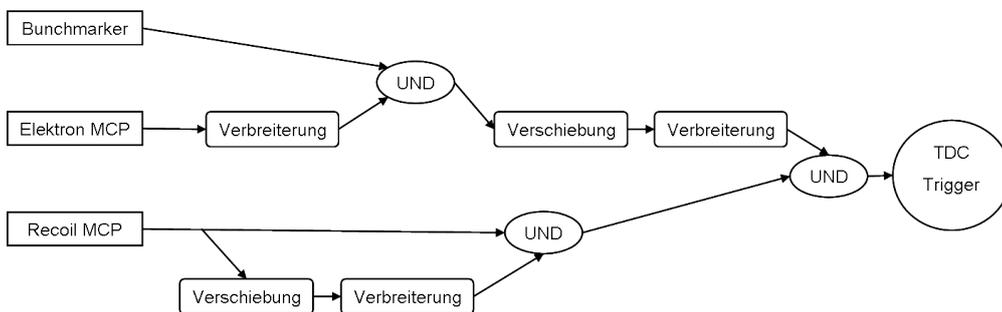


Abbildung 5.2: Verschaltung der logischen Verknüpfung

5.2 Linsenfehler

Für unterschiedliche Orte auf dem Detektor muss der Summenimpuls der beiden Ionen konstant sein. Aus ihm wird der Impuls des Augerelektrons berechnet. Durch die verwendete elektrostatische Linse ist der Summenimpuls jedoch für verschiedene Orte unterschiedlich. Felix Sturm hat eine Interpolation entwickelt, mit deren Hilfe der Linsenfehler teilweise korrigiert werden kann. Nähere Informationen sind in [1] zu finden.

Um die Interpolation zu nutzen, trägt man den Summenimpuls gegen den Auftreffort des O^+ auf und liest für einige Orte den minimalen und den maximalen Summenimpuls ab. Die Korrektur sorgt dann dafür, dass die Summenimpulsverteilungen für alle Orte identisch ist.

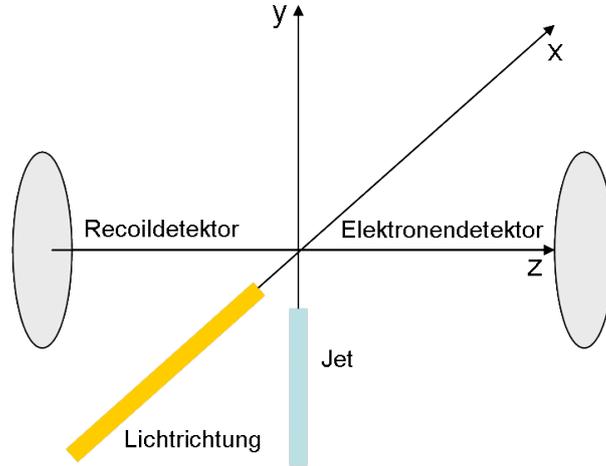


Abbildung 5.3: Zur Erinnerung: Das Koordinatensystem (siehe 2.4)

Im Falle der betrachteten Auswertung trat dieser Fehler nur in x-Richtung auf. In y-Richtung wurde der Summenimpuls ausschließlich gestaucht. Die Ergebnisse der Interpolation sind in Abbildung 5.4 dargestellt.

5.3 Impulse

In diesem Abschnitt werden Impulse aus Flugzeiten, Massen, Auftrefforten und anderem berechnet.

Es werden folgende Formelzeichen verwendet:

Flugzeiten des Photoelektrons, des O^+ und des CO^+ : tof^{ePhoto} , tof^O , tof^{CO}

Flugzeit eines Ions ohne Anfangsimpuls: t_0^O , t_0^{CO}

Massen der Teilchen: m^e , m^O , m^{CO}

Auftrefforte der Ionen und des Photoelektrons in x- und y-Richtung: x^O , y^O , x^{CO} , y^{CO} , x^e , y^e

Ladung eines Elektrons: q^e

Das magnetische und das elektrische Feld: B , E

Konstanten zur Symmetrisierung der Ionenimpulse: x_0 , y_0 , hier 2.8 und -1

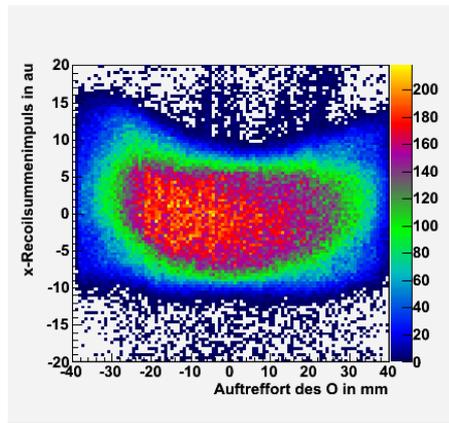
Konstante zur Anpassung an den KER: d , hier 1.3

5.3.1 Photoelektronenimpuls

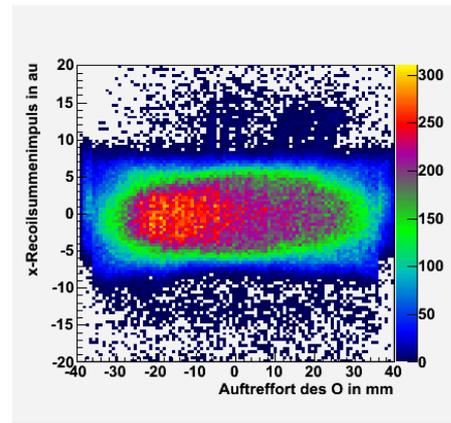
In x- und y- Richtung in SI-Einheiten

$$p_x^{ePhoto} = \frac{q^e}{B} \cdot \frac{\left(-x^e \cdot \left(1 - \cos\left(\frac{q^e}{m^e \cdot B} \cdot tof^{ePhoto}\right)\right) - y^e \left(\sin\left(\frac{q^e}{m^e \cdot B} \cdot tof^{ePhoto}\right)\right)\right)}{\left(1 - \cos\left(\frac{q^e}{m^e \cdot B} \cdot tof^{ePhoto}\right)\right)^2 + \left(\sin\left(\frac{q^e}{m^e \cdot B} \cdot tof^{ePhoto}\right)\right)^2}$$

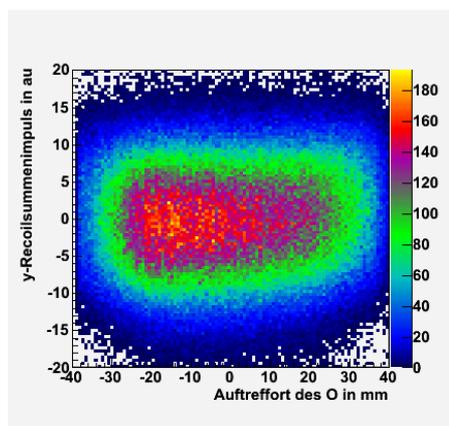
$$p_y^{ePhoto} = \frac{q^e}{B} \cdot \frac{\left(-x^e \cdot \left(\sin\left(\frac{q^e}{m^e \cdot B} \cdot tof^{ePhoto}\right)\right) - y^e \left(1 - \cos\left(\frac{q^e}{m^e \cdot B} \cdot tof^{ePhoto}\right)\right)\right)}{\left(1 - \cos\left(\frac{q^e}{m^e \cdot B} \cdot tof^{ePhoto}\right)\right)^2 + \left(\sin\left(\frac{q^e}{m^e \cdot B} \cdot tof^{ePhoto}\right)\right)^2}$$



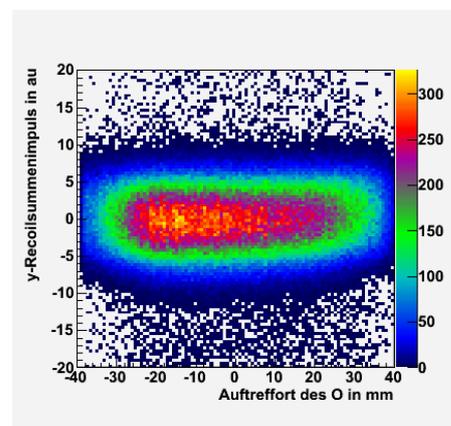
(a) x-Richtung



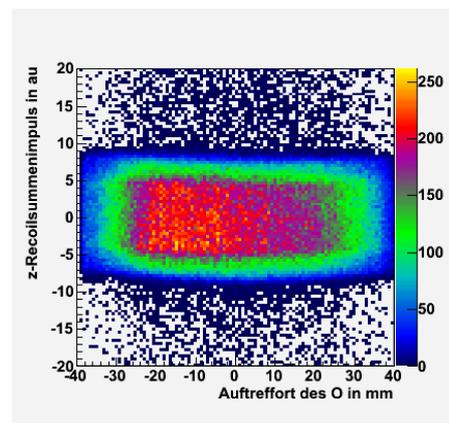
(b) x-Richtung



(c) y-Richtung



(d) y-Richtung



(e) z-Richtung

Abbildung 5.4: Messungen bei 590 eV mit rechtspolarisiertem Licht

In 5.4(a) erkennt man den Linsenfehler. 5.4(b) zeigt den korrigierten Fall für den Summenimpuls in x-Richtung. In 5.4(d) ist die Stauchung im Vergleich zu 5.4(c) für die y-Richtung zu sehen. In 5.4(e) ist die z-Richtung abgebildet, die nicht korrigiert wurde.

Der Photoelektronenimpuls in z-Richtung wird mit der McLaren-Geometrie aus der Flugzeit des Elektrons, der Beschleunigungs- und der Driftstrecke und dem elektrischen Feld iterativ berechnet.

5.3.2 Impuls des Augerelektrons

Wir können die Impulse von O^+ , CO^+ und Photoelektron messen. Daraus können wir über die Impulserhaltung den Impuls des Augerelektrons in allen drei Raumrichtungen berechnen.

$$p_{x,y,z}^{eAuger} = -p_{x,y,z}^{ePhoto} - p_{x,y,z}^O - p_{x,y,z}^{CO}$$

5.3.3 Ionenimpuls

Der Ionenimpuls wird in atomaren Einheiten (Anhang A) berechnet.

$$p_x^{O,CO} = \frac{m^{O,CO} \cdot d \cdot (x^{O,CO} - x_0)}{tof^{O,CO}}$$

$$p_y^{O,CO} = \frac{m^{O,CO} \cdot d \cdot (y^{O,CO} - y_{0,CO})}{tof^{O,CO}}$$

$$p_z^{O,CO} = (tof^{O,CO} - t_0^{O,CO}) \cdot E$$

5.4 KER

Der KER - Kinetic Energy Release - ist eine wichtige Messgröße für uns. Er entspricht der kinetischen Energie aller Ionen im Schwerpunktsystem der Kerne. Wir berechnen den KER über die Impulsdifferenz der Ionen und deren Masse:

$$KER = \frac{\vec{p}^{CO} - \vec{p}^O}{\frac{2m^{CO} \cdot m^O}{m^{CO} \cdot m^O}}$$

5.5 Anpassung der Felder

Die Stärke des elektrischen und des magnetischen Feldes können zwar während des Experiments gemessen werden, allerdings nicht genau genug. Daher müssen beide Felder kalibriert werden.

Die Lage des Maximums des KERs ist durch die Kalibrierung des elektrischen Feldes bedingt. Nach [31] muss er bei 6.12 eV liegen. Wir haben ihn durch die Anpassung des elektrischen Feldes positioniert, da der Ionenimpuls über die Ionenflugzeit maßgeblich mit dem E-Feld skaliert. Dieses liegt bei 41.7 V/cm.

In Abbildung 5.6 werden Elektronenflugzeiten gegen Auftrefforte aufgetragen, in Abbildung 5.6(a) und Abbildung 5.6(b) jeweils nur die x- oder y-Komponente der Orte. Das Magnetfeld können wir anhand von Abbildung 5.6(c) bestimmen, da die Position der Kurven von ihm abhängt:

$$B = \frac{2m^e \cdot \pi}{q^e \cdot Wiggleposition[s]}$$

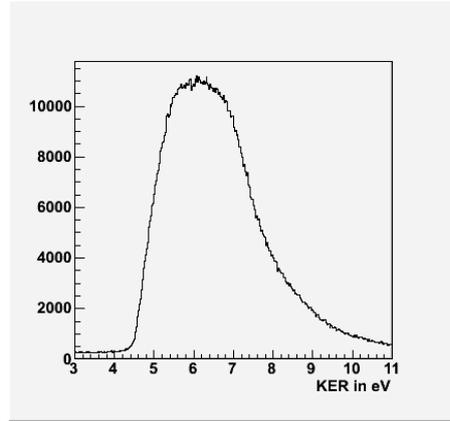


Abbildung 5.5: KER: Messungen integriert über alle Energien und beide zirkularen Polarisierungen, das Maximum liegt bei 6.1 eV.

Mit einem Knotenabstand von 28 ns ergibt dies ein Magnetfeld von 12.758 Gauss. An Abbildung 5.6(c) können wir außerdem den Zeitnullpunkt für die Auswertung bestimmen. Er muss so kalibriert werden, dass der Nullpunkt der Elektronenflugzeit in einem Knoten liegt. Allerdings wird der Zeitnullpunkt noch genauer über die Impulskugeln angepasst. Danach liegt er bei -9.86 ns.

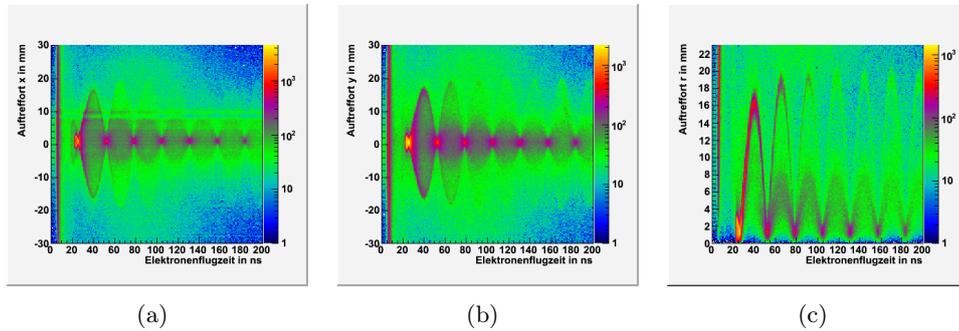


Abbildung 5.6: Messungen bei 314 eV, ausschließlich für diese Abbildungen. In (a) ist der Auftreffort des Elektrons in x-Richtung gegen die Elektronenflugzeit aufgetragen, in (b) der Auftreffort in y-Richtung gegen dieselbe Flugzeit und in (c) der Auftreffort r^1 , der beide Richtungen vereint, wieder gegen die Elektronenflugzeit.

5.6 Spektren

Die im Folgenden abgebildeten Spektren wurden bei 590 eV Photonenenergie mit rechtspolarisiertem Licht gemessen.

Im **PIPICO**²-Spektrum (Abbildung 5.7) sind die Flugzeiten der beiden Ionen

$$^1r = \sqrt{x^2 + y^2}$$

²PhotoIon-PhotoIon-COincidence

gegeneinander aufgetragen. Daran kann man erkennen, welche Ladungen und Massen die gemessenen Ionen tragen.

In Abbildung 5.8 sind die Flugzeiten der betrachteten Ionen, O^+ und CO^+ ,

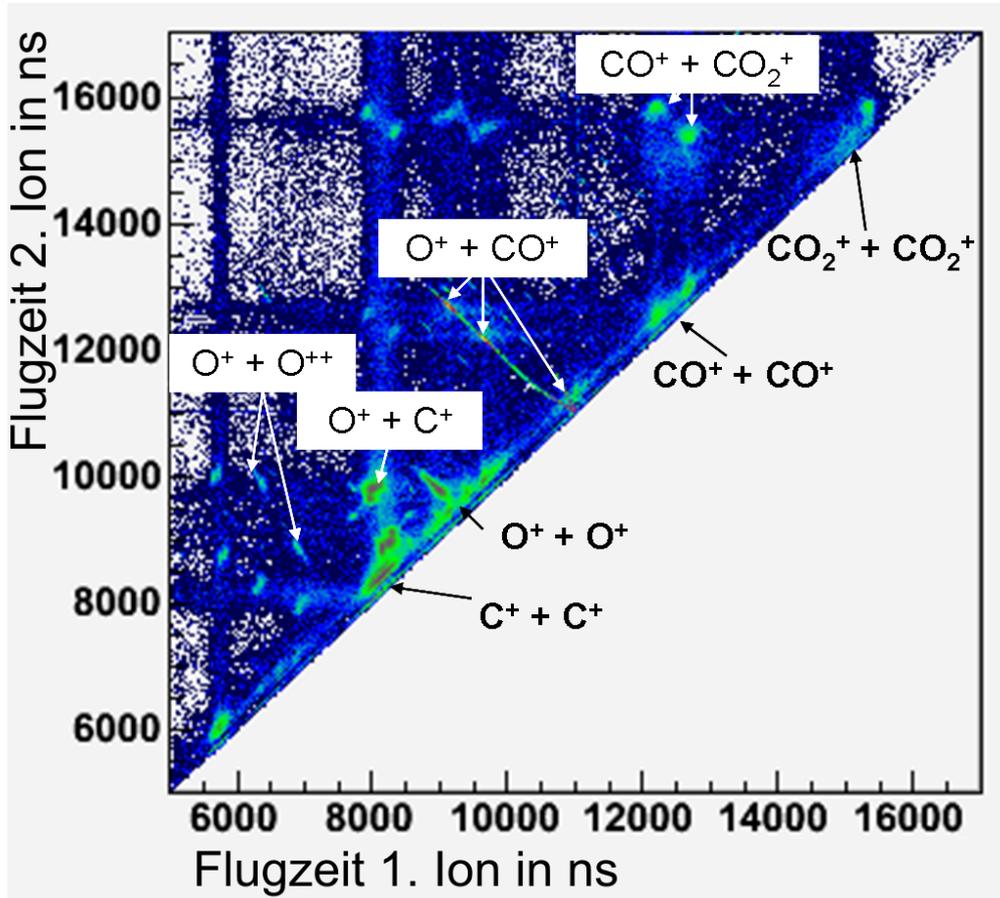


Abbildung 5.7: PIPICO-Spektrum

Auf der x-Achse ist die Flugzeit des ersten gemessenen Teilchens in Nanosekunden abgebildet, auf der y-Achse die Flugzeit des zweiten gemessenen Teilchens.

gegeneinander aufgetragen. Dass es zwei Bereiche höherer Intensität gibt, resultiert aus der Orientierung des CO_2 -Moleküls. Im linken Fall fliegt das CO^+ in Richtung des Elektronendetektors los und das O^+ in Richtung des Ionendetektors. Im rechten Fall ist die Ausrichtung genau umgekehrt. Wir sehen zwei Flecken, da alle nachgewiesenen Moleküle in Richtung der z-Achse ausgerichtet sind. Hätten wir eine 4π -Raumwinkel-Abdeckung, könnten wir eine komplette Linie erkennen.

In Abbildung 5.9 sind die **Flugzeiten** dargestellt. Die Elektronenflugzeit 5.9(c) hat drei Peaks bei 4.7 ns, 9.5 ns und 20.2 ns. Der erste Peak stellt die gemessenen schnellen Augerelektronen dar. Die beiden anderen Peaks stammen von den in entgegengesetzter Richtung emittierten Photoelektronen. Auch die Flugzeiten der beiden Ionen haben jeweils zwei Peaks, was beim Blick auf das PIPICO-Spektrum (Abbildung 5.8) einleuchtet: Jeder Peak gehört zu einem Aufbruch des Moleküls in verschiedener Ausrichtung. Der erste Peak aus der

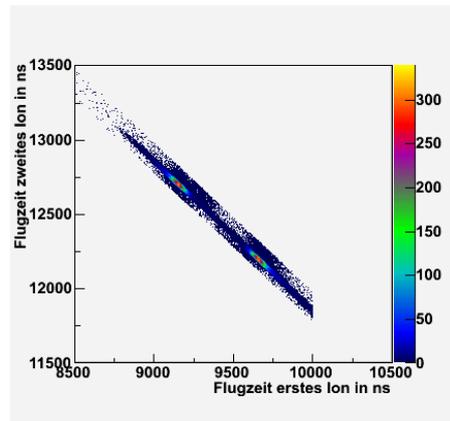


Abbildung 5.8: Ausschnitt aus dem PIPICO-Spektrum mit O^+ - und CO^+ -Aufbruch

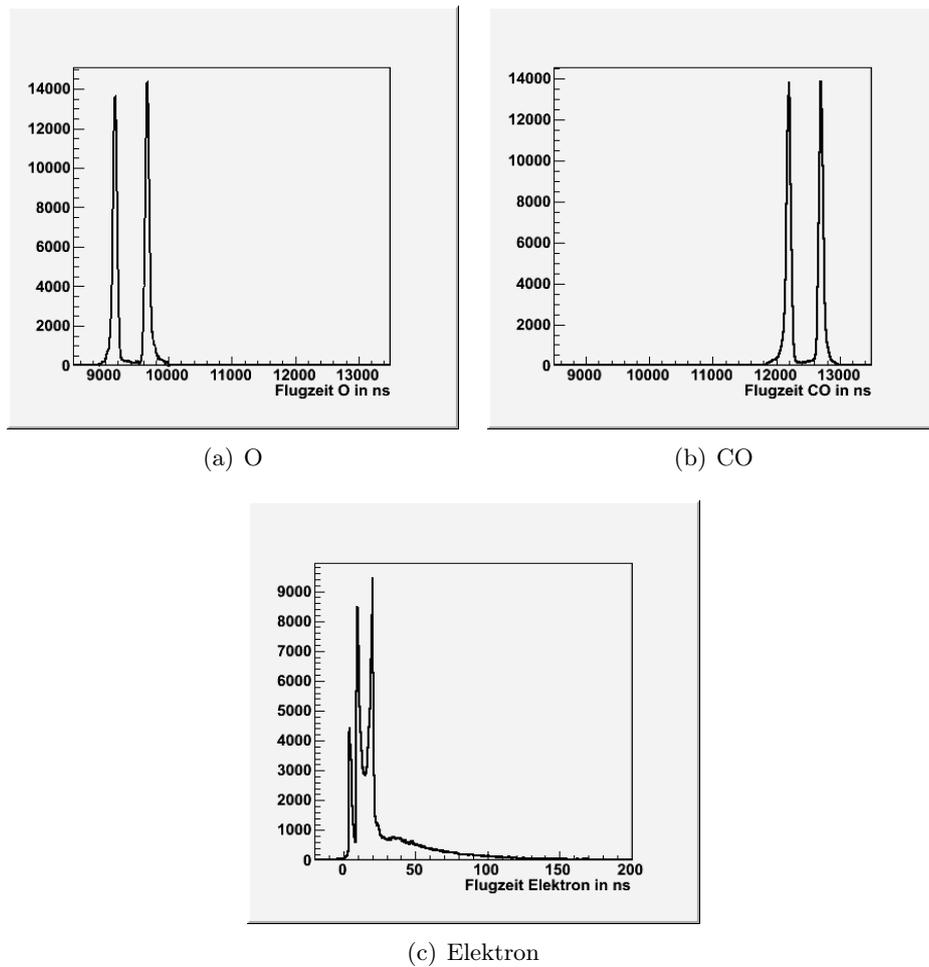


Abbildung 5.9: Abgebildet sind die Flugzeiten der Ionen und des Elektrons

O^+ -Flugzeit gehört zum zweiten Peak der CO^+ -Flugzeit und umgekehrt. Die Peaks für Sauerstoff liegen bei $9.15\mu s$ und $9.66\mu s$ und für Kohlenmonoxid bei $12.20\mu s$ und $12.70\mu s$.

Die **Detektorbilder** (Abbildung 5.10) zeigen die Ausleuchtung der Detektorfläche mit Elektronen, Sauerstoffionen und Kohlenmonoxidionen. Beim Elek-

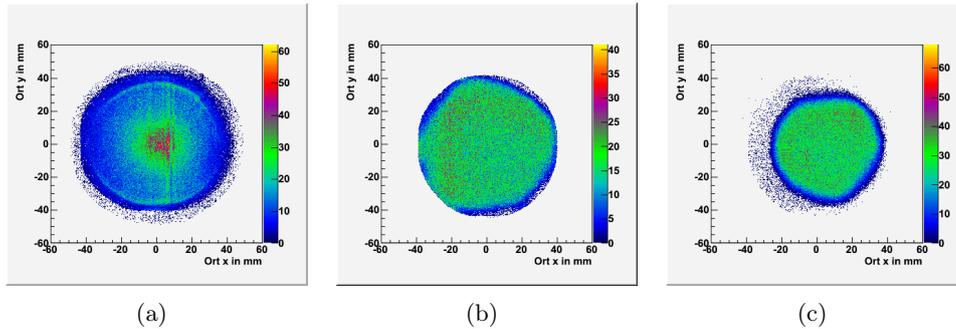


Abbildung 5.10: Abbildungen der Detektoren

(a) Elektronendetektor; Iondetektor, Ausleuchtung mit Sauerstoff (b) und Kohlenmonoxid (c)

tronendetektor ist die Intensität in der Mitte am größten. Der Iondetektor ist mit Sauerstoff sehr gleichmäßig ausgeleuchtet. Die Ausleuchtung mit Kohlenmonoxid ist nach rechts verschoben, aber klar abgegrenzt und rund.

Für jeden Messwert wird die Zeit zwischen Auftreffen der Elektronenlawine auf dem Detektorlayer und dem Erreichen des Endes gemessen. Da es zwei Enden des Drahtes gibt, werden auch zwei Zeiten gemessen. Diese werden zu den **Zeitsummen** aufaddiert. Die Zeitsummen werden jeweils für Elektronen und Ionen gemessen und in beiden Fällen einmal für den u- und den v-Layer. In Anhang B sind die Zeitsummen gegen die Position auf den Layern abgebildet. Diese sollten in jedem Fall eine Gerade bilden. Dies ist auch in drei von vier Fällen geschehen. Auf dem Elektronendetektor trat auf dem v-Layer ein nicht zu korrigierender Fehler auf.

In Abbildung 5.3 ist das Koordinatensystem angegeben. Aus der Messung lässt sich aber nicht schließen, welche die **positive Richtung der einzelnen Achsen** ist. Dies kann man anhand der Impulse erkennen: Der Summenimpuls der Ionen muss entgegengesetzt zum Elektronenimpuls gerichtet sein. Abbildung 5.11 zeigt graphisch, dass die Vorzeichen richtig zugeordnet sind.

Ich habe für das linkspolarisierte Licht die Vorzeichen in x- und z-Richtung vertauscht, so dass die Polarisationsrichtung nach dieser Raumspiegelung nicht mehr zu erkennen ist.

In Abbildung 5.12-5.15 werden alle **Impulskugeln** dargestellt. Es sind, jeweils in allen drei Raumrichtungen, die Impulskugeln für das Photoelektron, das Augerelektron und beide Ionen dargestellt. Alle Impulse wurden in atomaren Einheiten berechnet.

Die Impulskugeln für das Photoelektron sind in allen Fällen rund und scharf. Für das Augerelektron liegt der Fall leider anders. Der Augerimpuls in y-Richtung

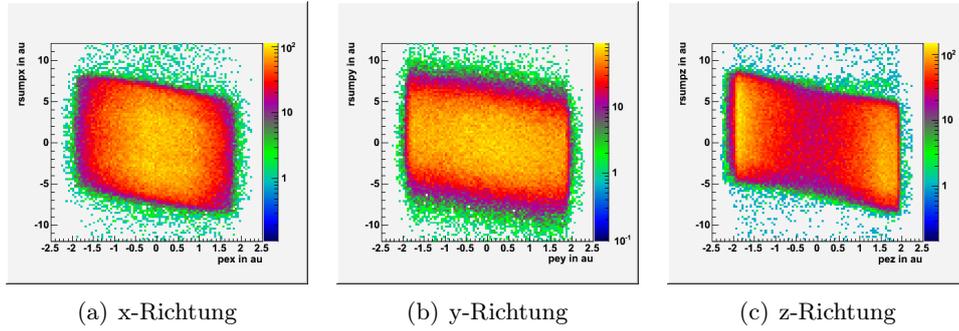


Abbildung 5.11: Abgebildet ist auf der x-Achse der Elektronenimpuls, auf der y-Achse der Summenimpuls der Ionen.

ist unscharf, in z-Richtung richtiggehend verwaschen. In x-Richtung ist er vergleichsweise scharf. Die Unschärfe in y-Richtung liegt an der Breite der Geschwindigkeitsverteilung des Gases. Es ist unklar geblieben, woran die schlechte Auflösung in z-Richtung liegt.

Für die beiden Ionen stimmt das Wort *Impulskugel* nur bedingt und zwar in der z-y-Ebene. Für den Impuls in Flugzeitrichtung liegt die höchste Intensität nicht bei Null, sondern bei etwa 90 au. Dies liegt daran, dass wir keine 4π -Raumwinkel-Abdeckung haben. Ionen, die keinen Impuls in z-Richtung haben, werden nicht detektiert. Beide Impulskugeln liegen in der x-Richtung nicht ganz mittig im Raum, aber in der z-Richtung. In der y-Richtung erkennt man nur für Kohlenmonoxid eine Abweichung.

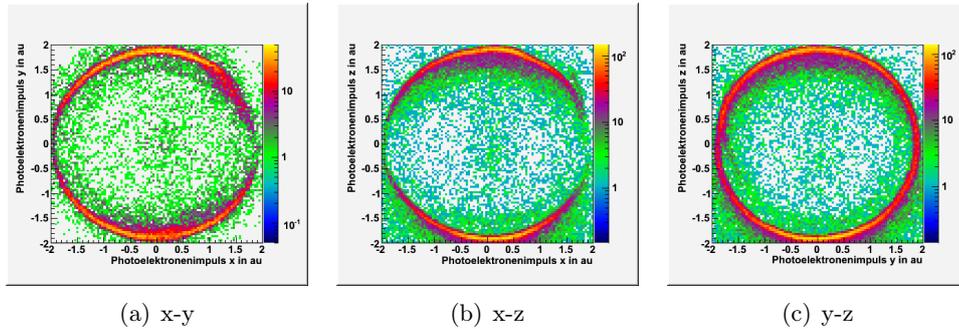


Abbildung 5.12: Impulskugeln der Photoelektronen in au. Der Impuls des Elektrons in der dritten, jeweils nicht abgebildeten Raumrichtung, darf nur zwei Zehntel des Gesamtimpulses des Photoelektrons betragen.

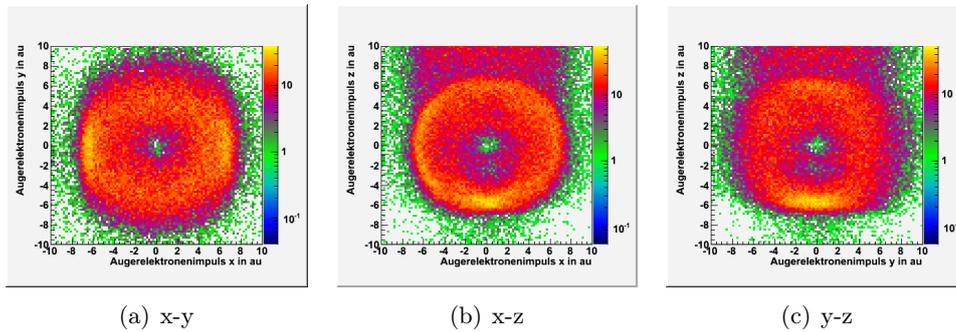


Abbildung 5.13: Impuls-kugeln der Augerelektronen in au
Der Impuls des Elektrons in der dritten, jeweils nicht abgebildeten Raumrichtung, darf nur zwei Zehntel des Gesamtimpulses des Augerelektrons betragen.

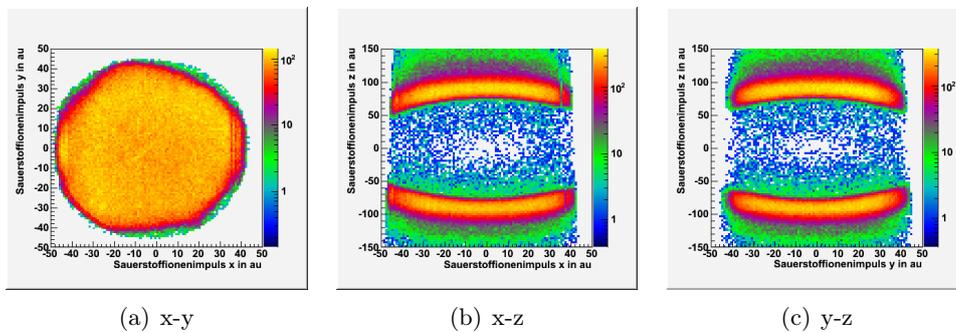


Abbildung 5.14: Impuls-kugeln des Sauerstoffs in au
Der Impuls des Ions in der dritten, jeweils nicht abgebildeten Raumrichtung, darf für (b) und (c) nur drei Zehntel des Gesamtimpulses des Sauerstoffs betragen.
Zur besseren Ansicht ist die Skala für die x- und y- Richtung anders gewählt als für die z-Richtung.

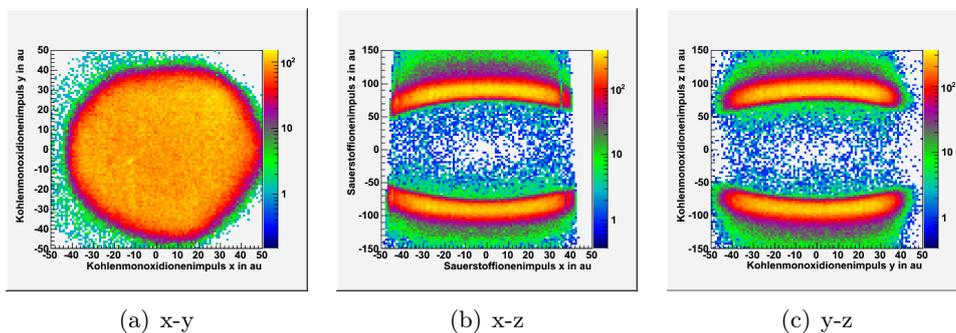


Abbildung 5.15: Impuls-kugeln des Kohlenmonoxids in au
Der Impuls des Ions in der dritten, jeweils nicht abgebildeten Raumrichtung, darf für (b) und (c) nur drei Zehntel des Gesamtimpulses des Kohlenmonoxids betragen.
Zur besseren Ansicht ist die Skala für die x- und y- Richtung anders gewählt als für die z-Richtung.

6

Ergebnisse

In diesem Kapitel stelle ich die Ergebnisse vor. Ein CO_2 -Molekül bricht nach der Absorption eines Photons auseinander in ein O^+ , ein CO^+ , ein Photo- und ein Augerelektron. Wir können die Impulse aller vier Teilchen messen. Daraus können wir den Winkel, unter dem jedes Elektron relativ zur Molekülachse emittiert wurde, bestimmen und in Form einer Winkelverteilung darstellen. Man könnte erwarten, dass die Elektronen nicht in den Raum zwischen den beiden Ionen ausgesendet werden, die Winkelverteilung also flach und länglich ist, oder, dass die Elektronen in beliebiger Richtung emittiert werden, die Winkelverteilung also symmetrisch ist. Wir werden sehen, dass dies nicht der Fall ist (diese Erwartung wird schon in 4.5 zerstört).

Anhand der Winkelverteilungen kann man auf Lokalität und Interferenz schließen. Ist die Winkelverteilung asymmetrisch zu einer Ebene senkrecht zur Molekülachse, heißt das, dass das Elektron bevorzugt in Richtung eines Fragmentes emittiert wird, in unserem Fall in Richtung des O^+ oder des CO^+ . Dies ist ein Zeichen dafür, dass das Elektron nicht mit gleicher Wahrscheinlichkeit aus den beiden Sauerstoffionen stammt.

Interferenz erkennt man in der Winkelverteilung an sehr deutlichen Einschnürungen. Interferenz bezeichnet eine kohärente Überlagerung zweier Wellen. Dies wäre der Fall, wenn die Elektronenwelle von beiden Sauerstoffatomen kohärent ausgesendet würde. Ein ähnliches Bild sieht man auch, wenn die Elektronenwelle von einem Sauerstoffatom ausgesendet und am Kohlenstoff gestreut wird. Dies ist aber keine zweizentren Interferenz.

Durch das lange Spektrometer erreichen nur Ionen den Detektor, deren Molekül in der Ausgangslage¹ höchstens einen bestimmten Winkel zur z-Achse (Flugzeitrichtung) hatte. Verkleinern wir den Detektor in der Auswertung künstlich, wird dieser Winkel kleiner. Das bedeutet, dass die Ausgangslage aller gemessenen Moleküle näher beieinander liegt, was zu einer schärferen Winkelverteilung und kleineren Linsenfehlerbeiträgen, aber auch zu einer geringeren Anzahl auswertbarer Ereignisse führt. Diese sind in Tabelle 6.1 aufgeführt.

In fast allen Winkelverteilungen sind die statistischen Fehler so klein, dass sie hinter den Messpunkten verschwinden.

¹gleichbedeutend mit der Molekülachse

	ϕ^{eAuger}	θ_x^{eAuger}	ϕ^{ePhoto}	θ_x^{ePhoto}	Korrelation 6.6
555 eV	23.700	4.300	14.100	4.300	6.100
565 eV	24.100	4.600	15.500	3.100	6.800
575 eV	14.100	3.000	9.300	2.000	4.000
590 eV	43.1 00	7.900	29.900	3.900	12.800

Tabelle 6.1: Statistik für die Winkelverteilungen: Aufgeführt ist die Anzahl der Events, bei einem Radius der genutzten Detektorfläche von 20 mm oder 30 mm, abhängig von der Photonenenergie und dem aufgeführten Winkel. Die angegebenen Zahlen stimmen jeweils mit der der abgebildeten Messungen überein.

Die zweite Messgröße, die wir betrachten, ist der Kinetic Energy Release (KER). Dieser hängt von der Impulsdifferenz der beiden Ionen und ihrer reduzierten Masse ab. Er verändert sich leicht, je nachdem in welche Richtung des Moleküls das Augerelektron emittiert wird.

In diesem Fall hängt die Statistik davon ab, in welche Richtung das Elektron emittiert wird, da die Elektronen nicht isotrop emittiert werden und der Raumwinkel für die Emission senkrecht zum Molekül deutlich größer ist, als für die beiden anderen Richtungen.

	590 eV	Alle Energien
Alle Richtungen	514.000	1.665.000
Photoelektron senkrecht	215.000	740.000
Augerelektron senkrecht	303.000	987.000
Photoelektron Richtung CO	143.000	456.000
Augerelektron Richtung CO	100.000	325.000
Photoelektron Richtung O	155.000	469.000
Augerelektron Richtung O	110.000	352.000

Tabelle 6.2: Statistik für die KER-Abbildungen: Aufgeführt ist die Anzahl der Events, abhängig von der Photonenenergie und der Emissionsrichtung der Elektronen relativ zur Molekülachse und den beiden Ionen. Wir betrachten jeweils einen Öffnungswinkel von 90°.

6.1 Elektronenenergie

In Abbildung 6.1 sind die Elektronenenergien für die verschiedenen Photonenenergien abgebildet. Für das Photoelektron bleibt die Energie übrig, die nicht für die Ionisation gebraucht wird. Die Photoionisationsenergie beträgt in unserem Fall etwa 541 eV.

Die Bindungsenergie hat eine sehr schmale Verteilung. Die Breite der Verteilung der Elektronenenergie hat zwei Gründe: Einerseits ist die Synchrotronsstrahlung nicht perfekt monochromatisch, der deutliche größere Einfluss stammt dagegen aus unsere Messungenauigkeit. Die Energieauflösung liegt zwischen 3.0 eV bei

555 eV und 4.6 eV bei 590 eV Photonenenergie.

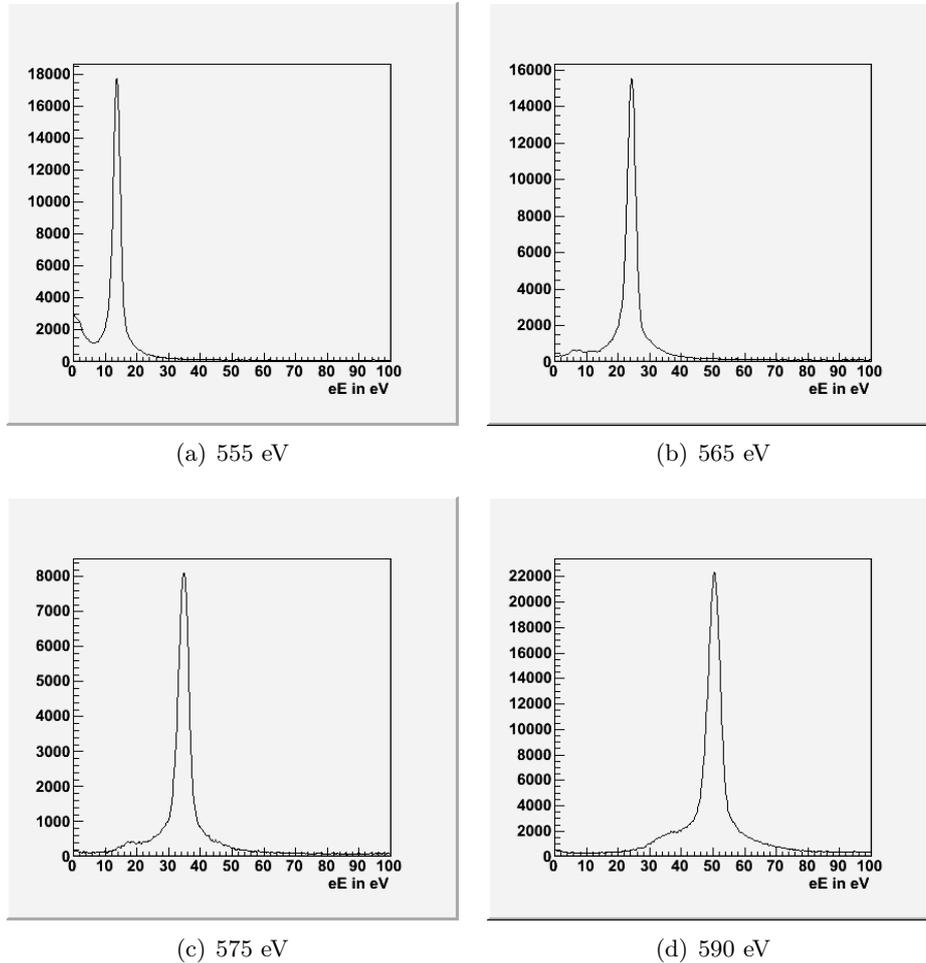


Abbildung 6.1: Die Energie der gemessenen Elektronen in Elektronenvolt für die verschiedenen Photonenenergien

6.2 Winkelverteilungen

6.2.1 Definition der Winkel

Die Phi-Winkel ist ein Winkel zwischen Elektron und Molekülachse, die Theta-Winkel stehen senkrecht zu ihm.

Die Winkel sind wie gefolgt definiert.

Phi-Winkel für Photo- und Augerelektron:

$$\phi^{ePhoto} = \text{deltaphi}(\text{atan2}(p_y^{ePhoto}, p_z^{ePhoto}) \cdot \frac{180}{\pi}, \text{atan2}(p_y^{rel}, p_z^{rel}) \cdot \frac{180}{\pi})$$

$$\phi^{eAuger} = \text{deltaphi}(\text{atan2}(p_y^{eAuger}, p_z^{eAuger}) \cdot \frac{180}{\pi}, \text{atan2}(p_y^{rel}, p_z^{rel}) \cdot \frac{180}{\pi})$$

Theta-Winkel um die x- und die z-Achse für das Photo- und das Augerelektron:

$$\theta_{x,z}^{ePhoto} = \arccos \frac{p_{x,z}^{ePhoto}}{p^{ePhoto}} \cdot \frac{180}{\pi}$$

$$\theta_{x,z}^{eAuger} = \arccos \frac{p_{x,z}^{eAuger}}{p^{eAuger}} \cdot \frac{180}{\pi}$$

Der Phi-Winkel liegt in der Polarisationsenebene des Lichts, der y-z-Ebene. Der Theta-Winkel steht senkrecht zu ihm.

In den abgebildeten Phi-Winkelverteilungen liegt das Molekül horizontal, das O^+ liegt rechts bei 0° , das CO^+ links bei 180° , in den Theta-Winkelverteilungen liegt das Molekül senkrecht zur Papierebene, die Verteilung ist symmetrisch zur durch 0° und 180° aufgespannten Gerade.

6.2.2 Augerelektron

Die Emission des Augerelektrons geschieht nahezu isotrop. Die Phi-Winkelverteilung ist kreisförmig und etwas gestaucht (Abbildung 6.2). Die Winkelverteilung zeigt keine Asymmetrien und keine Einschnürungen, damit ist das Augerelektron weder lokalisiert, noch ist eine Interferenz sichtbar.

Eine mögliche Ursache für das Fehlen einer Interferenzstruktur ist, dass $1\sigma_g$ und $1\sigma_u$ mit gleicher Amplitude ionisiert werden. Mögliche Interferenzmuster aus g- und u-Orbitalen sind dann phasenverschoben, so dass sich Minima und Maxima aufheben.

Der Theta-Winkel des Augerelektrons (Abbildung 6.3) ist bei allen Energien rund und abgeflacht. Bei niedrigeren Energien sind leichte Einschnürungen zu erkennen.

6.2.3 Photoelektron

In Abbildung 6.4 ist der Phi-Emissionswinkel des Photoelektrons bei verschiedenen Photonenenergien dargestellt.

Bei 555 eV (Abbildung 6.4(a)) treten drei Effekte auf. Erstens eine Drehung: Die Maxima liegen nicht auf der Molekülachse. Wir können beobachten, dass die Winkelverteilung des Photoelektrons von der Drehrichtung des zirkular polarisierten Lichtes abhängt. Zweitens erkennt man (nach der Drehung) eine Oben-Unten-Asymmetrie. Drittens ist (ebenfalls nach der Drehung) eine Rechts-Links-Asymmetrie zu erkennen.

Bei 565 eV (Abbildung 6.4(b)) erkennt man die Drehung sowie die Oben-Unten-Asymmetrie noch besser. Diese folgt anschaulich aus der Drehimpulserhaltung: Die Photoelektronen starten auf Grund der Drehimpulserhaltung entweder unterhalb des Kerns nach rechts oder oberhalb nach links und können deshalb nicht immer in die gleiche Richtung abgelenkt werden. Dies ist nur bei niedrigen Energien zu sehen, da das Elektron bei höheren Energien näher am Kern

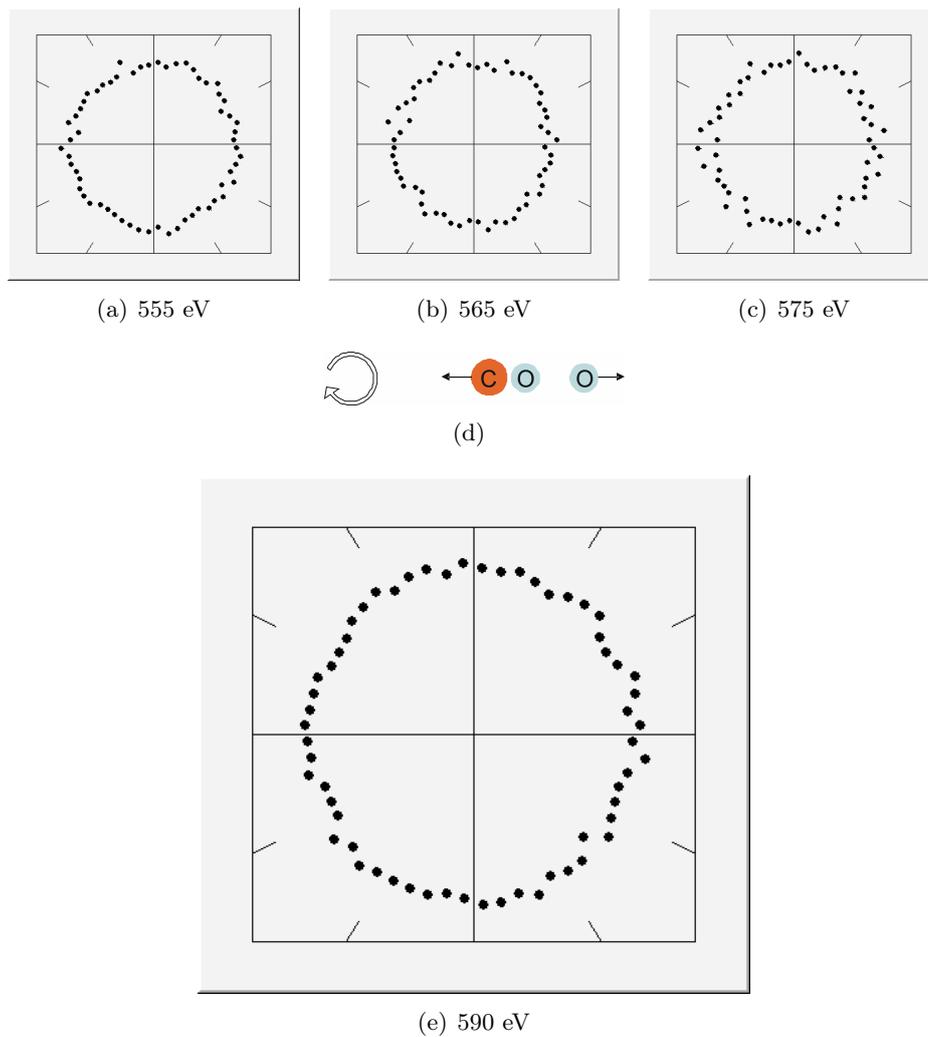


Abbildung 6.2: Aufgetragen ist der Phi-Winkel ϕ^{eAuger} des Augerelektrons. Der zugehörige Theta-Winkel θ_x^{eAuger} ist auf 60° bis 120° eingeschränkt. Es wird eine Detektorfläche mit einem Radius von 30 mm genutzt.

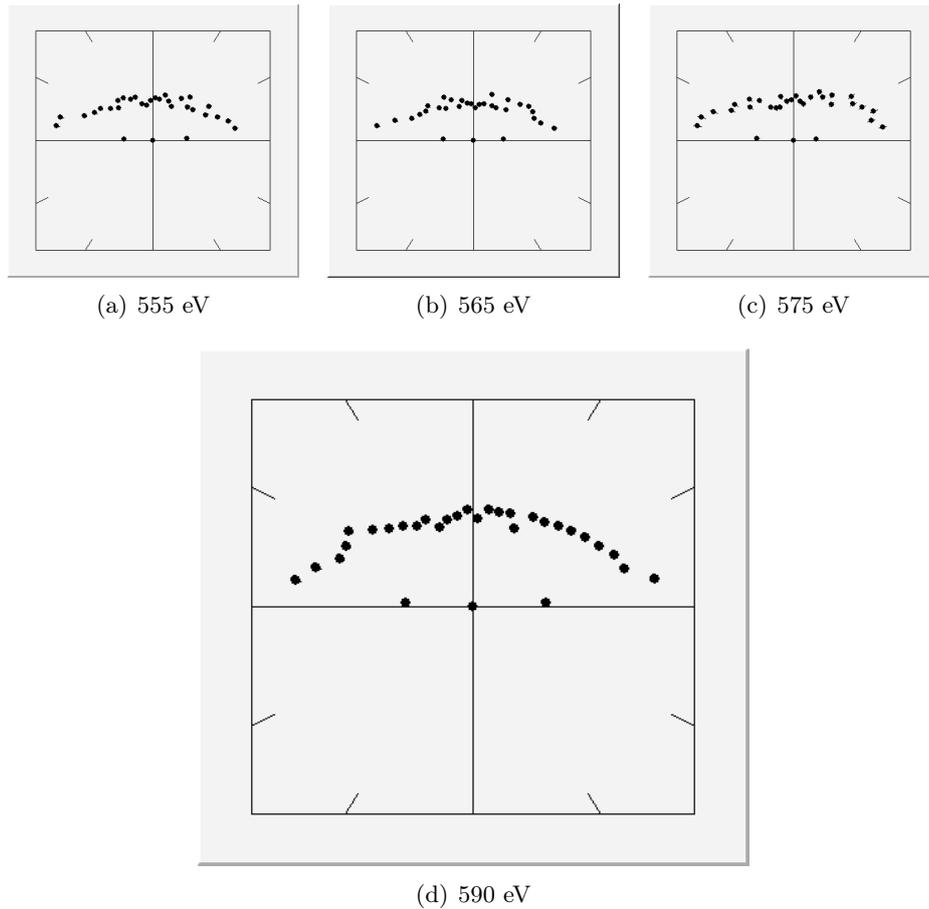


Abbildung 6.3: Aufgetragen ist der Theta-Winkel θ_x^{eAuger} des Augerelektrons. Das Molekül liegt senkrecht zur Papierebene. Die Winkelverteilung ist symmetrisch zur durch 0° und 180° aufgespannten Gerade. Der abgebildete Winkel liegt in der x-y-Ebene, da θ_z^{eAuger} auf den Bereich von 80° bis 100° eingeschränkt wurde. Es wird eine Detektorfläche mit einem Radius von 20 mm benutzt.



Abbildung 6.4: Aufgetragen ist der Phi-Winkel ϕ^{ePhoto} des Photoelektrons. Der zugehörige Theta-Winkel θ_x^{ePhoto} ist auf 60° bis 120° eingeschränkt. Die Molekülachse ist mit der durch 0° und 180° definierten Ebene identisch. Es wird eine Detektorfläche mit Radius 20 mm genutzt.

startet. Dadurch ist nicht mehr so leicht zu unterscheiden, ob seine Startposition ober- oder unterhalb des Kerns lag und wir sehen keinen Effekt. Informationen zum sogenannten zirkularen Dichroismus sind in [23] zu finden.

Auch bei 575 eV (Abbildung 6.4(d)) erkennt man deutlich die Links-Rechts-Asymmetrie. Die Drehung ist bei dieser Photonenenergie nicht zu sehen, die oben-unten-Asymmetrie kaum mehr.

Bei 590 eV Photonenenergie (Abbildung 6.4(e)) ist die Rechts-Links-Asymmetrie am deutlichsten zu sehen. Diese zeigt, ebenso wie die sehr flache Verteilung, dass das Photoelektron besonders häufig in Richtung des CO^+ emittiert wird, was auf eine Lokalisation schließen lässt.

Bei keiner der gemessenen Energien ist ein Interferenzbild zu sehen. Die zu erkennenden Einschnürungen sind auf die Reflexion der Elektronenwelle am zweiten Ion zurückzuführen. Sie sind zu schwach, um als Zeichen einer Interferenz zu gelten.

Gäbe es eine Interferenz, müsste diese der Interferenz am Doppelspalt entsprechen. Dies entspräche den in Tabelle 6.3 aufgeführten Winkeln.

Elektronenenergie	0. Maximum	1. Maximum	1. Minimum
13.7 eV	0°	-	43.6°
23.7 eV	0°	-	31.6°
33.7 eV	0°	61.5°	26.1°
48.7 eV	0°	47.5°	21.5°

Tabelle 6.3: Lagen der Minima und Maxima für einen Doppelspalt mit verschiedenen Photoelektronenenergien

Allerdings ist bei den Photonenenergien von 555 und 565 eV die Drehung zu beachten, so dass das Hauptmaximum auch im Falle einer Interferenz nicht bei 0° läge. Der Winkel zwischen Minimum und Maximum bleibt von Drehungen unverändert.

Der Theta-Winkel des Photoelektrons (Abbildung 6.5) ist deutlich anisotrop. Bei allen Energien liegen die meisten Ergebnisse bei 90°. Dieses Verhalten ist bei den niedrigeren Energien weniger deutlich ausgeprägt.

Bei 555 und 565 eV zeigen sich deutliche Einschnürungen und eine Rechts-Links-Asymmetrie. Bemerkenswert ist, dass die Anzahl der Ereignisse bei 555 eV zwischen 45° und 90° am höchsten ist und bei 565 eV zwischen 90° und 135°.

Um unsere Ergebnisse besser einzuordnen, stelle ich an dieser Stelle auch die Ergebnisse von Saito et al. vor ([10]), auf dessen Publikation in 4.5 schon eingegangen wurde.

Es wurden für die O1s Ionisation von CO_2 Winkelverteilungen des Photoelektrons im Molekülsystem gemessen, wobei eine Photoelektron- CO^+ - O^+ -Koinzidenz zur Impulsabbildung genutzt wurde. Im Gegensatz zu unserer Messung wurde mit linear polarisiertem Licht gearbeitet, es wurden Ergebnisse für einen Winkel von 0°, 45° und 90° zwischen Molekülachse und elektrischem Feldvektor veröffentlicht. Um die Statistik zu erhöhen, werden die Moleküle in der Analyse alle in die gleiche Richtung gedreht. Es wurde mit Photonenenergien von 543,

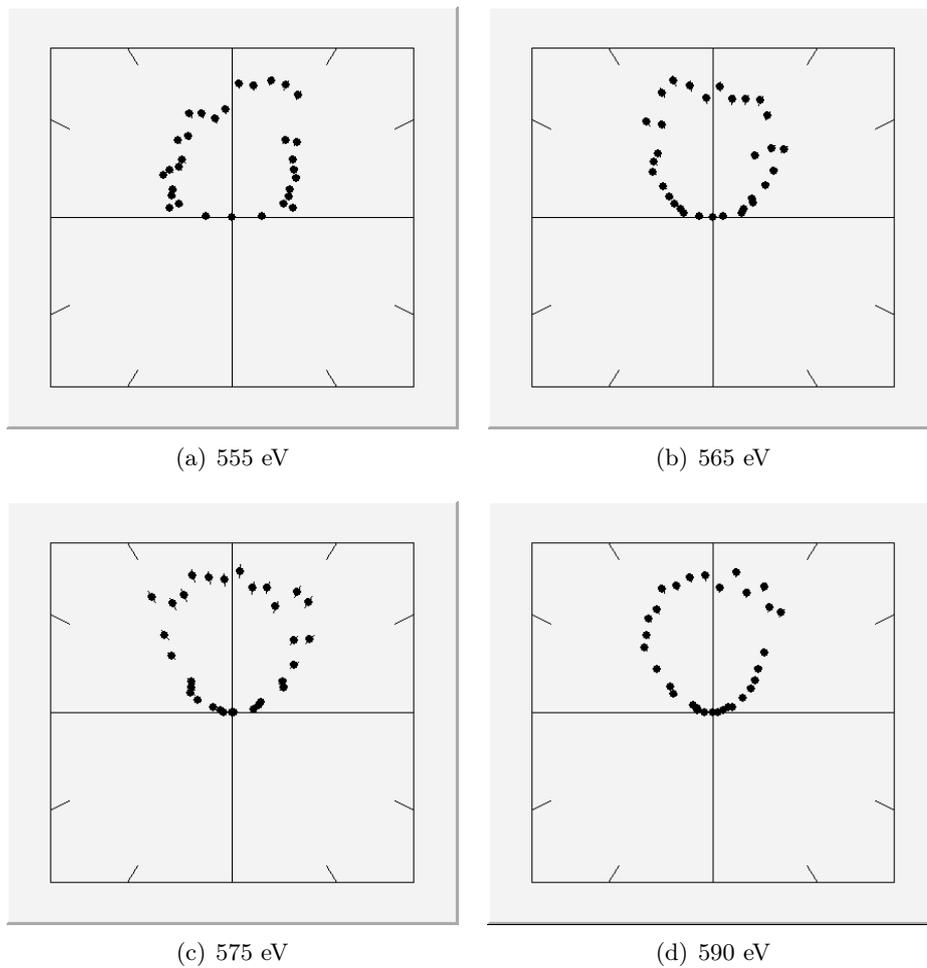


Abbildung 6.5: Aufgetragen ist der Theta-Winkel θ_x^{ePhoto} des Photoelektrons. Das Molekül liegt senkrecht zur Papierebene. Die Winkelverteilung ist symmetrisch zur durch 0° und 180° aufgespannten Gerade. Der abgebildete Winkel liegt in der x-y-Ebene, da θ_z^{ePhoto} auf den Bereich von 80° bis 100° eingeschränkt wurde. Es wird eine Detektorfläche mit einem Radius von 20 mm benutzt.

547, 550, 554, 559, 564 und 574 eV gearbeitet.

Bei den hier betrachteten Symmetrien bzw. Asymmetrien geht es, wenn nicht anders erwähnt, um Spiegelsymmetrien an der Ebene senkrecht zur Molekülachse. In [10] werden drei Fälle betrachtet. Im sogenannten Fall Σ steht der elektrische Feldvektor parallel zur Molekülachse, im Falle II senkrecht zu ihr.

Im Σ -Kanal kann man den Einfluss der Drehimpulsquantenzahl l für die Rechnungen erkennen². Es ist eine Asymmetrie zu erkennen, aus der zu schließen ist, dass das Photoelektron bevorzugt in Richtung des O^+ emittiert wird. Außer bei 564 eV stimmen Messung und Rechnung gut überein.

Im II-Kanal decken sich Rechnungen und Messungen. In diesem Fall sehen wir wieder eine Asymmetrie: Das Photoelektron wird in diesem Fall bevorzugt in Richtung des CO^+ emittiert.

Im Falle der kohärenten Überlagerung beider Kanäle, wenn der elektrische Feldvektor im 45° -Winkel zur Molekülachse steht, spielen sowohl Amplitude als auch Phase beider Kanäle eine Rolle. Wieder stimmen Messungen und Rechnungen, außer bei 559 eV, gut überein. Dies ist ein Zeichen dafür, dass die Phasenbeziehung in den Rechnungen richtig gewählt wurde. Die berechneten Winkelverteilungen sind punktsymmetrisch, wohingegen die gemessenen Winkelverteilungen in der Nähe der Ionisationsschwelle asymmetrisch sind. Das Photoelektron wird bevorzugt in den größeren Bereich zwischen der Flugrichtung des CO^+ und dem E-Feldvektor emittiert.

Zusammengefasst bedeutet dies, dass man in allen drei Fällen Asymmetrien erkennen kann. Um diese Asymmetrie messbar zu machen führen Saito et al. einen Asymmetriequotient ein. In allen Fällen wächst die Symmetrie mit höheren Energien. Für den Fall II bleibt sie ab etwa 554 eV konstant, für den Fall Σ sinkt sie ab diesem Punkt. Im gemischten Fall ist auch die Stärke der Symmetrie eine Überlagerung: Sie steigt weniger stark an als in den beiden anderen Fällen und fällt bei 564 eV wieder ab.

6.2.4 Photo- und Augerelektron

In Abbildung 6.6 sind Winkelverteilungen beider Elektronen gegeneinander aufgetragen. In Abbildung 6.6(d) erkennt man zwei klare, vertikale Linien bei einem Phi-Winkel des Photoelektrons ϕ^{ePhoto} von 0° und 180° , in 6.6(b) drei Linien bei -160° , 45° und 110° . In 6.6(a) ist eine Ereignishäufung bei etwa -90° und 80° für ϕ^{ePhoto} zu erkennen. In Abbildung 6.6(c) ist keine Struktur zu erkennen.

Die klaren Linien entstehen durch die starke Winkelabhängigkeit des Photoelektrons. Allerdings sind sie völlig unabhängig von der Emissionsrichtung des Augerelektrons.

Gäbe es einen Zusammenhang zwischen den Elektronen, sähe man z.B. einzelne

²In den Rechnungen werden Partialwellenfunktionen mit $l=0, 2, 4, 6$ beachtet. In diesem Kanal gibt es zwei Verteilungen, $1\sigma_g \rightarrow \sigma_u$ und umgekehrt. Gerade Partialwellenkomponenten erscheinen bei der Photoionisation des $1\sigma_u$ -Orbitals. In der Nähe der Ionisationsschwelle ist $l=0$ dominant. Mit wachsender Photonenenergie sinkt ihr Einfluss und $l=2, 4$ wird dominant. Bei der Photoionisation des $1\sigma_g$ -Orbitals tauchen die ungeraden Partialwellenkomponenten auf. Die Komponenten mit $l=1, 3, 5$ sind bei allen gemessenen Photoenergien signifikant.

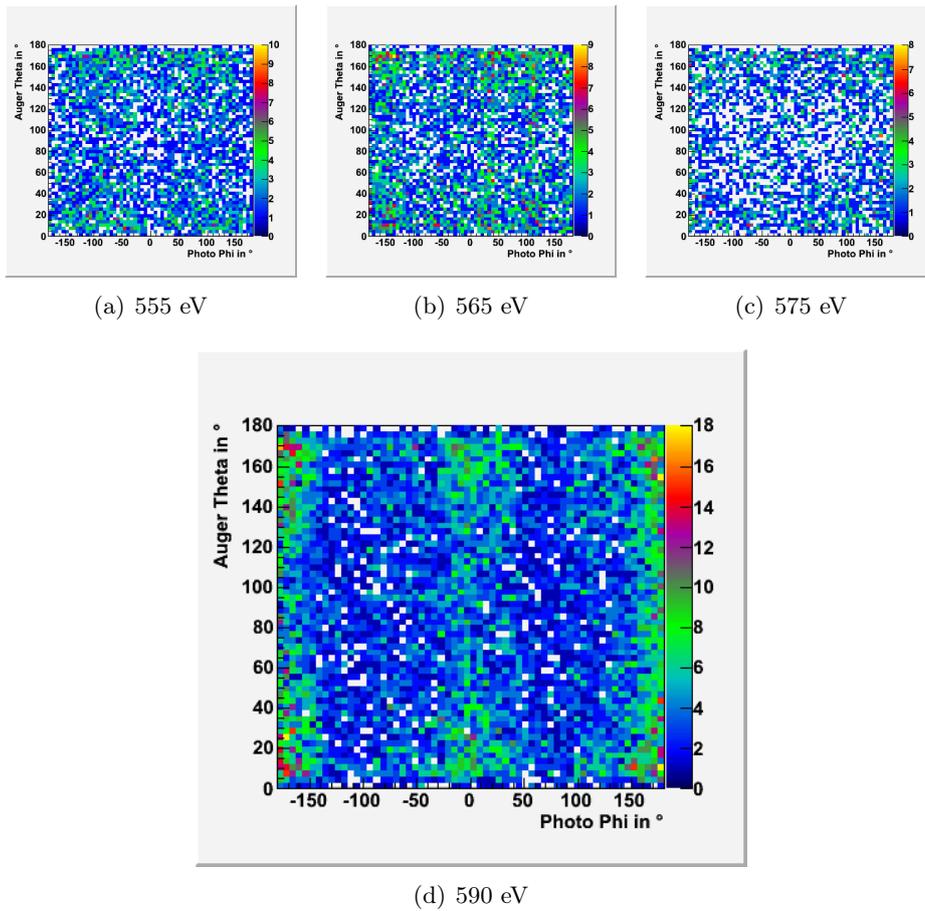


Abbildung 6.6: Der Phi-Winkel ϕ^{ePhoto} des Photoelektrons ist in x-Richtung gegen den Theta-Winkel θ_x^{eAuger} des Augerelektrons aufgetragen. Es wird eine Detektorfläche mit einem Radius von 30 mm benutzt.

Flecken, die Linien müssten unterbrochen sein (siehe [14], Abbildung 3). Dies kann man bei keiner der gemessenen Energien sehen. Es besteht kein Zusammenhang zwischen den Emissionswinkeln des Photo- und des Augerelektrons.

6.3 KER

Eine Definition des KERs findet man in 5.4, Informationen über die Eichung in 5.5.

Wenn wir die Emissionsrichtung der Augerelektronen bezüglich der Molekülachse fixieren, sehen wir eine deutliche Verschiebung des KERs.

Es liegt nahe, anzunehmen, dass wir verschiedene Zustände anregen, für die das Augerelektronen in verschiedene Richtungen emittiert wird. Die KERs für verschiedene Zustände liegen sehr nah beieinander und haben eine ähnliche, aber nicht gleiche Form.

Was wir anhand des KER nicht sehen können, ist die Lokalisation des Augerelektrons. Diese Idee läge nahe, da wir einen Unterschied im KER sehen können, je nach dem, ob das Elektron in Richtung des O^+ oder CO^+ emittiert wird. Allerdings kann man am KER nicht die Richtung des Impulsübertrages sehen, da nur das Quadrat des Differenzimpulses einfließt. Man kann also nur eine Änderung des Impulsbetrags im KER ablesen.

Wir betrachten den KER unter den Bedingungen, dass das Elektron

- senkrecht zum Molekül,
- In Richtung CO oder
- in Richtung O

emittiert wird, wobei wir einen Öffnungswinkel von 90° beachten.

In Abbildung 6.7(a) sieht man den KER, gemessen bei 590 eV mit rechts zirkular polarisiertem Licht. In Abbildung 6.7(b) erkennt man den Einfluss des Augerelektrons. Der KER hat jeweils eine leicht veränderte Form und das Maximum ist verschoben, je nach dem, ob das Augerelektron in Richtung des CO^+ - oder des O^+ -Ionen oder senkrecht zum Molekül emittiert wird.

In Abbildung 6.7(c) erkennt man, dass die Emissionsrichtung des Photoelektrons keinen Einfluss auf Lage und Form des KERs hat.

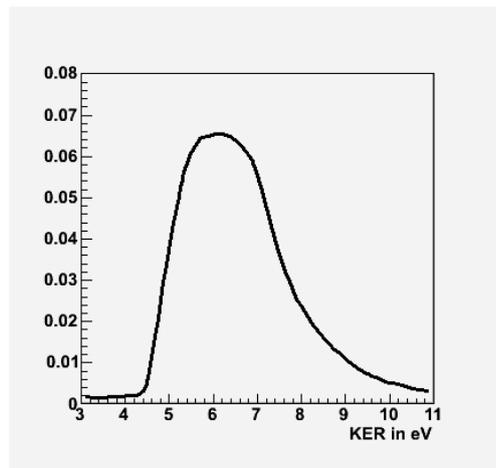
In Abbildung 6.8(a), Abbildung 6.8(c) und Abbildung 6.8(e) sind die Unterschiede bei gerichteter Augerelektronenemission aufgeschlüsselt und klarer zu erkennen als in Abbildung 6.7(b). Den größten Unterschied erkennt man zwischen den beiden Fällen, in denen das Augerelektron senkrecht zum Molekül und in Richtung des Sauerstoffes emittiert wurde (Abbildung 6.8(c)). Auch beim Vergleich zwischen der senkrechten und der Emission in Richtung des CO^+ , erkennt man eine leichte Verschiebung des Maximums (Abbildung 6.8(a)). Vergleicht man die KERs für Emission in Richtung von O^+ und CO^+ , sieht man immer noch einen schwachen Effekt.

Auch für die gerichtete Photoelektronenemission ist der Vergleich detailliert dargestellt. Hier erkennt man eine kleine Verschiebung des Maximums zwischen der Emission senkrecht zum Molekül und in Richtung des CO^+ (Abbildung 6.8(b)).

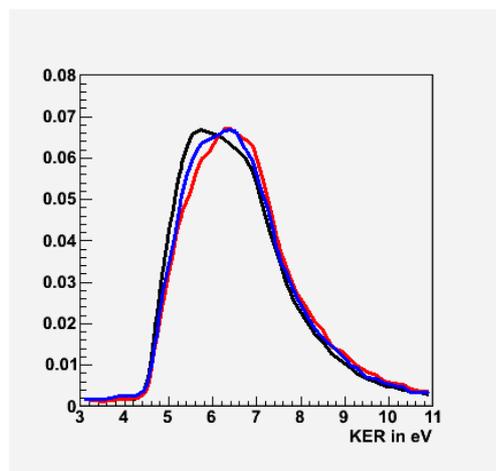
In Abbildung 6.9 und Abbildung 6.10 sind ebenfalls KERs abgebildet. Allerdings wurde in diesem Fall über alle gemessenen Energien gemittelt und sowohl Messungen mit rechts- als auch links zirkular polarisiertem Licht genutzt. Daher haben wir eine wesentlich größere Datenmenge.

Aus dem Vergleich zwischen den Messungen bei 590 eV und den Abbildungen, bei denen über alle gemessenen Energien integriert wurde, lassen sich zwei Schlüsse ziehen. Erstens sind die Unterschiede zwischen Abbildung 6.9, 6.10 und Abbildung 6.3, 6.8 sehr gering, was bestätigt, dass der KER unabhängig von der Polarisation des Lichtes und von der Photoelektronenenergie ist. Zweites erkennt man anhand der großen Datenmenge in Abbildung 6.10, dass es sich bei der Verschiebung des KERs in Abbildung 6.8(b) um ein Artefakt handelt. Die Verschiebung ist in Abbildung 6.10(b) kaum noch zu erkennen.

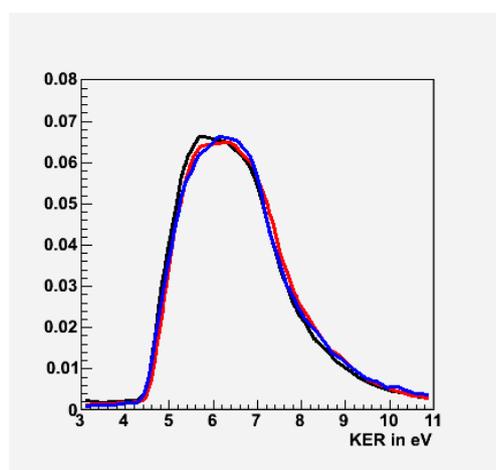
Einen Überblick über alle gemessenen, einzelnen KERs findet man unter Angabe des statistischen Fehlers in Anhang C.



(a) Ohne Einschränkungen



(b) Gerichtetes Augerelektron



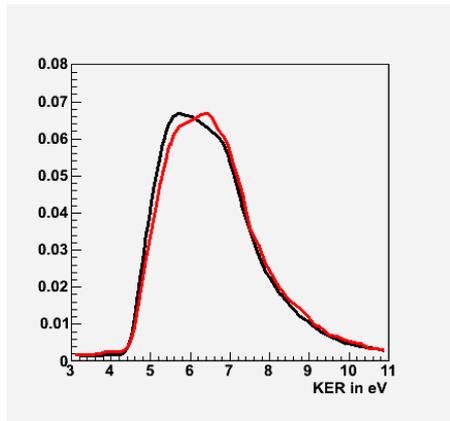
(c) Gerichtetes Photoelektron

Abbildung 6.7: Messungen bei 590 eV, rechtspolarisiertes Licht

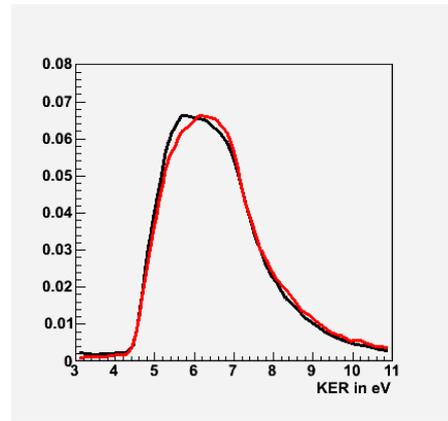
(a) Elektronen werden in alle Richtungen emittiert

(b) Augerelektron senkrecht zum Molekül (schwarz), in Richtung O⁺ (rot) und in Richtung CO⁺ (blau)

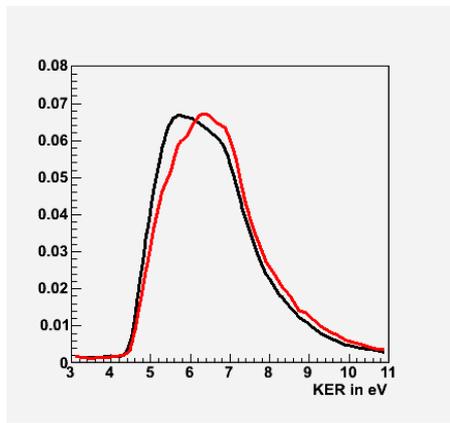
(c) Photoelektron senkrecht zum Molekül (schwarz), in Richtung O⁺ (rot) und in Richtung CO⁺ (blau)



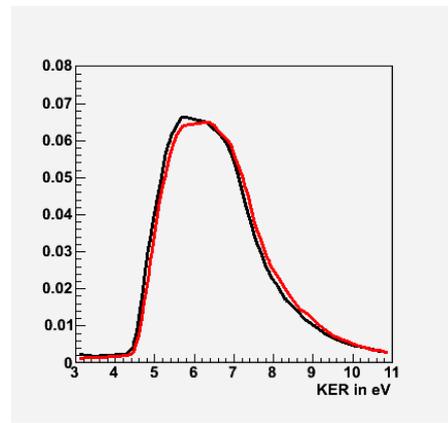
(a) Gerichtetes Augerelektron



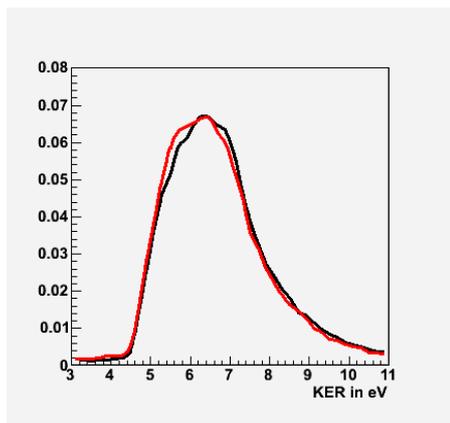
(b) Gerichtetes Photoelektron



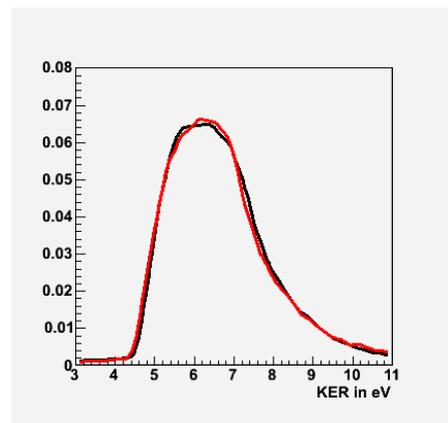
(c) Gerichtetes Augerelektron



(d) Gerichtetes Photoelektron



(e) Gerichtetes Augerelektron



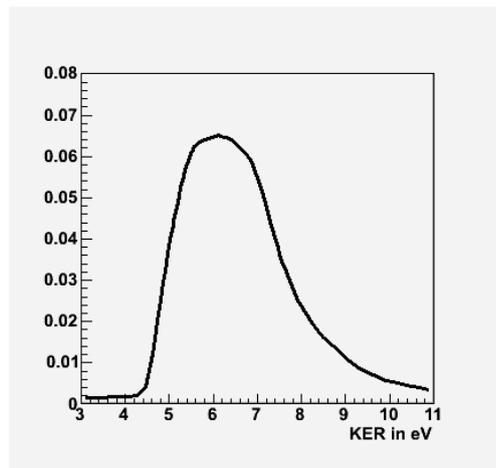
(f) Gerichtetes Photoelektron

Abbildung 6.8: Messungen bei 590 eV, rechtspolarisiertes Licht

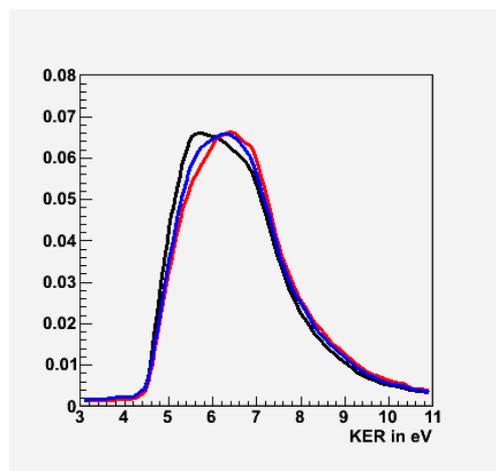
In (a) und (b) wird das Elektron senkrecht zum Molekül (schwarz) und in Richtung des CO^+ (rot) emittiert.

In (c) und (d) wird das Elektron senkrecht zum Molekül (schwarz) und in Richtung des O^+ (rot) emittiert.

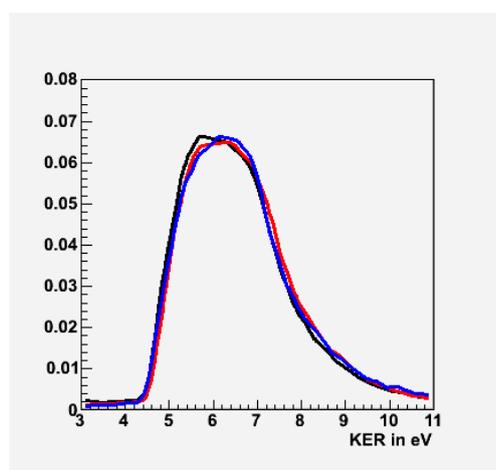
In (e) und (f) wird das Elektron in Richtung des O^+ (schwarz) und in Richtung des CO^+ , (rot) emittiert.



(a) Ohne Einschränkungen

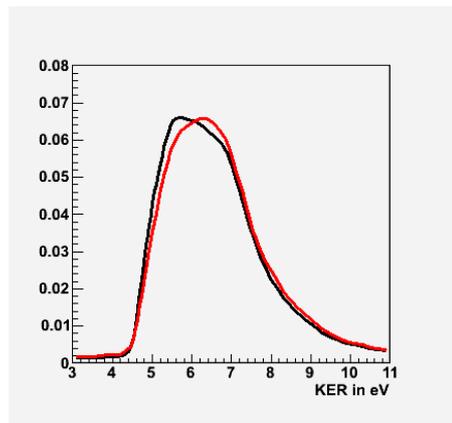


(b) Gerichtetes Augerelektron

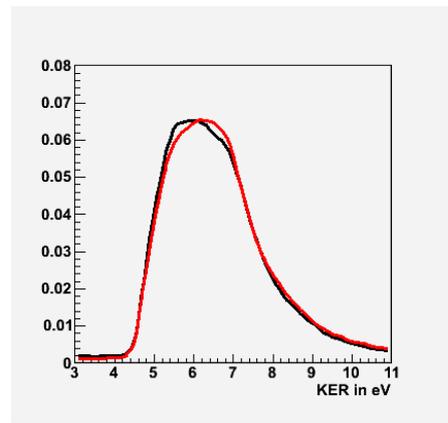


(c) Gerichtetes Photoelektron

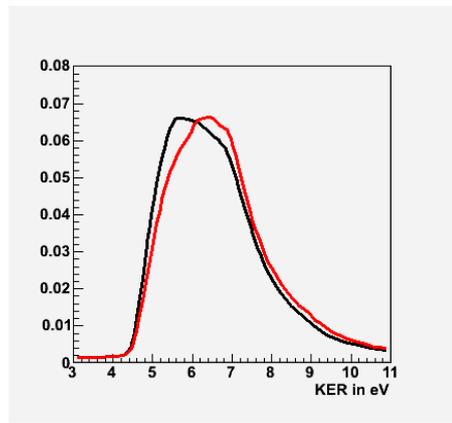
Abbildung 6.9: Alle gemessenen Energien, rechts- und linkspolarisiertes Licht
 (a) Elektronen werden in alle Richtungen emittiert
 (b) Augerelektron senkrecht zum Molekül (schwarz), in Richtung O^+ (rot) und in Richtung CO^+ (blau)
 (c) Photoelektron senkrecht zum Molekül (schwarz), in Richtung O^+ (rot) und in Richtung CO^+ (blau)



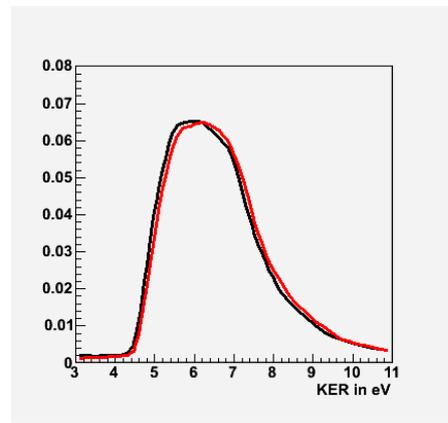
(a) Gerichtetes Augerelektron



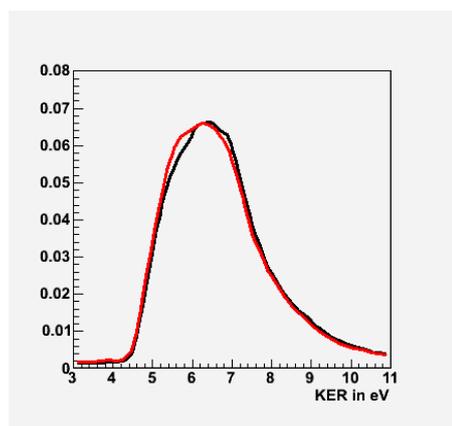
(b) Gerichtetes Photoelektron



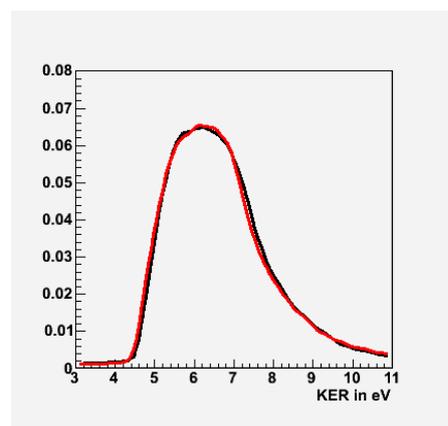
(c) Gerichtetes Augerelektron



(d) Gerichtetes Photoelektron



(e) Gerichtetes Augerelektron



(f) Gerichtetes Photoelektron

Abbildung 6.10: Alle gemessenen Energien, rechts- und linkspolarisiertes Licht
 In (a) und (b) wird das Elektron senkrecht zum Molekül (schwarz) und in Richtung des CO^+ (rot) emittiert.
 In (c) und (d) wird das Elektron senkrecht zum Molekül (schwarz) und in Richtung des O^+ (rot) emittiert.
 In (e) und (f) wird das Elektron in Richtung des O^+ (schwarz) und in Richtung des CO^+ (rot) emittiert.

7

Zusammenfassung

Es wurde die O1s Ionisation von CO_2 gemessen. Dabei wurde mit zirkular polarisiertem Licht bei 555 eV, 565 eV, 575 eV und 590 eV gearbeitet. Die Messung wurde an der ALS am LBNL im März 2008 durchgeführt.

Es wurden die Winkelverteilungen für das Auger- und das Photoelektron in Bezug zur Molekülachse, sowie der KER (Kinetic Energy Release) unter verschiedenen Emissionswinkeln beider Elektronen betrachtet.

- Eine Asymmetrie in der Winkelverteilung des Photoelektrons konnte bestätigt werden.
- Die rechts-links Asymmetrie des Photoelektrons bei hohen Photoelektronenenergien zeigt Lokalität.
- Die oben-unten Asymmetrie des Photoelektrons bei niedrigen Photoelektronenenergien resultiert aus der Drehimpulserhaltung.
- Eine Asymmetrie in der Winkelverteilung des Augerelektrons konnte nicht nachgewiesen werden.
- Eine Drehung konnte bei niedrigen Photoelektronenenergien in der Winkelverteilung des Photoelektrons gezeigt werden .
- Es konnte keine Interferenz des Photoelektrons erwiesen werden.
- Es konnte keine Interferenz des Augerelektrons belegt werden.
- Es konnte keinerlei Zusammenhang zwischen den Emissionswinkeln der beiden Elektronen nachgewiesen werden.
- Der KER ist für verschiedene Emissionsrichtungen des Augerelektrons verschoben.
- Der KER ist für verschiedene Emissionsrichtungen des Photoelektrons nicht verschoben.

Danksagung

*Ich danke den starken Frauen, die mich ein Stück meines Wegs begleitet haben
oder noch begleiten, meinen Vorbildern:
Christina Trautmann, Cynthia Hog-Angeloni,
Xenia Kirschner und Jutta Steck-Kirschner, Elsie Steck, meinen Tanten Gabi
und Sibylle,
Frau Paul, Frau Bock, Frau Klepp, Frau Steudel und Frau Liermann,
Janina Hesse und Elisabeth Raschke*

Ich danke...

Meiner Familie: Mama, Xenia, Hanno und meiner Zweitfamilie Lehmann
Außerdem den Familien Bornefeld, Fellingner/Fritzsche/Juchems, Lohr, Weitzel

Meinem Professor Reinhard Dörner und meiner ganzen Arbeitsgruppe
Dem Berkely-Team für die Strahlzeit

Markus für die Motivation auf und nach der Strahlzeit

Till für die Unterstützung

Allen, die das Büro mit mir geteilt haben, besonders Felix für seine unermüdliche Hilfe und Moritz für den Technical-Support

Allen technisch-administrativen MitarbeiterInnen des IKF für ihre freundliche Unterstützung

Allen Professoren am Fachbereich und dem Dekanat

Herrn Prof. Fischer und Herrn Dr. Borowski in Essen

Meinem Mathe- und Physiklehrer Carsten Müller

Der Studienstiftung für viele wunderbare Sommerakademien

Allen (ehemaligen) Fachschaftlern

Den Organisatorinnen der Physikerinnentagung 09 und den (ehemaligen) Frauenrätinnen

Allen Korrekturlesern und- leserinnen

Anhang A

Atomare Einheiten

Größe	Formel	SI-Einheiten
Masse	m_e	$9.10938 \cdot 10^{-31}$ kg
Ladung	e	$1.60218 \cdot 10^{-19}$ C
Länge	a_0	$5.29177 \cdot 10^{-11}$ m
Geschwindigkeit	v_0	$2.18769 \cdot 10^6$ m s ⁻¹
Zeit	a_0/v_0	$2.41888 \cdot 10^{-17}$ s
Impuls	$m_e v_0$	$1.99285 \cdot 10^{-24}$ kg m s ⁻¹
Drehimpuls	$\hbar = a_0 m_e v_0$	$1.05457 \cdot 10^{-34}$ kg m ² s ⁻¹
Frequenz	$v_0/(2\pi a_0)$	$6.57969 \cdot 10^{15}$ Hz
Kreisfrequenz	v_0/a_0	$4.13414 \cdot 10^{16}$ Hz
Energie	$e^2/(4\pi\epsilon_0 a_0)$	27.2116 eV = 1 hartree
Wirkung	$\hbar = e^2/(4\pi\epsilon_0 v_0)$	$1.05457 \cdot 10^{-34}$ J s
Elektrisches Feld	$e/(4\pi\epsilon_0 a_0^2)$	$5.14221 \cdot 10^{11}$ V/m
Magnetisches Feld	$\hbar/(e a_0^2)$	$2.35052 \cdot 10^5$ T

Konstante	Formel	SI-Einheiten	au
Planck Konstante	h	$6.62608 \cdot 10^{-34}$ J s	2π
Elementarladung	e	$1.60218 \cdot 10^{-19}$ C	1
Elektronenmasse	m_e	$9.10938 \cdot 10^{-31}$ kg	1
Protonenmasse	m_p	$1.67262 \cdot 10^{-27}$ kg	1836.15
Atomare Masseneinheit	$amu = \frac{1}{12} m(^{12}C)$	$1.66054 \cdot 10^{-27}$ kg	1822.89
Lichtgeschwindigkeit	c	$2.99792 \cdot 10^8$ m/s	137.04
Elektrische Feldkonstante	ϵ_0	$8.85419 \cdot 10^{-12}$ As/(Vm)	$1/(4\pi)$
Magnetische Feldkonstante	$\mu_0 = 1/(c^2 \epsilon_0)$	$4\pi \cdot 10^{-7}$ Vs/(Am)	$4\pi/137.04^2$

Quelle [32]

Anhang B

Abbildungen Rohspektren

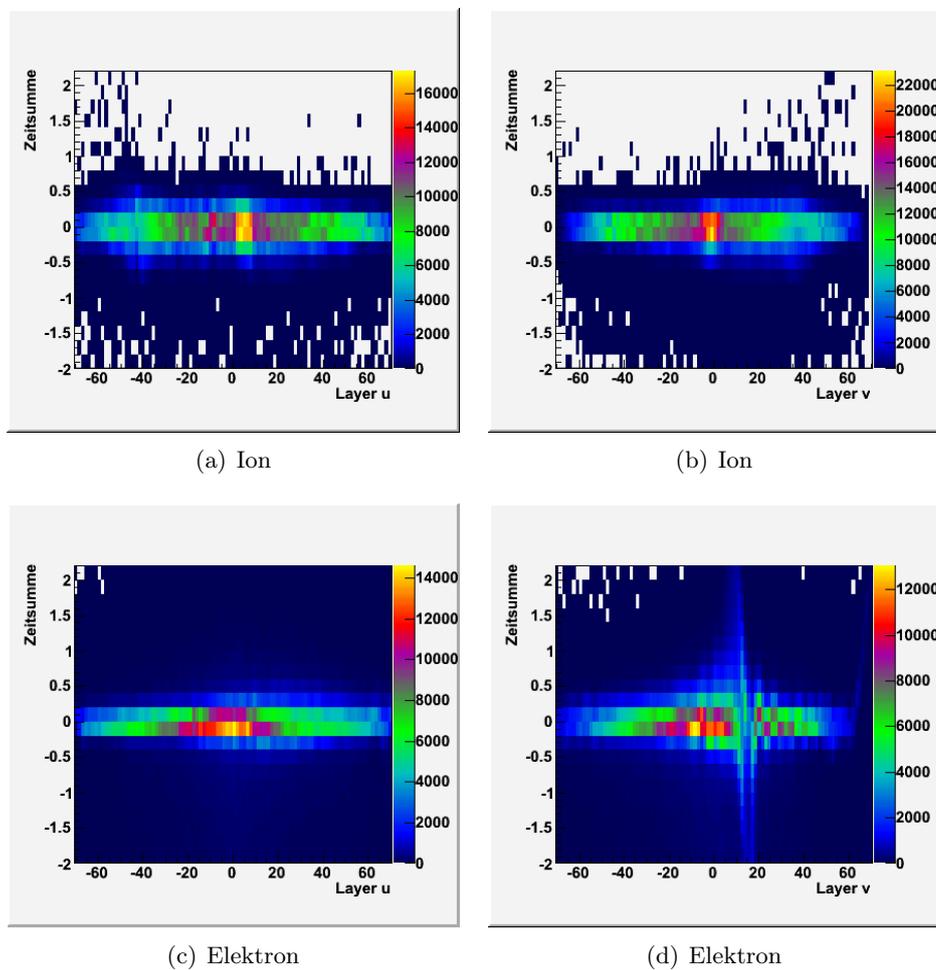


Abbildung B.1: Zeitsummen

Auf den beiden linken Abbildungen sieht man die Zeitsumme auf dem u-Layer, auf den beiden rechten Abbildungen die Zeitsummen auf dem v-Layer.

Anhang C

Abbildungen KER

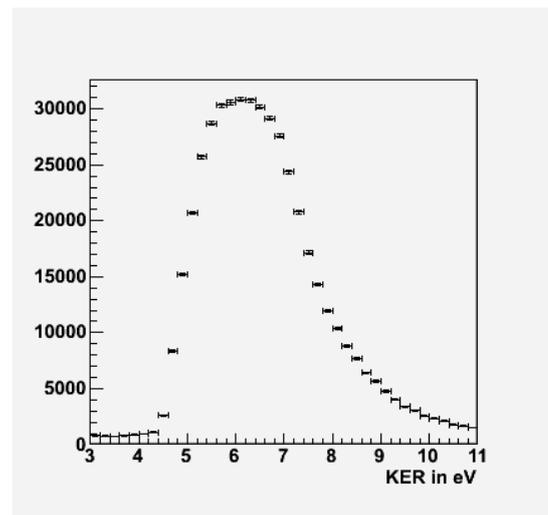
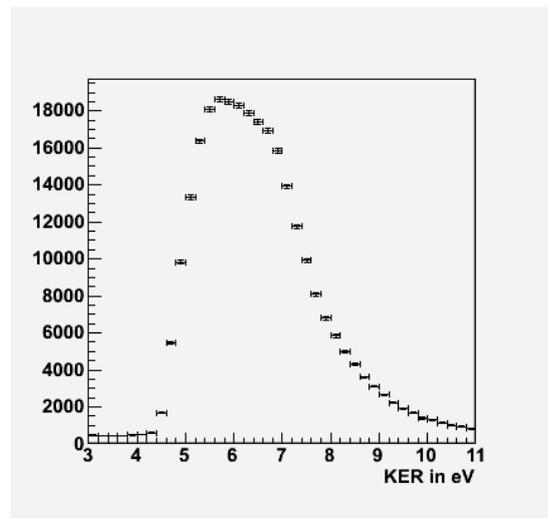
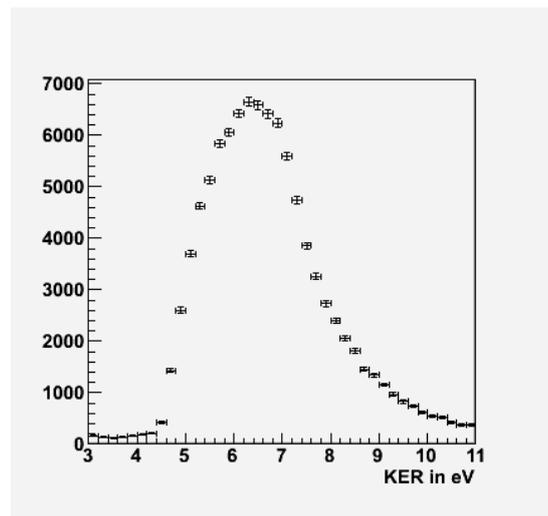


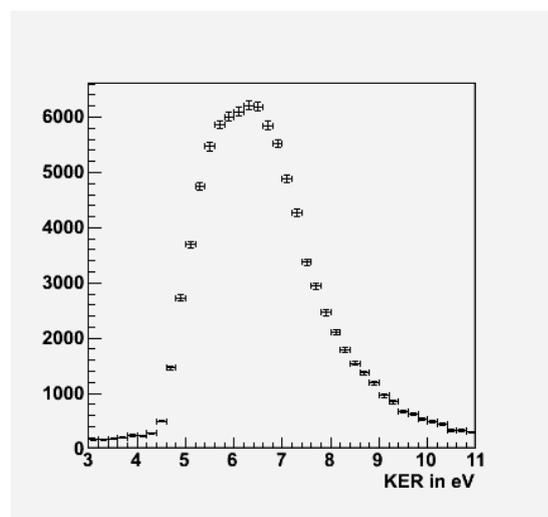
Abbildung C.1: KER bei 590 eV Photonenenergie, rechtszirkular-polarisiertes Licht



(a) Auger senkrecht

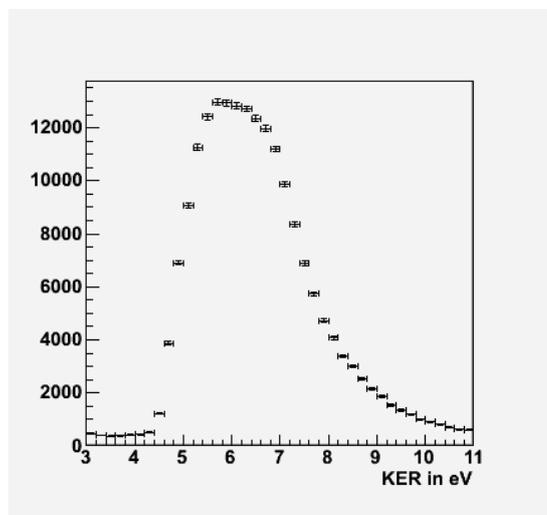


(b) Auger Richtung O

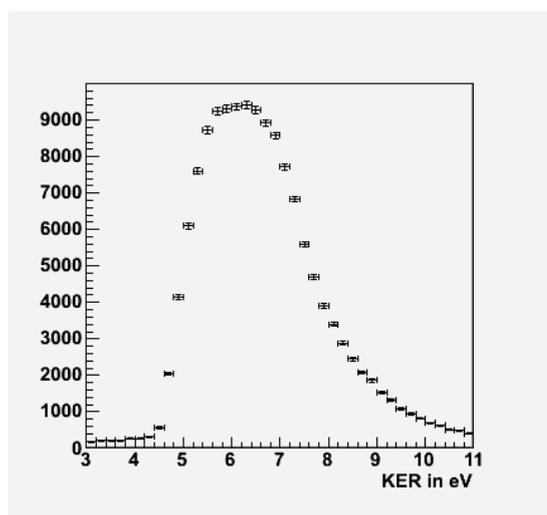


(c) Auger Richtung CO

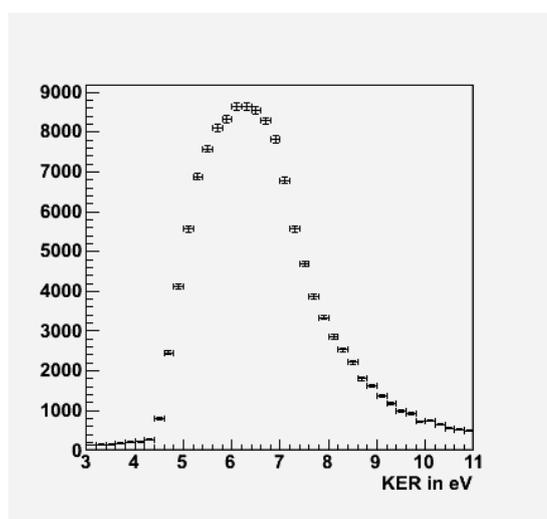
Abbildung C.2: KERs für gerichtete Augerelektronen bei 590 eV Photonenenergie, rechtszirkular-polarisiertes Licht



(a) Photoelektron senkrecht



(b) Photoelektron Richtung 0



(c) Photoelektron Richtung CO

Abbildung C.3: KERs für gerichtete Photoelektronen bei 590 eV Photonenenergie, rechtszirkular-polarisiertes Licht

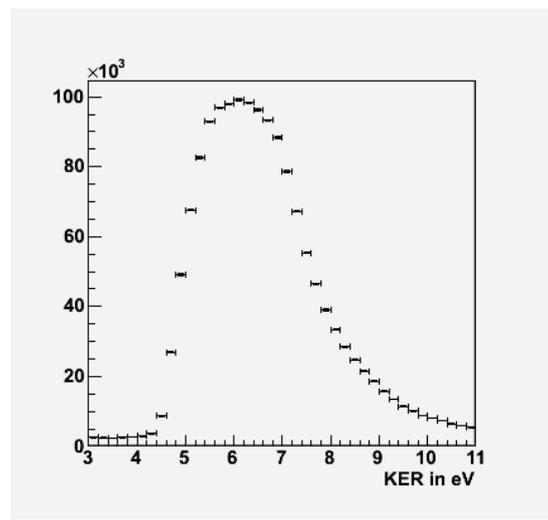
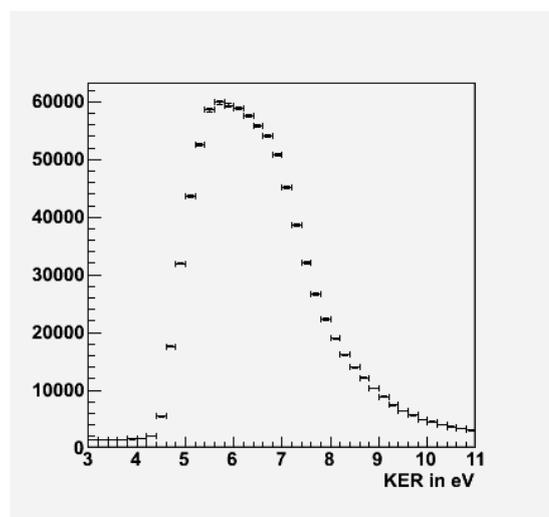
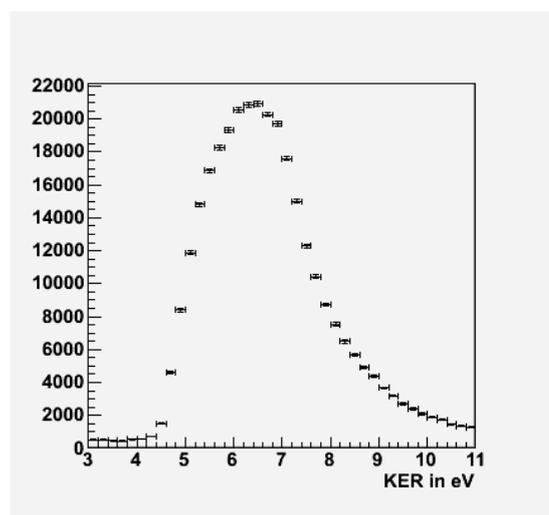


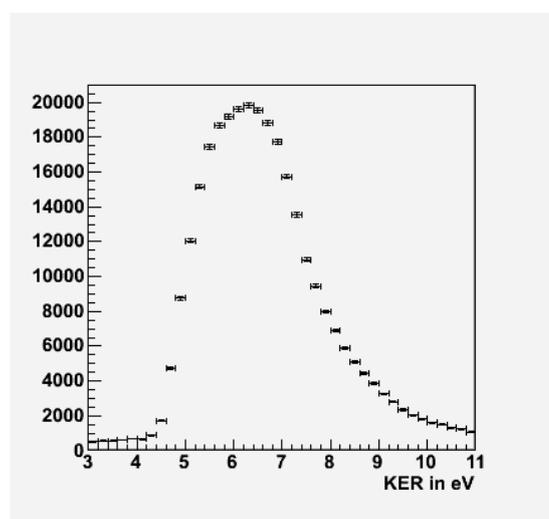
Abbildung C.4: KER integriert über alle gemessenen Energien und beide Polarisationsrichtungen



(a) Auger senkrecht

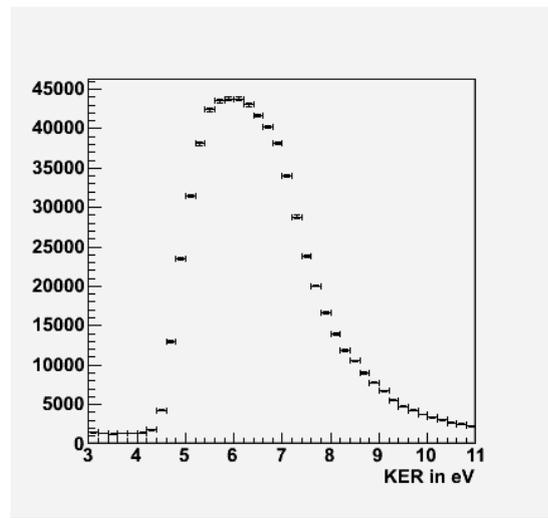


(b) Auger Richtung O

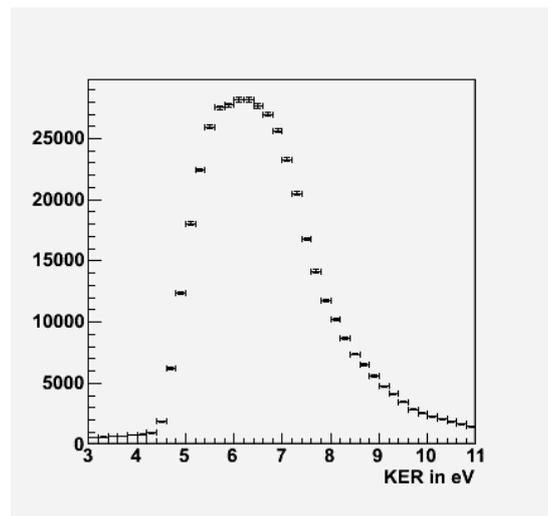


(c) Auger Richtung CO

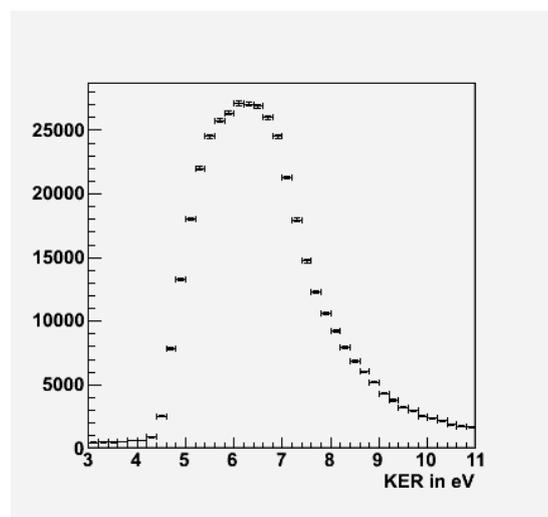
Abbildung C.5: KERs für gerichtete Augerelektronen integriert über alle gemessenen Energien und beide Polarisationsrichtungen



(a) Photoelektron senkrecht



(b) Photoelektron Richtung 0



(c) Photoelektron Richtung CO

Abbildung C.6: KERs für gerichtete Photoelektronen integriert über alle gemessenen Energien und beide Polarisationsrichtungen

Literaturverzeichnis

- [1] F. Sturm, *Photo and Auger Electron Angular Distributions of Fixed-in-Space CO₂* (2009).
- [2] <http://www.lbl.gov/MicroWorlds/ALSTool/>
- [3] <http://kworkquark.desy.de/lexikon/>
- [4] http://www.mpia.de/CONICA/tusche/diplom/Kapitel_5.html
- [5] http://www-controls.als.lbl.gov/alscg/docs/eps/eps_drawings/11_0_2.pdf
- [6] http://www-controls.als.lbl.gov/alscg/docs/eps/eps_drawings/11_0_2.pdf
- [7] R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich, R. Moshhammer, and H. Schmidt-Böcking, “Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy: a momentum microscope to view atomic collision dynamics,” *Physics Reports* **330**, 95 – 192 (2000). doi:[DOI:10.1016/S0370-1573\(99\)00109-X](https://doi.org/10.1016/S0370-1573(99)00109-X)
- [8] W. C. Wiley and I. H. McLaren, “Time-of-Flight Mass Spectrometer with Improved Resolution,” *Review of Scientific Instruments* **26**, 1150–1157 (1955). doi:[10.1063/1.1715212](https://doi.org/10.1063/1.1715212)
- [9] <http://roentdek.de/>
- [10] N. Saito, X.-J. Liu, Y. Morishita, G. Prümper, M. Machida, M. Oura, H. Yamaoka, Y. Tamenori, I. Koyano, I. H. Suzuki, and K. Ueda, “Molecular frame photoelectron angular distribution for oxygen 1s photoemission from CO₂ molecules,” *J. Phys. B* **38**, 277–284 (2005). http://www.iop.org/EJ/article/0953-4075/38/17/L01/b5_17_101.pdf?request-id=74c95532-0a80-4f30-a3fd-15d138ccbfe1
- [11] K. Ueda, “High-resolution inner-shell spectroscopies of free atoms and molecules using soft-x-ray beamlines at the third-generation synchrotron radiation sources,” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **36**, R1–R47 (2003). <http://stacks.iop.org/0953-4075/36/R1>
- [12] W. Demtröder, *Experimentalphysik 3: Atome, Moleküle und Festkörper*.

- [13] F. Engelke, *Aufbau der Moleküle*.
- [14] D. Akoury, K. Kreidi, T. Jahnke, T. Weber, A. Staudte, M. Schöffler, N. Neumann, J. Titze, L. P. H. Schmidt, A. Czasch, O. Jagutzki, R. A. C. Fraga, R. E. Grisenti, R. D. Muino, N. A. Cherepkov, S. K. Semenov, P. Ranitovic, C. L. Cocke, T. Osipov, H. Adaniya, J. C. Thompson, M. H. Prior, A. Belkacem, A. L. Landers, H. Schmidt-Böcking, and R. Dörner, "The Simplest Double Slit: Interference and Entanglement in Double Photoionization of H_2 ," *Science* **318**, 949 (2007). <http://www.sciencemag.org/cgi/content/full/318/5852/949?ijkey=HoQo/.y59PzAU&keytype=ref&siteid=sci>
- [15] P. S. Bagus and H. F. S. III, "Localized and Delocalized $1s$ Hole States of the O_2^+ Molecular Ion," *The Journal of Chemical Physics* **56**, 224–226 (1972). doi:[10.1063/1.1676850](https://doi.org/10.1063/1.1676850)
- [16] M. S. Schöffler, J. Titze, N. Petridis, T. Jahnke, K. Cole, L. P. H. Schmidt, A. Czasch, D. Akoury, O. Jagutzki, J. B. Williams, N. A. Cherepkov, S. K. Semenov, C. W. McCurdy, T. N. Rescigno, C. L. Cocke, T. Osipov, S. Lee, M. H. Prior, A. Belkacem, A. L. Landers, H. Schmidt-Böcking, T. Weber, and R. Dörner, "Ultrafast Probing of Core Hole Localization in N_2 ," *Science* **320**, 920 – 923 (2008). <http://www.sciencemag.org/cgi/content/abstract/320/5878/920?ijkey=eX/LvFBaw4Ymg&keytype=ref&siteid=sci>
- [17] W. Domcke and L. S. Cederbaum, "Vibronic coupling and symmetry breaking in core electron ionization," *Chemical Physics* **25**, 189 – 196 (1977). doi:[10.1016/0301-0104\(77\)87075-4](https://doi.org/10.1016/0301-0104(77)87075-4)
- [18] J. Slater, "A Simplification of the Hartree-Fock Method," *Phys. Rev.* **81**, 385–390 (1951). doi:[10.1103/PhysRev.81.385](https://doi.org/10.1103/PhysRev.81.385)
- [19] A. Kivimäki, B. Kempgens, K. Maier, H. M. Köppe, M. N. Piancastelli, M. Neeb, and A. M. Bradshaw, "Vibrationally Resolved O $1s$ Photoelectron Spectrum of CO_2 : Vibronic Coupling and Dynamic Core-Hole Localization," *Phys. Rev. Lett.* **79**, 998 (1997). doi:[10.1103/PhysRevLett.79.998](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.79.998)
- [20] E. Shigemasa, J. Adachi, M. Oura, and A. Yagishita, "Angular Distributions of $1s\sigma$ Photoelectrons from Fixed-in-Space N_2 Molecules," *Phys. Rev. Lett.* **74**, 359–362 (1995). doi:[10.1103/PhysRevLett.74.359](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.74.359)
- [21] N. A. Cherepkov, S. K. Semenov, Y. Hikosaka, K. Ito, S. Motoki, and A. Yagishita, "Manifestation of Many-Electron Correlations in Photoionization of the K Shell of N_2 ," *Phys. Rev. Lett.* **84**, 250–253 (2000). doi:[10.1103/PhysRevLett.84.250](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.84.250)
- [22] T. Weber, O. Jagutzki, M. Hattass, A. Staudte, A. Nauert, L. Schmidt, M. H. Prior, A. L. Landers, A. Brauning-Demian, H. Brauning, C. L. Cocke, T. Osipov, I. Ali, R. D. Muino, D. Rolles, F. J. G. de Abajo, C. S. Fadley, M. A. V. Hove, A. Cassimi, H. Schmidt-Böcking, and R. Dörner,

- “K-shell photoionization of CO and N₂: is there a link between the photoelectron angular distribution and the molecular decay dynamics?” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **34**, 3669–3678 (2001). <http://stacks.iop.org/0953-4075/34/3669>
- [23] T. Jahnke, T. Weber, A. L. Landers, A. Knapp, S. Schössler, J. Nickles, S. Kammer, O. Jagutzki, L. Schmidt, A. Czasch, T. Osipov, E. Arenholz, A. Young, R. Díez Muiño, D. Rolles, F. J. García de Abajo, C. S. Fadley, M. A. Van Hove, S. K. Semenov, N. A. Cherepkov, J. Rösch, M. H. Prior, H. Schmidt-Böcking, and R. Cocke, C. L. and Dörner, “Circular Dichroism in K-Shell Ionization from Fixed-in-Space CO and N₂ Molecules,” *PRL* **88** (2002). <http://atom.uni-frankfurt.de/web/publications/files/Jahnke2002.pdf>
- [24] F. Heiser, O. Gefñner, J. Viefhaus, K. Wieliczek, R. Hentges, and U. Becker, “Demonstration of Strong Forward-Backward Asymmetry in the C1s Photoelectron Angular Distribution from Oriented CO Molecules,” *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2435–2437 (1997). doi:10.1103/PhysRevLett.79.2435
- [25] A. Landers, T. Weber, I. Ali, A. Cassimi, M. Hattass, O. Jagutzki, A. Nauert, T. Osipov, A. Staudte, M. H. Prior, H. Schmidt-Böcking, C. L. Cocke, and R. Dörner, “Photoelectron Diffraction Mapping: Molecules Illuminated from Within,” *Phys. Rev. Lett.* **87**, 013002 (2001). doi:10.1103/PhysRevLett.87.013002
- [26] S. Motoki, J. Adachi, Y. Hikosaka, K. Ito, M. Sano, K. Soejima, A. Yagishita, G. Raseev, and N. A. Cherepkov, “K-shell photoionization of CO: I. Angular distributions of photoelectrons from fixed-in-space molecules,” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **33**, 4193–4212 (2000). <http://stacks.iop.org/0953-4075/33/4193>
- [27] J. Adachi, K. Hosaka, S. Furuya, K. Soejima, M. Takahashi, A. Yagishita, S. K. Semenov, and N. A. Cherepkov, “Shape-Resonance-Enhanced Vibrational Effects in the Angular Distributions of C 1s Photoelectrons from Fixed-in-Space CO Molecules,” *Phys. Rev. Lett.* **91**, 163001 (2003). doi:10.1103/PhysRevLett.91.163001
- [28] J. ichi Adachi, S. Motoki, N. A. Cherepkov, and A. Yagishita, “Characterization of σ_u shape resonance in the C 1s ionization continuum of CO₂ molecules,” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **35**, 5023–5033 (2002). <http://stacks.iop.org/0953-4075/35/5023>
- [29] N. Saito, A. D. Fanis, K. Kubozuka, M. Machida, M. Takahashi, H. Yoshida, I. H. Suzuki, A. Cassimi, A. Czasch, L. Schmidt, R. Dörner, K. Wang, B. Zimmermann, V. McKoy, I. Koyano, and K. Ueda, “Carbon K-shell photoelectron angular distribution from fixed-in-space CO₂ molecules,” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **36**, L25–L30 (2003). <http://stacks.iop.org/0953-4075/36/L25>

- [30] R. Brun and F. Rademakers, *ROOT: An Object-Oriented Data Analysis Framework*, CERN. <http://root.cern.ch/>
- [31] V. Sharma, B. Bapat, J. Mondal, M. Hochlaf, K. Giri, and N. Sathyamurthy, "Dissociative Double Ionization of CO₂: Dynamics, Energy Levels, and Lifetime," *The Journal of Physical Chemistry A* **111**, 10 205–10 211 (2007). <http://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/jp070257k>
- [32] A. Staudte, *Subfemtosecond Electron Dynamics of H₂ in Strong Fields or The Quest for the Molecular Clock*, Ph.D. thesis (2005).