

BACHELORARBEIT

**Experimentelle Untersuchung von
Nichtdipol-Effekten bei der Photoionisation
von Edelgasatomen**

vorgelegt von
MADELEINE SCHMIDT

GOETHE-UNIVERSITÄT FRANKFURT AM MAIN
FACHBEREICH PHYSIK
INSTITUT FÜR KERNPHYSIK

Erstgutachter: Prof. Dr. Reinhard Dörner
Zweitgutachter: Prof. Dr. Till Jahnke

3. Juli 2023

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretischer Hintergrund	2
2.1	Quantenmechanische Beschreibung von Atomen	2
2.2	Wechselwirkung zwischen Licht und Materie	5
2.2.1	Photoionisation	5
2.2.2	Compton-Effekt	12
2.2.3	Auger-Zerfall	13
3	Experimenteller Aufbau	14
3.1	Synchrotronstrahlung	14
3.2	COLTRIMS	16
3.2.1	Gasjet	17
3.2.2	Spektrometer	19
3.2.2.1	Elektrisches und magnetisches Führungsfeld	19
3.2.2.2	Detektoren	21
3.2.3	Signalverarbeitung und Datenaufnahme	23
3.3	Spezifikation der Messung	24
4	Datenanalyse	26
4.1	Berechnung der Flugzeiten	26
4.2	Berechnung der Detektionsorte	26
4.3	Berechnung der Impulse	27
4.4	Kalibrierung	28
4.4.1	Ionen	29
4.4.2	Elektronen	30
5	Ergebnisse	32
5.1	Impulsverteilungen der Ionen und Photoelektronen	34
5.2	Mittlere Impulse der Ionen und Photoelektronen in Lichtausbreitungsrichtung	36
5.3	Emissionswinkelverteilungen der Photoelektronen	37
6	Zusammenfassung	39
A	Anhang	41
A.1	Koordinatentransformation Theorie- und Laborsystem	41
A.2	Atomare Einheiten	42
A.3	Bindungsenergien	43
A.4	Energien und Impulse der Photoelektronen	44
A.5	Energien und Impulse der Auger-Elektronen	45
A.6	Nicht-normierte Impuls- und Energieverteilungen	46

1 Einleitung

Die Grundlagenforschung dient dem Verständnis fundamentaler Prozesse und ist daher als Basis für weiterführende Forschung und technische Entwicklung unabdingbar. Die Atom- und Molekülphysik beschäftigt sich dabei unter anderem mit der Untersuchung von Wechselwirkungsmechanismen zwischen Licht und Materie.

Einer dieser Wechselwirkungsmechanismen ist die Photoionisation, bei der die gesamte Energie eines Photons auf ein Atom oder Molekül übertragen wird und zur Emission eines Elektrons führt. Diese Ein-Photon-Ionisation kann in einer semi-klassischen Näherung beschrieben werden, wobei das Photon als klassische elektromagnetische Welle und die Zustände des Elektrons vor und nach der Photoionisation als quantenmechanische Wellenfunktionen dargestellt werden. Durch die Wechselwirkung des elektromagnetischen Feldes mit dem Atom oder Molekül erfolgt ein Übergang vom gebundenen Zustand in einen Kontinuumszustand des Elektrons. Die Wechselwirkung wird dabei durch das Vektorpotential des elektromagnetischen Feldes vermittelt. Das Vektorpotential ist in der Regel derart klein, dass die zeitabhängige Störungstheorie zur Beschreibung der Photoionisation verwendet wird. Hierbei wird das Vektorpotential in eine Potenzreihe nach $k_\gamma r_e$ entwickelt, wobei k_γ der Photonenimpuls und r_e der Ort des Elektrons ist. Der Abbruch der Reihenentwicklung nach dem führenden Term ist gleichbedeutend mit der Vernachlässigung des Linearimpulses des Photons und wird als Dipol-Näherung bezeichnet. Abhängig von der Energie des Photons kann die Dipol-Näherung allerdings unzureichend sein und es bedarf der Berücksichtigung weiterer Terme der Reihenentwicklung in der sogenannten Nichtdipol-Näherung (siehe Abschnitt 2.2.1).

Dieser Arbeit liegt eine im August 2022 an der European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) durchgeführte Messung zugrunde, bei der hochenergetische Synchrotronstrahlung zur Ionisation von Edelgasatomen verwendet wurde. Mit der COLTRIMS-Messtechnik (Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy) konnten die bei der Ionisation entstehenden Ionen und Elektronen koinzident gemessen und deren Impulse zum Reaktionszeitpunkt rekonstruiert werden (siehe Abschnitt 3.2).

Die Ergebnisse dieser Arbeit ermöglichen ein grundlegendes Verständnis der bei der Photoionisation auftretenden Nichtdipol-Effekte und bestätigen zum ersten Mal eine mehr als 90 Jahre alte Vorhersage von Sommerfeld und Schur, wie die Bindungsenergie der Elektronen den mittleren Impuls der Ionen und Photoelektronen in Lichtausbreitungsrichtung beeinflusst (siehe Kapitel 5).

2 Theoretischer Hintergrund

2.1 Quantenmechanische Beschreibung von Atomen

Auf atomarer und subatomarer Skala kann ein System sowohl Wellen- als auch Teilchenverhalten aufweisen. Dieser Welle-Teilchen-Dualismus war durch die klassische Physik nicht erklärbar und führte zur Entwicklung der Quantenmechanik zu Beginn des 20. Jahrhunderts. Die Quantenmechanik ermöglicht die Beschreibung eines dem Welle-Teilchen-Dualismus unterliegenden Systems durch die Schrödingergleichung:

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

Dabei wird die zeitliche Entwicklung des Zustands eines quantenmechanischen Systems durch die Wirkung des Hamilton-Operators \hat{H} auf die zum Zustand zugehörige Wellenfunktion $\Psi(\mathbf{r}, t)$ dargestellt. Für den Hamilton-Operator gilt¹:

$$\hat{H} = \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} + V(\mathbf{r}, t) \quad (2.2)$$

Bei zeitunabhängigem Potential $V(\mathbf{r})$ genügt zur Beschreibung des quantenmechanischen Systems die stationäre Schrödingergleichung. Hierbei handelt es sich um eine Eigenwertgleichung, deren Eigenvektoren den stationären Zuständen $\Psi(\mathbf{r})$ und deren Eigenwerte den zu den Zuständen zugehörigen Energien E entsprechen:

$$\hat{H}\Psi(\mathbf{r}) = E\Psi(\mathbf{r}) \quad (2.3)$$

Ein Atom besteht aus einem positiv geladenen Atomkern, in dessen Coulombpotential sich negativ geladene Elektronen befinden. Aufgrund der Zeitunabhängigkeit des Coulombpotentials wird zur quantenmechanischen Beschreibung eines Atoms die stationäre Schrödingergleichung verwendet. Diese ist für ein Atom mit nur einem Elektron analytisch durch einen Separationsansatz lösbar. Die Lösung ist eine Wellenfunktion, die sich aus einem radialen Anteil $R_{n,l}(r)$ und einem durch die Kugelflächenfunktionen $Y_{l,m}(\theta, \phi)$ beschriebenen winkelabhängigen Anteil zusammensetzt:

$$\Psi_{n,l,m}(\mathbf{r}) = R_{n,l}(r)Y_{l,m}(\theta, \phi) \quad (2.4)$$

Die den Zustand des gebundenen Elektrons beschreibende komplexwertige Wellenfunktion wird als Orbital bezeichnet und ist durch die Quantenzahlen n , l und m eindeutig festgelegt.

Die Hauptquantenzahl $n \in \mathbb{N}$ beschreibt das Energieniveau des Elektrons. Dabei werden $n = 1, 2, 3$ gemäß des Schalenmodells auch als K -, L - und M -Schale bezeichnet. Die Bahndrehimpulsquantenzahl $l \leq n - 1$, $l \in \mathbb{N}_0$ bestimmt den Betrag des Bahndrehimpulses des Elektrons, wobei analog zu $l = 0, 1, 2$ auch die Buchstaben s , p und d verwendet werden. Die magnetische Bahndrehimpulsquantenzahl $-l \leq m_l \leq l$, $m_l \in \mathbb{Z}$ gibt in Einheiten des reduzierten Planckschen Wirkungsquantums \hbar die Komponente des Bahndrehimpulses zur Quantisierungsachse an.

¹In der Ortsraumdarstellung gilt für den Impulsoperator $\hat{\mathbf{p}} = -i\hbar\nabla$ und den Ortsoperator $\hat{\mathbf{r}} = \mathbf{r}$.

Die graphische Darstellung eines Orbitals wird in der Regel durch das reellwertige Betragsquadrat der Wellenfunktion $|\Psi_{n,l,m}(\mathbf{r})|^2$ realisiert, welches der Aufenthaltswahrscheinlichkeit eines Elektrons am Ort \mathbf{r} entspricht.

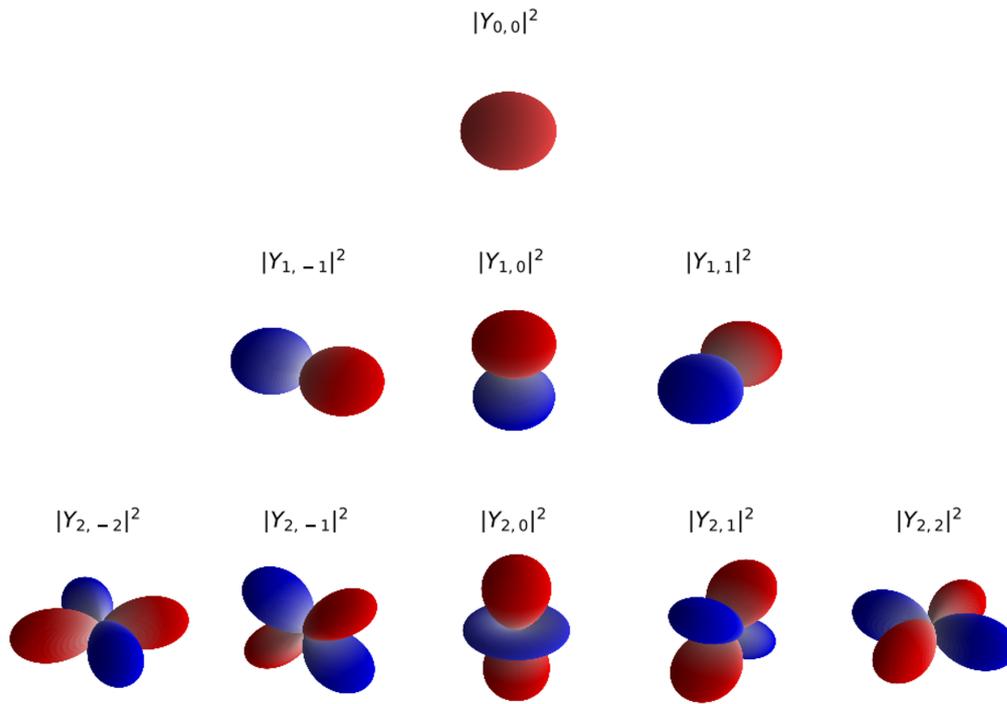


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der zu einigen Orbitalen des Wasserstoffatoms zugehörigen Betragsquadrate der Kugelflächenfunktionen $|Y_{l,m}|^2$. Rote Bereiche entsprechen einer positiven und blaue Bereiche einer negativen Phase der Kugelflächenfunktionen.

Das Elektron trägt neben dem Bahndrehimpuls auch einen Eigendrehimpuls, den sogenannten Spin. Die Spinquantenzahl $s = \frac{1}{2}$ bestimmt den Betrag des Spins und die magnetische Spinquantenzahl $m_s = -\frac{1}{2}, +\frac{1}{2}$ gibt in Einheiten des reduzierten Planckschen Wirkungsquantums \hbar die Komponente des Spins zur Quantisierungsachse an.

Die Besetzung von Orbitalen wird durch das Pauli-Prinzip beschrieben. Dieses besagt, dass zwei Elektronen eines Atoms nicht in allen Quantenzahlen übereinstimmen dürfen. Werden zwei Elektronen durch dieselben Quantenzahlen n, l und m_l beschrieben, so müssen sie sich in der Quantenzahl m_s unterscheiden. Ein Orbital nl_{m_l} kann demnach von maximal zwei Elektronen besetzt werden, wovon eines im Zustand $m_s = -\frac{1}{2}$ und eines im Zustand $m_s = +\frac{1}{2}$ ist. Die Anzahl der in einem Atom gebundenen Elektronen bestimmt daher die Besetzung der Orbitale. Die Besetzung der Orbitale wird auch als Elektronenkonfiguration bezeichnet und ist besonders stabil, wenn das höchste Energieniveau maximal besetzt ist.

Die Energieniveaus sind entartet, wenn es zu einem Energieeigenwert mehrere mögliche Zustände gibt. Die Entartung wird teilweise aufgehoben, da die Drehimpulse und die durch sie erzeugten magnetischen Momente miteinander wechselwirken. Diese Wechselwirkung wird als Spin-Bahn-Kopplung bezeichnet und durch die Gesamtdrehimpulsquantenzahl $j = |l \pm s|$ charakterisiert. Für $j = |l + s|$ sind die Drehimpulse und die durch sie erzeugten magnetischen Momente parallel ausgerichtet, sodass die Gesamtenergie steigt und die Bindung des Elektrons schwächer wird. Entsprechend sind für $j = |l - s|$ die Drehimpulse und die durch sie erzeugten magnetischen Momente antiparallel ausgerichtet, wodurch die Gesamtenergie abgesenkt und das Elektron stärker gebunden wird.

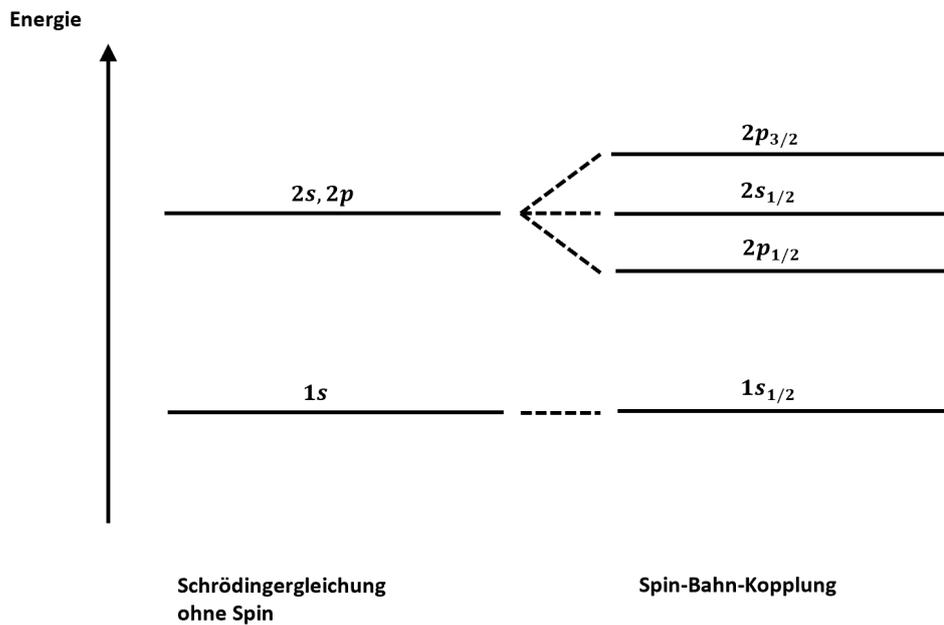


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der durch die Spin-Bahn-Kopplung auftretenden Energieverschiebungen der Orbitale im Wasserstoffatom (Notation eines Orbitals: nl_j).

2.2 Wechselwirkung zwischen Licht und Materie

In diesem Kapitel werden die grundlegenden Wechselwirkungsmechanismen zwischen Licht und Materie diskutiert, wobei die Betrachtung auf ein Photon und ein Atom reduziert wird. Der bei der Wechselwirkung stattfindende Energieübertrag vom Photon auf das Atom ermöglicht Ionisationsprozesse wie beispielsweise die Photoionisation oder den Compton-Effekt. Das sich nach einem Ionisationsprozess in einem angeregten Zustand befindende Atom kann sich beispielsweise über einen Auger-Zerfall abregen.

2.2.1 Photoionisation

Bei der Photoionisation wird die gesamte Energie des Photons auf das Atom übertragen. Ist die Energie E_γ des Photons größer als die Bindungsenergie E_b eines Elektrons, so kann die Bindung zwischen Atomkern und Elektron gebrochen werden. Das mit der kinetischen Energie E_e und dem Impuls p_e emittierte Elektron wird als Photoelektron bezeichnet und bewirkt aufgrund von Impulserhaltung einen entsprechenden Rückstoß auf das Ion:

$$E_e = E_\gamma - E_b \quad (2.5)$$

$$p_e = \sqrt{2m_e E_e} \quad (2.6)$$

Der Linearimpuls des Photons wird auf den Massenschwerpunkt des Systems und somit hauptsächlich auf das Ion übertragen. Der Drehimpuls des Photons wird in der Regel vom Photoelektron aufgenommen².

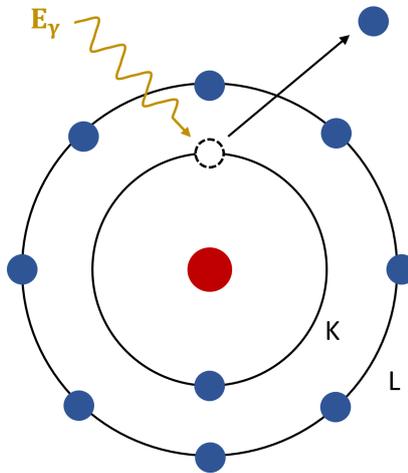


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der K-Schalen-Photoionisation am Beispiel eines Neon-Atoms: Die gesamte Energie E_γ des Photons wird auf das Neon-Atom übertragen, wodurch die Bindungsenergie E_b eines K-Schalen-Elektrons überwunden wird. Das mit der kinetischen Energie $E_e = E_\gamma - E_b$ emittierte K-Schalen-Elektron wird als Photoelektron bezeichnet.

²Bei sogenannten Shake-up-Zuständen (Emission eines Photoelektrons mit gleichzeitiger Anregung eines weiteren Elektrons) kann der Drehimpuls auch im Ion verbleiben.

Semi-klassische Beschreibung der Photoionisation

Für eine semi-klassische Beschreibung der Photoionisation genügt es, den Anfangs- und Endzustand des Elektrons durch quantenmechanische Wellenfunktionen und das Photon als klassische elektromagnetische Welle darzustellen [1]. In dieser Näherung wird das System durch den Hamilton-Operator eines Elektrons im elektromagnetischen Feld beschrieben³ [2]:

$$\begin{aligned}
 \hat{H} &= \frac{1}{2m}(\hat{\mathbf{p}} - e\mathbf{A})^2 + V(\mathbf{r}) \\
 &= \frac{1}{2m}(\hat{\mathbf{p}}^2 - 2e\hat{\mathbf{p}}\mathbf{A} - 2e\mathbf{A}\hat{\mathbf{p}} + e^2\mathbf{A}^2) + V(\mathbf{r}) \\
 &= \frac{1}{2m}(\hat{\mathbf{p}}^2 - 2e\mathbf{A}\hat{\mathbf{p}} + e^2\mathbf{A}^2) + V(\mathbf{r}) \\
 &= \underbrace{\frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} + V(\mathbf{r})}_{\hat{H}_0} - \underbrace{\frac{e}{m}\mathbf{A}\hat{\mathbf{p}} + \frac{e^2}{2m}\mathbf{A}^2}_{\hat{H}_{WW}}
 \end{aligned} \tag{2.7}$$

Der Hamilton-Operator unterteilt sich in einen feldfreien Anteil \hat{H}_0 und einen Wechselwirkungsanteil \hat{H}_{WW} , der die durch das Vektorpotential \mathbf{A} des elektromagnetischen Feldes vermittelte Wechselwirkung zwischen dem Photon und dem Atom beschreibt. Der erste Term des Wechselwirkungsoperators ist linear im Vektorpotential und entspricht einer einmaligen Wechselwirkung zwischen dem Photon und dem Atom (Absorption eines Photons). Der zweite Term entspricht aufgrund der quadratischen Abhängigkeit vom Vektorpotential einer zweifachen Wechselwirkung (Absorption und Reemission eines Photons) und kann daher zur Beschreibung der Photoionisation vernachlässigt werden [3]:

$$\hat{H} = \underbrace{\frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} + V(\mathbf{r})}_{\hat{H}_0} - \underbrace{\frac{e}{m}\mathbf{A}\hat{\mathbf{p}}}_{\hat{H}_{WW}} \tag{2.8}$$

Das Vektorpotential ist in der Regel derart klein, dass die Photoionisation im Rahmen der zeitabhängigen Störungstheorie betrachtet werden kann. Hierzu wird das Vektorpotential durch eine ebene Welle dargestellt und in eine Potenzreihe entwickelt [3]:

$$\mathbf{A} \propto e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} = 1 + i\mathbf{k}\mathbf{r} + \mathcal{O}(\mathbf{k}^2) \tag{2.9}$$

Unter dem Einfluss des im Wechselwirkungsoperator auftretenden Vektorpotentials erfolgt der Übergang vom Anfangszustand Ψ_i (gebundener Zustand) in den Endzustand

³Da das Vektorpotential \mathbf{A} des elektromagnetischen Feldes invariant unter Eichtransformation ist, wird die Coulomb-Eichung $\nabla\mathbf{A} = 0$ zur Vereinfachung des Hamilton-Operators verwendet.

Ψ_f (Kontinuumszustand) des Elektrons. Dieser Übergang wird durch das Übergangsmatrixelement beschrieben⁴ [4]:

$$\begin{aligned}
M_{i \rightarrow f} &= \int d^3r \Psi_f^* \hat{H}_{WW} \Psi_i \\
&\propto \int d^3r \Psi_f^* (\mathbf{A} \hat{\mathbf{p}}) \Psi_i \\
&\propto \int d^3r \Psi_f^* (\hat{\mathbf{p}} \mathbf{A}) \Psi_i
\end{aligned} \tag{2.10}$$

Das Betragsquadrat des Übergangsmatrixelements bestimmt die Übergangswahrscheinlichkeit vom Anfangszustand Ψ_i in den Endzustand Ψ_f des Elektrons und somit den Wirkungsquerschnitt der Photoionisation [5]:

$$\sigma = 4\pi^2 \alpha E_\gamma |M_{i \rightarrow f}|^2 \tag{2.11}$$

Dabei gibt die Feinstruktur-Konstante α die Stärke der elektromagnetischen Wechselwirkung an.

⁴Aufgrund der Coulomb-Eichung kann die Vertauschungsrelation $\nabla(\mathbf{A}\Psi) = (\nabla\mathbf{A})\Psi + \mathbf{A}(\nabla\Psi) = \mathbf{A}(\nabla\Psi)$ zur Umformung des Übergangsmatrixelements verwendet werden.

Dipol-Näherung

Die Dipol-Näherung entspricht mathematisch dem Abbruch der Reihenentwicklung (siehe Gleichung 2.9) nach dem führenden Term. Physikalisch ist dies eine gute Näherung, wenn die Wellenlänge der elektromagnetischen Strahlung groß gegenüber der Verteilung der Elektronen bzw. der Ausdehnung des relevanten Bereichs der Elektronenwellenfunktion ist. Dies hat zur Konsequenz, dass der Photonenimpuls vernachlässigt werden kann⁵. In der Dipol-Näherung gilt für den differentiellen Wirkungsquerschnitt der Photoionisation mit linear polarisiertem Licht [6]:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta') = \frac{\sigma}{4\pi} \left[1 + \frac{\beta}{2}(3\cos^2\theta' - 1) \right] \quad (2.12)$$

Der Polarwinkel θ' entspricht dem Winkel zwischen dem Impulsvektor des Photoelektrons und dem Polarisationsvektor des linear polarisierten Lichts⁶. Der Anisotropieparameter β hat einen Wertebereich von $-1 \leq \beta \leq 2$ und bestimmt die Form der Photoelektronen-Emissionswinkelverteilung [6].

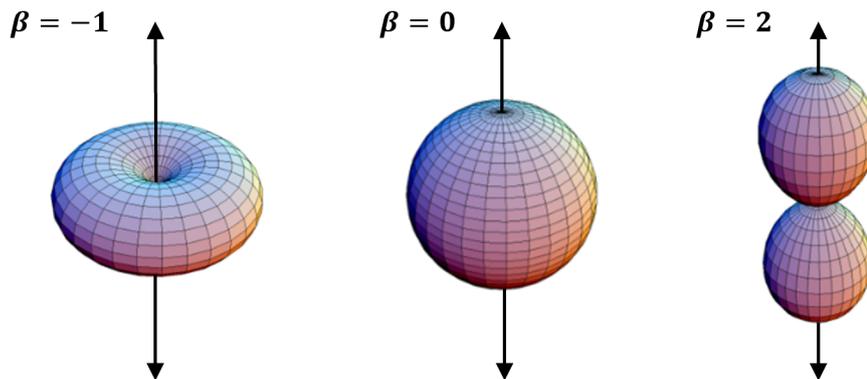


Abbildung 2.4: In sphärischen Koordinaten dargestellte Photoelektronen-Emissionswinkelverteilungen für verschiedene Anisotropieparameter β . Die Doppelpfeile symbolisieren die Polarisationsrichtung des linear polarisierten Lichts [7].

Bei einer K-Schalen-Photoionisation nimmt das 1s-Elektron mit $l = 0$ den Drehimpuls des Photons auf, wodurch ein Photoelektron mit $l = 1$ emittiert wird. Die Emissionswinkelverteilung des Photoelektrons hat die Form eines p-Orbitals und wird durch den Anisotropieparameter $\beta = 2$ beschrieben [6].

⁵Der Zusammenhang zwischen der Wellenlänge λ und der Wellenzahl k ist gegeben durch $k = \frac{2\pi}{\lambda}$. Die Wellenzahl k ist mit dem Betrag des Impulses p verknüpft durch $p = \hbar k$.

⁶Das dem differentiellen Wirkungsquerschnitt der Photoionisation zugrunde liegende sphärische Koordinatensystem wird als Theorie-System bezeichnet und in Anhang A.1 näher erläutert.

Nichtdipol-Näherung

In der Nichtdipol-Näherung werden weitere Terme der Reihenentwicklung des Vektorpotentials (siehe Gleichung 2.9) und damit der Linearimpuls des Photons berücksichtigt. Eine Vereinfachung der Nichtdipol-Näherung ist die Dipol-Quadrupol-Näherung, bei der nur die beiden führenden Terme der Reihenentwicklung betrachtet werden. In dieser Näherung teilt sich das Übergangsmatrixelement (siehe Gleichung 2.10) in einen elektrischen Dipolterm \mathcal{D}_e und einen elektrischen Quadrupolterm \mathcal{Q}_e auf [8]:

$$\mathcal{D}_e \propto \int d^3r \Psi_f^* \nabla \Psi_i \quad (2.13)$$

$$\mathcal{Q}_e \propto \int d^3r \Psi_f^* \nabla i \mathbf{kr} \Psi_i \quad (2.14)$$

Für den differentiellen Wirkungsquerschnitt der Photoionisation mit linear polarisiertem Licht gilt in der Dipol-Quadrupol-Näherung [8]:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta', \phi') = \frac{\sigma}{4\pi} \left[1 + \frac{\beta}{2}(3\cos^2\theta' - 1) + (\gamma\cos^2\theta' + \delta)\sin\theta'\cos\phi' \right] \quad (2.15)$$

Der Azimutwinkel ϕ' wird relativ zur Ausbreitungsrichtung des Lichts angegeben⁷. Der Asymmetrieparameter γ beschreibt das Verhältnis von elektrischem Quadrupol- zu elektrischem Dipolterm und der Asymmetrieparameter δ das Verhältnis von elektrischem zu magnetischem Dipolterm [8]:

$$\gamma \propto \frac{|\mathcal{Q}_e|}{|\mathcal{D}_e|} \quad (2.16)$$

$$\delta \propto \frac{|\mathcal{D}_e|}{|\mathcal{D}_m|} \quad (2.17)$$

Bei einer K-Schalen-Photoionisation gilt für den Anfangszustand des Elektrons $m_l = 0$. Aufgrund dessen existiert kein magnetischer Dipolterm und es gilt $\delta = 0$.

⁷Das dem differentiellen Wirkungsquerschnitt der Photoionisation zugrunde liegende sphärische Koordinatensystem wird als Theorie-System bezeichnet und in Anhang A.1 näher erläutert.

Anschauliche Erklärung der Nichtdipol-Näherung

In der Nichtdipol-Näherung werden weitere Terme der Reihenentwicklung berücksichtigt. Dabei gibt der führende Dipolterm den Drehimpuls-Übertrag vom Photon auf das Atom an. Die Terme höherer Ordnung beschreiben den Linearimpuls-Übertrag des Photons, durch den ein Drehimpuls im Atom induziert wird⁸.

Bei einer K-Schalen-Photoionisation wird dem Photoelektron durch den Dipolterm ein Drehimpuls von $l = 1$ und durch den Quadrupolterm ein Drehimpuls von $l = 2$ zugeordnet. Unter Verwendung von linear polarisiertem Licht wird der Zustand des Photoelektrons demnach durch die Kugelflächenfunktionen Y_{10} und Y_{20} beschrieben. Abhängig von der relativen Phase zwischen dem Dipol- und Quadrupolterm bewirkt die Überlagerung der beiden Zustände in der Dipol-Quadrupol-Näherung eine Kippung der Photoelektronen-Emissionswinkelverteilung in oder gegen die Lichtausbreitungsrichtung⁹ [9].

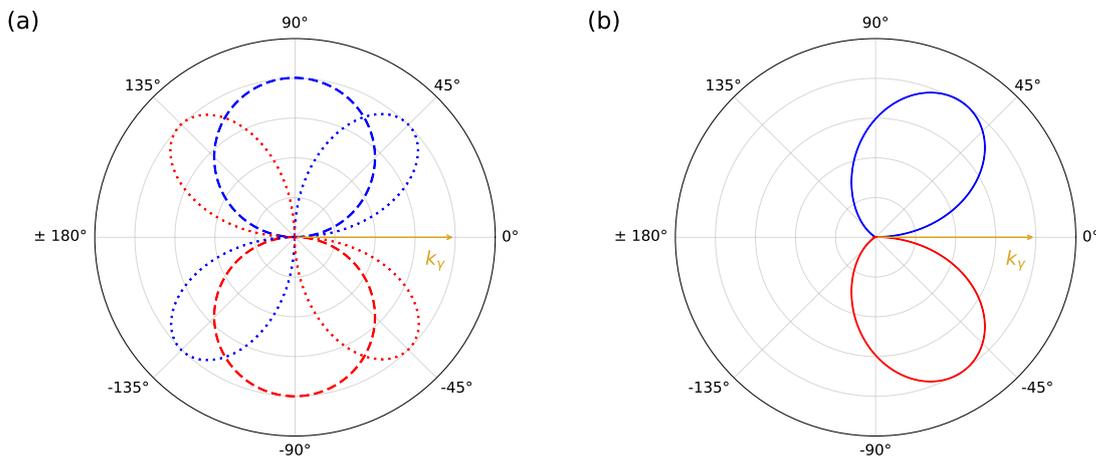


Abbildung 2.5: Effekt der Dipol-Quadrupol-Näherung auf die Photoelektronen-Emissionswinkelverteilung: (a) Amplituden der normierten Kugelflächenfunktionen Y_{10} (gestrichelt) und Y_{20} (gepunktet) in Polardarstellung. Rote Bereiche entsprechen einer positiven und blaue Bereiche einer negativen Phase der Kugelflächenfunktionen. (b) Die kohärente Überlagerung der Amplituden bewirkt eine Kippung der Photoelektronen-Emissionswinkelverteilung in Lichtausbreitungsrichtung. Graphik in Anlehnung an [9].

⁸Beschreibt der Vektor \mathbf{r} die Position eines Elektrons relativ zum Atomkern und der Vektor \mathbf{p} den auf das Atom übertragenen Linearimpuls des Photons, so kann der induzierte Drehimpuls klassisch verstanden werden als $\mathbf{l} = \mathbf{r} \times \mathbf{p}$.

⁹Wenn das Bindungspotential vernachlässigt wird erfolgt die Kippung der Emissionswinkelverteilung in Lichtausbreitungsrichtung. Wenn die Ionisation hingegen in einem komplexeren Potential und nahe der Schwelle stattfindet, so kann die Phasenänderung zwischen dem Dipol- und Quadrupolterm zu einer Kippung der Emissionswinkelverteilung entgegen der Lichtausbreitungsrichtung führen.

Einfluss der Bindungsenergie auf Nichtdipol-Effekte

Bereits im Jahr 1930 wurde von Sommerfeld und Schur die Vorhersage getroffen, dass bei der Photoionisation mit kurzwelligem Licht die Impulsverteilung der Photoelektronen asymmetrisch in Lichtausbreitungsrichtung verschoben ist und das Photoelektron im Mittel mehr Vorwärts-Impuls erhält als es aufgrund des Impulsübertrags durch das Photon zu erwarten wäre [10]. Konkret kann diese Verschiebung durch die mittleren Impulse der Ionen und Photoelektronen in Lichtausbreitungsrichtung beschrieben werden [11]:

$$\langle p_{x,e} \rangle = +\frac{8 E_e}{5 c} = +\frac{8 E_\gamma}{5 c} - \frac{8 E_b}{5 c} \quad (2.18)$$

$$\langle p_{x,i} \rangle = -\frac{3 E_e}{5 c} + \frac{E_b}{c} = -\frac{3 E_\gamma}{5 c} + \frac{8 E_b}{5 c} \quad (2.19)$$

Hierbei ist die kinetische Energie des Photoelektrons $E_e = E_\gamma - E_b$ durch die Differenz der Photonenenergie E_γ und der Bindungsenergie eines Elektrons E_b bestimmt. Anhand von Gleichung 2.18 zeigt sich für $E_\gamma > 8/3 E_b$ der Zusammenhang $\langle p_{x,e} \rangle > p_\gamma$ und das Photoelektron erhält im Mittel mehr Vorwärts-Impuls als durch das Photon bereitgestellt wird [11].

Grundmann et al. haben für vernachlässigbare Bindungsenergien bereits nachgewiesen, dass die Gleichungen 2.18 und 2.19 eine hervorragende Beschreibung experimenteller Daten liefern (siehe Abbildung 2.6) [12]. In dieser Arbeit soll nun erstmals der Einfluss der Bindungsenergie auf die mittleren Impulse der Ionen und Photoelektronen untersucht werden (siehe Abschnitt 5.2).

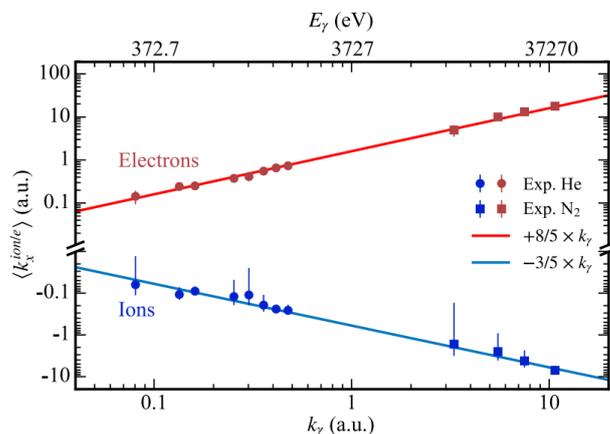


Abbildung 2.6: Mittlere Impulse der Photoelektronen (rot) und Ionen (blau) in Lichtausbreitungsrichtung (x-Richtung) in Abhängigkeit der Photonenenergie E_γ (obere Skala) und des Photonenimpulses $k_\gamma = E_\gamma/c$ (untere Skala). Betrachtet wird die Photoionisation von He mit zirkular polarisiertem Licht (Kreise) sowie die K-Schalen-Photoionisation mit nachfolgendem Auger-Zerfall von N_2 mit linear polarisiertem Licht (Quadrate). Die Linien zeigen die ersten Terme der Gleichungen 2.18 und 2.19, da die Bindungsenergie E_b für einen Vergleich von He und N_2 vernachlässigt wird. Graphik entnommen aus [12].

2.2.2 Compton-Effekt

Im Gegensatz zur Photoionisation wird beim Compton-Effekt lediglich ein Teil der Energie E_γ des Photons auf das Atom übertragen. Dadurch kann ein schwach gebundenes Elektron einer äußeren Schale emittiert werden, welches als Compton-Elektron bezeichnet wird. Das Photon wird mit geringerer Energie E_γ' unter einem Winkel φ abgelenkt (siehe Abbildung 2.7).

Wenn der Impulsübertrag des Photons sehr groß ist, kann das Elektron im Endzustand als quasifrei behandelt und die Wechselwirkung mit dem Coulombpotential vernachlässigt werden. In diesem Fall kann der Impulsübertrag vom quasifreien Elektron auf das Ion vernachlässigt werden und das Ion hat nur den Impuls des Elektrons im Anfangszustand.

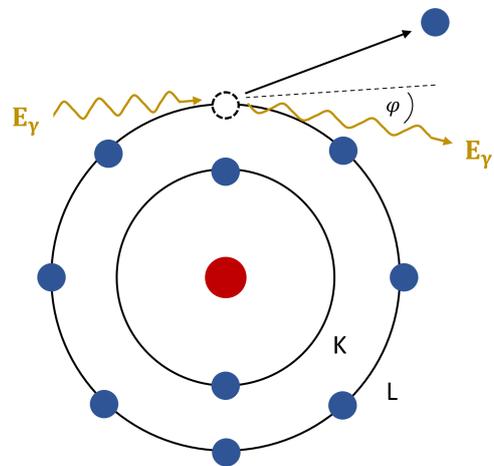


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung des Compton-Effekts am Beispiel eines Neon-Atoms: Ein Teil der Energie E_γ des Photons wird auf das Neon-Atom übertragen, wodurch ein schwach gebundenes Elektron einer äußeren Schale emittiert wird. Das Photon wird mit geringerer Energie E_γ' unter einem Winkel φ abgelenkt.

2.2.3 Auger-Zerfall

Nach der Ionisation einer inneren Schale befindet sich ein Atom in einem angeregten Zustand. Ein möglicher Abregungsmechanismus ist der Auger-Zerfall, bei dem die Vakanz einer inneren Schale von einem Elektron einer äußeren Schale gefüllt wird. Durch die freiwerdende Energie kann die Bindung zwischen dem Atomkern und einem Elektron gebrochen werden. Das emittierte Elektron wird als Auger-Elektron bezeichnet.

Nomenklatur

Die Nomenklatur beschreibt die an einem Auger-Zerfall beteiligten Energieniveaus. Beispielsweise wird bei einem KLM-Auger-Zerfall eine Vakanz in der K-Schale von einem L-Schalen-Elektron gefüllt und durch die freiwerdende Energie ein M-Schalen-Elektron emittiert. Die kinetische Energie E_{aug} und der Impuls p_{aug} dieses Auger-Elektrons sind daher durch die negativen Bindungsenergien E_{b_K} , E_{b_L} und E_{b_M} eines K-, L- und M-Schalen-Elektrons bestimmt:

$$E_{aug} = E_{b_L} - E_{b_K} + E_{b_M} \quad (2.20)$$

$$p_{aug} = \sqrt{2m_e E_{aug}} \quad (2.21)$$

Die kinetischen Energien und Impulse von Auger-Elektronen aus anderen Auger-Zerfällen lassen sich durch Verwendung der entsprechenden Bindungsenergien analog berechnen.

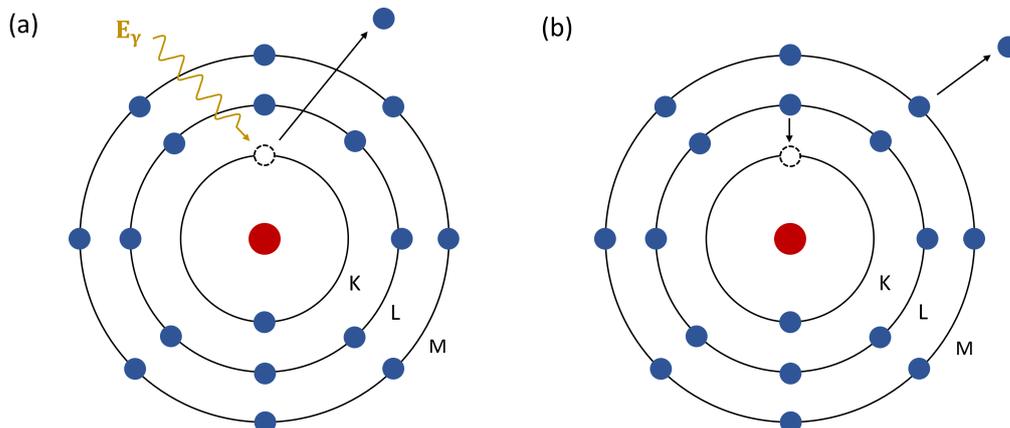


Abbildung 2.8: Schematische Darstellung eines KLM-Auger-Zerfalls am Beispiel eines Argon-Atoms: (a) Durch Photoionisation wird ein K-Schalen-Elektron emittiert. (b) Die Vakanz in der K-Schale wird durch ein L-Schalen-Elektron gefüllt. Die freiwerdende Energie führt zur Emission eines M-Schalen-Elektrons.

3 Experimenteller Aufbau

3.1 Synchrotronstrahlung

Ein Synchrotron ist ein Ringbeschleuniger, in dem geladene Teilchen auf eine Kreisbahn gelenkt und auf nahezu Lichtgeschwindigkeit beschleunigt werden. Der grundlegende Aufbau eines Synchrotrons umfasst daher mehrere Ablenkmagnete und geradlinige Beschleunigungsstrecken. Bewegen sich die geladenen Teilchen durch das magnetische Feld eines Ablenkmagneten, so werden sie aufgrund der Lorentz-Kraft abgelenkt. Die Ablenkung auf eine Kreisbahn entspricht einer beschleunigten Bewegung, bei der die geladenen Teilchen einen Teil ihrer kinetischen Energie in Form von elektromagnetischer Strahlung abgeben. Diese Art der Bremsstrahlung wird als Synchrotronstrahlung bezeichnet und erfolgt aufgrund der Transformation zwischen dem Labor-System und dem Ruhesystem des geladenen Teilchens tangential zur Kreisbahn. Die (Nach-)Beschleunigung der geladenen Teilchen erfolgt in den geradlinigen Beschleunigungsstrecken durch hochfrequente elektrische Wechselfelder [5].

Eine Synchrotron-Anlage besteht in der Regel aus einem Linearbeschleuniger, einem Synchrotron und einem Speicherring. Die im Linearbeschleuniger vorbeschleunigten geladenen Teilchen (typischerweise Elektronen) werden im Synchrotron auf nahezu Lichtgeschwindigkeit beschleunigt und an den Speicherring weitergegeben. Ein Speicherring ist eine Sonderform des Synchrotrons und dient der langen Aufrechterhaltung des Teilchenstroms. Die von den sich mit relativistischer Geschwindigkeit bewegendem Teilchen abgegebene Synchrotronstrahlung kann an tangential zum Speicherring verlaufenden Strahlrohren (engl. *beamlines*) abgegriffen und einem Experiment zur Verfügung gestellt werden.

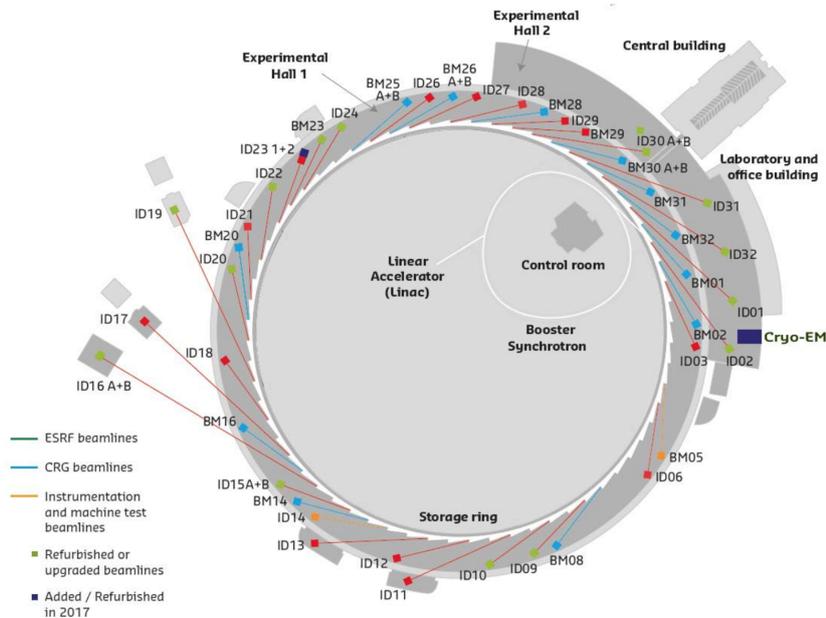


Abbildung 3.1: Übersicht der Synchrotron-Anlage der ESRF (Grenoble, Frankreich) [13].

Undulatoren

Um eine höhere Brillanz der Synchrotronstrahlung zu erreichen, können im Speicherring sogenannte Undulatoren verbaut werden. Ein Undulator besteht aus periodisch angeordneten Dipolmagneten mit abwechselnder Polung und dient der Erzeugung eines magnetischen Feldes, durch das geladene Teilchen zur Oszillation gezwungen werden. Die bei jeder Ablenkung der geladenen Teilchen emittierte Synchrotronstrahlung interferiert bei bestimmten Wellenlängen konstruktiv. Um eine dieser Wellenlängen zu selektieren und für ein Experiment bereitzustellen, können Monochromatoren in der *beamline* verwendet werden¹⁰ [5].

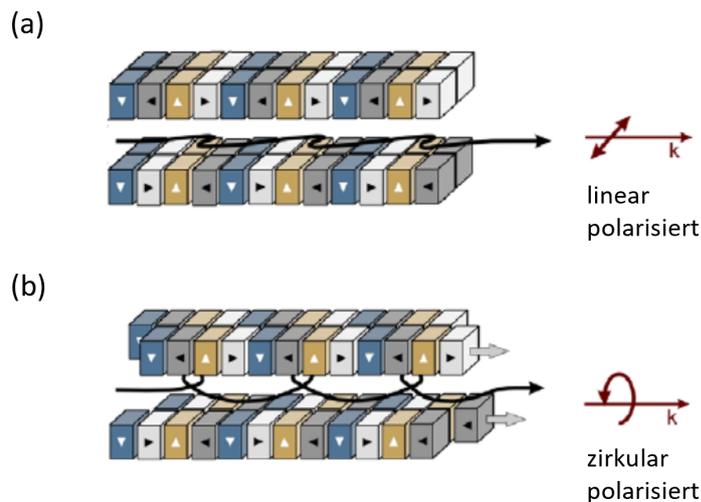


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung des Aufbaus und der Funktionsweise eines Undulators: Je nach Anordnung der Dipolmagnete werden geladene Teilchen auf unterschiedliche Trajektorien gezwungen. Die dabei emittierte Synchrotronstrahlung kann (a) linear polarisiert oder (b) zirkular polarisiert sein. Graphik entnommen und modifiziert aus [14].

Bunching

Aufgrund der Beschleunigung durch hochfrequente elektrische Wechselfelder werden die geladenen Teilchen zu Teilchenpaketen (engl. *bunches*) gebündelt. Die Anzahl der sich in einem Synchrotron befindenden Teilchenpakete wird durch den Bunch-Modus festgelegt. Im Multibunch-Modus befinden sich beispielsweise viele Teilchenpakete gleichzeitig im Synchrotron. Dabei markiert das Bunchmarker-Signal den Zeitpunkt, zu dem ein Teilchenpaket einen bestimmten Punkt im Speicherring passiert. Der Bunchmarker-Abstand entspricht der zeitlichen Differenz zweier Bunchmarker-Signale und somit auch der zeitlichen Differenz der in einer COLTRIMS-Apparatur eintreffenden Photonenpulse [5].

¹⁰Bei dem in dieser Arbeit diskutierten Experiment wurde aufgrund des extrem kleinen Wirkungsquerschnitts für Photoionisation bei der verwendeten Photonenenergie von 20 keV ein spezieller breitbandiger Monochromator eingesetzt. Eine detaillierte Beschreibung der Funktionsweise solcher Monochromatoren findet sich in [20].

3.2 COLTRIMS

COLTRIMS (Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy) ist eine experimentelle Technik zur koinzidenten Messung der Impulse von atomaren und molekularen Reaktionsfragmenten. Bei den untersuchten Reaktionen handelt es sich oftmals um durch hochenergetische elektromagnetische Strahlung ausgelöste Ionisationsprozesse. Hierzu wird die von einem Speicherring bereitgestellte Synchrotronstrahlung mit einem Gasstrahl aus den zu untersuchenden Atomen oder Molekülen gekreuzt. Der Bereich des Überlapps von Synchrotronstrahlung und Gasstrahl wird als Reaktionsvolumen bezeichnet. Bei Ionisationsprozessen sind die im Reaktionsvolumen entstehenden Fragmente positiv geladene Ionen und negativ geladene Elektronen. Die Reaktionsfragmente werden durch das elektrische Feld einer Kupferplatten-Anordnung und das magnetische Feld eines Helmholtz-Spulenpaares auf orts- und zeitauflösende Detektoren gelenkt. Durch eine Messung der Detektionsorte und Flugzeiten sind die Impulse der Fragmente zum Reaktionszeitpunkt rekonstruierbar [15].

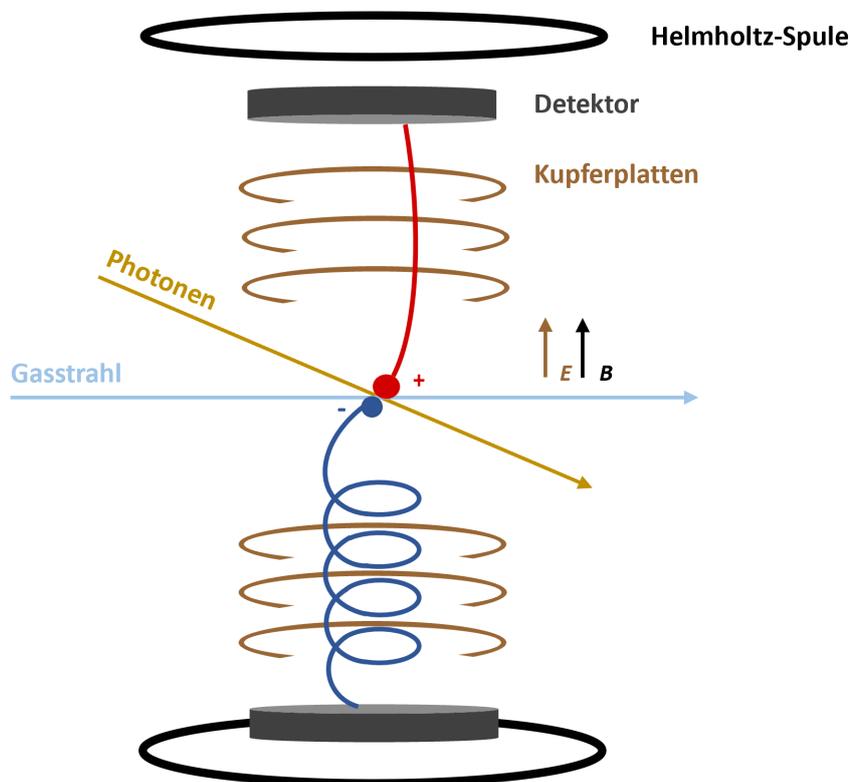


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung einer COLTRIMS-Apparatur: Durch die Wechselwirkung zwischen einem Photonenstrahl und einem Gasstrahl aus den zu untersuchenden Atomen oder Molekülen entstehen positiv geladene Ionen und negativ geladene Elektronen. Diese Reaktionsfragmente werden durch das elektrische Feld einer Kupferplatten-Anordnung und das magnetische Feld eines Helmholtz-Spulenpaares auf orts- und zeitauflösende Detektoren gelenkt. Graphik in Anlehnung an [16].

3.2.1 Gasjet

Für eine möglichst exakte Rekonstruktion der Impulse der Reaktionsfragmente ist eine schmale Anfangsimpulsverteilung und somit eine geringe thermische Bewegung der Gasatome oder -moleküle erforderlich. Diese Kühlung kann durch eine Überschallgasexpansion realisiert werden, bei der die Gasatome oder -moleküle durch eine wenige μm große Düse in eine Expansionskammer niedrigeren Drucks expandieren. Direkt hinter der Düse entstehen durch Kollision der Gasteilchen mit dem Restgas der Expansionskammer diverse Kompressions- und Schockwellen. Die sich ausbildenden Randschockzonen umschließen einen Bereich, in dem die Gasteilchen eine gerichtete Bewegung ausführen und daher kaum miteinander wechselwirken. Dieser Bereich wird auch als *Zone of Silence* bezeichnet [17].

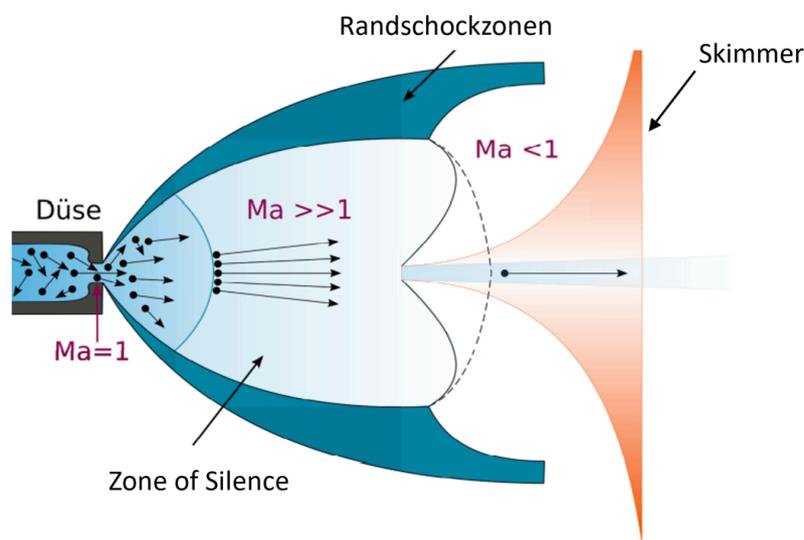


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung einer Überschallgasexpansion: Das Verhältnis zwischen der Strömungsgeschwindigkeit v der Gasteilchen und der Schallgeschwindigkeit c_s wird durch die Mach-Zahl $Ma = \frac{v}{c_s}$ angegeben. Graphik entnommen und modifiziert aus [18].

Ein in die *Zone of Silence* eintauchender trichterförmiger Strahlschäler (engl. *Skimmer*) ermöglicht die Selektion von Gasteilchen mit gerichteter Bewegung. Da sich die Gasteilchen allerdings nicht exakt parallel zueinander bewegen, ist der erzeugte Gasstrahl (engl. *Jet*) leicht divergent. Die Kollimation des *Jets* erfolgt in der Regel durch die Verwendung mehrerer Expansionsstufen und *Skimmer*¹¹ [17].

¹¹Durch die Kollimation des *Jets* wird das Reaktionsvolumen minimiert und eine genauere Impulsmessung der Reaktionsfragmente ermöglicht.

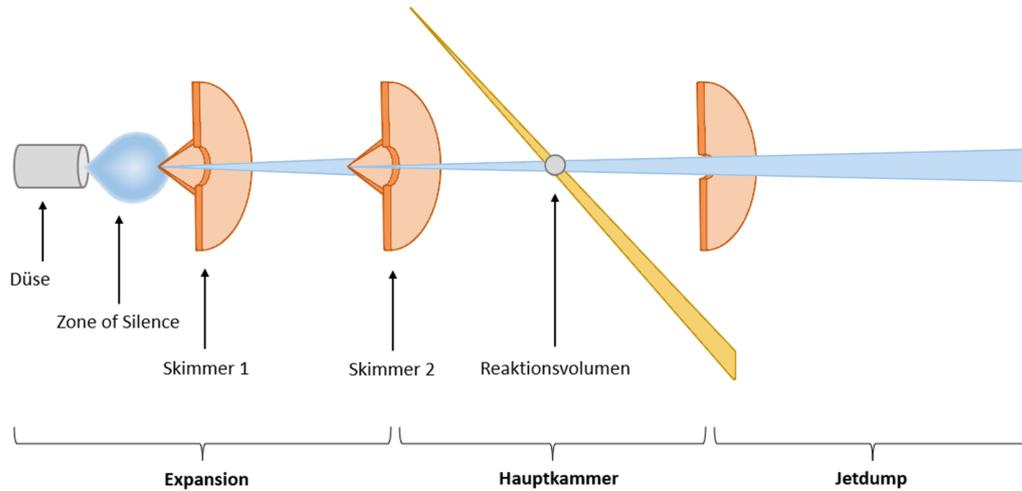


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung des Gasstrahl-Verlaufs in einem COLTRIMS-Experiment: Nach einer Überschallgasexpansion führen Gasatome oder -moleküle in der *Zone of Silence* eine gerichtete Bewegung aus und werden durch einen *Skimmer* selektiert. Der erzeugte Gasstrahl oder kurz *Jet* wird durch einen weiteren *Skimmer* kollimiert und in der Hauptkammer mit Synchrotronstrahlung gekreuzt. Nicht ionisierte Gastatome oder -moleküle gelangen in den *Jetdump* und werden dort abgepumpt. Graphik in Anlehnung an [3].

Der im Reaktionsvolumen stattfindende Überlapp von Synchrotronstrahlung und *Jet* ermöglicht die Ionisation der Gasteilchen. Ionisierte Gasteilchen werden durch das elektrische und magnetische Führungsfeld des Spektrometers in Richtung der jeweiligen Detektoren gelenkt (siehe Abschnitt 3.2.2.1). Nicht ionisierte Gasteilchen gelangen in den sogenannten *Jetdump* und werden dort abgepumpt. Ein *Jetdump* besteht in der Regel aus zwei differentiellen Pumpstufen, sodass die Rückströmung der Gasteilchen in die Hauptkammer minimiert und das dort vorherrschende Ultrahochvakuum aufrecht erhalten werden kann [17].

3.2.2 Spektrometer

Das Spektrometer einer COLTRIMS-Apparatur ermöglicht die Ablenkung der Reaktionsfragmente in Richtung der Detektoren durch ein elektrisches und magnetisches Führungsfeld sowie die Detektion der Fragmente durch orts- und zeitauflösende Detektoren.

3.2.2.1 Elektrisches und magnetisches Führungsfeld

Das elektrische Feld wird durch eine Anordnung aus quadratischen Kupferplatten erzeugt, die über Widerstände miteinander verbunden und entsprechend des Durchmessers der für den Teilchennachweis verwendeten Mikrokanalplatte kreisförmig ausgespart sind (siehe Abschnitt 3.2.2.2). Durch Anlegen einer Hochspannung an den Endplatten erfolgt ein gleichmäßiger Spannungsabfall zwischen jeweils zwei Platten, sodass innerhalb der Aussparung ein näherungsweise homogenes elektrisches Feld erzeugt wird. Durch das elektrische Feld werden die Reaktionsfragmente entsprechend ihrer elektrischen Ladung in Richtung des jeweiligen Detektors abgelenkt. Die Elektronen haben allerdings in der Regel derart hohe Geschwindigkeiten, dass das elektrische Feld für eine Ablenkung in Richtung des Detektors nicht ausreicht. Dem elektrischen Feld wird daher ein durch ein Helmholtz-Spulenpaar erzeugtes magnetisches Feld überlagert, wodurch die Elektronen auf eine Schraubenbahn gezwungen werden und eine Gyrationbewegung ausführen. Die Ionen werden aufgrund ihrer geringen Geschwindigkeit kaum durch das magnetische Feld abgelenkt, sodass deren Gyrationbewegung vernachlässigt werden kann.

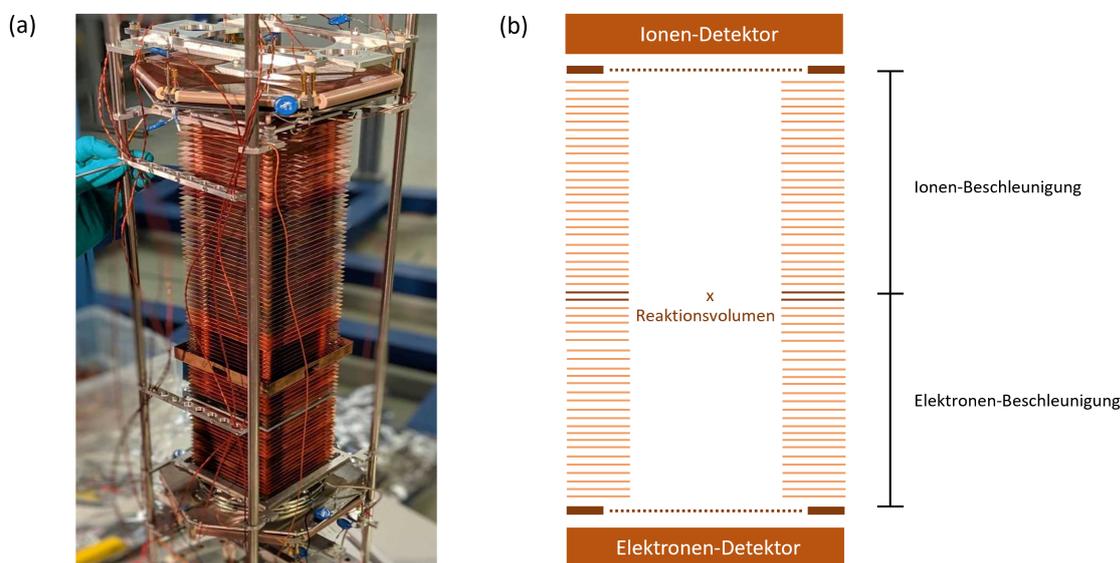


Abbildung 3.6: (a) Fotografie der Kupferplatten-Anordnung eines für ein COLTRIMS-Experiment verwendeten Spektrometers. Graphik entnommen aus [19]. (b) Schematische Darstellung der Kupferplatten-Anordnung eines Spektrometers. Graphik in Anlehnung an [20].

Das Spektrometer einer COLTRIMS-Apparatur enthält in der Regel fokussierende Elemente, um die im Reaktionsvolumen entstehenden Reaktionsfragmente gleicher Startgeschwindigkeit auf gleiche Detektionsorte und Flugzeiten zu projizieren.

Ortsfokussierung

Die Ortsfokussierung kann durch einen erhöhten Spannungsabfall zwischen zwei Spektrometerplatten realisiert werden. Das dadurch erzeugte inhomogene elektrische Feld wirkt als elektrostatische Linse, sodass die im Reaktionsvolumen entstehenden Reaktionsfragmente auf einen Detektionsort fokussiert werden [17].

Flugzeitfokussierung

Die im Reaktionsvolumen entstehenden Fragmente erfahren abhängig von ihrem Entstehungsort für eine bestimmte Zeitdauer die Beschleunigung durch das elektrische Feld. Weiter entfernt vom zugehörigen Detektor entstehende Fragmente erfahren für eine längere Zeit eine Beschleunigung und haben daher am Ende des elektrischen Feldes eine höhere Geschwindigkeit als näher am Detektor entstehende Fragmente. Die Flugzeitfokussierung erfolgt durch einen feldfreien Driftbereich, in dem die weiter vom Detektor entfernt startenden Fragmente höherer Geschwindigkeit die näher am Detektor startenden Fragmente geringerer Geschwindigkeit einholen können. Damit die Fragmente zeitgleich am zugehörigen Detektor ankommen, sollte die Länge der Driftstrecke gerade der doppelten Länge der Beschleunigungsstrecke entsprechen (Wiley-McLaren-Geometrie) [17, 21].

3.2.2.2 Detektoren

Die Detektoren befinden sich jeweils am Ende der Spektrometerplatten-Anordnung. Da die Detektoren für die Ionen- und Elektronenseite in der Regel baugleich sind, werden beide im folgenden Abschnitt als Detektor bezeichnet. Ein Detektor besteht aus zwei Mikrokanalplatten und einer sogenannten *Delay-Line-Anode*.

Mikrokanalplatte

Eine Mikrokanalplatte oder kurz *MCP* (engl. *microchannel plate*) ist ein Sekundärelektronenvervielfacher in Form einer dünnen Bleiglasplatte, in die zahlreiche Kanäle mit einem Durchmesser von 25-50 μm eingelassen sind. Dabei sind die Kanäle um einen Winkel von etwa 10° gekippt, sodass auch ein senkrecht zur Oberfläche eintreffendes Reaktionsfragment mit der Innenwand eines Kanals kollidiert. Die Innenwand eines Kanals ist derart beschichtet, dass nur eine geringe Austrittsarbeit zum Herauslösen von Elektronen erforderlich ist. Trifft daher eines der Reaktionsfragmente mit ausreichend Energie auf die Innenwand eines Kanals, so werden Elektronen herausgelöst. Diese Elektronen werden durch eine am *MCP* angelegte Spannung beschleunigt und können dadurch wiederum Elektronen aus dem Material lösen. Um diesen Effekt der Vervielfachung zu verstärken, werden zwei *MCPs* in entgegengesetzter Orientierung übereinander gestapelt (Chevron-Anordnung) [22].

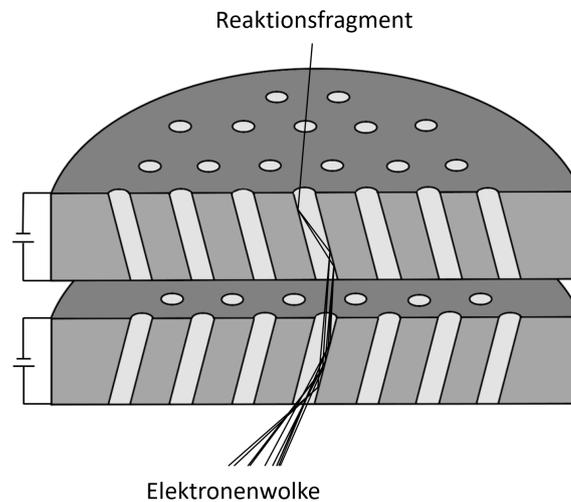


Abbildung 3.7: Schematische Darstellung zweier *MCPs* in Chevron-Anordnung: Ein Reaktionsfragment trifft mit ausreichend Energie auf die Innenwand eines *MCP*-Kanals, sodass Elektronen aus dem Material herausgelöst werden. Diese Elektronen werden durch eine am *MCP* angelegte Spannung beschleunigt, wodurch sie bei der Kollision mit der Innenwand weitere Elektronen herauslösen können. Der Effekt der Vervielfachung wird durch die zwei in entgegengesetzter Orientierung übereinander gestapelten *MCPs* in Chevron-Anordnung verstärkt. Graphik in Anlehnung an [23].

Delay-Line-Anode

Eine *Delay-Line-Anode* besteht aus zwei oder drei eng um eine Metallhalterung gewickelten Drahtlagen¹². Die aus den *MCPs* austretende Elektronenwolke induziert beim Auftreffen auf die *Delay-Line-Anode* in jedem Draht einen elektrischen Spannungspuls. Dieses Signal breitet sich mit einer durch das Drahtmaterial vorgegebenen und konstanten Geschwindigkeit in Richtung der beiden Drahtenden aus. Bei bekannter Drahtlänge kann dann über den Laufzeitunterschied des Signals der Detektionsort rekonstruiert werden (siehe Abschnitt 4.2).

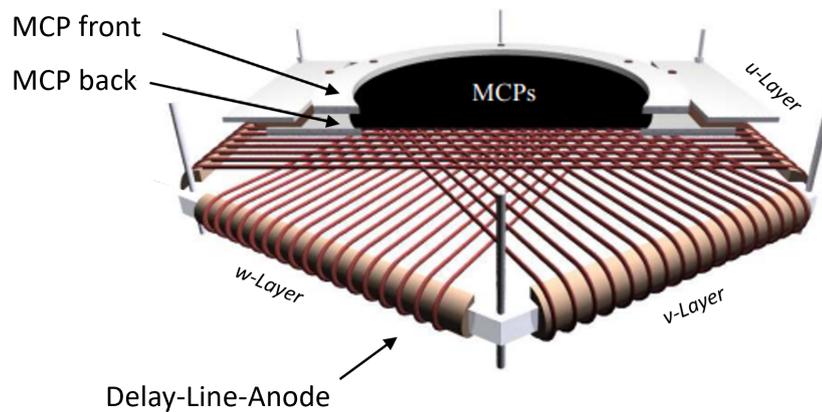


Abbildung 3.8: Schematische Darstellung eines Detektors mit zwei *MCPs* und einer hexagonalen *Delay-Line-Anode*: Das *MCP front* befindet sich näher am Reaktionsvolumen als das *MCP back*. Die drei Drahtlagen der hexagonalen *Delay-Line-Anode* werden als *u*-, *v*- und *w-Layer* bezeichnet. Graphik entnommen und modifiziert aus [24].

Zur Minimierung von Störsignalen besteht jede Drahtlage aus einem Signal- und einem Referenzdraht. Damit die Elektronen primär zum Signaldraht beschleunigt werden, liegt dieser auf einem höheren elektrischen Potential als der Referenzdraht. Die auf beiden Drähten gleichermaßen induzierten Störsignale können durch einen Differenzverstärker minimiert werden [22].

¹²Eine *Delay-Line-Anode* aus zwei Drahtlagen wird als Quad-Anode bezeichnet. Bei fehlenden oder zu schwachen Signalen einer Drahtlage kann der Detektionsort allerdings nur dann rekonstruiert werden, wenn eine dritte Drahtlage ein Signal liefert. Eine aus drei Drahtlagen bestehende *Delay-Line-Anode* wird Hex-Anode genannt.

3.2.3 Signalverarbeitung und Datenaufnahme

Jeder Detektor liefert sechs Anodensignale und ein *MCP*-Signal, wobei aus den Anodensignalen der Detektionsort und aus dem *MCP*-Signal die Flugzeit eines Reaktionsfragments ermittelt werden kann. Die Flugzeit entspricht der Zeitdifferenz zwischen dem Reaktionszeitpunkt und dem Auftreffen des Reaktionsfragments auf dem entsprechenden Detektor. Der Reaktionszeitpunkt kann mithilfe des von der Synchrotron-Anlage bereitgestellten Bunchmarker-Signals ermittelt werden.

Die Signale liegen zunächst in Form von gaußförmigen Spannungspulsen vor, deren Pulshöhe durch einen schnellen Vorverstärker oder kurz *FAMP* (engl. *fast amplifier*) erhöht wird. Anschließend werden die Spannungspulse durch einen *CFD* (engl. *constant fraction discriminator*) in rechteckige *NIM*-Pulse umgewandelt. Die Zeitdifferenzen zwischen den *NIM*-Pulsen können mithilfe eines *TDC* (engl. *time-to-digital converter*) in digitale Signale umgeschrieben und an den Messrechner weitergegeben werden.

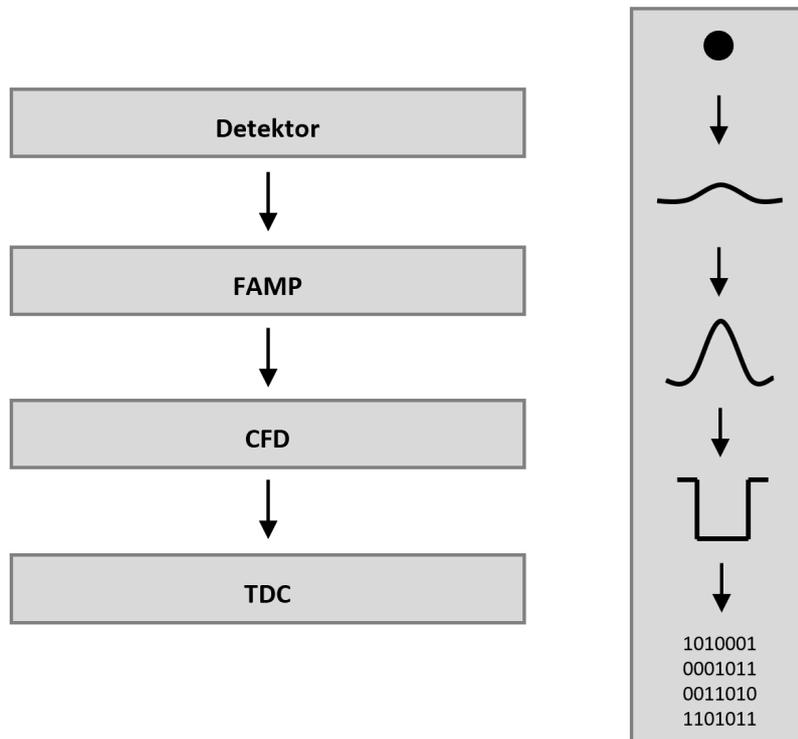


Abbildung 3.9: Schematische Darstellung der Signalverarbeitung in einem COLTRIMS-Experiment. Graphik in Anlehnung an [19].

Mit der Software *CoboldPC* werden die digitalen Zeitsignale einem physikalischen Ereignis (engl. *event*) zugeordnet und in Form von *lmf*-Dateien abgespeichert [25].

3.3 Spezifikation der Messung

Die dieser Arbeit zugrunde liegende Messung erfolgte am Elektronensynchrotron der ESRF (Grenoble, Frankreich) an der Hochenergie-Beamline ID31. Dabei wurde hochenergetische Synchrotronstrahlung einem COLTRIMS-Experiment zur Verfügung gestellt und zur Ionisation von Edelgasatomen verwendet. Um die Ionen und Elektronen mit einem Raumwinkel von 4π detektieren zu können, musste das Spektrometer geeignet konfiguriert werden (siehe Tabelle 3.1).

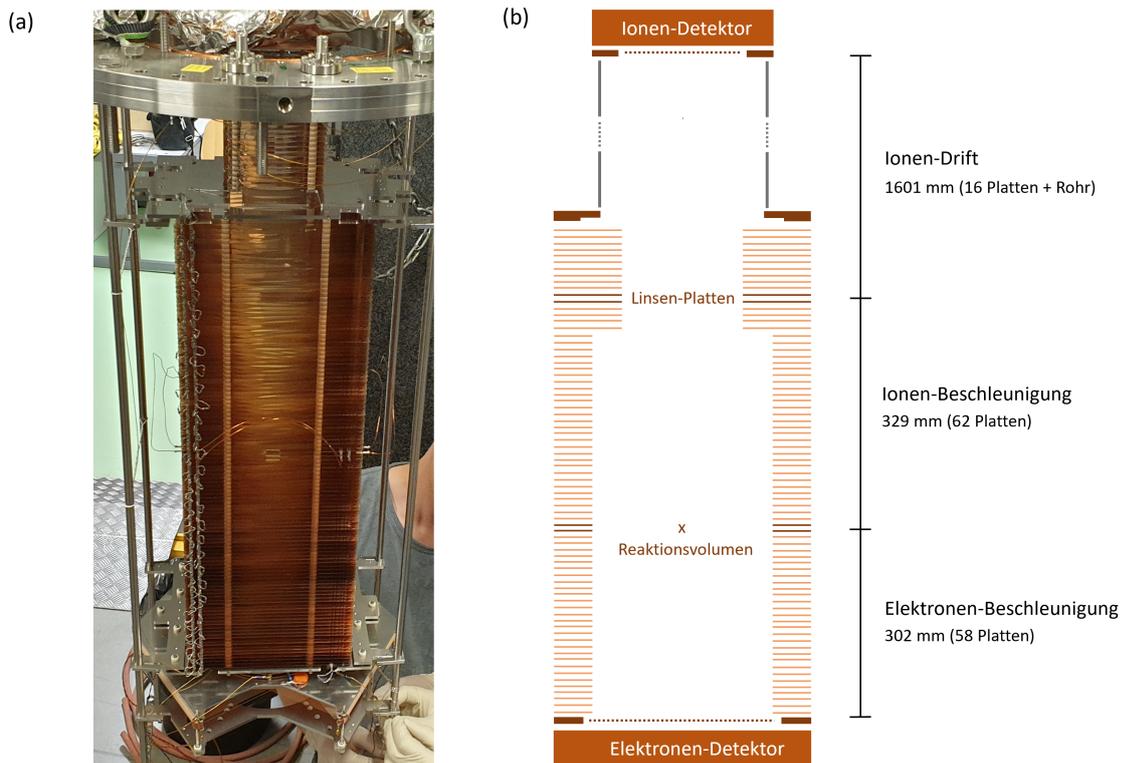


Abbildung 3.10: (a) Fotografie und (b) Schematische Darstellung des bei der Messung an der ERSF verwendeten Spektrometers (ohne Helmholtz-Spulenpaar): Das Reaktionsvolumen war relativ zur Spektrometer-Achse um 19.5 mm in *Jet*-Richtung verschoben, damit die Verteilungen der Compton-Elektronen und Auger-Elektronen auf dem Detektor abgebildet werden konnten. Graphik in Anlehnung an [20].

Wie aus Abb. 3.10 ersichtlich wird, lag die Besonderheit des verwendeten Spektrometers im Aufbau der Ionenseite (vergleiche Abb. 3.6). Ein Teil der Kupferplatten hatte sowohl eine geringere Größe als auch eine kleinere Aussparung, um den Einfluss des inhomogenen elektrischen Feldes der verwendeten elektrostatischen Linse auf die zu detektierenden Elektronen zu minimieren. Die Linse wurde durch einen erhöhten Spannungsabfall zwischen zwei der kleineren Kupferplatten erzeugt und hatte Auswirkungen auf die Beschleunigung der Ionen. Aufgrund dessen musste die feldfreie Driftstrecke deutlich länger gewählt werden als es gemäß einer Wiley-McLaren-Geometrie zu erwarten gewesen wäre [17]. Die Driftstrecke wurde daher durch einige kleinere Kupferplatten ohne Spannungsabfall sowie durch zwei lange Rohre realisiert.

Synchrotronstrahlung	
Photonenenergie	20 keV
Photonenimpuls	5.37 a.u.
Bunch-Modus	16-bunch
Bunch-Abstand	176.0375 ns
Polarisation	99% horizontal
Fokusgröße	0.4 x 0.1 mm ² (B x H)
Gasstrahl	
Düsendurchmesser	60 μm
Düsenvordruck	15.02 bar (Neon) 2.04 bar (Argon) 1.50 bar (Krypton)
Druck Expansion	$1.27 \cdot 10^{-5}$ mbar (Neon) $9.38 \cdot 10^{-6}$ mbar (Argon) $7.38 \cdot 10^{-6}$ mbar (Krypton)
Druck Hauptkammer	$1.28 \cdot 10^{-9}$ mbar
Druck Jetdump	$4.65 \cdot 10^{-8}$ mbar (Neon) $4.72 \cdot 10^{-8}$ mbar (Argon) $4.48 \cdot 10^{-8}$ mbar (Krypton)
Gasstrahldurchmesser im Reaktionsvolumen	$\approx 1\text{mm}$
Spektrometer	
Elektronenseite	302 mm (Beschleunigung)
Ionenseite	329 mm (Beschleunigung) 1601 mm (Drift)
E-Feld	32.0 V/cm
B-Feld	36.6 Gs
Durchmesser Elektronen-MCPs	150 mm
Durchmesser Ionen-MCPs	80 mm
Spannungen	
Spektrometer	1171.8 V (Elektronenseite) -2000.0 V (Ionenseite)
Spannungsdifferenz Linse	1145 V
Elektronen-MCPs	1225.0 V (MCP front) 3425.0 V (MCP back)
Ionen-MCPs	-2000.0 V (MCP front) 200.0 V (MCP back)
Raten	
Elektronen-Raten	1.3 kHz (Neon) 14.0 kHz (Krypton)
Ionen-Raten	1.9 kHz (Neon) 13.0 kHz (Krypton)

Tabelle 3.1: Experimentelle Parameter der im August 2022 an der Beamline ID31 der ESRF durchgeführten Messung.

4 Datenanalyse

Wie bereits in Abschnitt 3.2.3 erklärt, werden die digitalen Zeitsignale einem physikalischen Ereignis (engl. *event*) zugeordnet und in Form von *lmf*-Dateien abgespeichert. Mit der Software *lmf2root* können die *lmf*-Dateien eingelesen und aus den Zeitsignalen die Flugzeiten und Detektionsorte der Reaktionsfragmente berechnet werden.

4.1 Berechnung der Flugzeiten

Die Flugzeit eines Reaktionsfragments entspricht der Zeitdifferenz zwischen dem Reaktionszeitpunkt und dem Detektionszeitpunkt. Dabei kann der Reaktionszeitpunkt durch das Bunchmarker-Signal und der Detektionszeitpunkt durch das entsprechende *MCP*-Signal ermittelt werden. Der Detektionszeitpunkt hängt von der Geschwindigkeit und somit von der Masse des Reaktionsfragments ab.

Ein Elektron wird detektiert noch bevor das nächste Bunchmarker-Signal registriert wird. Die Flugzeit des Elektrons kann daher durch eine vom Detektionszeitpunkt $t_{MCP,e}$ und vom Bunchmarker-Abstand t_{BM} abhängigen Modulo-Funktion beschrieben werden [3]:

$$tof_e = mod(t_{MCP,e}, t_{BM}) - t_0 \quad (4.1)$$

Die Konstante t_0 berücksichtigt hierbei die mögliche zeitliche Abweichung zwischen dem registriertem Bunchmarker-Signal und dem Reaktionszeitpunkt.

Ein Ion wird in der Regel erst nach einigen Bunchmarker-Signalen detektiert, sodass die eindeutige Zuordnung des Detektionszeitpunkts $t_{MCP,i}$ zu einem Bunchmarker-Signal nur durch die koinzidente Messung des Elektrons möglich ist. Für die Flugzeit des Ions gilt dann [3]:

$$tof_i = t_{MCP,i} - t_{MCP,e} + tof_e \quad (4.2)$$

4.2 Berechnung der Detektionsorte

Wie bereits in Abschnitt 3.2.2.2 erklärt wurde, ist in der Laufzeitdifferenz der zu einer Drahtlage zugehörigen Anodensignale die Ortsinformation enthalten. Die Umrechnung zwischen der Signallaufzeit und dem Ort auf der jeweiligen Drahtlage erfolgt dabei durch sogenannte Skalenfaktoren f_1 , f_2 und f_3 [3]:

$$u = f_1(t_{u1} - t_{u2}) \quad (4.3)$$

$$v = f_2(t_{v1} - t_{v2}) \quad (4.4)$$

$$w = f_3(t_{w1} - t_{w2}) \quad (4.5)$$

Aus jeweils zwei dieser Ortsinformationen kann der Detektionsort eines Reaktionsfragmentes berechnet werden.

4.3 Berechnung der Impulse

Um aus den Flugzeiten und Detektionsorten die Impulse der Ionen und Elektronen zum Reaktionszeitpunkt rekonstruieren zu können, muss deren Bewegung durch das Spektrometer nachvollzogen werden. Die Bewegung der Ionen und Elektronen wird durch das elektrische und magnetische Führungsfeld bestimmt, wobei sowohl das elektrische als auch das magnetische Feld in z-Richtung orientiert ist¹³.

Die Ionen werden durch das elektrische Feld in z-Richtung beschleunigt und durch eine elektrostatische Linse in x- und y-Richtung fokussiert. Ebenso werden die Ionen durch eine feldfreie Driftstrecke in der Flugzeit fokussiert. Aus den zugehörigen Bewegungsgleichungen können dann die Impulskomponenten der Ionen zum Reaktionszeitpunkt rekonstruiert werden [26]:

$$p_{i,x} = C \frac{m_i x}{t o f_i} \quad (4.6)$$

$$p_{i,y} = C \frac{m_i y}{t o f_i} \quad (4.7)$$

$$p_{i,z} = 2 \sqrt{q E l_D m_i} - q E t o f_i \quad (4.8)$$

Hierbei beschreibt E die elektrische Feldstärke, l_D die Länge der Driftstrecke, q die Ladung und m_i die Masse eines Ions. Der lineare Korrekturfaktor C berücksichtigt die fokussierenden Eigenschaften der Linse.

Die Elektronen werden durch das elektrische Feld in z-Richtung beschleunigt und durch das magnetische Feld in x- und y-Richtung abgelenkt. Aus den zur Gyrationbewegung der Elektronen zugehörigen gekoppelten Bewegungsgleichungen können die Impulskomponenten der Elektronen zum Reaktionszeitpunkt rekonstruiert werden [25]:

$$p_{e,x} = \frac{m_e \omega}{2 - 2 \cos(\omega t o f_e)} [\sin(\omega t) x + (\cos(\omega t) - 1) y] \quad (4.9)$$

$$p_{e,y} = \frac{m_e \omega}{2 - 2 \cos(\omega t o f_e)} [(1 - \cos(\omega t)) x + \sin(\omega t) y] \quad (4.10)$$

$$p_{e,z} = \frac{m_e l_B}{t o f_e} - \frac{e E t o f_e}{2} \quad (4.11)$$

Hierbei ist l_B die Länge der Beschleunigungsstrecke, $\omega = \frac{2\pi}{T}$ die Gyrationfrequenz und T die Gyrationperiode der Elektronen.

¹³Das zur Beschreibung eines COLTRIMS-Experiments verwendete Koordinatensystem wird als Labor-System bezeichnet. Dabei entspricht die x-Achse der Ausbreitungsrichtung des Lichts und die y-Achse der Ausbreitungsrichtung des Gasjets. Die z-Achse wird durch die Spektrometer-Achse vorgegeben.

4.4 Kalibrierung

Bei der Impulsberechnung mit der Software *lmf2root* werden Abweichungen von der idealen Geometrie des Spektrometers sowie von den angelegten Spannungen nicht berücksichtigt, sodass zunächst eine Kalibrierung des Spektrometers durchgeführt wird. Hierbei werden die Impuls- und Energieverteilungen der bei einem bekannten Ionisationsprozess entstehenden Ionen und Elektronen gemessen und mit den zum Ionisationsprozess zugehörigen Literaturwerten verglichen. Mithilfe des interaktiven Software-Moduls *IPA* (engl. *interactive parameter adjustment*) werden die Parameter des Spektrometers dann derart verändert, dass die gemessenen Werte mit den Literaturwerten übereinstimmen.

Zur Kalibrierung werden die Impuls- und Energieverteilungen der bei der Ionisation eines Neon-Atoms entstehenden Ionen und Elektronen verwendet. Die Photoelektronen können durch das magnetische Feld des Spektrometers allerdings nicht ausreichend abgelenkt und daher nicht detektiert werden (siehe Anhang A.4). Aufgrund dessen erfolgt die Kalibrierung der Ionenseite anhand der Impuls- und Energieverteilung der zweifach positiv geladenen Neon-Ionen und die Kalibrierung der Elektronenseite anhand der Impuls- und Energieverteilung der Auger-Elektronen¹⁴.

¹⁴Die Impuls- und Energieverteilungen werden im Labor-System dargestellt (siehe Anhang A.1). Dabei entspricht die x -Achse der Ausbreitungsrichtung und die y -Achse der Polarisationsrichtung des linear horizontal polarisierten Lichts. Der Azimutwinkel ϕ wird relativ zur x -Achse angegeben. Der Polarwinkel θ beschreibt den Winkel zwischen dem Impulsvektor eines Reaktionsfragments und der z -Achse.

4.4.1 Ionen

Die Ionisation der Neon-Atome kann durch Compton-Streuung oder Photoionisation erfolgen. Die bei der Compton-Streuung entstehenden Ionen erfahren aufgrund der Emission eines schwach gebundenen Elektrons kaum Rückstoß, sodass deren Impulse mit dem Ortsnullpunkt des Detektors übereinstimmen müssen (siehe Abschnitt 2.2.2). Die bei der Photoionisation entstehenden Photoelektronen werden mit einer bestimmten kinetischen Energie und dem zugehörigen Impuls emittiert. Aufgrund von Impulserhaltung müssen die Impulse der Photoionen auf einer Kugeloberfläche liegen, deren Radius den Rückstoß durch die Photoelektronen widerspiegelt (siehe Abschnitt 2.2.1).

Im Rahmen der Kalibrierung werden die p_x - und p_y -Impulse durch den linearen Korrekturfaktor $C = 1.3$ (siehe Gleichungen 4.6 und 4.7) und die p_z -Impulse durch das elektrische Feld $E = 29.5\text{V/cm}$ (siehe Gleichung 4.8) entsprechend angepasst.

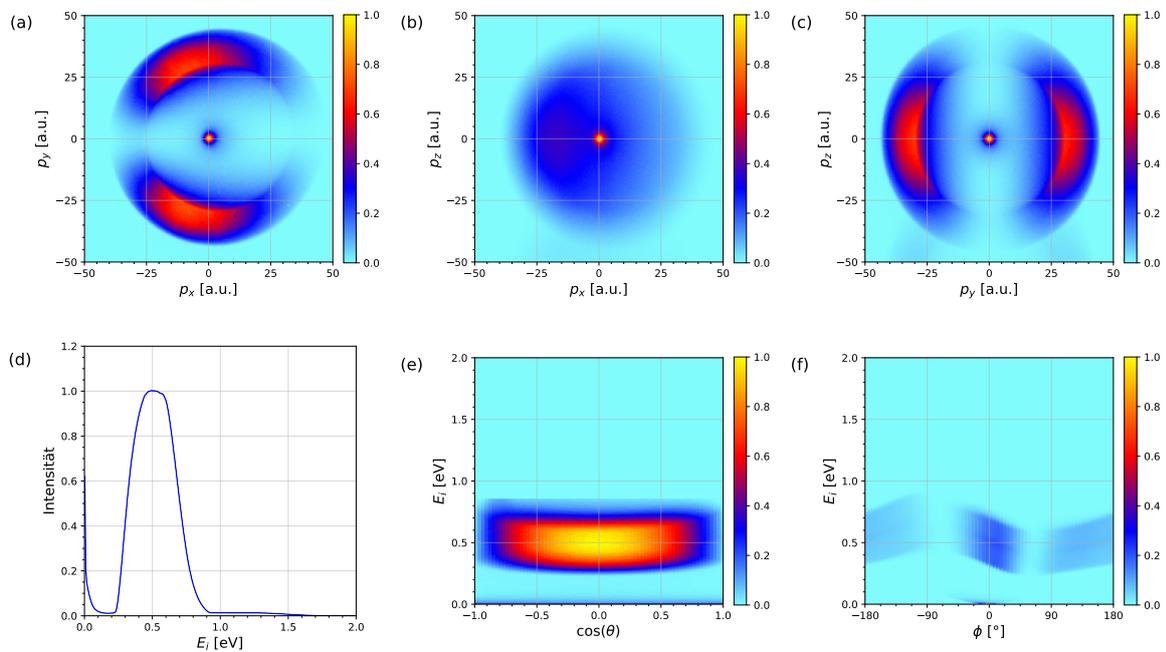


Abbildung 4.1: (a)-(c) Impulsverteilung und (d)-(f) Energieverteilung der Ne^{2+} -Ionen nach der Kalibrierung: Die Impulsverteilung der Compton-Ionen stimmt mit dem Ortsnullpunkt des Detektors überein. Die Breite der Impulsverteilung der Photoionen spiegelt die Impulsverteilung der Auger-Elektronen wider. Die Daten sind auf den maximalen Bin-Wert normiert.

4.4.2 Elektronen

Die Auger-Elektronen werden isotrop emittiert, sodass die Impuls- und Energieverteilung unabhängig vom Raumwinkel sein muss. Die Impulsverteilung muss daher mehreren um den Ortsnullpunkt des Detektors zentrierten Impulskugeln entsprechen, deren Radien mit den Impulsen der Auger-Elektronen aus verschiedenen Auger-Zerfällen übereinstimmen (siehe Anhang A.5). Die Energieverteilung muss ein Maximum bei der zu erwartenden Energie eines Auger-Elektrons aus dem wahrscheinlichsten Auger-Zerfall aufweisen (siehe Anhang A.5).

Die Impulse der Auger-Elektronen sind unter anderem von der Gyrationfrequenz ω sowie von der Flugzeit tof_e der Elektronen abhängig (siehe Gleichungen 4.9 - 4.11). Die Gyrationperiode T und der zur Berechnung der Elektronen-Flugzeit notwendige Zeitoffset t_0 (siehe Gleichung 4.1) werden anhand eines Rohdatenspektrums ermittelt.

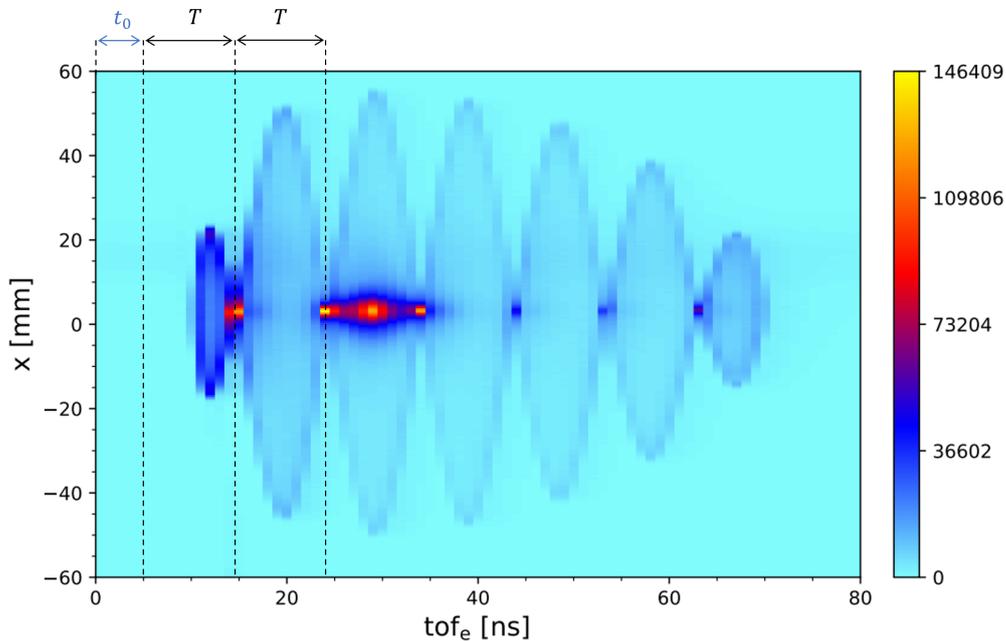


Abbildung 4.2: Rohdatenspektrum mit der x-Koordinate des Detektionsortes in Abhängigkeit der Flugzeit der Elektronen. Der Abstand zweier Knotenpunkte entspricht der Gyrationperiode $T \approx 9.5\text{ns}$. Der Abstand des ersten Knotenpunkts zur Null setzt sich aus einer Gyrationperiode und dem Zeitoffset $t_0 \approx 5\text{ns}$ zusammen. Graphik in Anlehnung an [16].

Wie aus Abbildung 4.2 ersichtlich wird, ist im Rohdatenspektrum die x-Koordinate des Detektionsortes gegen die Flugzeit der Elektronen aufgetragen. Alle Elektronen entstehen am selben Punkt in der xy-Ebene und erreichen diesen Punkt nach einer Gyrationperiode wieder. Demnach beschreiben die Knotenpunkte gerade solche Elektronen, deren Flugzeit einer Gyrationperiode oder einem Vielfachen davon entspricht. Der Abstand zweier Knotenpunkte bestimmt somit die Gyrationperiode $T \approx 9.5\text{ns}$. Des weiteren muss der Abstand des ersten Knotenpunkts zur Null genau eine Gyrationperiode betragen. Die hierzu notwendige Verschiebung entspricht dem zur Bestimmung der Elektronen-Flugzeit verwendeten Zeitoffset $t_0 \approx 5\text{ns}$.

Die aus dem Rohdatenspektrum ermittelten Werte werden im Zuge der Kalibrierung auf $T = 9.75\text{ns}$ für die Gyrationperiode und $t_0 = 4.75\text{ns}$ für den Zeitoffset angepasst. Das magnetische Feld des Helmholtz-Spulenpaars $B = \frac{2\pi m_e}{eT} = 36.61\text{Gs}$ zeigt eine gute Übereinstimmung mit dem im Experiment eingestellten Wert von $B = 36\text{Gs}$.

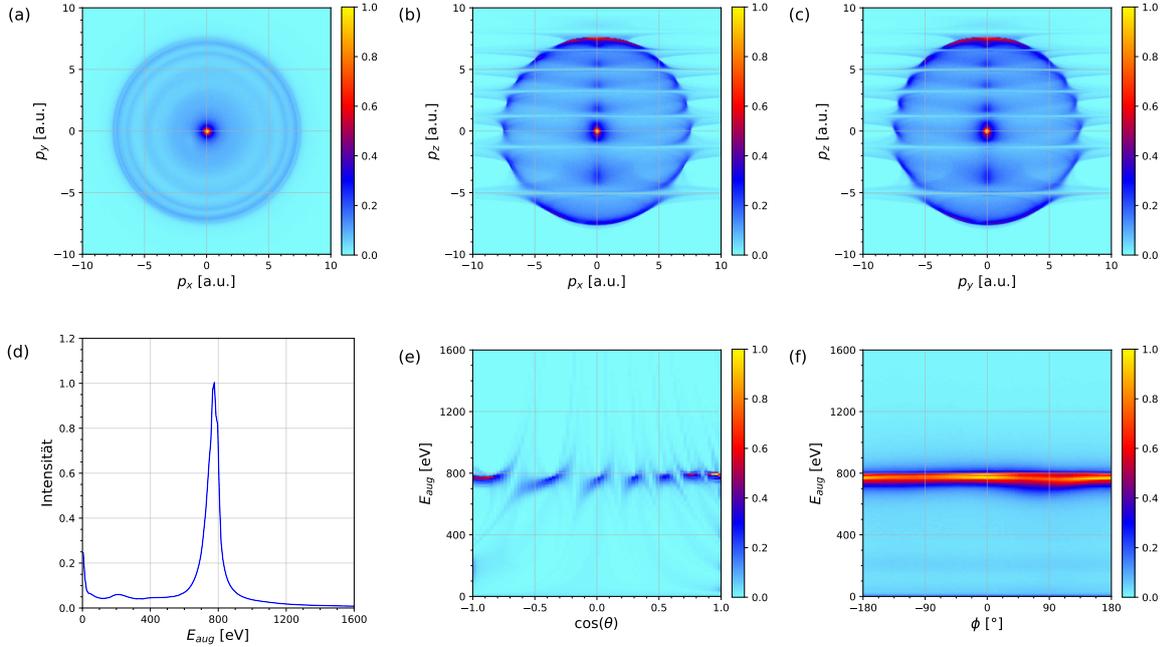


Abbildung 4.3: (a)-(c) Impulsverteilung und (d)-(f) Energieverteilung der Auger-Elektronen nach der Kalibrierung: Die Impulsverteilung besteht aus mehreren um den Ortsnullpunkt des Detektors zentrierten Impulskugeln, deren Radien mit den Impulsen der Auger-Elektronen aus verschiedenen Auger-Zerfällen übereinstimmen (siehe Anhang A.5). Die Energieverteilung besitzt ein Maximum bei der Energie $E_{\text{aug}} = 773.2\text{eV}$ eines Auger-Elektrons aus einem KL_1L_1 -Auger-Zerfall (siehe Anhang A.5). In der Energieverteilung (e) sind streifenförmige Artefakte erkennbar, da die Flugzeit einiger Auger-Elektronen ein Vielfaches der Gyrationperiode beträgt und dadurch deren Impulse zum Reaktionszeitpunkt nicht rekonstruiert werden können. Die Daten sind auf den maximalen Bin-Wert normiert.

5 Ergebnisse

In dem dieser Arbeit zugrunde liegenden Experiment wurde hochenergetische Synchrotronstrahlung ($E_\gamma = 20 \text{ keV}$, $p_\gamma = 5.37 \text{ a.u.}$) zur Ionisation der Edelgasatome Krypton, Argon und Neon verwendet (siehe Abschnitt 3.3). Die Impulse der Ionen und vergleichsweise niederenergetischen Elektronen konnten direkt gemessen werden und dienen der Impulsberechnung der nicht detektierbaren Photoelektronen (siehe Abschnitt 5.1). Im Folgenden werden daher die bei der Photoionisation mit anschließendem Auger-Zerfall gemessenen Impulsverteilungen der Ionen sowie die berechneten Impulsverteilungen der Photoelektronen analysiert¹⁵.

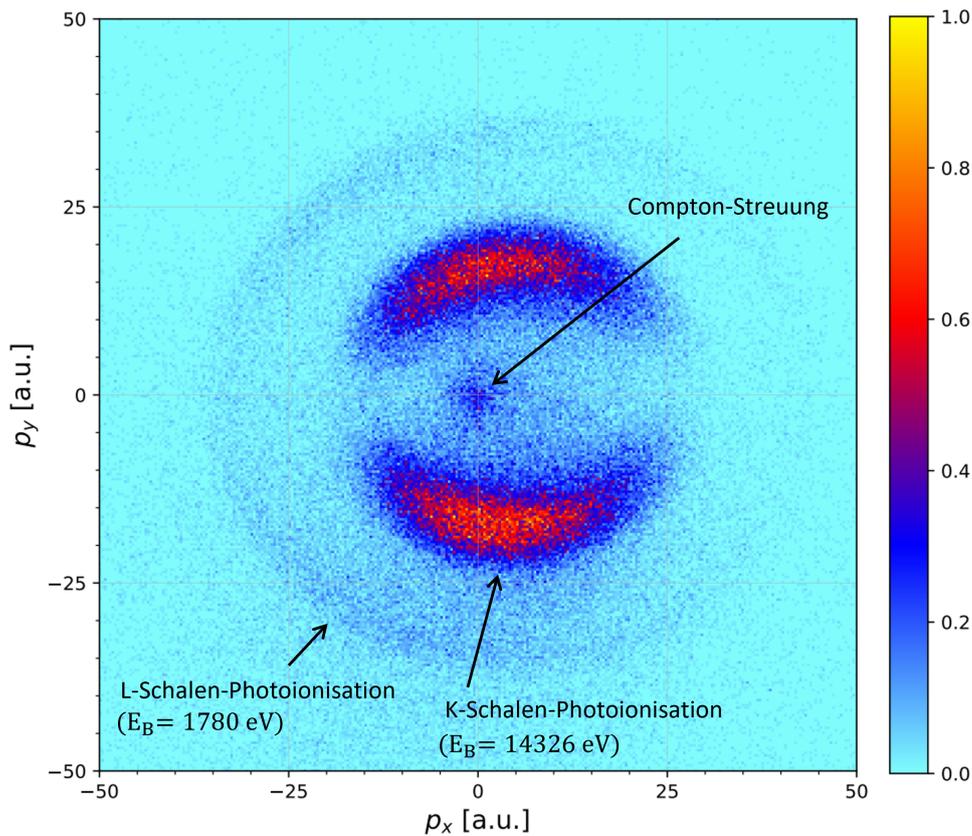


Abbildung 5.1: Impulsverteilung der Kr^{2+} -Ionen bei einer Photonenenergie von 20 keV. Die Impulse der Compton-Ionen stimmen mit dem Ortsnullpunkt des Detektors überein. Die Impulse der K-Schalen-Photoionen liegen auf der Kugeloberfläche mit geringerem Radius und die der L-Schalen-Photoionen auf der Kugeloberfläche mit größerem Radius, wobei die Breite der Impulsverteilungen die Impulse der Auger-Elektronen berücksichtigt. Die Daten sind auf den maximalen Bin-Wert normiert.

¹⁵Die Analyse beschränkt sich auf die Daten der am häufigsten vorkommenden Isotope ^{84}Kr , ^{40}Ar und ^{20}Ne der gemessenen Edelgasatome.

Abbildung 5.1 zeigt die gemessene Impulsverteilung der Kr^{2+} -Ionen und veranschaulicht die im Experiment auftretenden Ionisationsprozesse:

- Bei der Compton-Streuung wird ein Teil der Photonenenergie zur Emission eines schwach gebundenen Elektrons verwendet. Aufgrund der im Experiment verwendeten Photoenenenergie von 20 keV ist der Impulsübertrag vom Photon auf das Elektron derart hoch, dass das Elektron im Endzustand als quasifrei beschrieben werden kann und der Rückstoß auf das Ion vernachlässigbar ist. Die Impulse der Compton-Ionen stimmen daher mit dem Ortsnullpunkt des Detektors überein (siehe Abschnitt 2.2.2).
- Bei der Photoionisation wird die gesamte Photonenenergie zur Emission eines Elektrons verwendet, sodass bei gleichbleibender Photonenenergie und geringerer Bindungsenergie die kinetische Energie sowie der Impuls des Photoelektrons zunimmt und der Rückstoß auf das Photoion stärker wird (siehe Abschnitt 2.2.1). Die Photoionen der K-Schalen-Photoionisation werden daher durch die Kugeloberfläche mit geringerem Radius und die der L-Schalen-Photoionisation durch die Kugeloberfläche mit größerem Radius beschrieben.

Für die Analyse der bei der Photoionisation auftretenden Nichtdipol-Effekte werden die Daten der Compton-Streuung sowie der L-Schalen-Photoionisation vernachlässigt und aufgrund des höheren Wirkungsquerschnitts lediglich die der K-Schalen-Photoionisation berücksichtigt. Die Bindungsenergien der K-Schalen-Elektronen sowie die kinetischen Energien der emittierten Photoelektronen können den Anhängen A.3 und A.4 entnommen werden und sind der Übersicht wegen nochmals explizit in Tabelle 5.1 aufgeführt.

	Kr	Ar	Ne
E_b [eV]	14326.0	3205.9	870.2
E_e [eV]	5674.0	16794.1	19129.8

Tabelle 5.1: Bindungsenergie eines K-Schalen-Elektrons (siehe Tabelle A.3) und kinetische Energie des Photoelektrons bei einer K-Schalen-Photoionisation (siehe Tabelle A.4) von Kr, Ar und Ne bei einer Photonenenergie von 20 keV.

5.1 Impulsverteilungen der Ionen und Photoelektronen

Die Impulse der Photoelektronen werden aus dem bekannten Photonenimpuls sowie den gemessenen Impulsen der zweifach positiv geladenen Ionen und Auger-Elektronen über Impulserhaltung berechnet:

$$\mathbf{p}_e = \mathbf{p}_\gamma - \mathbf{p}_i - \mathbf{p}_{aug} \quad (5.1)$$

Dabei beschreibt \mathbf{p}_γ den Photonenimpuls, \mathbf{p}_i den Ionenimpuls und \mathbf{p}_{aug} den Impuls des Auger-Elektrons.

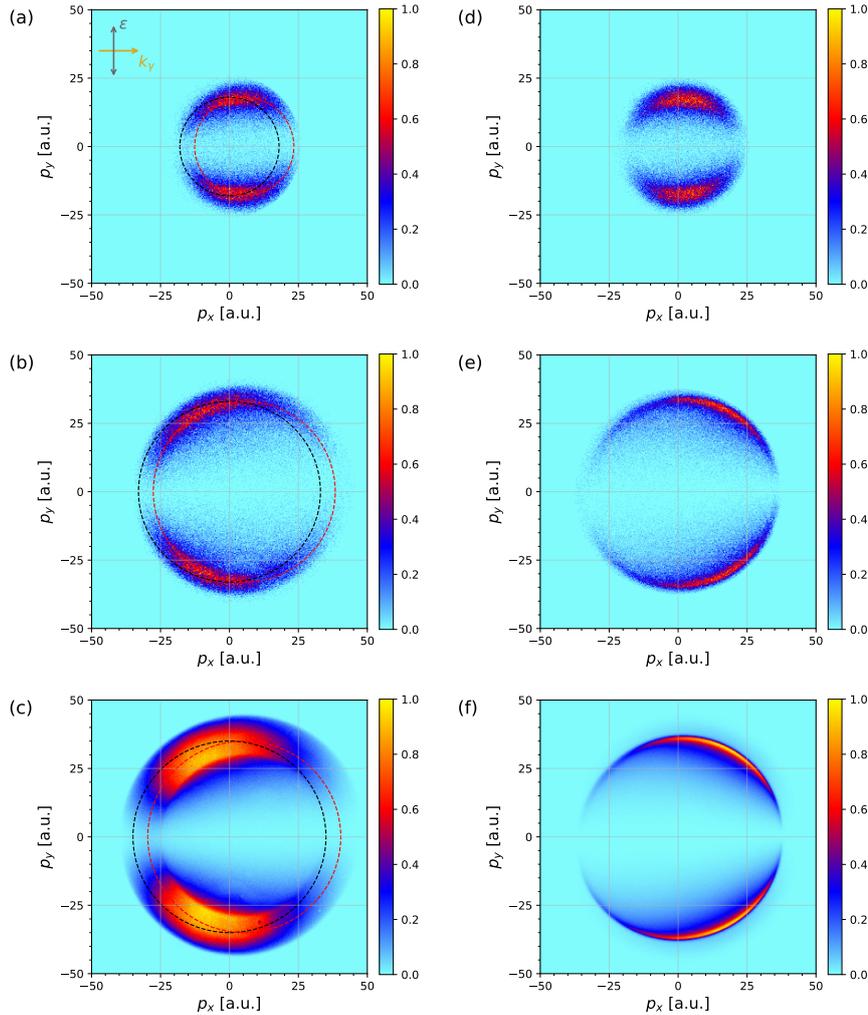


Abbildung 5.2: Impulsverteilungen der Ionen (a) Kr^{2+} , (b) Ar^{2+} , (c) Ne^{2+} und Photoelektronen von (d) Kr, (e) Ar, (f) Ne bei einer K-Schalen-Photoionisation mit anschließendem Auger-Zerfall bei einer Photonenenergie von 20 keV: Der schwarze Kreis ist mit einem dem Impuls des Photoelektrons $p_e = \sqrt{2(E_\gamma - E_b)}/27.2$ a.u. entsprechenden Radius um den Ursprung zentriert. Der rote Kreis ist um den Linearimpuls des Photons $p_\gamma = 5.37$ a.u. in Lichtausbreitungsrichtung verschoben. Die Daten sind auf den maximalen Bin-Wert normiert.

Abbildung 5.2 zeigt die gemessenen Impulsverteilungen der Ionen sowie die mithilfe von Gleichung 5.1 berechneten Impulsverteilungen der Photoelektronen und ermöglicht ein grundlegendes Verständnis der bei der K-Schalen-Photoionisation auftretenden Nichtdipol-Effekte in Abhängigkeit der Bindungsenergie:

- Die gesamte Energie des Photons wird auf das Atom übertragen, sodass die Bindung zwischen dem Atomkern und einem Elektron gebrochen wird. Die Differenz der Photonenenergie und der Bindungsenergie des Elektrons beschreibt daher die kinetische Energie des emittierten Photoelektrons. Bei gleichbleibender Photonenenergie $E_\gamma = 20 \text{ keV}$ und geringerer Bindungsenergie nimmt demnach die kinetische Energie des Photoelektrons zu (siehe Tabelle 5.1). Da das Photoelektron einen zur kinetischen Energie zugehörigen Impuls besitzt, erfolgt ein zunehmend stärkerer Rückstoß auf das Ion. Dieser Prozess zeigt sich in der mit geringerer Bindungsenergie zunehmenden Größe der Impulsverteilungen der Ionen und Photoelektronen.
- Der Linearimpuls des Photons wird auf den Massenschwerpunkt des Systems und somit hauptsächlich auf das Ion übertragen, sodass die Impulsverteilungen der Ionen um den Linearimpuls des Photons $p_\gamma = 5.3 \text{ a.u.}$ in Lichtausbreitungsrichtung verschoben sind.
- Der Drehimpuls des Photons wird auf das Photoelektron übertragen. Zusätzlich werden gemäß der Nichtdipol-Näherung durch den Linearimpuls des Photons weitere Einheiten an Drehimpuls im Atom induziert. Demnach erfolgt bei geringerer Bindungsenergie ein größerer Drehimpulsübertrag und die Wahrscheinlichkeitsverteilung der Photoelektronen auf den Kugeloberflächen ist zunehmend in Lichtausbreitungsrichtung unverteilt. Der durch die Photoelektronen vermittelte Rückstoß bewirkt entsprechend eine entgegen der Lichtausbreitungsrichtung unverteilte Wahrscheinlichkeitsverteilung der Ionen (siehe Abschnitt 5.2).

5.2 Mittlere Impulse der Ionen und Photoelektronen in Lichtausbreitungsrichtung

In diesem Abschnitt werden die Abweichungen der Wahrscheinlichkeitsverteilungen der Ionen und Photoelektronen von einer Dipolverteilung anhand deren mittlerer Impulse in Lichtausbreitungsrichtung diskutiert.

Abbildung 5.3 zeigt die mittleren Impulse der Ionen und Photoelektronen in Lichtausbreitungsrichtung in Abhängigkeit der Bindungsenergie. Dabei wird die mit geringerer Bindungsenergie zunehmend größere Abweichung der Wahrscheinlichkeitsverteilung der Photoelektronen von einer Dipolverteilung anhand der zunehmend positiveren Werte der mittleren Impulse deutlich. Durch den Rückstoß der Photoelektronen ist die Wahrscheinlichkeitsverteilung der Ionen entsprechend entgegen der Lichtausbreitungsrichtung umverteilt und die mittleren Impulse der Ionen haben zunehmend negativere Werte. Insbesondere zeigt sich dabei eine gute Übereinstimmung zwischen der Theorie (siehe Gleichungen 2.18 und 2.19) und den experimentellen Daten.

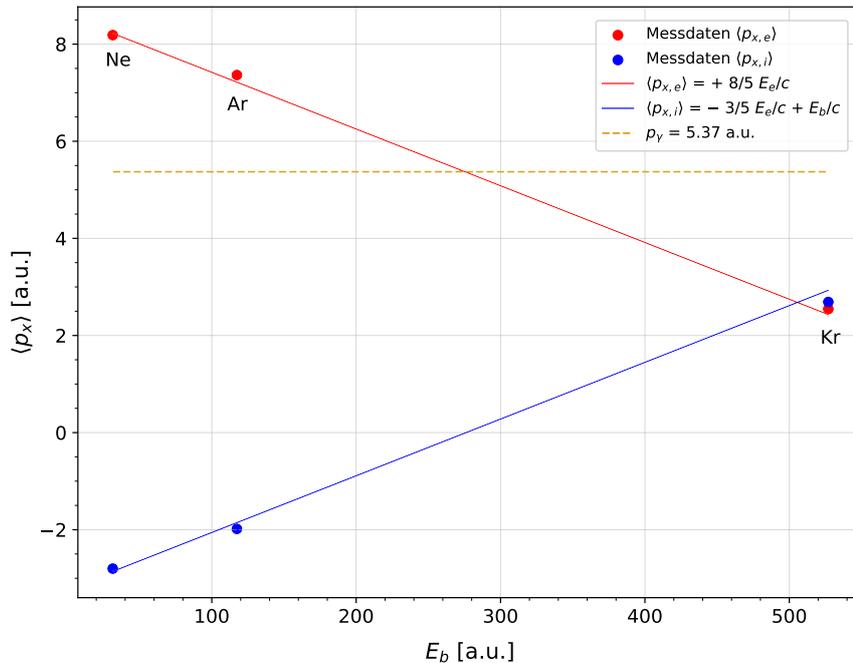


Abbildung 5.3: Mittlere Impulse der zweifach positiv geladenen Ionen (blaue Punkte) und Photoelektronen (rote Punkte) in Lichtausbreitungsrichtung bei einer K-Schalen-Photoionisation mit anschließendem Auger-Zerfall von Ne, Ar und Kr bei einer Photoenergie von 20 keV in Abhängigkeit der jeweiligen Bindungsenergien. Die relativen Fehler der mittleren Impulse sind derart klein, dass die Fehlerbalken von den Datenpunkten überdeckt werden. Die Linien zeigen Gleichung 2.18 (rote Linie) und Gleichung 2.19 (blaue Linie).

5.3 Emissionswinkelverteilungen der Photoelektronen

Die mit geringerer Bindungsenergie zunehmend stärkere Abweichung der Wahrscheinlichkeitsverteilungen der Photoelektronen von einer Dipolverteilung zeigt sich auch anhand der zunehmend stärkeren Kippung der Emissionswinkelverteilungen in Lichtausbreitungsrichtung (siehe Abbildung 5.4).

Um die Stärke der Kippung quantitativ zu beschreiben soll der im Theorie-System definierte differentielle Wirkungsquerschnitt der Photoionisation als Fit-Funktion auf die im Labor-System gemessenen Emissionswinkelverteilungen angewendet werden. Hierfür muss zunächst eine entsprechende Koordinatentransformation durchgeführt werden (siehe Anhang A.1). Für den differentielle Wirkungsquerschnitt der Photoionisation in der Dipol-Quadrupol-Näherung (siehe Gleichung 2.15) gilt dann im Labor-System:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta, \phi) = \frac{\sigma}{4\pi} \left[1 + \frac{\beta}{2}(3\sin^2\theta\sin^2\phi - 1) + (\gamma\sin^2\theta\sin^2\phi + \delta)\sin\theta\cos\phi \right] \quad (5.2)$$

Da nur die Daten der K-Schalen-Photoionisation analysiert werden, wird der Anisotropieparameter $\beta = 2$ und der Asymmetrieparameter $\delta = 0$ gesetzt:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta, \phi) = \frac{\sigma}{4\pi} \left[3\sin^2\theta\sin^2\phi + (\gamma\sin^2\theta\sin^2\phi)\sin\theta\cos\phi \right] \quad (5.3)$$

Der Asymmetrieparameter γ beschreibt das Verhältnis von elektrischem Quadrupol- zu elektrischem Dipolterm und somit die Stärke der Kippung der Emissionswinkelverteilungen (siehe Abschnitt 2.2.1).

In Abbildung 5.4 zeigt sich die mit geringerer Bindungsenergie zunehmend stärkere Kippung der Emissionswinkelverteilungen in Lichtausbreitungsrichtung daher auch anhand der zunehmend größeren Werte der Asymmetrieparameter $\gamma_{Kr} = 1.583$, $\gamma_{Ar} = 3.255$ und $\gamma_{Ne} = 3.358$ des Dipol-Quadrupol-Fits (siehe Gleichung 5.3). Aufgrund der bei geringeren Bindungsenergien zunehmend größeren Abweichung des Dipol-Quadrupol-Fits von den gemessenen Winkelverteilungen müssen weitere Terme der Potenzreihe (siehe Gleichung 2.9) zur Beschreibung der Photoionisation verwendet werden. Die Nichtdipol-Näherung wurde bis zum 49. Term der Potenzreihe simuliert und zeigt hervorragende Übereinstimmung mit den experimentellen Daten [27].

6 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden Nichtdipol-Effekte bei der Photoionisation von Edelgasatomen untersucht. Bei dem zugrunde liegenden Experiment an der Beamline ID31 der ESRF (Grenoble, Frankreich) wurde Synchrotronstrahlung ($E_\gamma = 20 \text{ keV}$, $p_\gamma = 5.37 \text{ a.u.}$) zur Ionisation der Edelgasatome Krypton, Argon und Neon verwendet. Die Ionen und niederenergetischen Elektronen konnten koinzident gemessen und deren Impulse zum Reaktionszeitpunkt rekonstruiert werden (siehe Kapitel 3 und 4). Die hochenergetischen Photoelektronen konnten hingegen nicht detektiert werden (siehe Anhang A.4), sodass deren Impulse aus den gemessenen Impulsen der Ionen und Auger-Elektronen über Impulserhaltung berechnet wurden (siehe Abschnitt 5.1). Analysiert wurden daher die bei der Photoionisation mit anschließendem Auger-Zerfall gemessenen Impulsverteilungen der zweifach positiv geladenen Ionen sowie die berechneten Impulsverteilungen der Photoelektronen. Die Analyse beschränkte sich dabei auf die am häufigsten vorkommenden Isotope der gemessenen Edelgasatome sowie aufgrund des höheren Wirkungsquerschnitts auf die Daten der K-Schalen-Photoionisation.

Die bei der K-Schalen-Photoionisation der Edelgasatome Krypton, Argon und Neon auftretenden Nichtdipol-Effekte wurden insbesondere in Abhängigkeit der Bindungsenergie diskutiert (Krypton: $E_b = 14326 \text{ eV}$, Argon: $E_b = 3206 \text{ eV}$, Neon: $E_b = 870 \text{ eV}$):

- Die gesamte Energie des Photons wird auf das Edelgasatom übertragen, wodurch die Bindung zwischen dem Atomkern und einem Elektron gebrochen wird. Bei unveränderter Photonenenergie $E_\gamma = 20 \text{ keV}$ und geringerer Bindungsenergie wird das Photoelektron mit einer höheren kinetischen Energie bzw. einem größeren Impuls emittiert und der Rückstoß auf das Ion wird stärker. Dieser Effekt zeigt sich in der mit geringerer Bindungsenergie zunehmenden Größe der Impulsverteilungen der Ionen und Photoelektronen (siehe Abschnitt 5.1).
- Der Linearimpuls des Photons wird auf den Massenschwerpunkt des Systems und somit hauptsächlich auf das Ion übertragen. Unabhängig von der Bindungsenergie sind die Impulsverteilungen der Ionen daher um den Linearimpuls des Photons $p_\gamma = 5.37 \text{ a.u.}$ in Lichtausbreitungsrichtung verschoben (siehe Abschnitt 5.1).
- Der Drehimpuls des Photons wird in der Regel auf das Photoelektron übertragen. Durch den Linearimpuls des Photons werden bei unveränderter Photonenenergie und geringerer Bindungsenergie vermehrt Einheiten an Drehimpuls im Atom induziert und die Wahrscheinlichkeitsverteilungen der Photoelektronen sind zunehmend in Lichtausbreitungsrichtung umverteilt. Aufgrund des Rückstoßes sind die Wahrscheinlichkeitsverteilungen der Ionen entsprechend entgegen der Lichtausbreitungsrichtung umverteilt (siehe Abschnitt 5.1).
- Die mit geringerer Bindungsenergie zunehmend stärkere Abweichung der Wahrscheinlichkeitsverteilungen der Ionen und Photoelektronen von einer Dipolverteilung sind auch anhand der betragsmäßig größeren Werte der mittleren Impulse der Ionen und Photoelektronen erkennbar (siehe Abschnitt 5.2). Insbesondere

zeigt sich eine gute Übereinstimmung der experimentellen Daten mit der von Sommerfeld und Schur aufgestellten Vorhersage, wie die Bindungsenergie der Elektronen den mittleren Impuls der Ionen und Photoelektronen in Lichtausbreitungsrichtung beeinflusst (siehe Gleichungen 2.18 und 2.19).

- Die mit geringerer Bindungsenergie zunehmend in Lichtausbreitungsrichtung umverteilten Wahrscheinlichkeitsverteilungen der Photoelektronen werden auch anhand der zunehmend stärkeren Kippung der Emissionswinkelverteilungen in Lichtausbreitungsrichtung deutlich. Quantitativ zeigt sich die stärkere Kippung in den größeren Werten der Asymmetrieparameter $\gamma_{Kr} = 1.583$, $\gamma_{Ar} = 3.255$ und $\gamma_{Ne} = 3.358$ des Dipol-Quadrupol-Fits. Bei geringeren Bindungsenergien wird die Abweichung des Dipol-Quadrupol-Fits von den gemessenen Emissionswinkelverteilungen allerdings zunehmend größer. Zur Beschreibung der bei der Photoionisation auftretenden Nichtdipol-Effekte sind daher weitere Terme der Potenzreihe (siehe Gleichung 2.9) erforderlich. Die Nichtdipol-Näherung wurde bis zum 49. Term der Potenzreihe simuliert und liefert eine hervorragende Übereinstimmung mit den experimentellen Daten (siehe Abschnitt 5.3) [27].

A Anhang

A.1 Koordinatentransformation Theorie- und Laborsystem

Das dem differentiellen Wirkungsquerschnitt der Photoionisation zugrunde liegende sphärische Koordinatensystem wird als Theorie-System bezeichnet. Dabei entspricht die x' -Achse der Ausbreitungsrichtung und die z' -Achse der Polarisationsrichtung des linear horizontal polarisierten Lichts.

Das zur Beschreibung der gemessenen Daten verwendete sphärische Koordinatensystem wird als Labor-System bezeichnet. Dabei entspricht die x -Achse der Ausbreitungsrichtung und die y -Achse der Polarisationsrichtung des linear horizontal polarisierten Lichts.

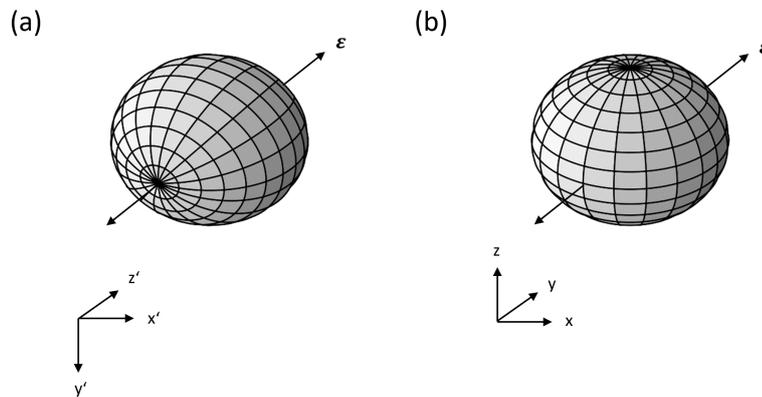


Abbildung A.1: Darstellung des verwendeten (a) Theorie-Systems und (b) Labor-Systems. Der Vektor ε beschreibt die Polarisationsrichtung des linear horizontal polarisierten Lichts.

Um den im Theorie-System definierten differentiellen Wirkungsquerschnitt der Photoionisation aus Gleichung 2.15 als Fit-Funktion auf die im Labor-System gemessenen Emissionswinkelverteilungen anwenden zu können, wird folgende Koordinatentransformation verwendet:

$$x' = \sin\theta' \cos\phi' = \sin\theta \cos\phi = x \quad (\text{A.1})$$

$$z' = \cos\theta' = \sin\theta \sin\phi = y \quad (\text{A.2})$$

$$y' = \sin\theta' \sin\phi' = -\cos\theta = -z \quad (\text{A.3})$$

A.2 Atomare Einheiten

Im Bereich der Atomphysik werden zur Beschreibung physikalischer Größen in der Regel Atomare Einheiten anstelle von SI-Einheiten verwendet.

Physikalische Größe	Atomare Einheit	SI-Einheit	Zuordnung
Masse	1 a.u.	$9.11 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$	m_e
Länge	1 a.u.	$0.53 \cdot 10^{-10} \text{ m}$	a_0
Zeit	1 a.u.	$2.42 \cdot 10^{-17} \text{ s}$	
Geschwindigkeit	1 a.u.	$2.19 \cdot 10^6 \frac{\text{m}}{\text{s}}$	
Impuls	1 a.u.	$1.99 \cdot 10^{-24} \frac{\text{kg} \cdot \text{m}}{\text{s}}$	
Drehimpuls	1 a.u.	$1.06 \cdot 10^{-34} \frac{\text{kg} \cdot \text{m}^2}{\text{s}}$	\hbar
Energie	1 a.u.	$4.36 \cdot 10^{-18} \frac{\text{kg} \cdot \text{m}^2}{\text{s}^2}$	
Ladung	1 a.u.	$1.60 \cdot 10^{-19} \text{ As}$	e

Tabelle A.2: Umrechnung physikalischer Größen von Atomaren Einheiten in SI-Einheiten.

A.3 Bindungsenergien

Die Bindungsenergien der Elektronen in Kr, Ar und Ne dienen der Berechnung der kinetischen Energien der Photoelektronen (siehe Anhang A.4) und Auger-Elektronen (siehe Anhang A.5).

	Kr	Ar	Ne
	E_b [eV]	E_b [eV]	E_b [eV]
$K(1s)$	14326.0	3205.9	870.2
$L_1(2s)$	1921.0	326.3	48.5
$L_2(2p_{1/2})$	1730.9	250.6	21.7
$L_3(2p_{3/2})$	1678.4	248.4	21.6
$M_1(3s)$	292.8	29.3	
$M_2(3p_{1/2})$	222.2	15.9	
$M_3(3p_{3/2})$	214.4	15.7	
$M_4(3d_{3/2})$	95.0		
$M_5(3d_{5/2})$	93.8		
$N_1(4s)$	27.5		
$N_2(4p_{1/2})$	14.1		
$N_3(4p_{3/2})$	14.1		

Tabelle A.3: Bindungsenergien der Elektronen in Kr, Ar und Ne. Werte entnommen aus [28].

A.4 Energien und Impulse der Photoelektronen

Die Energien und Impulse der Photoelektronen von Kr, Ar und Ne werden mithilfe der Gleichungen 2.5 und 2.6 sowie der Bindungsenergien aus Tabelle A.3 berechnet.

	Kr		Ar		Ne	
	E _e [eV]	p _e [a.u.]	E _e [eV]	p _e [a.u.]	E _e [eV]	p _e [a.u.]
<i>K</i> (1 <i>s</i>)	5674.0	20.4	16794.1	35.1	19129.8	37.5
<i>L</i> ₁ (2 <i>s</i>)	18079.0	36.5	19673.7	38.0	19951.5	38.3
<i>L</i> ₂ (2 <i>p</i> _{1/2})	18269.1	36.7	19749.4	38.1	19978.3	38.3
<i>L</i> ₃ (2 <i>p</i> _{3/2})	18321.6	36.7	19751.6	38.1	19978.4	38.3
<i>M</i> ₁ (3 <i>s</i>)	19707.2	38.1	19970.7	38.3		
<i>M</i> ₂ (3 <i>p</i> _{1/2})	19777.8	38.1	19984.1	38.3		
<i>M</i> ₃ (3 <i>p</i> _{3/2})	19785.6	38.1	19984.3	38.3		
<i>M</i> ₄ (3 <i>d</i> _{3/2})	19905.0	38.3				
<i>M</i> ₅ (3 <i>d</i> _{5/2})	19906.2	38.3				
<i>N</i> ₁ (4 <i>s</i>)	19972.5	38.3				
<i>N</i> ₂ (4 <i>p</i> _{1/2})	19985.9	38.3				
<i>N</i> ₃ (4 <i>p</i> _{3/2})	19985.9	38.3				

Tabelle A.4: Kinetische Energien und Impulse der Photoelektronen bei der Photoionisation von Kr, Ar und Ne bei einer Photonenenergie von 20 keV.

Die im Reaktionsvolumen entstehenden Elektronen werden durch das magnetische Feld des Spektrometers auf eine Kreisbahn gelenkt. Durch Gleichsetzen der Lorentz-Kraft und der Zentripetal-Kraft kann die maximale kinetische Energie detektierbarer Elektronen berechnet werden:

$$E_{max} = \frac{e^2 B^2 r_{max}^2}{2m_e} \approx 1658 \text{ eV} \quad (\text{A.4})$$

Dabei beschreibt e die Elementarladung, m_e die Masse eines Elektrons, B die magnetische Flussdichte und $r_{max} = \frac{r_{MCP,e}}{2}$ den maximalen Radius der Kreisbahn für detektierbare Elektronen (siehe Tabelle 3.1).

A.5 Energien und Impulse der Auger-Elektronen

Die Energien und Impulse der Auger-Elektronen von Kr, Ar und Ne werden mithilfe der Gleichungen 2.20 und 2.21 sowie der Bindungsenergien aus Tabelle A.3 berechnet. Aufgrund der Vielzahl an Auger-Zerfällen werden in Tabelle A.5 nur einige der nach einer K-Schalen-Photoionisation möglichen Auger-Zerfälle aufgeführt.

	Kr		Ar		Ne	
	E_{aug} [eV]	p_{aug} [a.u.]	E_{aug} [eV]	p_{aug} [a.u.]	E_{aug} [eV]	p_{aug} [a.u.]
KL_1L_1	10484.0	27.8	2553.3	13.7	773.2	7.5
KL_1L_2	10674.1	28.0	2629.0	13.9	800.0	7.7
KL_1L_3	10726.6	28.1	2631.2	13.9	800.1	7.7
KL_2L_1	10674.1	28.0	2629.0	13.9	800.0	7.7
KL_2L_2	10864.2	28.3	2704.7	14.1	826.8	7.8
KL_2L_3	10916.7	28.3	2706.9	14.1	826.9	7.8
KL_3L_1	10726.6	28.1	2631.2	13.9	800.1	7.7
KL_3L_2	10916.7	28.3	2706.9	14.1	826.9	7.8
KL_3L_3	10969.2	28.4	2709.1	14.1	827.0	7.8

Tabelle A.5: Kinetische Energien und Impulse einiger Auger-Elektronen nach der K-Schalen-Photoionisation von Kr, Ar und Ne bei einer Photonenenergie von 20 keV.

A.6 Nicht-normierte Impuls- und Energieverteilungen

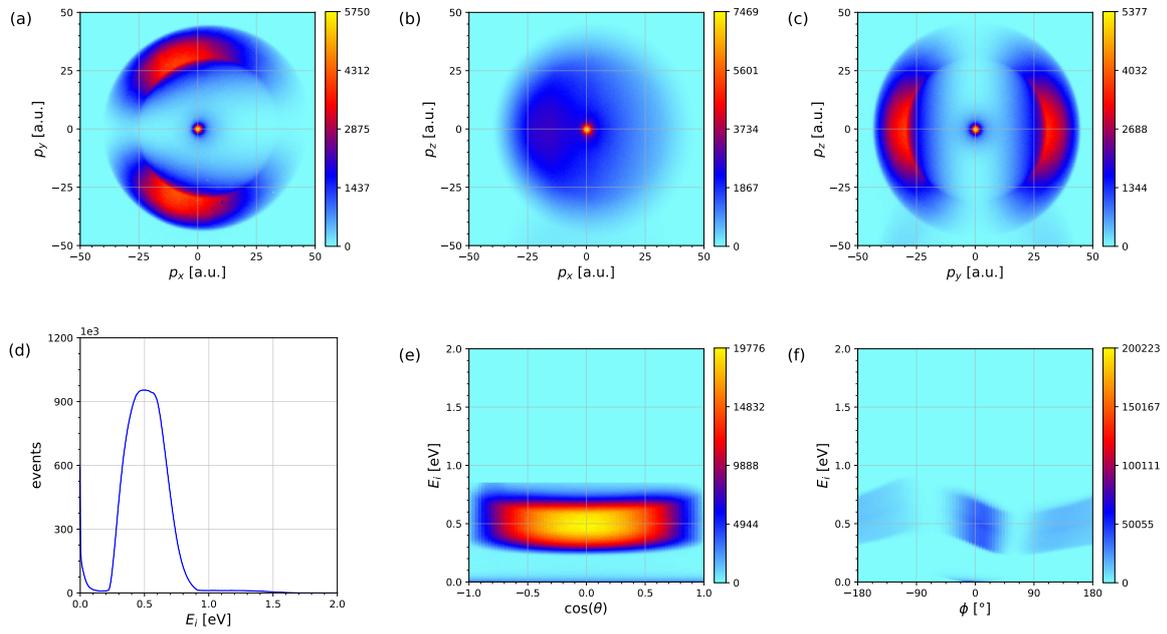


Abbildung A.2: a)-(c) Impulsverteilung und (d)-(f) Energieverteilung der Ne^{2+} -Ionen nach der Kalibrierung.

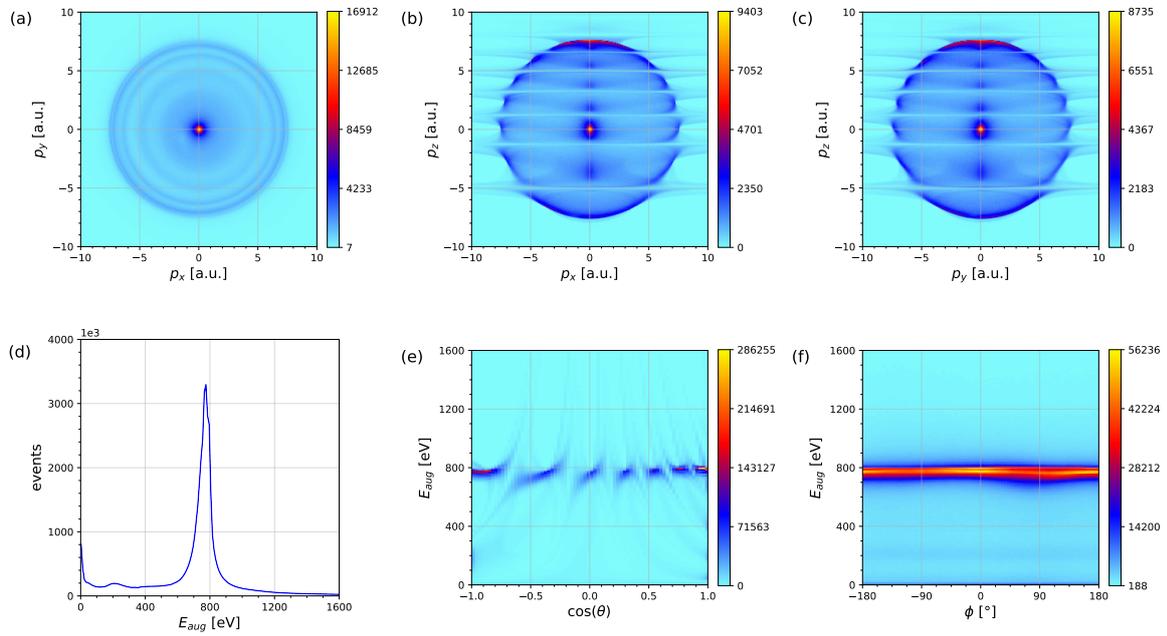


Abbildung A.3: (a)-(c) Impulsverteilung und (d)-(f) Energieverteilung der Auger-Elektronen nach der Kalibrierung.

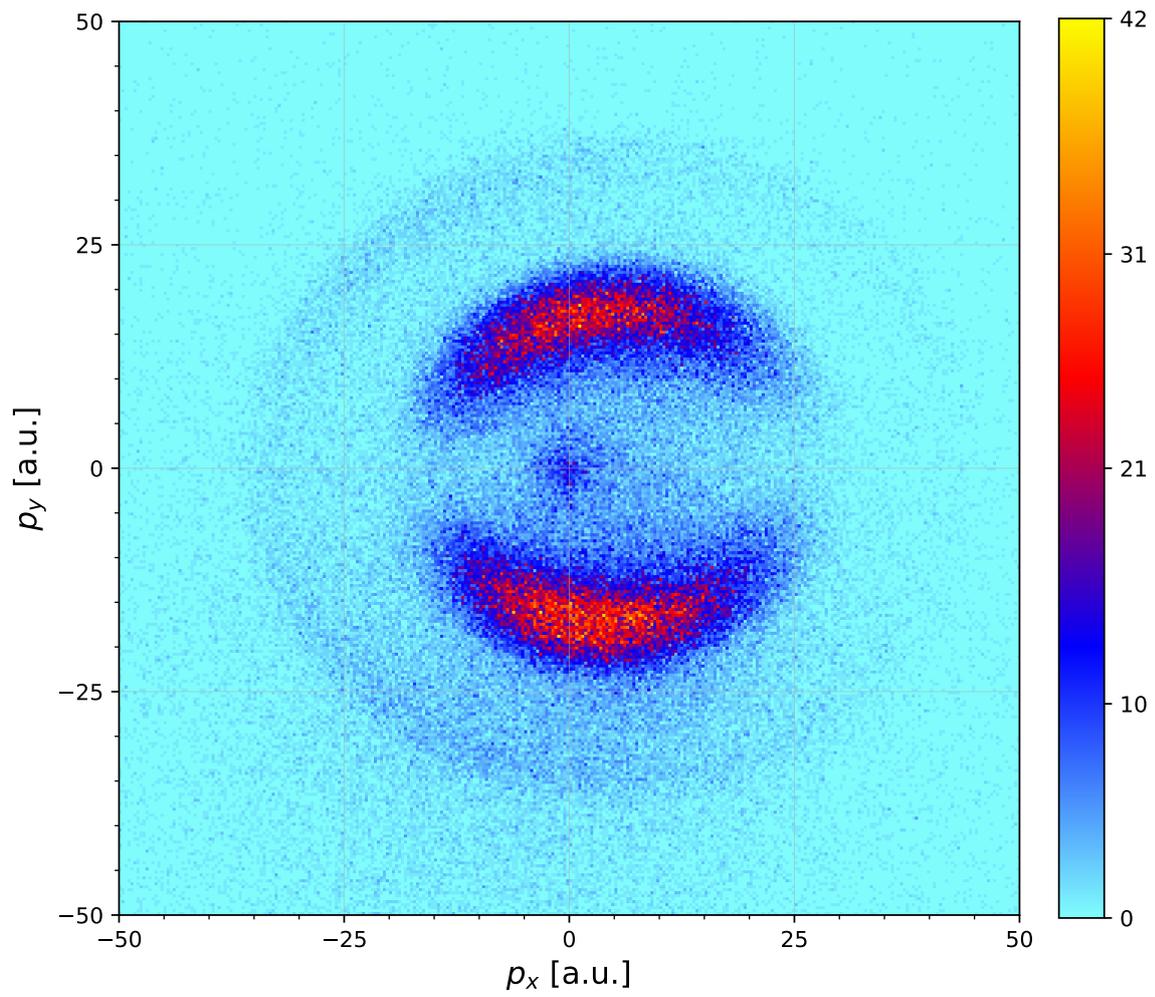


Abbildung A.4: Impulsverteilung der $K\gamma^{2+}$ -Ionen bei einer Photonenenergie von 20 keV.

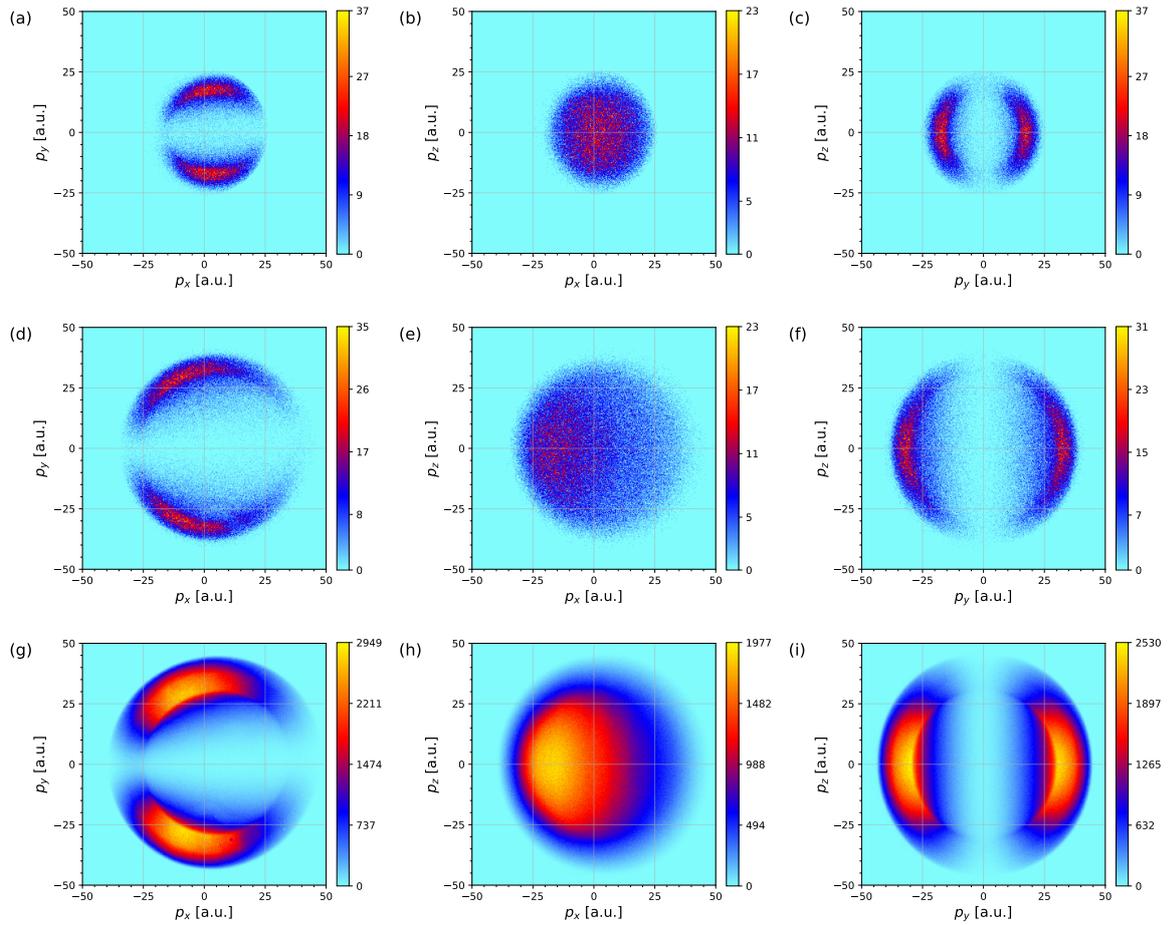


Abbildung A.5: Impulsverteilungen der Ionen (a)-(c) Kr^{2+} , (d)-(f) Ar^{2+} und (g)-(i) Ne^{2+} bei der K-Schalen-Photoionisation mit anschließendem Auger-Zerfall bei einer Photonenenergie von 20 keV.

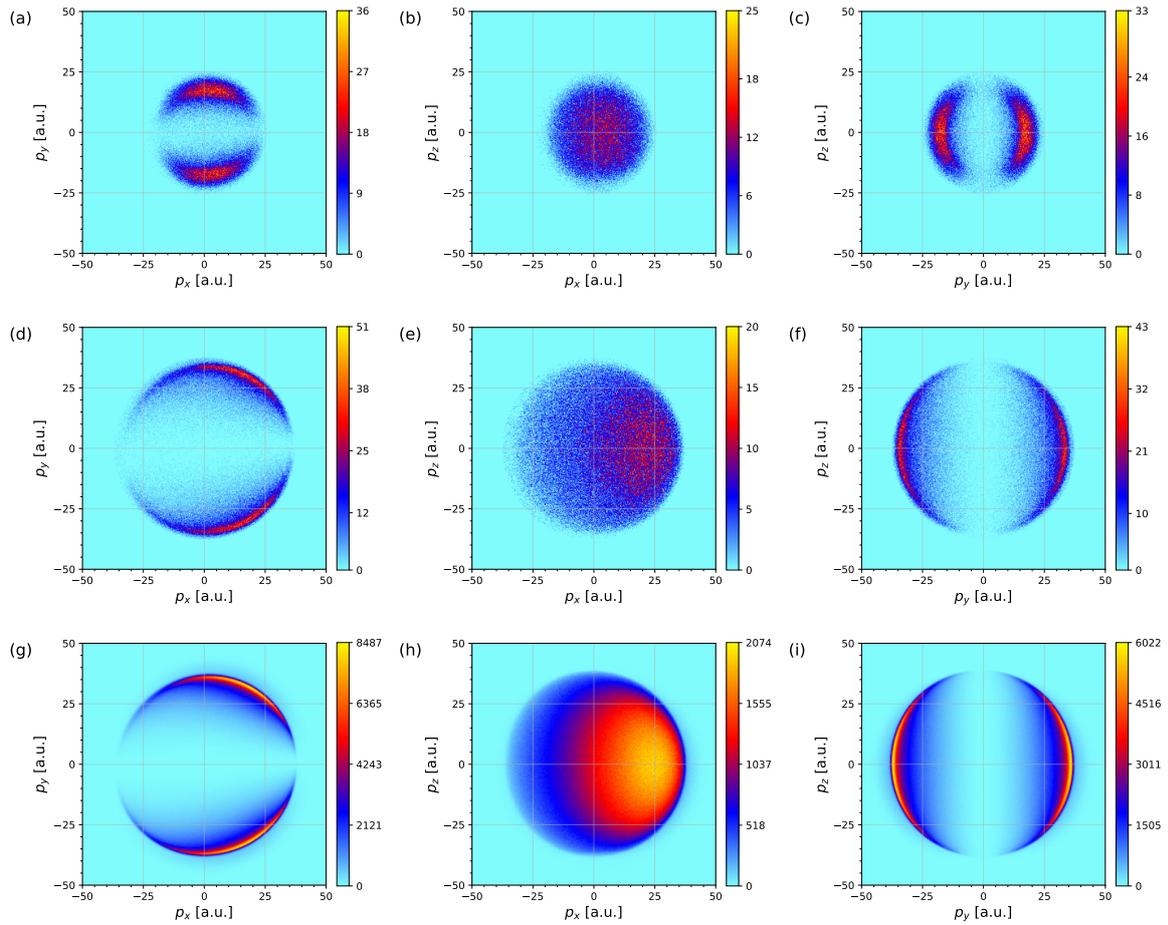


Abbildung A.6: Impulsverteilungen der Photoelektronen bei der K-Schalen-Photoionisation von (a)-(c) Kr, (d)-(f) Ar und (g)-(i) Ne bei einer Photonenenergie von 20 keV.

Literatur

- [1] A. F. Starace. „Photoionization of Atoms“. In: *Springer Handbook of Atomic, Molecular and Optical Physics*. New York: Springer (2006). S. 379–390
- [2] W. Nolting. *Grundkurs Theoretische Physik 2*. 9. Auflage. Berlin: Springer (2014). S. 118-119.
- [3] T. Jahnke. *Interatomic Coulombic Decay - Experimentelle Untersuchung eines neuartigen, interatomaren Abregungsmechanismus*. Dissertation (2005).
- [4] S. Grundmann. *Nondipolar Photoionization of Atoms and Molecules*. Dissertation (2022).
- [5] I. V. Hertel, C.-P. Schulz. *Atome, Moleküle und optische Physik 1*. Berlin: Springer (2017). S.277-289, 579-590.
- [6] J. Cooper, R. N. Zare. „Angular Distribution of Photoelectrons“. In: *J. Chem. Phys.* *48*, 942 (1968).
- [7] Fakultät für Mathematik und Physik, Albert-Ludwigs-Universität Freiburg. URL: https://cluster.physik.uni-freiburg.de/topics_Wavefunction_character
- [8] J. W. Cooper. „Photoelectron-angular-distribution parameters for rare-gas subshells“. In: *Phys. Rev. A* *47*, 1841 (1993).
- [9] D. V. Rezvan et al.. „Observation of Nondipole-Induced Asymmetry in the Angular Emission Distribution of Photoelectrons from Fixed-in-Space CO Molecules“. In: *Phys. Rev. Lett.* *129*, 253201 (2022).
- [10] A. Sommerfeld, G. Schur. „Über den Photoeffekt in der K-Schale der Atome, insbesondere über die Voreilung der Photoelektronen“. In: *Ann. Phys.* *396*, 409 (1930).
- [11] S. Chelkowski et al.. „Photon Momentum Sharing between an Electron and an Ion in Photoionization: From One-Photon (Photoelectric Effect) to Multiphoton Absorption“. In: *Phys. Rev. Lett.* *113*, 263005 (2014).
- [12] S. Grundmann et al.. „Observation of Photoion Backward Emission in Photoionization of He and N₂ “. In: *Phys. Rev. Lett.* *124*, 233201 (2020)
- [13] European Synchrotron Radiation Facility (ESRF). URL: <https://www.esrf.fr/home/UsersAndScience/Publications/Highlights/highlights-2017.html/facts-and-figures.html>
- [14] C. Schmitz-Antoniak. „X-ray absorption spectroscopy on magnetic nanoscale systems for modern applications“. In: *Rep. Prog. Phys.* *78*, 062501 (2015).
- [15] R. Dörner et al.. „Kinematically complete experiments using cold target recoil ion momentum spectroscopy“. In: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* *124*, 225 (1997).

- [16] L. Sommerlad. *Elektronische Korrelationen in Argon*. Masterarbeit (2023).
- [17] R. Dörner et al.. „Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy: A ‘momentum microscope’ to view atomic collision dynamics“. In: *Phys. Rep.* *330*, 95 (2000).
- [18] M. Weller. *Der Auger-Effekt in kleinen Molekülen*. Dissertation (2021).
- [19] A. Pier. *Konstruktion und Aufbau eines stationären COLTRIMS-Reaktionsmikroskops am PETRA III Synchrotron*. Masterarbeit (2021).
- [20] M. Kircher. *Investigation of the kinematics involved in compton scattering and hard x-ray photoabsorption*. Dissertation (2023).
- [21] W. C. Wiley, I. H. McLaren. „Time-of-Flight Mass Spectrometer with Improved Resolution“. In: *Rev. Sci. Instrum.* *26*, 1150 (1955).
- [22] O. Jagutzki et al.. „Fast position and time-resolved read-out of microchannelplates with the delay-line technique for single-particle and photon-detection“. In: *Proc. SPIE 3438, Imaging Spectrometry IV* (1998).
- [23] T. Cremer et al.. „Recent developments on next-generation microchannel plates for particle identification applications“. In: *Proc. SPIE 11118, UV, X-Ray, and Gamma-Ray Space Instrumentation for Astronomy XXI* (2019).
- [24] B. Ulrich. *Argon- und Neon-Dimere und Trimere in intensiven Laserfeldern*. Dissertation (2011).
- [25] J. Rist. *Nachweis und Zerfallsraten von ICD in Argon-Dimeren*. Masterarbeit (2015).
- [26] M. S. Schöffler. *Grundzustandskorrelationen und dynamische Prozesse untersucht in Ion-Helium-Stößen*. Dissertation (2006).
- [27] Prof. Dr. Philipp Demekhin. Universität Kassel. *Persönliche Korrespondenz am 24.11.2022*.
- [28] X-Ray Data Booklet. URL: https://xdb.lbl.gov/Section1/Table_1-1a.htm

Danksagung

Zunächst möchte ich mich bei Prof. Dr. Reinhard Dörner und Prof. Dr. Till Jahnke bedanken. Durch eure Vorlesungen habt ihr mir einen spannenden ersten Einblick in die Welt der Atom- und Molekülphysik gegeben und mein Interesse an der Arbeitsgruppe geweckt. Direkt am Anfang meiner Zeit in der Arbeitsgruppe habt ihr mir die Teilnahme an der Strahlzeit und im Zuge dessen auch ein spannendes Thema für meine Bachelorarbeit ermöglicht. Danke für eure Unterstützung!

Ein besonderer Dank geht auch an Niklas Melzer und Andreas Pier. Dank euch habe ich bereits in der Vorbereitung zur Strahlzeit viel über den Aufbau eines COLTRIMS-Experiments gelernt und konnte dieses Wissen bei der Aufbauwoche an der ESRF vertiefen. Im Anschluss an die Strahlzeit habt ihr mir beigebracht wie ein Auswertungsprozess abläuft und was dabei zu beachten ist. Danke, dass ich bei Fragen jeglicher Art immer zu euch kommen konnte!

Bedanken möchte ich mich auch bei Max Kircher. Du warst mir immer eine große Hilfe bei allen Fragen rund um COLTRIMS-Experimente und Auswertungen mit Python!

Weiter bedanke ich mich bei Dr. Florian Trinter. Durch dich habe ich bei den bisherigen Strahlzeiten viel über den Aufbau und die Funktionsweise eines Synchrotrons erfahren. Danke auch für das erste Korrekturlesen dieser Arbeit!

Danke auch an Prof. Dr. Philipp Demekhin für die Simulationen der Nichtdipol-Näherung, durch die diese Arbeit überhaupt erst ihre Aussagekraft erhält!

Abschließend noch ein großes Dankeschön an das Strahlzeit-Team der ESRF für die tolle Vorbereitung und Durchführung der Strahlzeit sowie an die gesamte Arbeitsgruppe für die angenehme Atmosphäre!

Erklärung nach § 30 (12) Ordnung für den Bachelor- und den Masterstudiengang

Hiermit erkläre ich, dass ich die Arbeit selbstständig und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Quellen und Hilfsmittel verfasst habe. Alle Stellen der Arbeit, die wörtlich oder sinngemäß aus Veröffentlichungen oder aus anderen fremden Texten entnommen wurden, sind von mir als solche kenntlich gemacht worden. Ferner erkläre ich, dass die Arbeit nicht - auch nicht auszugsweise - für eine andere Prüfung verwendet wurde.

Frankfurt am Main, den