

---

# **Raumwinkeloptimierte Elektron-Photon Koinzidenzmessungen nach der Anregung mit Synchrotronstrahlung unter Verwendung zeitlich verschiedenen strukturierter Füllmuster des Speicherrings**

## **Dissertation**

zur Erlangung des akademischen Grades  
Doktor der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)

im Fachbereich 10 - Mathematik & Naturwissenschaften  
der Universität Kassel

vorgelegt von

M. Sc. Physik Christian Ozga

geboren in Wolfhagen, Deutschland  
am 02.05.1988

Kassel, Mai 2021

Gutachter: Prof. Dr. Arno Ehresmann

Dr. Uwe Hergenhahn

Prüfer: Prof. Dr. Philipp V. Demekhin

Prof. Dr. Thomas Giesen



## INHALTSVERZEICHNIS

<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2 Physikalische Grundlagen</b>	<b>5</b>
2.1 Zusammenfassung der quantenmechanischen Beschreibung der untersuchten Prototypsysteme . . . . .	5
2.2 Anregung und Relaxation mikroskopischer Systeme . . . . .	9
2.2.1 Wechselwirkung schwacher elektromagnetischer Strahlung und Materie . . . . .	9
2.2.2 Photoneninduzierte Ionisationsprozesse atomarer und molekularer Systeme . . . . .	13
2.2.3 Relaxationsprozesse atomarer Systeme durch Photonenemission . . . . .	16
2.3 Nachweis korrelativer Prozesse durch Koinzidenzmessungen . . . . .	18
<b>3 Vorstellung des Experiments</b>	<b>21</b>
3.1 Anregungsquelle: Synchrotronstrahlungsquelle der dritten Generation BESSY II . . . . .	22
3.2 Teilchenstrahlerzeugung . . . . .	26
3.3 Verwendete Detektorsysteme . . . . .	27
3.3.1 Elektronendetektion . . . . .	27
3.3.2 Photonendetektion . . . . .	29
3.4 Datenaufnahme . . . . .	32
3.5 Vakuumsystem . . . . .	34
<b>4 Allgemeine Datenauswertung und Interpretation</b>	<b>37</b>
4.1 Vorsortierung der Datensätze . . . . .	38
4.2 Physikalische Interpretation der Messdaten . . . . .	39
4.3 Zeit-zu-Energie Konvertierungen . . . . .	41
<b>5 Anregung mit Photonenpulsen mit ausreichend großem zeitlichen Abstand</b>	<b>49</b>
5.1 Bestimmung der HäufigkeitsdichteVerteilung echter Koinzidenzen . . . . .	50
5.2 Diskussion der Ergebnisse . . . . .	58
<b>6 Anregung mit Photonenpulszügen mit beliebiger Zeitstruktur der Intensität</b>	<b>67</b>
6.1 $\Delta_t$ -Darstellung von Elektron-Photon Koinzidenzen . . . . .	68
6.2 Bestimmung des Untergrunds durch zufällige Koinzidenzen in der $\Delta_t$ -Darstellung . . . . .	73

6.2.1	Formale Modellierung des Untergrunds . . . . .	74
6.2.2	Ereignisbasierte Modellierung des Untergrunds . . . . .	75
6.3	Diskussion der Ergebnisse . . . . .	78
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung und Fazit</b>	<b>87</b>
<b>Anhang A</b>	<b>Zeit-zu-Energie Konvertierungen</b>	<b>89</b>
<b>Anhang B</b>	<b>Ereignisbasierte Simulation von Elektron-Photon Koinzidenzen</b>	<b>95</b>
<b>Anhang C</b>	<b>Technische Zeichnungen des verwendeten Spiegelsystems</b>	<b>107</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>		<b>113</b>
<b>(Co-) Veröffentlichungen des Autors</b>		<b>129</b>
<b>Danksagung</b>		<b>133</b>
<b>Erklärung</b>		<b>135</b>

# KAPITEL 1

## EINLEITUNG

Die Energiedissipation angeregter mikroskopischer Systeme ist häufig über verschiedene und unter Umständen verzweigte Relaxationspfade möglich. Bei diesen werden im Allgemeinen mehr als ein Teilchen emittiert, zwischen denen entsprechend eine physikalische Korrelation besteht. Um solche Prozesse zu verstehen, ist es essentiell, möglichst alle bei der Relaxation entstehenden Teilchen so zu detektieren, dass diese physikalischen Korrelationen nachgewiesen werden können.

Messungen, bei denen mehrere Teilchen und deren Abhängigkeiten untereinander untersucht werden, sind daher seit ihrer ersten experimentellen Umsetzung in den 1920er Jahren [1, 2] eine weit verbreitete Technik in verschiedenen wissenschaftlichen Disziplinen. In 1954 folgte daher eine Verleihung des Physik-Nobelpreises für die ersten experimentellen Umsetzungen der *Koinzidenzmessmethode* [3].

Verschiedene Varianten dieser Methodik wurden unter anderem bei der Untersuchung von atomaren und molekularen Systemen [4–15], in der Kern- [16–22] und Teilchenphysik [21, 23–25], Astrophysik [26–28], Laserphysik bzw. Quantenkommunikation [29–33] sowie bei der Positron-Emissions-Tomographie [34–39] verwendet. Aufgrund der Deduktion der Korrelation aus der zeitlichen Nähe der detektierten emittierten Teilchen werden diese als Koinzidenzmessungen (engl.: coincident particle detection) [40, 41] oder allgemeiner Koinzidenzzählmethode (engl.: coincidence counting method) [16, 20, 36] bezeichnet. Vor der Entwicklung von gepulsten Strahlungsquellen mit ausreichender Intensität und Energie der anregenden Photonen erfolgte die Anregung von atomaren oder molekularen Systemen mit Hilfe von kontinuierlich anregenden (Strahlungs-) Quellen. Hier werden die Koinzidenzereignisse über die relative zeitliche Differenz zwischen einem ausgewählten Referenzteilchen und den übrigen Koinzidenzpartnern bestimmt. Durch die Detektion verschiedener Kombinationen aus emittierten Elektronen, Photonen und Ionen ist es möglich, Aufschluss über die verschiedenen Relaxationspfade zu erhalten [40, 42–54]. Insbesondere Koinzidenzmessungen, bei denen auch Photonen detektiert werden, können hierbei Aufschluss über die Endprodukte der Relaxationspfade, beispielsweise Dissoziationsprozesse [46, 49], geben.

Mit der Verfügbarkeit moderner Synchrotronstrahlungsanlagen ist es heute möglich, Koinzidenzexperimente durch Anregung hochenergetischer, zeitlich lokalisierter Photonenpulse durchzuführen, da Synchrotronstrahlung durch die Verwendung zirkulierender Elektronenpakete inhärent gepulste Strahlung erzeugt [55]. Befindet sich nur ein Elektronenpaket in dem Speicherring, kann die von der Synchrotronstrahlungsquelle zur Verfügung gestellte Referenzuhr als Zeitreferenz verwendet werden, sodass die in Koinzidenz detektierten Teilchen voneinander entkoppelt werden können [56]. Dieser Betriebsmodus wird im Allgemeinen als Singlebunch Modus bezeichnet.

Da Messzeiten an Synchrotronstrahlungsanlagen zeitlich stark limitiert sind, zeigte sich jedoch unter anderem in [57], dass die Detektion von Photonen zeitlich ineffizient ist und ohne eine Optimierung der Detektionseffizienzen nur eine geringe Anzahl von Koinzidenzereignissen in den gegebenen Zeiten

gemessen werden können. Dies ist auch bei der Verwendung von kontinuierlichen Strahlungsquellen der Fall, kann aber bei solchen Messungen wegen der besseren Verfügbarkeit der Quellen bei ausreichendem Signal-zu-Rausch Verhältnis durch längere Messdauern abgefangen werden [44]. Die Ursache für die geringe Zählrate bei der Photonenmessung liegt neben den geringeren Ansprechwahrscheinlichkeiten der Detektoren vor allem in den wesentlich geringeren einsehbaren Raumwinkeln. Der detektierbare Raumwinkel geladener Teilchen kann durch die Verwendung von elektrischen oder magnetischen Feldern gut reguliert werden, während für die Vergrößerung des Photonendetektionsraumwinkels aufwändige Spiegel- oder Linsensysteme verwendet werden müssen [41, 58–61].

Die Problematik der geringeren Ereignisraten bei der koinzidenten Detektion von Photonen während Synchrotronstrahlungsexperimenten wird weiter dadurch verstärkt, dass die Verwendung einzelner, zirkulierender Elektronenpaket wegen der geringen Gesamtintensität der anregenden Strahlung nur für wenige Wochen des Jahres angeboten werden, da viele andere experimentelle Ansätze die so erreichbaren Zeitintervalle zwischen zwei anregenden Pulsen nicht benötigen [62]. Häufiger werden mehr als ein Elektronenpaket verwendet und die sich daraus ergebenden Füllmuster nutzen zeitliche Abstände der Elektronenpakete von einigen 100 ns (Few Bunch Mode) bis hin zu Werten unterhalb von 10 ns<sup>1</sup>. Hier sind Messungen, welche einen ausreichend großen zeitlichen Abstand zwischen zwei möglichen Anregungen benötigen, nur stark eingeschränkt beziehungsweise kaum noch möglich.

Es existieren daher verschiedene Möglichkeiten, zeitaufgelöste Messungen mit der Referenzuhr der Synchrotronstrahlungsanlage für beliebige zeitliche Strukturen der Füllmuster durchzuführen. So können zum Beispiel synchronisierte Selektoren in den Strahlrohren verwendet werden, welche nur die durch bestimmte Elektronenbunche erzeugten anregenden Photonen bis zum Experiment gelangen lassen, was entweder auf mechanische oder elektrische Weise geschehen kann [63–65]. Bei BESSY II (HZB, Berlin) werden darüber hinaus verschiedene andere Methoden wie voneinander abweichende Orbits der Elektronenpakete [66] oder Pulse Picking by Resonant Excitation (PPRE) [67, 68] eingesetzt, bei denen nur die anregenden Pulse von bestimmten Elektronenpaketen zu einer Anregung führen. In jedem Fall wird aber nur ein kleiner Teil der verfügbaren anregenden Strahlung verwendet, wodurch sich vor allem für unwahrscheinliche Prozesse die Messdauer drastisch erhöht.

Soll die Intensität der anregenden Photonen möglichst vollständig für das Experiment genutzt werden, so führt der Kenntnisverlust der Zeitdifferenz zwischen Referenzuhr und Anregungsereignis zu komplexen zeitlichen Strukturen der Messungen, welche abhängig von dem verwendeten Füllmuster sind. Diese Strukturen wurden für Photoelektron-Augerelektron Koinzidenzmessungen [69, 70] für den Fall untersucht, dass hemisphärische (elektrostatische) Elektronendetektoren genutzt werden. Hier wurde der Beitrag des Untergrunds zufälliger Koinzidenzen zu der Gesamtintensität der gemessenen Koinzidenzen modelliert, was zusätzlich auf Photo-Doppelionisationsprozesse [71] angewendet wurde. Diese Methode wurde später für Photoelektron-Augerelektron Koinzidenzmessungen mit einer Kombination aus einem hemisphärischen Elektronendetektor mit Elektronenflugzeitspektrometern übertragen [72]. Ein zu dieser Methode vergleichbarer Ansatz wurde auf Basis der digitalen Koinzidenzmessung [22, 73–78] für die Untersuchung von Spaltungsprozessen gefunden, welche durch Neutronenbeschuss mit einem minimalen zeitlichen Abstand der Pulse von 1800 ns induziert wurden [22]. Für jeden der Neutronenpulse stand dabei eine Referenzzeit zur Verfügung, sodass dieses Anregungsschema eher der Struktur der Single-bunch Messungen bei auf Synchrotronstrahlung basierenden Messungen entspricht.

Basierend auf den bisherigen Untersuchungen verfolgt diese Arbeit daher zwei Ziele zur Optimierung von Elektron-Photon Koinzidenzexperimenten, bei welchen die von Synchrotronstrahlungsanlagen erzeugten

---

<sup>1</sup>8 ns bei PETRA III (DESY, Hamburg), 2,8 ns bei SOLEIL (Saint Aubin, Frankreich) und 2 ns bei BESSY II (HZB, Berlin)

Photonen zur Anregung genutzt werden. So sollte als Erstes die für den Nachweis notwendige Messdauer für zeitlich limitierte Synchrotronstrahlungsexperimente optimiert werden, wofür im Rahmen dieser Arbeit ein Messaufbau zum effizienten Nachweis von koinzidenten Elektronen und Photonen realisiert werden sollte. Als Basis hierfür war es vorgesehen, einen bereits bestehendes Experiment zur koinzidenten Detektion von emittierten Elektronen zu verwenden, bei welchem Teilchenstrahlen mit anregenden, hochenergetischen Photonen gekreuzt werden. Da dieser bereits eine hohe Nachweiseffizienz für die Elektronen besitzt, sollten Optiken zur drastischen Steigerung der Photonendetektionseffizienz genutzt werden, welche für den vorhanden Aufbau speziell angepasst sind. Dieser Aufbau ermöglichte den Nachweis damit verbundener Prozesse, wie zum Beispiel interatomarer Relaxationsprozessen in heterogenen [79] und homogenen [80] Gemischen von schwach gebundenen Edelgasen.

Als Zweites sollte die Bewertung des Untergrunds zufälliger Koinzidenzen der Elektron-Photon Koinzidenzen so angepasst werden, sodass es auch für beliebige Füllmuster der Speicherringe möglich ist, korrelative Prozesse auf Basis der Detektionszeiten nachzuweisen. Hierzu war insbesondere die verwendete Kombination aus Detektoren, Messelektronik und Datenaufnahme zu berücksichtigen.

Die beiden Aufgabenstellungen dieser Arbeit konnten zum Teil bereits in wissenschaftlichen Journalen veröffentlicht werden, vergleiche hierzu die [Liste der \(Co-\) Veröffentlichungen](#) im Anhang. Hier wird nun einen Gesamtüberblick über die beiden Aufgabenstellungen unter Angabe verschiedener Details und Zusatzinformationen zu den erhaltenen Ergebnissen gegeben und die dort dargestellten Ergebnisse weiter diskutiert. Darüber hinaus werden die zu Grunde liegenden Annahmen der Datenauswertung ausführlich dargestellt und diskutiert.

Zunächst werden einige für diese Arbeit benötigten physikalische Zusammenhänge in Kapitel 2 vorgestellt. Darauf folgt eine Beschreibung des experimentellen Aufbaus in Kapitel 3 sowie eine Erläuterung der allgemeinen Datenanalyse und Dateninterpretation in Kapitel 4. Der Ergebnisteil ist in zwei Untereinheiten bezüglich der für die Experimente verwendeten Füllmuster unterteilt, welche sich jeweils auf eine der Kernfragen dieser Arbeit konzentrieren. Jedem dieser Kapitel ist dabei die jeweils genutzte Methode zur Bestimmung des durch zufällige Koinzidenzen gegebenen Untergrunds vorangestellt.

Kapitel 5 behandelt die Experimente mit Anregungspulsen ausreichend zeitlichen Abstands am Beispiel des Singlebunch Modus von BESSY II und fokussiert sich dadurch auf die Steigerung der Photonendetektionseffizienz durch Verwendung passender Optiken. Helium dient dabei wegen der aus anderen Arbeiten bekannten Querschnitte der Elektronenspektren und strahlenden Übergänge sowie der physikalischen Struktur als Testsystem für diese Charakterisierung. Die Vorteile der simultanen Detektion verschiedener Kombinationen aus Elektronen und Photonen für Untersuchungen der elektronischen Struktur mikroskopischer Systeme werden im Anschluss daran an Untersuchungen von Argon nach der Anregung mit Photonen illustriert, deren Energie oberhalb der 2s-Bindungsenergie liegt.

In Kapitel 6 wird diskutiert, wie Elektron-Photon Koinzidenzexperimente unter Verwendung von Anregungspulsen mit einer beliebigen zeitlichen Verteilung der Pulsintensitäten und Pulsabstände durchgeführt werden können. Hier erfolgt keine Anpassung des in Kapitel 5 genutzten experimentellen Aufbaus. Die genutzten Daten stammen dabei aus Messungen, welche nach der Anregung von Argon-Clustern und molekularen CO<sub>2</sub> im Multibunch Hybrid Modus von BESSY II als Beispiel für ein komplexes Füllmuster des Synchrotrons erhalten wurden, sowie aus ereignisbasierten Simulationen.

Die Arbeit schließt mit einem kurzen Überblick der erhaltenen Ergebnisse in Kapitel 7.



# KAPITEL 2

## PHYSIKALISCHE GRUNDLAGEN

Die im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten koinzidenten Messungen von Elektronen und Photonen basieren auf der Anregung verschiedener physikalischer Systeme durch die Absorption von Photonen und die anschließende Relaxation der so gestörten Systeme. Um den Ausführungen in dieser Arbeit besser folgen zu können, erfolgt zunächst eine kurze Wiederholung der allgemeinen quantenmechanischen Beschreibung dieser Systeme in Abschnitt 2.1. Auf dieser Basis werden die grundlegenden physikalischen Zusammenhänge dieser Anregung und der anschließenden Relaxation durch Emission von Elektronen und Photonen in Abschnitt 2.2 zusammenfassend beschrieben. In Abschnitt 2.3 wird abschließend der Begriff der *Koinzidenz* eingeführt und diskutiert.

### 2.1 Zusammenfassung der quantenmechanischen Beschreibung der untersuchten Prototypsysteme

Im Laufe des 20. Jahrhunderts hat sich die Quantenmechanik zur physikalischen Beschreibung von Materie im mikroskopischen Maßstab durchgesetzt [81–83]. Diese geht von der Grundannahme aus, dass sich deren Zustand durch eine ihr zugeordneten Wellenfunktion  $\Psi(\vec{x})$  darstellen lässt. Die Menge aller von dem System erreichbaren Zustände bildet hierbei einen unitären Vektorraum, den sogenannten *Hilbert-Raum*, in welchem sich die Zustände mit Hilfe der *Dirac-Notation* schreiben lassen als  $|\Psi\rangle$ . Diese Darstellung ermöglicht es, die quantenmechanischen Zustände mit Hilfe der aus der linearen Algebra bekannten Methoden zu untersuchen und zu interpretieren. Eine ausführliche Beschreibung und Herleitung der so definierten Hilberträume ist zum Beispiel in [81–83] zu finden. In dem dort vorgestellten Modell ergeben sich die Messwerte einer quantenmechanischen Messung, auch *Observable* genannt, als reellwertige Eigenwerte  $a$  mit dem dazugehörigen Eigenzustand  $|\Psi_a\rangle$  des hermiteschen Operators  $\hat{A}_i$  durch die Eigenwertgleichung

$$a |\Psi_a\rangle = \hat{A}_i |\Psi_a\rangle . \quad (2.1.1)$$

Die Beschreibung von Zustandsänderungen erfolgt durch die Anwendung eines Operators  $\hat{T}$  auf einen beliebigen Zustand  $|\Psi\rangle$ , wobei die Änderung dieses physikalischen Zustandes einer Rotation im Hilbertraum entspricht. Dies führt zu dem wichtigen Begriff des Übergangsmatrixelements

$$\hat{T}_{fi} = \langle f | \hat{T} | i \rangle , \quad (2.1.2)$$

dessen Betragsquadrat proportional zu der Übergangswahrscheinlichkeit aus dem Anfangszustand  $|i\rangle$  in den betrachteten Endzustand  $|f\rangle$  ist.

Die in physikalischen Prozessen zentrale Erhaltungs- und Messgröße der Energie erfüllt durch den ihr zugeordneten Energieoperator, dem Hamiltonoperator  $\hat{\mathcal{H}}$ , die als Schrödinger-Gleichung bekannte Differentialgleichung

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi_E\rangle = \hat{\mathcal{H}} |\Psi_E\rangle \quad (2.1.3)$$

bei einer zeitlichen Variation der Energie.  $i$  bezeichnet dabei die imaginäre Einheit und  $\hbar = \frac{h}{2\pi}$  das Plancksche Wirkungsquantum. Bei zeitlich konstanter Energie  $E$  des betrachteten Zustandes geht diese über in die davon abgeleitete Eigenwertgleichung

$$E |\Psi_E\rangle = \hat{\mathcal{H}} |\Psi_E\rangle . \quad (2.1.4)$$

Für beide Fälle wird angenommen, dass die Zustände  $\Psi_E$  Eigenvektoren des Hamiltonoperators sind. Weiterhin zeigt sich, dass es möglich ist, einen maximalen Satz an *verträglichen Observablen* zu finden, durch welchen der quantenmechanische Zustand vollständig charakterisiert wird. Diese Verträglichkeit ergibt sich daraus, dass die den Observablen zugeordneten Operatoren paarweise kommutieren und daher derselbe Zustand gleichzeitig Eigenzustand all dieser Operatoren ist. Die so gefundenen Zustände sind somit die Eigenzustände des untersuchten Systems. Hierdurch lässt sich eine vollständige, orthonormierte Basis an Zuständen konstruieren, durch welche alle anderen Zustände gemäß der Eigenschaften des Hilbertraumes als Linearkombination dieser Basis beschrieben werden können. Ein quantenmechanischer Zustand lässt sich somit durch die Angabe der Werte aller Observablen, in diesem Zusammenhang häufig auch *Quantenzahlen* genannt, abstrakt darstellen, was für viele (qualitative) Überlegungen im Rahmen der Quantenmechanik ausreicht.

Das Wasserstoffatom entspricht mit einem sphärisch symmetrischen Potential dem einfachsten elektronischen System. Dessen Zustände lassen sich so durch die drei das Atomorbital charakterisierenden Quantenzahlen  $n$ ,  $l$  und  $m_l$ , die beiden den Spin des Elektrons beschreibenden Quantenzahlen  $s$  und  $m_s$  sowie den durch die Spin-Bahn-Kopplung bedingten Gesamtdrehimpuls  $j$  definieren. Der Wertebereich und die Bezeichnungen dieser Quantenzahlen sind in Tabelle 2.1 zusammengefasst.

Bezeichnung	Symbol	Wertebereich
Hauptquantenzahl	$n$	1, 2, 3 ...
Bahndrehimpulsquantenzahl	$l$	0, 1, 2, ..., $n - 1$
Bahndrehimpulsprojektionsquantenzahl	$m_l$	$-l, -l + 1, \dots, l - 1, l$
Spinquantenzahl	$s$	$\frac{1}{2}$
Spinprojektionsquantenzahl	$m_s$	$-\frac{1}{2}, \frac{1}{2}$
Gesamtdrehimpuls	$j$	$l - s, l + s$

**Tabelle 2.1:** Quantenzahlen eines Einelektronsystems [84].

Für die Bahndrehimpulsquantenzahl  $l$  werden aus historischen Gründen die Zahlen häufig durch Buchstaben ersetzt ( $0 \rightarrow s, 1 \rightarrow p, 2 \rightarrow d, 3 \rightarrow f, 4 \rightarrow g, \dots$ ) [85], sodass für  $l = 2$  zum Beispiel von einem d-Orbital gesprochen wird. Die Spinquantenzahl  $s$  definiert Elektronen als Spin- $\frac{1}{2}$ -Teilchen, welche auch Fermionen genannt werden. Im Allgemeinen wird diese aus Redundanzgründen nicht mit angegeben,

da sie für alle Elektronen identisch ist. Die Spineigenschaften des Elektrons müssen im Rahmen der nichtrelativistischen Quantenmechanik künstlich hinzugefügt werden, während diese im Rahmen der relativistischen Quantenmechanik direkt durch den Formalismus berücksichtigt sind [84]. Sehr hochauflösende Untersuchungen zeigen, dass auch der Atomkern mit den elektronischen Zuständen in einem geringen Maß wechselwirkt, was zu der Hyperfeinstrukturaufspaltung dieser Zustände führt [84, 85]. Diese Aufspaltung hat aber für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente keinen messbaren Effekt, sodass sie im weiteren Verlauf der Arbeit vernachlässigt werden kann.

Wird nicht nur ein Einelektronensystem, wie das Wasserstoffatom, sondern ein Vielelektronensystem betrachtet, wechselwirken die Elektronen auch untereinander. Der fermionische Charakter der Elektronen führt dabei dazu, dass der elektronische Gesamtzustand stets antisymmetrisch sein muss. Die Schrödinger-Gleichung ist unter anderem hierdurch schon für ein Zweielektronensystem nicht mehr analytisch exakt lösbar, sodass Näherungen und numerische Methoden zur Berechnung der Wellenfunktionen genutzt werden. Das am häufigsten genutzte Modell zur Beschreibung dieser Systeme ist die Betrachtung der Elektronen als voneinander unabhängige Teilchen. In diesem bewegen sich die Elektronen in einem  $N$ -Elektronen System in dem über  $N - 1$  Elektronen gemittelten Potential [82]. Effekte, welche auf der direkten Korrelation zwischen den Elektronen beruhen, sind in dieser Näherung zunächst nicht berücksichtigt. In einem weiteren Schritt kann das so erzeugte gemittelte Potential in einen symmetrischen und einen antisymmetrischen Teil separiert werden, wobei in der *Zentralfeldnäherung* der antisymmetrische Teil vernachlässigt wird, da dieser als ausreichend kleine Störung interpretiert werden kann. Im Rahmen dieser Näherung wird die Schrödinger-Gleichung wieder auf die von dem Einelektronensystem bekannte, sphärisch symmetrische Form reduziert, sodass sich in diesem Fall alle Elektronen durch die in Tabelle 2.1 aufgeführten Quantenzahlen beschreiben lassen. Dies bedeutet insbesondere, dass alle Elektronen in diesem Bild gleichberechtigt dieselben wasserstoffähnlichen Orbitale besetzen können. Zusammen mit dem durch die Antisymmetrieverbedingung der Gesamtwellenfunktion bedingtem *Pauli-Prinzip* führt dies schließlich zu dem bekannten Aufbau des Periodensystems [84].

In diesem Bild erfolgt die Berücksichtigung der magnetischen Wechselwirkung der elektronischen Bahndrehimpulse und Spins zwischen den verschiedenen Elektronen im Grenzfall von leichten Atomen über die *Russel-Saunders-Kopplung*. Hier ist die Spin-Bahn-Wechselwirkung im Vergleich zu der interelektronischen Wechselwirkung vernachlässigbar, während im Grenzfall von schweren Atomen die  $jj$ -Kopplung genutzt wird [86, 87]. Die Russel-Saunders-Kopplung wird häufig auch *LS*-Kopplung genannt, da hier die Spin- und Bahndrehimpulse der  $n$  Elektronen zu einem Gesamtspin  $S = \sum_n m_{s_n}$  und einem Gesamtbahndrehimpuls  $L = \sum_n m_{l_n}$  koppeln. Aus diesen bestimmt sich dann der Gesamtdrehimpuls  $J \in [L - S, L - S + 1, \dots, L + S - 1, L + S]$ , wodurch für das *Termsymbol*

$$^{2S+1}L_J^{\circ} \quad (2.1.5)$$

gilt. Dabei werden die Zahlenwerte der Gesamtdrehimpulse durch Großbuchstaben ersetzt, welche sich analog zu den Bahndrehimpulsen ergeben. Zusätzlich wird angegeben, ob der Gesamtzustand eine gerade oder ungerade Parität besitzt, welche im letzteren Fall mit  $\circ$  bezeichnet wird. Die Parität ist über den Paritätsoperator  $\hat{P}$  definiert als [88]

$$\hat{P} |\Psi\rangle = (-1)^{\sum_n I_n} |\Psi\rangle \quad (2.1.6)$$

und beschreibt das Symmetrieverhalten der Wellenfunktion bei einem Vorzeichenwechsel der Ortskoordinate  $\Psi(\vec{r}) = \pm \Psi(-\vec{r})$ .

Zwischen den Grenzfällen der Kopplungstypen werden verschiedene Mischtypen dieser Schemata verwendet, welche abhängig von den vorherrschenden Wechselwirkungen sind und somit verschiedene Darstellungen ergeben [86, 87]. Diese werden der Besetzung der Atomorbitale hinzugefügt, um den Gesamtzustand des Vielelektronensystems zu beschreiben. So gilt zum Beispiel für den Grundzustand von Argon in der *LS*-Kopplung

$$1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 \ ^1S_0 . \quad (2.1.7)$$

Wie an der Definition des Termsymbols (2.1.5) zu erkennen, existieren  $2S + 1$  mögliche Fälle für ein gegebenes Paar aus Gesamtspin und Gesamtbahndrehimpuls, weswegen diese Größe auch häufig als *Multiplizität* bezeichnet wird. Ist  $S \neq 0$ , so existieren mehrere Termsymbol. Um den Term des Grundzustands zu bestimmen, werden im Allgemeinen die *Hundschen Regeln* genutzt [85].

Bei dem Übergang von atomaren zu molekularen Systemen ändert sich auch der Satz der Observablen, da sich hier zum einen die atomaren Orbitale verformen, um so die Molekülorbitale zu bilden, und zum anderen auch die Kernbewegungen berücksichtigt werden müssen [84, 88, 89]. Der Zustand des molekularen Gesamtzustandes ist damit eine Funktion aller  $n$  Elektronen und aller  $m$  Kerne, sodass diese auch nur über entsprechende Näherungen modelliert werden können. Eine der bekanntesten Methoden ist die *Born-Oppenheimer* Näherung, in welcher die Kern- und Elektronenbewegung über einen Separationsansatz getrennt voneinander betrachtet werden. Der molekulare Gesamtzustand lässt sich somit als Produkt des Kernzustands  $|\Phi_K\rangle$  und des elektronischen Zustandes  $|\Psi_e\rangle$  schreiben. Durch das komplexe Wechselspiel der Elektronen- und Kerndynamik molekularer Systeme ist es hierbei nicht möglich von diskreten Eigenenergien des elektronischen Zustandes der Moleküle zu sprechen, sondern nur von Potentiallandschaften, welche sich durch generalisierte Koordinaten beschreiben lassen. Zu jedem elektronischen Zustand gehört dabei eine andere Potentiallandschaft. Der Grundzustand wird als  $X$  bezeichnet und die darüber liegenden, optisch erreichbaren Zustände alphabetisch aufsteigend mit Großbuchstaben  $A, B, C, \dots$ . Höherenergetische Zustände, welche nicht optisch vom Grundzustand erreichbar sind, werden im Allgemeinen entsprechend mit kleinen Buchstaben  $a, b, c, \dots$  bezeichnet [88]. Wird die Energie des elektronischen Zustandes des Moleküls als Funktion einer einzigen generalisierten Koordinate aufgetragen, so werden diese Darstellungen auch *Potentialkurven* genannt. Einige Beispiele für solche generalisierte Koordinaten sind der Kern-Kern Abstand zweiatomiger Moleküle oder der Bindungswinkel dreiatomiger Moleküle. Die Potentiallandschaften, beziehungsweise Potentialkurven, werden im Rahmen der Born-Oppenheimer Näherung durch den elektronischen Zustand als Funktion der gewählten generalisierten Koordinate definiert. Für die Berücksichtigung der Kernbewegung zeigt sich, dass deren Bewegung in diesem Bild durch Schwingungs- und Rotationszustände beschrieben werden können, deren Eigenzustände sich mit der elektronischen Potentiallandschaft als äußeres Potential über die Schrödinger-Gleichung ergeben und in einem Satz von Quantenzahlen bezüglich des molekularen Kerngerüsts resultieren. In Kombination mit den Quantenzahlen des elektronischen Zustandes lässt sich so der molekulare Gesamtzustand beschreiben [88]. Die Gesamtenergie des molekularen Zustandes ergibt sich dann als Summe der Eigenenergien der elektronischen Zustände sowie der Vibrations- und Rotationszustände, wobei im Allgemeinen  $E_{\text{elektronisch}} > E_{\text{Schwingung}} > E_{\text{Rotation}}$  gilt [88–90]. Für dreiatomige, lineare Moleküle vom Typ *ABA*, so zum Beispiel  $\text{CO}_2$ , lassen sich drei Typen von Schwingungen beschreiben, welche als symmetrische und asymmetrische Streckschwingung (Quantenzahlen  $\nu_1, \nu_2$ ) sowie als Knickschwingung (Quantenzahl  $\nu_3$ ) bezeichnet werden [88].

Neben den starken molekularen Bindungen existieren auch schwach gebundene Systeme, welche aus Atomen oder Molekülen aufgebaut sein können [88]. Diese als *Cluster* bezeichneten Systeme können

zwei Bindungspartner bis hin zu mehrere tausend Bindungspartnern aufweisen, wobei homogene und heterogene Systeme möglich sind. Bei Edelgasclustern basieren die schwachen Bindungen zwischen den verschiedenen Edelgasatomen wegen der abgeschlossenen Elektronenschalen auf van-der-Waals Kräften. Diese können daher nur in sehr niedrigen Vibrations- und Rotationszuständen existieren [88], weshalb die Erzeugung von Edelgasclustern im Allgemeinen eine Kühlung der Systeme beinhaltet.

Auch für Cluster lassen sich Potentiallandschaften als Funktion ausgewählter generalisierter Koordinaten definieren. Bestehen diese aus zwei Komponenten, so werden diese *Dimere* genannt und lassen sich durch Potentialkurven als Funktion des Teilchenabstands beschreiben [91]. Durch die räumliche Nähe der Bindungspartner ist es in den schwach gebundenen Clustern möglich, über interatomare Prozesse zu relaxieren [92]. Einer dieser Prozesse ist der Radiative Charge Transfer (RCT) [91, 93, 94], bei welchem zur Energieminimierung ein Ladungsaustausch zwischen einem zuvor ionisierten Bindungspartner und einem benachbarten, neutralen Bindungspartner stattfindet. Die Überschussenergie wird zwecks Energieerhaltung dabei als Photonen emittiert, deren Wellenlänge im Sensitivitätsbereich des im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Detektors liegen. Dadurch lässt sich dieser Prozess über Elektron-Photon-Koinzidenzmessungen direkt nachweisen [79, 80].

## 2.2 Anregung und Relaxation mikroskopischer Systeme

Die Untersuchung physikalischer Systeme im mikroskopischen Bereich erfolgt zum Beispiel durch die Messung von Teilchen, welche bei ablaufenden Relaxationprozessen emittiert werden und Aufschluss über die innere Struktur der relaxierenden Systeme liefern. Bis auf wenige Spezialfälle, so zum Beispiel radioaktive Materialien, befinden sich die zu untersuchenden Systeme allerdings in ihrem energetischen Grundzustand. Diese müssen zunächst in einen energiereicherem Zustand angeregt werden, um dadurch Relaxationsprozesse zu induzieren. Eine experimentell häufig genutzte Methode zur Erzeugung angeregter Zustände ist die Interaktion der zu untersuchenden Systeme mit Photonen. Diese bietet den Vorteil, dass zum einen die Eigenschaften der Photonen experimentell sehr gut einstellbar und zum anderen die hierdurch induzierten Anregungen sehr definiert sind. Auch die im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Experimente basieren auf diesem Anregungsschema. Daher werden die für das Verständnis der Ergebnisse notwendigen Grundlagen bezüglich der Wechselwirkung zwischen der Elektronenhülle und Photonen, insbesondere der so induzierten Prozesse, kurz vorgestellt.

### 2.2.1 Wechselwirkung schwacher elektromagnetischer Strahlung und Materie

Die Wechselwirkung eines Strahlungsfeldes mit der Elektronenhülle lässt sich in einem semiklassischen Modell darstellen, bei welchem die Elektronenhülle quantenmechanisch in ihrer Zustandsdarstellung und die Photonen klassisch als elektromagnetische Felder beschrieben werden. Ausgangspunkt der Überlegungen ist der durch das Strahlungsfeld modifizierte Hamiltonoperator für ein *optisch aktives*, das heißt mit dem Strahlungsfeld wechselwirkendes, Elektron. Entsprechend [82] wird hier der Impulsoperator  $\hat{p} = -i\hbar\nabla$  ersetzt durch  $\hat{p}_{\text{Feld}} = \hat{p} - e\vec{A}$ , wobei  $e$  die Elementarladung des Elektrons und  $\vec{A} = \vec{A}(\vec{r}, t)$  das Vektorpotential des Feldes bezeichnet. Dies führt unter Vernachlässigung des Elektronenspins mit

der Coulomb-Eichung  $\nabla \cdot \vec{A} = 0$  und der Elektronenmasse  $m_e$  zu dem Hamiltonoperator

$$\begin{aligned}\hat{\mathcal{H}} &= \frac{1}{2m_e} (\hat{p} + e\vec{A})^2 + V(\vec{r}) \\ &= \frac{\hat{p}^2}{2m_e} + V(\vec{r}) + \frac{e\hat{p} \cdot \vec{A}}{m_e} + \frac{e^2}{2m_e} \vec{A}^2 \\ &\approx \frac{\hat{p}^2}{2m_e} + V(\vec{r}) + \frac{e\hat{p} \cdot \vec{A}}{m_e}.\end{aligned}\quad (2.2.1)$$

Im letzten Schritt wird die wichtige Annahme gemacht [82], dass die Intensität der elektromagnetischen Strahlung und das damit verbundene Vektorpotential  $\vec{A}$  so schwach sind, dass der quadratische Term einen vernachlässigbaren Beitrag liefert.

Die ersten beiden Terme in der letzten Zeile von Gleichung 2.2.1 entsprechen dem Hamilton-Operator des ungestörten Systems  $\hat{\mathcal{H}}$ , sodass der dritte Summand im Rahmen der Störungsrechnung erster Ordnung als der den Zustand ändernden Operator  $\hat{\mathcal{T}}$  betrachtet werden kann. Dieser beschreibt die Wechselwirkung mit dem elektromagnetischen Feld und kann weiter ausgewertet werden, wenn angenommen wird, dass es sich bei dem elektromagnetischen Feld um eine ebene, monochromatische Welle handelt. Diese Welle kann über die Kreisfrequenz  $\omega$  und den Wellenvektor  $\vec{k}$  beschrieben werden, deren Eigenschaften schon aus der klassischen Elektrodynamik bekannt sind [95]. Hierbei wird zunächst von einer monochromatischen Welle ausgegangen, mit welcher sich der Übergangsoperator  $\hat{\mathcal{T}}$  mit Hilfe der Amplitude des elektrischen Feldes  $E_0$  schreiben lässt als

$$\hat{\mathcal{T}} = \hat{\mathcal{T}}(\hat{p}, \vec{r}, t) = -\frac{-ieE_0}{2} (\hat{\mathcal{D}} e^{-i\omega t} - \hat{\mathcal{D}}^\dagger e^{+i\omega t}), \quad (2.2.2)$$

$$\text{mit } \hat{\mathcal{D}} = \frac{ie^{i\vec{k} \cdot \vec{r}}}{\omega m_e} \hat{p} \cdot \vec{e} \quad \text{und} \quad E_0 = \omega A_0 = \sqrt{\frac{2I}{c\varepsilon_0}}. \quad (2.2.3)$$

$A_0$  bezeichnet die Amplitude des Vektorpotentials  $\vec{A}$ ,  $I$  die Intensität,  $\vec{e}$  den Einheitsvektor der Polarisierung,  $c$  die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum und  $\varepsilon_0$  die elektrische Feldkonstante. Wie in [82] gezeigt, beschreibt der erste, zu  $\hat{\mathcal{D}}$  proportionale, Summand in Gleichung 2.2.2 die Absorption von elektromagnetischer Strahlung. Der zweite, zu  $\hat{\mathcal{D}}^\dagger$  proportionale, Summand stellt die Emission von elektromagnetischer Strahlung dar.

Im letzten Schritt der gezeigten Ausführungen bezüglich der Auswertung des Übergangsoperators wird die *elektrische Dipolnäherung* eingeführt und der Übergangsoperator  $\hat{\mathcal{T}}$  von der Ortsrepräsentation in eine Matrixdarstellung übersetzt. Dabei wird zunächst der Operator  $\hat{\mathcal{D}}$  durch Ausnutzung der Summandendarstellung umgeschrieben zu

$$\hat{\mathcal{D}} = \frac{i}{\omega m_e} \left[ \sum_n \frac{(\vec{k} \cdot \vec{r})}{n!} \right] \hat{p} \cdot \vec{e} = \frac{i}{\omega m_e} \left[ 1 + \vec{k} \cdot \vec{r} + \frac{1}{2} (\vec{k} \cdot \vec{r})^2 + \dots \right] \hat{p} \cdot \vec{e}. \quad (2.2.4)$$

In der elektrischen Dipolnäherung werden alle Terme, welche eine explizite  $(\vec{k} \cdot \vec{r})$ -Abhängigkeit besitzen, vernachlässigt. Dies ist dann eine gute Näherung, wenn die Wellenlänge der elektromagnetischen Strahlung wesentlich größer ist als die räumliche Ausdehnung der interagierenden Materie, da hier  $\vec{k} \cdot \vec{r} = \frac{2\pi}{\lambda} r \hat{k} \cdot \hat{r} \ll 1$  gilt [82]. Da die Summanden der Reihendarstellung  $1, \vec{k} \cdot \vec{r}, \frac{1}{2} (\vec{k} \cdot \vec{r})^2, \dots$  den verschiedenen elektrischen E und magnetischen M Multipolwechselwirkungen E1, M1, E2, ... entsprechen, berücksichtigt diese Näherung folglich nur die Wechselwirkung mit elektrischer Dipolstrahlung

E1, was auch den Namen dieser Näherung erklärt. Das Dipolübergangsmatrixelement  $\hat{D}_{fi}$  zwischen den Zuständen  $|i\rangle$  und  $|f\rangle$  für die Interaktion von monochromatischer Strahlung mit einem optisch aktiven Elektron ergibt sich mit der allgemeinen Definition des Übergangsmatrixelements (2.1.2) und den Kommutatorrelationen des Orts- und Impulsoperators in der Ortsrepresentation zu [82]

$$\hat{D}_{fi} = -\frac{\hbar}{\omega_{fi} m_e} \langle f | \nabla | i \rangle \vec{e} \quad (2.2.5)$$

$$= \langle f | \vec{r} | i \rangle \vec{e}. \quad (2.2.6)$$

Gleichung 2.2.5 wird als *Dipolgeschwindigkeitsnäherung* und Gleichung 2.2.6 als *Dipollängennäherung* bezeichnet, wobei letztere die häufiger verwendete Variante ist.  $\omega_{fi}$  bezeichnet die als Kreisfrequenz dargestellte Energiedifferenz der beiden beteiligten Zustände. Eine qualitative Auswertung dieser Matrixelemente unter Berücksichtigung der Energie- und Drehimpulserhaltung bei der Photonenabsorption und -emission führt zu den Auswahlregeln in der elektrischen Dipolnäherung, da nur in den *dipolerlaubten* Fällen das zugehörige Matrixelement von Null verschieden ist. Diese sind in Tabelle 2.2 entsprechend [84, 85] zusammengefasst.

Gültig für	Auswahlregel
In Dipolnäherung immer	$\Delta J = 0, \pm 1$ , außer 0 $\leftrightarrow 0$ $\Delta M = 0, \pm 1$ , außer 0 $\leftrightarrow 0$ falls $\Delta J = 0$ Paritätswechsel
Bei vernachlässigbarer Elektronenkorrelation	Einelektronenübergang mit $\Delta l = \pm 1$
LS-Kopplung	$\Delta S = 0$ $\Delta L = 0, \pm 1$ außer 0 $\leftrightarrow 0$

**Tabelle 2.2:** Dipolübergangsauswahlregeln für atomare Systeme nach [84, 85].

Können mehr als ein Elektron der Elektronenhülle mit dem Strahlungsfeld wechselwirken, so ist nach [82] in (2.2.3), sowie (2.2.5) und (2.2.6) über alle Elektronen zu summieren, um so die Zustandsänderung der beteiligten Elektronen zu berücksichtigen. Im Allgemeinen erfolgt die Berücksichtigung dieser Mehrelektronenübergänge aber im Bild der interelektronischen Wechselwirkung, bei welchem korrelative Prozesse der Elektronen betrachtet werden. Hierdurch kann auch für diese Anregungen von Einelektron-Einphoton Wechselwirkungen ausgegangen werden. Diese werden in Abschnitt 2.2.2 zusammenfassend behandelt.

Werden die Dipolmatrixelemente quantitativ ausgewertet, so führen diese zu den experimentell zugänglichen Übergangsraten, welche proportional zu dem Betragsquadrat der Dipolmatrixelemente sind. Die Übergangsraten lassen sich ebenfalls durch die Auswertung der entsprechenden Zustandsbesetzungsanzahlen beschreiben. Dies führt zu den bekannten *Einstein-Koeffizienten* für die Absorption  $B_{if}$ , gestimulierte Emission  $B_{fi}$  und spontane Emission  $A_{fi}$  elektromagnetischer Strahlung [82, 84, 85]. Die Einstein-Koeffizienten lassen sich, zusammen mit den Entartungsgraden  $g_i$  und  $g_f$  der an den Übergängen beteiligten Zuständen unter expliziter Berücksichtigung der Polarisationsrichtung der elektromagnetischen Strahlung  $\vec{e}$ , mit den entsprechenden Übergangsmatrixelementen im Rahmen der Dipolnäherung

beschreiben als

$$\begin{aligned} B_{\text{if}} &= B(\langle f |, |i \rangle, \vec{e}) = \frac{\pi}{3\varepsilon_0 \hbar^2} |D_{\text{if}}|^2, \\ B_{\text{fi}} &= B(\langle i |, |f \rangle, \vec{e}) = \frac{g_i}{g_f} B_{\text{if}}, \\ \text{und } A_{\text{fi}} &= A(\langle i |, |f \rangle, \vec{e}) = \frac{2\omega_{\text{if}}^3}{3\varepsilon_0 h c^3} |D_{\text{fi}}|^2 = \frac{\hbar\omega_{\text{if}}^3}{\pi^2 c^3} B_{\text{fi}}. \end{aligned} \quad (2.2.7)$$

Hiermit lassen sich die Übergangsichten der Absorption  $R_{\text{fi}}^{\text{abs}}$  und stimulierten Emission  $R_{\text{if}}^{\text{stim}}$  in Abhängigkeit der Intensität  $I$  der monochromatischen elektromagnetischen Strahlung schreiben als

$$\begin{aligned} R_{\text{if}}^{\text{abs}} &= B_{\text{if}} \frac{I}{c}, \\ R_{\text{fi}}^{\text{stim}} &= B_{\text{fi}} \frac{I}{c}. \end{aligned} \quad (2.2.8)$$

Diese sind entsprechend der zuvor gemachten Annahmen für Zustände mit einer diskreten Energieverteilung und monochromatischer Strahlung definiert. Eine Erweiterung auf eine kontinuierliche Verteilung von Zuständen mit entsprechend nah benachbarten Eigenenergien sowie einer externen, polychromatischen elektromagnetischen Strahlung gelingt durch das Einführen der spektralen Intensitätsverteilung  $I(\omega)$  beziehungsweise der spektralen Energiedichte  $u(\omega) = \frac{I(\omega)}{c}$  sowie der Zustandsdichte  $g(\omega)$ . Die differentiellen Übergangsichten lassen sich so beschreiben durch

$$\begin{aligned} dR_{\text{if}}^{\text{abs}} &= B_{\text{if}} g(\omega) u(\omega) \propto |\langle f | \hat{D} | i \rangle|^2 g(\omega) u(\omega), \\ dR_{\text{fi}}^{\text{stim}} &= B_{\text{fi}} g(\omega) u(\omega). \end{aligned} \quad (2.2.9)$$

Die Darstellung auf der rechten Seite des Proportionalitätszeichens ist auch als *Fermi's goldene Regel* in der Dipolnäherung bekannt, welche durch Ersetzen des Dipoloperators  $\hat{D}$  durch den Störterm in Gleichung 2.2.1 in die bekannte Formulierung der Regel übergeht [82]. Vergleichbare Größen lassen sich auch für die spontane Emission formulieren, wobei berücksichtigt werden muss, dass das hier genutzte semiklassische Bild nicht dazu geeignet ist, die physikalische Ursache zu erklären. Hierfür wird eine Quantisierung des Strahlungsfeldes benötigt, deren Beschreibung über den für diese Arbeit wichtigen Inhalt hinaus geht.

Bei dem Vergleich der gemessenen Übergangsrate mit den theoretischen Werten muss zusätzlich der Raumwinkel  $d\Omega$  besonders berücksichtigt werden. Dieser gibt die von dem Detektor einsehbaren Emissionswinkelbereiche an, sodass je nach vorliegender Emissionswinkelverteilung nur ein Bruchteil der tatsächlich emittierten Intensität registriert werden kann [84]. Bei einer isotropen Verteilung der emittierten Strahlung gilt für das Verhältnis aus abgestrahlter zu detektiertem Intensität  $\frac{d\Omega}{4\pi}$ . Dann gilt für die von dem Detektor messbare Übergangsrate der spontanen Emission zwischen zwei definierten Zuständen [82]

$$d\tilde{R}_{\text{fi}}^{\text{spon}} = B_{\text{fi}} \frac{\hbar\omega^3}{\pi^2 c^3} \frac{d\Omega}{4\pi}. \quad (2.2.10)$$

Da bisher nur Übergänge in atomaren Systemen betrachtet wurden, wird nun kurz der Einfluss der Kernbewegungen auf die Übergangsmomente besprochen. Im Rahmen der Born-Oppenheimer Nähe-

rung überträgt sich der Produktansatz der Wellenfunktionen auch auf die Formulierung der Dipolübergangsmatrixelemente  $\hat{D}_{fi}^{\text{mol}}$  molekularer Systeme [88]. Mit dem *Franck-Condon-Faktor* FC des Vibrationsanfangszustandes  $\vec{\nu}_i$  und -endzustandes  $\vec{\nu}_f$  sowie dem *Hönl-London-Faktor* HL des Rotationsanfangszustandes  $\vec{J}_i$  und -endzustandes  $\vec{J}_f$  ergibt sich die aus dem Dipolübergangsmatrixelementen resultierende Übergangsrate in der R-Zentroid Näherung somit zu [88]

$$dR_{fi}^{\text{spon}} \propto \left| \hat{D}_{fi}(\vec{R}_{\nu_i}, \vec{R}_{\nu_f}) \right|^2 \cdot \text{FC}(\vec{\nu}_i, \vec{\nu}_f) \cdot \text{HL}(\vec{J}_i, \vec{J}_f). \quad (2.2.11)$$

Dies stellt das Produkt des Übergangsmoments  $\hat{D}_{fi}$  und des Beitrages der Kernbewegungen dar. In dieser Näherung wird der mit den Schwingungswellenfunktionen  $\Phi_{\text{vib}}(\vec{\nu})$  gewichtete Mittelwert des elektronischen Dipolmoments  $\hat{D}_{fi}(\vec{R}_{\nu_i}, \vec{R}_{\nu_f})$  verwendet, welcher sich aus einer Reihenentwicklung des elektronischen Dipolmoments bezüglich des Kernabstands  $R$  ergibt [88]. Für die Diskussion der Ergebnisse ist von den neu eingeführten Faktoren lediglich der Frank-Condon-Faktor relevant, welcher die einfache Form

$$\text{FC}(\vec{\nu}_i, \vec{\nu}_f) = \left| \int \Phi_{\text{vib}}(\vec{\nu}_i) \cdot \Phi_{\text{vib}}(\vec{\nu}_f) dR \right|^2 \quad (2.2.12)$$

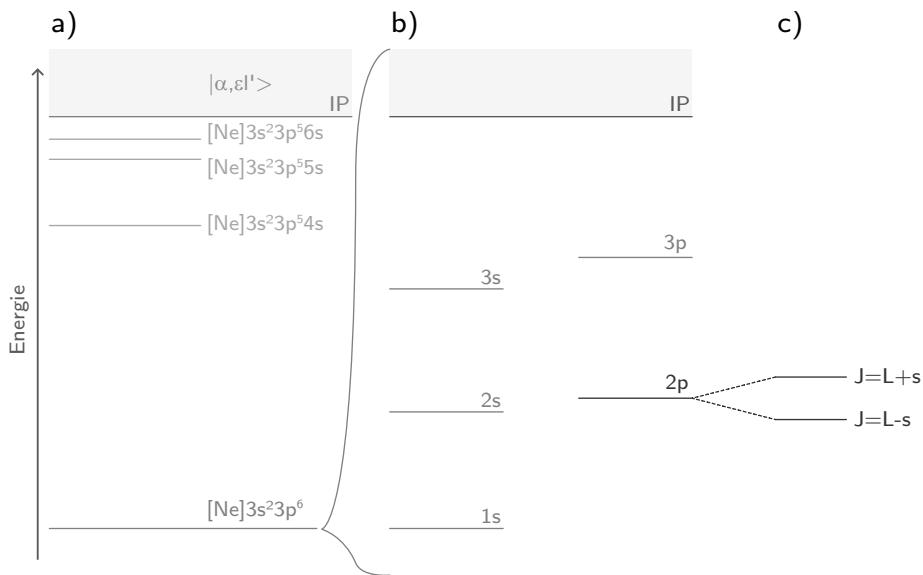
besitzt und damit das Betragsquadrat des Wellenfunktionüberlapps der beteiligten Schwingungswellenfunktionen darstellt. Zusammen mit dem Frank-Condon Prinzip, nach welchem elektronische Übergänge senkrecht zwischen den involvierten Potentiallandschaften verlaufen [84, 90], folgt hieraus insbesondere, dass bei parallel verlaufenden Potentiallandschaften Übergänge mit  $\Delta\nu = 0$  bevorzugt werden, da hier der Überlapp der Wellenfunktionen maximal ist.

## 2.2.2 Photoneninduzierte Ionisationsprozesse atomarer und molekularer Systeme

Unter *Photoionisation* wird die Emission von Elektronen aus der Elektronenhülle von Materie durch Absorption von Photonen mit ausreichend hoher Energie verstanden. Entsprechend des Modells der unabhängigen Teilchen existieren hierbei für die Elektronen in den verschiedenen Unterniveaus verschiedene Grenzenergien, ab denen der Photoionisationsprozess möglich ist. Diese Grenzenergien werden je nach der verwendeten Energieskala als *Bindungsenergien*  $E_B$  oder *Ionisationsenergien*  $I_E$  bezeichnet und häufig in Form von Energieschemata 2.1 dargestellt. Hier sind neben den diskreten Energieniveaus auch die Kontinuumsniveaus  $|\alpha', \varepsilon' l'\rangle$  angedeutet, wobei  $\varepsilon$  die kinetische Energie und  $l'$  den Drehimpuls des freien Elektrons bezeichnen.  $\alpha'$  fasst alle Quantenzahlen zusammen, die den Zustand des verbleibenden Ions charakterisieren. Die Existenz des Kontinuums ist dadurch begründet, dass die kinetische Energie des freien Elektrons  $\varepsilon$  beliebige Werte  $\geq 0$  eV annehmen kann und somit keine Diskretisierungsbedingungen für die Zustände existieren. Da die verschiedenen Unterniveaus gemäß Abbildung 2.1 verschiedene Bindungsenergien  $E_B$  haben, ergeben sich die kinetischen Energien der zu erwartenden freien Elektronen nach Absorption von Photonen mit der Energie  $h\nu$  durch

$$\varepsilon = h\nu - E_B. \quad (2.2.13)$$

Bei der Messung der Zählrate detekterter Elektronen als Funktion ihrer kinetischen Energie ergeben sich bei den berechneten kinetischen Energien in der Tat lokale Maxima. Die durch die direkte Photoionisation erzeugten freien Elektronen werden im Allgemeinen auch als *Photoelektronen* bezeichnet und



**Abbildung 2.1:** a) Energieschema verschiedener gebundener Zustände von Argon. b) Lage der Energieniveaus der Elektronen des Argongrundzustandes. c) Feinstrukturaufspaltung des 2p Orbitals.

die zugehörigen Maxima werden als (*Haupt-*)*Photoelektronenlinien*<sup>1</sup> bezeichnet. Neben diesen Hauptphotoelektronenlinien zeigen die Elektronenspektren schon in atomaren Systemen weitere Strukturen, welche ein Produkt von elektronenkorrelativen Effekten sind [96].

Das einfachste System zur Untersuchung von Korrelationseffekten der Elektronen ist Helium, welches genau zwei Elektronen besitzt. In gemessenen Elektronenspektren lassen sich sehr gut die korrelative Anregung von mehr als einem Elektron erkennen [96], bei welcher sich der Zustand der beiden Elektronen in der Elektronenhülle durch die Absorption eines Photons ausreichend hoher Energie ändert. Da die Anregung des zweiten Elektrons in diskrete *Satellitenzustände* Energie benötigt, ist die kinetische Energie des freien Elektrons um diesen Wert reduziert, sodass in den Elektronenspektren bei den entsprechenden kinetischen Energien weitere diskrete Strukturen messbar sind. Für Photonenenergien oberhalb der zweiten Ionisationsenergie ergeben sich zusätzliche kontinuierliche Satellitenzustände, bei denen beide Elektronen in Kontinuumszustände angeregt werden. Diese Prozesse werden häufig qualitativ im Rahmen des *Shake*-Modells erklärt, in welchem sich die Elektronenorbitale neu formen und das zweite Elektron entweder in diskrete, gebundene Zustände (*Shake-up*-Prozess) oder in das Ionisationskontinuum (*Shake-off*-Prozess) „geschüttelt“ wird [96]. In diesem Modell sind die Satellitenzustände dadurch erklärbar, dass die Einelektronenwellenfunktionen des Anfangs- und Endzustandes zu unterschiedlichen Hamiltonoperatoren gehören. Damit weisen diese bezüglich des Radialanteils keine Orthogonalität auf, sondern nur bezüglich des Winkelanteils. Für die *Shake-up*-Satellitenzustände bedeutet dies nach [96]

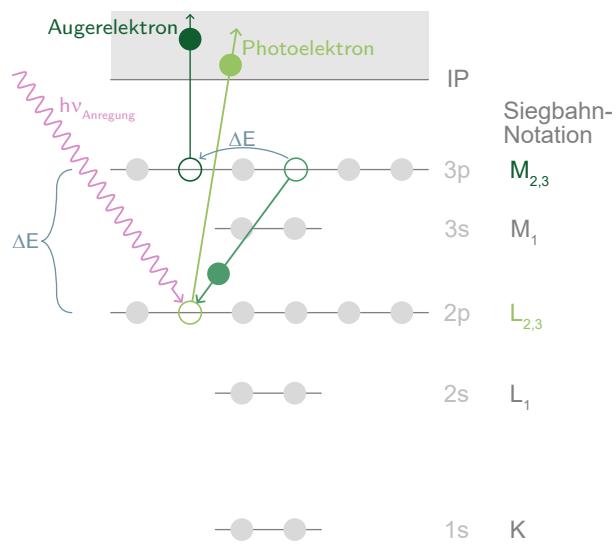
$$\langle kl' | 1s \rangle = \langle ks' | 1s \rangle \delta_{k,0} \quad \text{mit } \langle ks' | 1s \rangle \neq 0 \quad \text{und} \quad \langle 1s | 1s \rangle < 1 , \quad (2.2.14)$$

wobei die Drehimpulsquantenzahlen der neu geformten Orbitale mit einem einfachen Hochstrich markiert sind. In diesem Modell ist es also nicht möglich, Satellitenzustände zu erklären, bei denen nicht nur

<sup>1</sup>Der Begriff Linie wird im Allgemeinen für (schmalbandige), symmetrische Strukturen verwendet und gibt keine Auskunft über die exakte Form der Intensitätsverteilung. Da dieser sowohl in der deutschen als auch englischen Literatur im Bereich der Spektroskopie allgemein Verwendung findet, wird dieser Begriff entsprechend übernommen.

das emittierte Elektron seinen Bahndrehimpuls ändert, sondern auch die restlichen Elektronen dadurch beeinflusst werden. Dies tritt vor allem im Bereich der anregenden Photonenenergien auf, bei denen diese Anregungskanäle energetisch gerade möglich werden, und kann Messungen stark beeinflussen [97, 98]. Es sind daher andere theoretische Modelle wie zum Beispiel *Randomphase Approximation with Exchange* [99], *Many-Body-Perturbation Theory*- [99], oder *Configuration Interaction*-Methoden [96] notwendig, um die möglichen Endzustände korrekter vorherzusagen und die entsprechenden Übergangs-raten quantitativ zu bestimmen.

Im allgemeineren Fall, dass mehr als ein Orbital von Elektronen besetzt ist, kann auch ein Elektron aus den stärker gebundenen Orbitalen durch die Absorption eines Photons ausreichend hoher Energie in einen Kontinuumszustand angeregt werden. Entsprechend des Zwei-Schritt-Modells befindet sich der verbleibende ionische Zustand dann nicht in dem energetischen Grundzustand, sodass die Überschuss-energie durch Relaxationsprozesse in einem Folgeschritt abgegeben wird. Ein möglicher Relaxationskanal ist der *Auger-Prozess*, bei welchem ein Elektron der Elektronenhülle in das durch die Photoionisation erzeugte Loch relaxiert und die Energie durch korrelative Prozesse auf ein weiteres Elektron übertragen wird [85]. Dieses wird dadurch ebenfalls in einen Kontinuumszustand angeregt und hinterlässt ein zwei-fach geladenes Ion. Der Effekt ist nur möglich, wenn die Überschussenergie ausreichend hoch ist und ist exemplarisch an Argon in Abbildung 2.2 gezeigt.

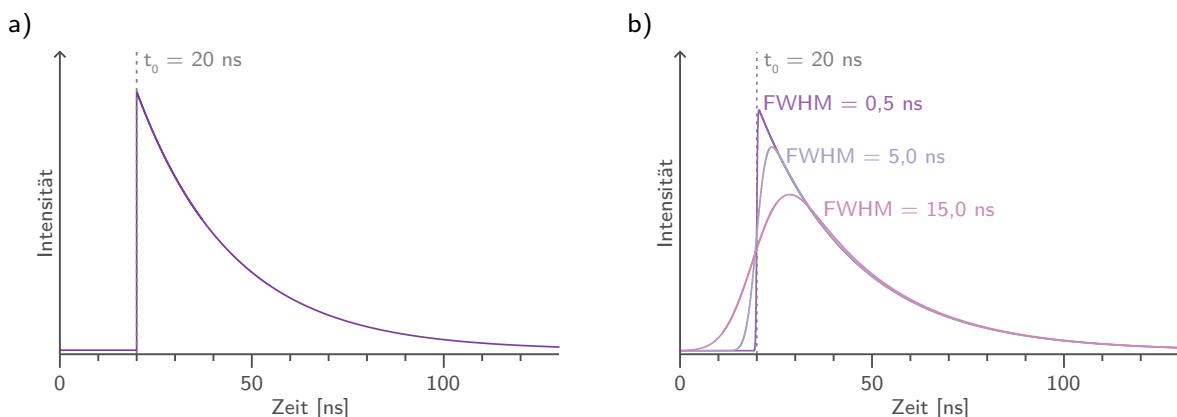


**Abbildung 2.2:** Schematische, nicht maßstabsgetreue Darstellung unter Nutzung der Siegbahn-Notation [100] eines  $L_{2,3}M_{2,3}M_{2,3}$  Augerprozesses in Argon, bei welchem die  $L_{2,3}$ -Vakanz durch eine Photoionisation induziert wurde.

Wie hier zu erkennen ist, hängt die kinetische Energie der durch diesen Prozess erzeugten freien Elektronen nur von der Lage der Energieniveaus ab und ist damit unabhängig von der Energie der Photonen, welche die Photoionisation im ersten Schritt induzieren. Die durch den Auger-Prozess erzeugten freien Elektronen werden *Auger-Elektronen* genannt und durch die beteiligten Elektronen charakterisiert. Für die Darstellung wird meist die Siegbahn-Notation [100] verwendet, welche exemplarisch in Abbildung 2.2 gezeigt ist.

### 2.2.3 Relaxationsprozesse atomarer Systeme durch Photonenemission

In diesem Abschnitt wird der Relaxationsprozess angeregter Systeme betrachtet, bei welchem ein energetisch günstigerer Zustand durch Emission eines Photons erreicht wird. Dessen Energie entspricht dabei einem Teil der Überschussenergie des Systems. Dieser Relaxationsprozess wurde im Rahmen der Wechselwirkung mit elektromagnetischer Strahlung in Abschnitt 2.2.1 als spontane Emission eingeführt. Die Übergangsraten ergeben sich in der Dipolnäherung entsprechend Gleichung 2.2.10. Für den im Rahmen dieser Arbeit genutzten Wellenlängenbereich von 115 nm bis 310 nm stellt dies eine sehr gute Näherung dar. Bei der spontanen Emission handelt es sich um einen statistischen Prozess, sodass sich die Abnahme der Population eines Ensembles im Zustand  $|i\rangle$  als Funktion der Zeit durch eine abfallende Exponentialfunktion modellieren lässt. Dabei wird die Präparationszeit des Zustandes zunächst als instantan angesehen und ist in Abbildung 2.3.a dargestellt.



**Abbildung 2.3:** Zeitabhängigkeit der emittierten Photonenintensität für  $\tau = 25 \text{ ns}$ .

- a) Exponentieller Zerfall mit Deltapulsanregung gemäß Gleichung 2.2.15.
- b) Exponentieller Zerfall durch Anregung mit Gauß-förmigen Anregungszeitverlauf gemäß Gleichung 2.2.16 für drei verschiedene volle Halbwertsbreiten (FWHM) des anregenden Pulses.

Für eine endliche Präparationszeit des Zustandes  $|i\rangle$ , zum Beispiel durch eine endliche Pulsdauer der anregenden Photonen, überlagern sich der Präparationsprozess und der Prozess der spontanen Emission zeitlich, sodass sich die Populationszahl aus der Faltung der Präparationsfunktion und des exponentiellen Zerfalls ergibt. Dies ist beispielhaft in Abbildung 2.3.b gezeigt, in welcher der zeitliche Verlauf der Präparation durch eine Gauß-Funktion approximiert wurde.

Die Messung der zeitlichen Populationsabnahme ist über die Messung der emittierten Photonen möglich, für deren Betrachtung zunächst davon ausgegangen wird, dass der Zustand  $|i\rangle$  nur in den Zustand  $|f\rangle$  relaxieren kann und dabei ein Photon emittiert. Der zeitliche Verlauf der Abnahme der gemessenen Intensität entspricht dem Verlauf der Population in Abbildung 2.3, welche sich durch die Funktionen [101]

$$I(t, t_0) = \text{Heavi}(t - t_0) \cdot I_0 \cdot \exp\left(\frac{t - t_0}{-\tau_i}\right), \quad (2.2.15)$$

$$I(t, t_0, w) = \frac{I_0}{2} \cdot \text{erfc}\left(\frac{w}{2\sqrt{\ln 2} \cdot \tau_i} - \frac{(t - t_0) \cdot \sqrt{\ln 2}}{w}\right) \exp\left(\frac{w^2}{4 \cdot \ln 2 \cdot \tau_i^2} - \frac{t - t_0}{\tau_i}\right) \quad (2.2.16)$$

beschreiben lässt. In Gleichung 2.2.15 bezeichnet  $\text{Heavi}(t)$  die *Heaviside*-Funktion und  $\text{erfc}$  in Gleichung 2.2.16 die komplementäre Fehlerfunktion. Der Parameter  $I_0$  beschreibt die Anfangsintensität für eine instantane Population des Zustands und  $w$  die volle Halbwertsbreite der Gauß-Funktion, welche den zeitlichen Verlauf des anregenden Pulses beschreibt. Die volle Halbwertsbreite wird im Allgemeinen auch als FWHM (***Full Width at Half Maximum***) bezeichnet.  $t_0$  definiert den Zeitpunkt der Populationserzeugung, wobei dies bei der Beschreibung über eine Gaußfunktion als deren Zentrum verstanden werden muss.  $\tau_i$  gibt schließlich die mittlere Lebensdauer des Zustandes  $|i\rangle$  an. Diese beschreibt den Zeitraum, in welcher die gemessene Intensität auf das  $\frac{1}{e}$ -fache ihres Anfangswertes abgesunken ist. Die mittlere Lebensdauer  $\tau_i$  und der Einsteinkoeffizient der spontanen Emission erfüllen nach [84] die wichtige Bedingung

$$A_i = \frac{1}{\tau_i}. \quad (2.2.17)$$

Werden die so emittierten Photonen als Funktion ihrer Energie gemessen, zeigt sich, dass sich auch für Übergänge zwischen zwei wohldefinierten Energieniveaus eine kontinuierliche Verteilung ergibt, welche um die Energiedifferenz der Eigenenergien  $E_{fi}$  der beteiligten Zustände zentriert ist. Unter Vernachlässigung von Verbreiterungseffekten lässt sich die Intensitätsverteilung als Funktion der gemessenen Energie durch ein Lorentz-Profil beschreiben gemäß [82]

$$g_L(E) = \frac{\frac{\hbar}{\tau_i}}{(E - E_{fi})^2 + \frac{\hbar^2}{4\tau_i^2}}. \quad (2.2.18)$$

Da die FWHM des Profils nur durch die Lebensdauer des Zustandes  $|i\rangle$  definiert ist ( $\text{FWHM} = \frac{\hbar}{\tau_i}$ ), wird diese auch *natürliche Linienbreite* genannt. Die Verteilung  $g_L(E)$  ist eine Folge der exponentiellen Abnahme der Population des Zustandes  $|i\rangle$ , wie sie sich zum Beispiel aus einer störungstheoretischen Betrachtung erster Ordnung [82] oder einer Fourieranalyse [84, 85, 102] ergibt.

Kann der Zustand  $|i\rangle$  durch Photonemission in verschiedene Zustände  $|f\rangle$  relaxieren, so ergibt sich die gesamte Depopulationsrate  $A_i$  und damit die Lebensdauer dieses Zustandes aus der Summe der Übergangsraten in die einzelnen Zustände [84]

$$\frac{1}{\tau_i} = A_i = \sum_f A_{fi}. \quad (2.2.19)$$

Entsprechend ergibt sich die Populationsabnahme als Produkt mehrerer Exponentialfunktionen, sodass eine Bestimmung der verschiedenen Übergangsraten  $A_{fi}$  aus diesen Messungen nur schwer erreichbar ist. In diesem Fall bietet sich die energieaufgelöste Messung der Photonenintensität an, durch welche sich Lumineszenzspektren  $I(E) = I(\omega) = I(\nu) = I(\lambda)$  ergeben. Durch die gemessenen emittierten Photonen können dadurch die entsprechenden *strahlenden Übergänge* voneinander separiert werden. Die Übergangsraten  $A_{ik}$  lassen sich über die Intensitäten der verschiedenen beobachteten Übergänge bestimmen [84]

$$A_{fi} = A_i \frac{I(\omega_{fi})}{\hbar\omega_{fi} \sum_f \frac{1}{\hbar\omega} I(\omega_{fi})}, \quad (2.2.20)$$

wobei über die jeweiligen Intensitätsprofile integriert werden muss, um ein korrektes Maß für die gemessene Intensität zu erhalten. Es ist zu beachten, dass dies mit Hilfe der Lumineszenzspektren nur dann

möglich ist, wenn keine mit der Photonenemission konkurrierenden Prozesse, wie zum Beispiel die Emission eines Elektrons durch Autoionisation, stattfinden können. Sind solche Relaxationspfade möglich, müssen alle übrigen Kanäle ebenfalls in Gleichung 2.2.19 berücksichtigt werden, welche den Zustand  $|i\rangle$  depopulieren. Weichen die Übergangsraten verschiedener Relaxationspfade stark voneinander ab, wird der Zustand  $|i\rangle$  im Allgemeinen über die Pfade mit den höchsten Übergangsraten depopuliert, was nach Gleichung 2.2.17 den schnellsten Prozessen entspricht.

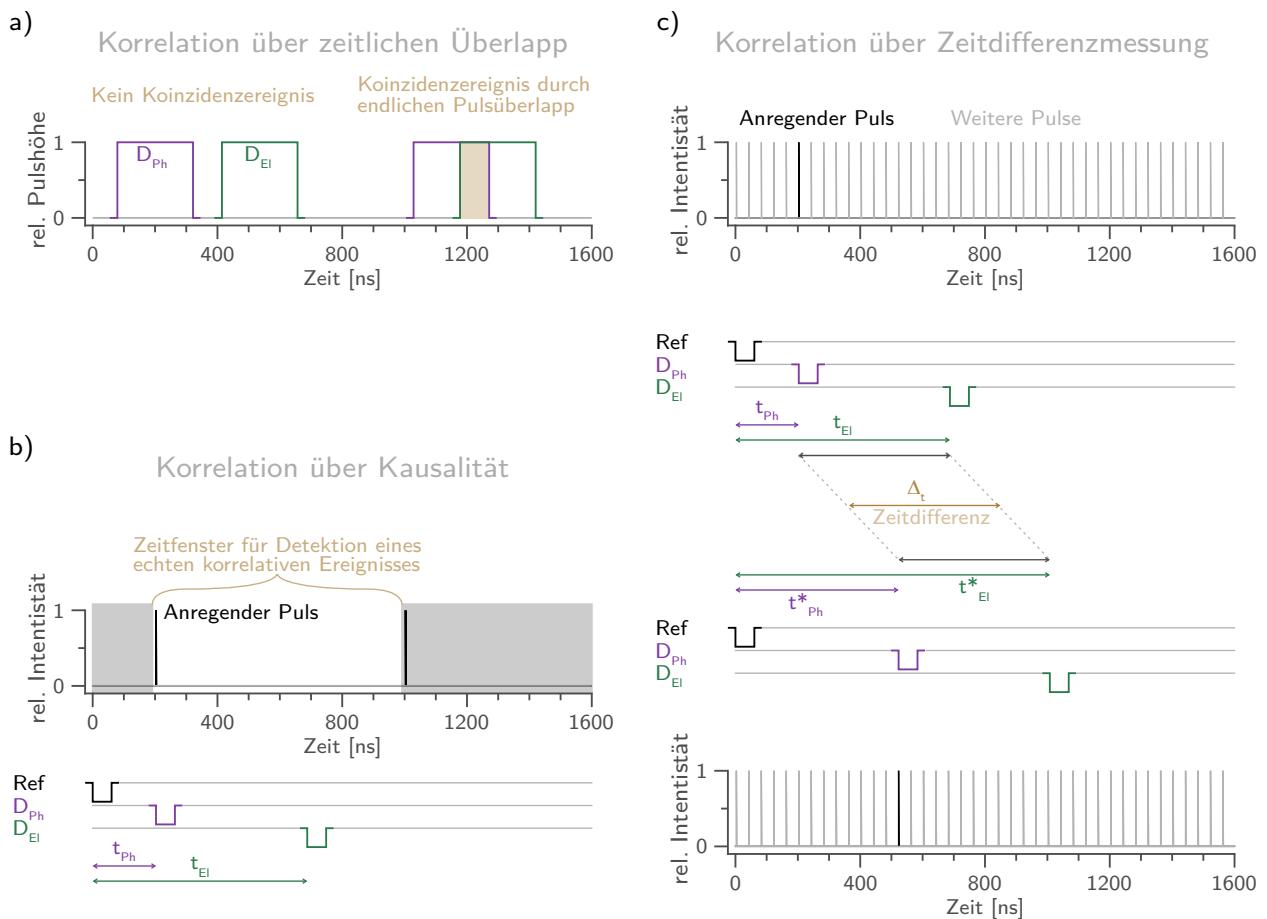
## 2.3 Nachweis korrelativer Prozesse durch Koinzidenzmessungen

Wie schon an dem Beispiel des Zwei-Schritte Modells des Auger-Prozesses erkennbar ist, finden die zuvor vorgestellten Prozesse der Photoionisation, Autoionisation und Relaxation durch Photonenemission im Allgemeinen nicht getrennt voneinander statt. Vielmehr lassen sich verschiedene, häufig mehrschrittige Prozessfolgen beobachten, bei denen das angeregte System sequentiell über die möglichen Relaxationspfade in den energetischen Grundzustand übergeht. Finden vergleichbare Prozesse, so zum Beispiel mehrere lumineszierende Übergänge, statt, wird auch von *Kaskaden* gesprochen [103, 104]. Vor allem bei „größeren“ Systemen, wie zum Beispiel Vielelektronen-Atomen wie Krypton oder Xenon, kann dies schnell zu einer Vielzahl möglicher Relaxationskanäle führen. Diese können teilweise überlappen, was eine eindeutige Identifikation der Pfade stark erschwert. Eine experimentell sehr erfolgreiche Methode, die Relaxationspfade voneinander zu trennen, ist die Messung von *Koinzidenzen*. Bei dieser erfolgt die Messung mehrerer Partikel in der Art, dass diese miteinander korrelierbar sind. So können Gruppen von Teilchen identifiziert werden, die aus demselben Prozess, beziehungsweise einer einzigen Prozesskette in exakt einem System stammen. Einige Beispiele für diese Art Messungen sind die korrelativen Messungen von Stoßpartnern [105], von hochenergetischen Teilchen [21, 23–25] oder emittierten Teilchen bei Relaxationsprozessen in radioaktiver Materie [16–21] sowie die Messung von emittierten Teilchen eines Systems nach einer äußeren Störung durch Wechselwirkung mit anregenden Photonen [4–15].

Der Begriff der *Koinzidenzmessung* stammt aus den 1920er und 1930er Jahren [1, 3, 105], in denen diese korrelativen Messungen darauf basierten, dass die Detektionssignale der Teilchen zeitlich überlappen, das heißt „gleichzeitig“ bzw. „koinzident“ gemessen wurden, siehe auch Abbildung 2.4a. Bei einer ausreichend häufigen Wiederholung der Messungen kann so mit hoher Sicherheit eine Aussage darüber getroffen werden, ob ein kausaler Zusammenhang zwischen der Messung der Teilchen besteht. Diese Art der korrelativen Messung ist besonders für spontan ablaufende Prozesse wie radioaktive Zerfälle nützlich, welche zu dieser Zeit ein reges Forschungsfeld waren und so den Begriff der Koinzidenzmessung als Synonym für korrelative Messungen prägten. Diese experimentellen Methoden wurden über die Zeit auch in anderen Forschungsfeldern der Physik, so auch in der Atom- und Molekülphysik, angewendet, in welcher diese korrelativen Messungen weiterhin als Koinzidenzmessungen bekannt sind [14, 46].

Für viele Messungen muss der Begriff der Koinzidenzmessung allerdings allgemeiner gefasst werden, da moderne elektronische Schaltungen in Kombination mit gepulsten Strahlungsquellen eine korrelative Messung mehrerer Teilchen erlauben, ohne dass deren gemessenes Signal zeitlich überlappen muss, wie es zum Beispiel bei den aus der Kernphysik bekannten Schaltungen nötig ist.

Im Rahmen dieser Arbeit werden zwei alternative Nachweismethoden von Koinzidenzen genutzt. Bei der ersten Möglichkeit ist der zeitliche Abstand von zwei anregenden Pulsen ausreichend groß, sodass bei einer nachweisbaren Koinzidenz alle zu messenden Teilchen innerhalb des Zeitraums zwischen zwei Anregungspulsen gemessen werden können. Dadurch können die emittierten Teilchen über die Zuordnung zu einem spezifischen Anregungspuls korreliert werden (Abbildung 2.4b).



**Abbildung 2.4:** Schematische Darstellung von Korrelationsmessungen für den Fall, dass nur echte Koinzidenzen gemessen werden. a) Messung zweier korrelierter Teilchen durch zeitlichen Überlapp der Messsignale. Diese ist für spontan ablaufende sowie induzierte Prozesse anwendbar und benötigt bei der Messung zuvor angeregter Systeme keine Zeitinformation über die Anregung. b) Messung zweier Teilchen aus derselben Prozesskette durch zeitliche Korrelation mit dem anregenden Puls. Die zeitliche Information über den anregenden Puls wird aus einer Referenzzeit (Ref) erhalten. Diese kann, wie hier gezeigt, einen zeitlichen Versatz zu dem eigentlichen anregenden Puls aufweisen. c) Korrelation über deterministische Zeitdifferenz zwischen zwei Teilchen aus derselben Prozesskette. In diesem Beispiel gehören zu einer Referenzzeit (Ref) mehrere Pulse, welche zu einer Anregung führen können. Bei zwei identischen Pulssügen führt im oberen Abschnitt der sechste Puls zur Anregung und Messung der Teilchen, während die gemessene Koinzidenz im unteren Teil aus einer Anregung des vierzehnten Pulses folgt. Für (b) und (c) ist der vereinfachte Fall angenommen worden, dass nur ein zeitlicher Abstand zwischen den korrelierten Teilchen auftreten kann. Dies lässt sich auch auf beliebige Häufigkeitsdichteveverteilungsfunktionen der Teilchen erweitern.

Ist der zeitliche Abstand zwischen zwei Anregungspulsen geringer als der maximale Zeitversatz zwischen Anregung des Systems und Detektion der korrelierbaren Teilchen, so ist die eindeutige Zuordnung der detektierten Teilchen zu einem Anregungspuls nicht mehr möglich. Nach Abbildung 2.4c lässt sich bei einem solchen Anregungsschema ausnutzen, dass für eine echte Koinzidenz ein prozessabhängiger zeit-

licher Versatz zwischen den nachzuweisenden Teilchen existiert. Somit kann die Korrelation über einen deterministischen zeitlichen Versatz zwischen einem Teilchen der Prozesskette und den anderen Teilchen nachgewiesen werden. Diese Methode ist insbesondere auch für kontinuierliche Anregungsquellen geeignet und ist daher vor dem Auftreten von gepulsten Strahlungsquellen ausreichender Anregungsenergie und Intensität eine häufig genutzte Methode gewesen [40, 42–54]. Der Begriff der *korrelativen Messung* ist daher im Allgemeinen passender. Da dieser Begriff aber selten Verwendung findet, wird auch im Rahmen dieser Arbeit von Koinzidenzen und Koinzidenzmessungen gesprochen. Die verwendete Datenaufnahme ist hierbei in Abschnitt 3.4 detailliert beschrieben.

Bei allen Koinzidenzmessmethoden muss darüber hinaus berücksichtigt werden, dass nicht jede gemessene Koinzidenz einer *echten* Koinzidenz entspricht, da Teilchen aus unterschiedlichen Prozessen oder auch Messartefakte, wie zum Beispiel die zufällige Registrierung von Signalen, ohne dass tatsächlich Teilchen detektiert wurden, als scheinbare Koinzidenzen gemessen werden können.

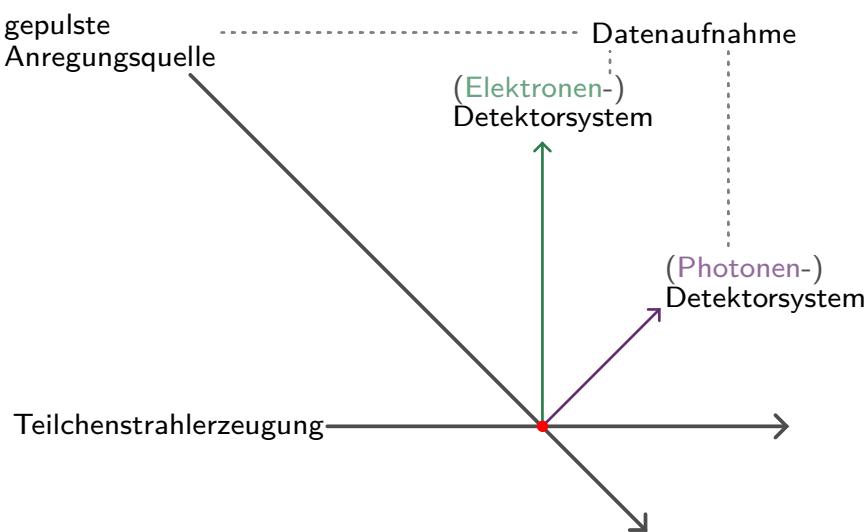
Diese scheinbaren Koinzidenzen, welche im Verlauf dieser Arbeit als zufällige Koinzidenzen bezeichnet werden, müssen daher bei allen Koinzidenzmessungen berücksichtigt werden, was neben der Optimierung der Messparameter auch durch eine entsprechende statistische Analyse der gemessenen Koinzidenzen erfolgt. Die Bezeichnung von zufälligen Koinzidenzen ist dabei nicht eindeutig definiert. So werden diese in der Literatur als „accidental coincidences“ [106–109], „random coincidences“ [110–112], „false coincidences“ [6, 23, 113–115] oder „chance coincidences“ [22, 116, 117] bezeichnet. Die entsprechenden Details zur Bestimmung der zufälligen Koinzidenzen sind in den jeweiligen Ergebnisteilen der Diskussion der eigentlichen Messergebnissen in den Abschnitten 5.1 und 6.2 vorangestellt.

## KAPITEL 3

### VORSTELLUNG DES EXPERIMENTS

Für die Durchführung der im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Koinzidenzmessungen wurde ein Teilchenstrahl mit der anregenden Synchrotronstrahlung gekreuzt und die dabei erzeugten Elektronen und Photonen zusammen mit der Referenzzeit der anregenden Strahlung gemessen. Abbildung 3.1 zeigt schematisch die vier zentralen Komponenten *Anregungsquelle*, *Teilchenstrahlerzeugung*, *Detektorsysteme* und *Messelektronik* des genutzten Experiments. Diese werden in der angegebenen Reihenfolge in diesem Kapitel beschrieben.

Das Vakuumsystem, welches für eine erfolgreiche Durchführung notwendig, aber für das Verständnis der Messergebnisse nicht essentiell ist, wird in Abschnitt 3.5 kurz beschrieben.



**Abbildung 3.1:** Schematischer Überblick über die vier wesentlichen Teile des genutzten experimentellen Aufbaus.

### 3.1 Anregungsquelle: Synchrotronstrahlungsquelle der dritten Generation BESSY II

Die Störung der untersuchten Systeme, welche zu den in Koinzidenz gemessenen Prozessfolgen führt, erfolgt mit Hilfe von *Synchrotronstrahlung*. Diese wird durch die Ablenkung von sich mit relativistischen Geschwindigkeiten bewegenden, geladenen Teilchen erzeugt. Synchrotronstrahlung wurde zunächst als Randeffekt bei der Speicherung von geladenen Teilchen in entsprechenden Speicherringen beobachtet [118]. Diese werden als *Synchrotrone* bezeichnet, von welchen sich der Name der erzeugten elektromagnetischen Strahlung ableitet.

Heutige Synchrotronstrahlungsquellen der dritten Generation bestehen aus Beschleunigungsstufen und dem eigentlichen Speicherring [55, 119]. Bei diesem werden neben den für die stabilen, geschlossenen Bahnen verantwortlichen Magnete weitere periodische magnetische Strukturen verwendet. Diese erlauben eine experimentelle Kontrolle über die Energie und Polarisationen der so erzeugten Strahlung und werden als Insertion Device (ID) bezeichnet. Zu der Erzeugung von Synchrotronstrahlung werden häufig Elektronen in den Speicherringen genutzt, da die Abstrahlintensität bezüglich der Ruhemasse  $m_0$  der abgelenkten geladenen Teilchen mit  $m_0^{-4}$  skaliert [55, 119] und die Verwendung geladener Teilchen mit einer möglichst geringen Ruhemasse für die Erzeugung der Strahlung daher zu präferieren ist.

Die IDs lassen sich in zwei Klassen, die *Wiggler* und *Undulatoren* unterteilen, deren Unterscheidung mit Hilfe des Parameters  $K$  gelingt. Dieser ergibt sich nach [55] mit der Periodizität der magnetischen Struktur  $\lambda_U$  und der Magnetfeldstärke  $B$  unter Nutzung der Ladung der Elektronen  $e$  gemäß

$$K = \frac{e}{2\pi m_0 c} \lambda_U B \approx 0,934 \text{ cm}^{-1} \text{ T}^{-1} \cdot \lambda_U \cdot B , \quad (3.1.1)$$

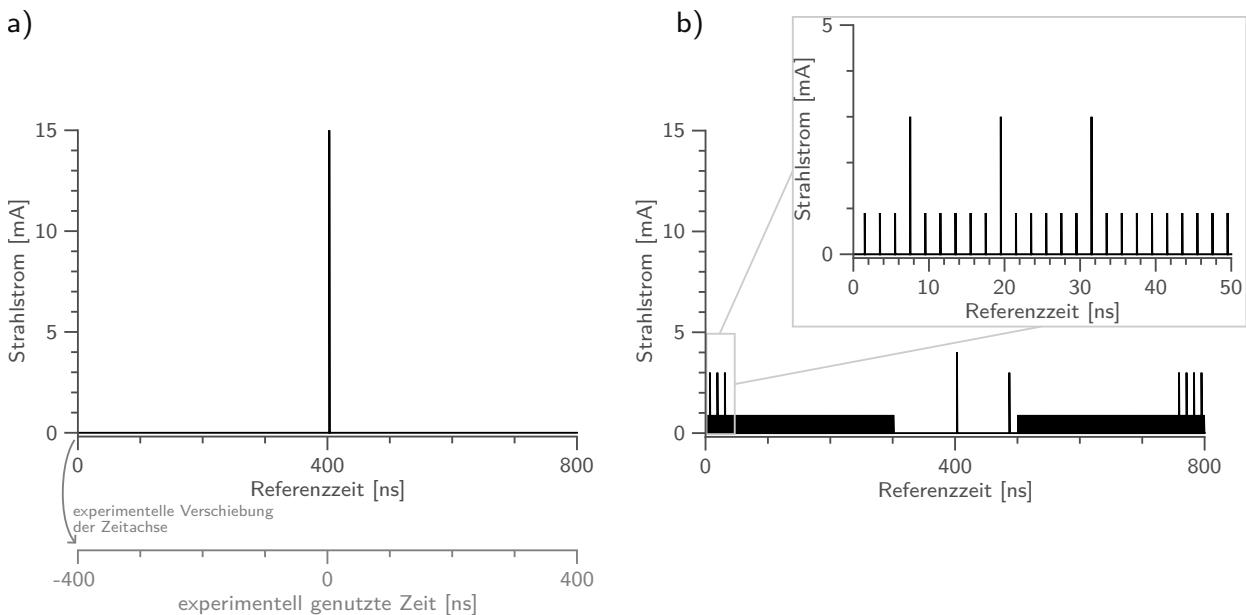
wobei es sich für  $K >> 1$  um einen Wiggler und für  $K \leq 1$  um einen Undulator handelt. Qualitativ können Wiggler als eine Hintereinanderreihung von Umlenkmagneten verstanden werden, deren kontinuierliche Spektren und Zeitverläufe denen der Umlenkmagnete entsprechen. Die Photonenausbeute ist daher proportional zur Anzahl der individuellen Pole  $N$  des jeweiligen Wigglers. Bei Undulatoren sorgen Interferenzeffekte hingegen für ein wesentlich schmalbandigeres Spektrum, was auch eine zeitliche Verbreiterung zur Folge hat. Zusätzlich skaliert hier die Photonenausbeute mit dem Quadrat der Polanzahl  $N$ , was insgesamt zu einer massiven Erhöhung der spektralen Dichte führt. Eine nähere Betrachtung des Undulatorspektrums zeigt, dass sich dieses aus mehreren Intensitätsmaxima zusammensetzt, deren Zentralwellenlängen  $\lambda_Z$  sich über [55]

$$\lambda_Z \approx \frac{\lambda_U}{2\gamma^2} \left( 1 + \frac{K^2}{2} \right), n = 1, 3, 5, \dots \quad (3.1.2)$$

entlang der Undulatorachse beschreiben lassen.  $\gamma$  stellt hierbei das Inverse des halben Öffnungswinkels der Synchrotronstrahlung dar. Da  $K \propto B$  gilt, lassen sich die verschiedenen Ordnungen des Undulators durch eine Variation des Magnetfelds so verschieben, dass die spektrale Energie bei den experimentell benötigten Photonenergien maximal ist. Dies gelingt bei der Verwendung von Permanentmagneten, welche für den Bau von Undulatoren häufig genutzt werden, durch eine Regulierung des Abstands zwischen den magnetischen Strukturen. Der Bereich der erreichbaren Zentralwellenlängen ist für einen Undulator allerdings nicht beliebig groß, sondern wird durch die Periodenzahl  $\lambda_U$  der Magnetstrukturen, die minimal und maximal erreichbaren Magnetfeldstärken sowie weitere baulich bedingte Randbedingungen festgelegt. Daher werden verschiedene Undulatorkonfigurationen in Synchrotronstrahlungsanlagen

aufgebaut, um so insgesamt einen möglichst großen Bereich verschiedener Photonenergien experimentell zugänglich zu machen.

Für viele Experimente ist die Energieverteilung des Undulatorspektrums allerdings noch immer zu groß, sodass entsprechende Monochromatoren verwendet werden. Dadurch lassen sich anregende Photonen mit einer für das Experiment geeigneten Varianz der Photonenergie erhalten. Hierbei lässt sich der Akzeptanzbereich der den Monochromator passierenden Photonenergien so wählen, dass ein Kompromiss aus Anzahl der Photonen und Breite der Energieverteilung dieser Photonen gefunden werden kann. Zwischen den Undulatoren und Monochromatoren sowie zwischen Monochromatoren und dem eigentlichen Wechselwirkungsvolumen des Experiments befinden sich weitere Optiken. Diese werden dafür genutzt, die dispergierenden Elemente der Monochromatoren ausreichend mit der Synchrotronstrahlung auszuleuchten und danach in einem möglichst kleinen Volumen zu fokussieren, wodurch die Photonstromdichte maximiert wird. Dieses Volumen wird bei Gasphasenexperimenten häufig als Interaktionsvolumen verwendet. Die Kombination aus Undulator, Optiken und Monochromatoren bildet ein *Strahlrohr* und definiert die möglichen Photonenergien, -polarisationen und -stromdichten.



**Abbildung 3.2:** Schematischer Vergleich des Singlebunch-Modus (a) und Multibunch Hybrid-Modus (b) von BESSY II nach [64, 120, 121]. Für den Singlebunch-Modus ist zusätzlich die zeitliche Verschiebung der experimentell genutzten Zeit exemplarisch gezeigt.

Ein für diese Arbeit zentraler Aspekt von Synchrotronstrahlungsquellen ist die Verteilung der Elektronen in dem Speicherring. Diese sind nicht kontinuierlich in dem Speicherring verteilt, sondern bewegen sich in räumlich lokalisierten Ansammlungen von Elektronen. Diese Elektronenpakete werden als *Bunche* bezeichnet und bestimmen die zeitliche Struktur der Intensität der emittierten Photonen [55]. Bei Synchrotronstrahlungsquellen handelt es sich daher um inhärent gepulste Anregungsquellen. Die genutzten Speicherringe bieten dabei die Möglichkeit die Elektronen pro Bunch sowie die Anzahl und den zeitlichen Abstand der Bunche innerhalb baulich bedingter Grenzen zu variieren und so verschiedene Füllmuster der Synchrotronstrahlungsanlage zu realisieren. Die Verwendung eines Füllmusters wird auch als Betriebsmodus bezeichnet, sodass diese Begriffe im Rahmen dieser Arbeit synonym verwandt werden. Die

beiden für diese Arbeit wesentlichen Betriebsmodi sind der Singlebunch (SB) Modus und der Multibunch Hybrid (MBH) Modus der Synchrotronstrahlungsanlage BESSY II (HZB, Berlin).

Im SB Modus befindet sich ein einzelner Bunch im Speicherring, sodass sich der zeitliche Abstand zweier anregender Pulse aus der Umlaufzeit dieses Bunches in dem Speicherring ergibt. Dieser zeitliche Abstand ist ohne weitere experimentelle Techniken maximal für einen festen Umfang des Speicherrings und einer festen, genutzten kinetischen Energie der Elektronen. Der Umfang des Speicherrings von BESSY II beträgt 240 m, wodurch für eine genutzte kinetische Energie der Elektronen von 1,7 GeV eine Umlaufdauer von  $T_B \approx 800$  ns folgt. Dies entspricht einer Frequenz von  $\nu_B = 1,25$  Hz der anregenden Photonenpulse und ist in Abbildung 3.2a grafisch dargestellt. In diesem Modus lassen sich Messungen realisieren, die einen entsprechend großen zeitlichen Abstand zwischen zwei Anregungspulsen benötigen, um so eine Superposition der Messsignale zu vermeiden. Zur Synchronisation der anregenden Pulse mit dem Experiment stellt BESSY II eine Referenzuhr zur Verfügung, welche *Bunchmarker* genannt wird. Dieser gibt im SB Modus phasengleich zu der Umlaufzeit des Bunches ein Signal in Form eines Spannungspulses aus und markiert so den nächsten Umlauf des Bunches. Die Zeitdifferenz zwischen der Referenzuhr und der tatsächlichen Anregung ist innerhalb der gegebenen Unsicherheiten in diesem Betriebsmodus konstant. Somit ist das sich aus den Einzelereignissen ergebende Messsignal insgesamt um diese Differenz gegenüber der Referenzuhr verschoben.

Da allerdings nicht beliebig viele Elektronen stabil in einem Bunch zusammengefasst werden können, ist die erreichbare Photonenintensität durch die Maximalzahl der Elektronen in diesem einzelnen Bunch begrenzt. Eine weitere Erhöhung der Gesamtphotonenintensität ist daher nur möglich, indem mehrere Bunches genutzt werden, wobei hier die Elektronenzahl pro Bunch gegenüber dem SB-Modus verringert ist. Dadurch soll die wechselseitige Beeinflussung der verschiedenen Bunches möglichst gering gehalten werden. In diesem Betriebsmodus liefert die Referenzuhr nur eine Information über den Beginn einer neuen Umlaufsequenz, aber keinerlei Information über die Struktur der Elektronenbunche oder welcher der Photonenpulse zu der Anregung geführt hat. Bei äquidistant angeordneten Bunchen mit einer vergleichbaren Menge an Elektronen pro Bunch wird von einem *Multibunch* Modus gesprochen [62]. Zeitaufgelöste Messungen sind in diesem Betriebsmodus ohne aufwändige Korrekturen oder zusätzliche experimentelle Techniken nur dann möglich, wenn die Zeitskala der zu untersuchenden Prozesse geringer ist als der zeitliche Abstand der benachbarten Bunches.

Für einen Kompromiss zwischen der Möglichkeit zeitaufgelöste Messung unabhängig von der inhärenten Zeitskala des Experiments durchzuführen und der erreichbaren Photonenintensität pro Umlaufzeit wird bei BESSY II der MBH Modus genutzt. Dieser besteht aus einer Kombination eines Multibunch Modus mit weiteren Elektronenbunchen mit speziellen Eigenschaften [122]. Durch verschiedene Techniken können dabei verschiedene Photonenpulse der zusätzlichen Elektronenbunche isoliert zur Anregung genutzt werden, wodurch zeitaufgelöste Messungen realisiert werden können. In diesem Modus wird bei BESSY II die Umlaufzeit der Elektronen in 400 Zeiteinheiten mit einer Breite von 2 ns eingeteilt, welche jeweils mit Elektronenpaketen gefüllt werden können und als *Buckets* bezeichnet werden. Von den 400 möglichen Positionen werden insgesamt 302 Positionen mit Elektronenbunchen gefüllt [64, 120, 121], wobei 293 von diesen mit annähernd gleichen Elektronenzahlen pro Bunch gefüllt werden. Diese bilden den Multibunchanteil des Füllmusters mit einem Ringstrom von 0,9 mA pro Bunch und damit die Grundlage des Füllmusters [121]. Innerhalb des Multibunchzeitbereichs befinden sich insgesamt sieben *Slicing*-Bunche mit einem Ringstrom pro Bunch von 3,0 mA. Diese können durch *Femtoslicing* Techniken hochenergetische Photonenpulse mit einer Pulslänge im sub-Pikosekundenbereich erzeugen [123]. Da sich durch die Modulation der Elektronenbunche mit den äußeren Laserfeldern auch die Abstrahlcharakteristik der erzeugten Photonen ändert, lassen sich diese von den restlichen Photonenpulsen separieren

und so zeitaufgelöste Messungen erlauben. Im Zentrum des nicht mit Elektronenbunchen besetzten Bereichs von 200 ns befindet sich ein als *Camshaft* bezeichneter Elektronenbunch mit einem Ringstrom von 4,0 mA, welcher eingeschränkt für zeitaufgelöste Messungen verwendet werden kann. Mit Hilfe eines synchronisierten, mechanischen *Choppers* lässt sich der durch diesen Bunch erzeugte Photonenpuls auch gezielt selektieren, um so eine Messung in einem Pseudosinglebunch Modus zu ermöglichen [64].

Die dritte Möglichkeit eine zeitaufgelöste Messung während des MBH Modus durchzuführen bietet ein weiterer Elektronenbunch, welcher in einem Bucket im letzten Teil des multibunchfreien Zeitbereichs injiziert wird und einen Ringstrom von 3,0 mA aufweist [121]. Dieser wird als *PPRE* Bunch bezeichnet, da die Photonenpulse dieses Elektronenbunches mit Hilfe der *Pulse Picking by Resonant Excitation* Methode isoliert werden können und auf diese Art zeitaufgelöste Messungen in einem Pseudosinglebunch Modus ermöglichen [67, 68].

Diese Methoden sind allerdings nicht an allen Strahlrohren verwendbar, sodass im MBH Modus die Photonenpulse aller Elektronenbunche zur Anregung beitragen können. Abbildung 3.2b zeigt das komplexe Füllmuster des MBH Modus, welches proportional zu der Intensitätsverteilung der anregenden Photonen ist. Die gemessene Zeitverteilung ist dann eine Faltung der gesuchten Antwortfunktion des untersuchten Systems auf die Anregung mit dem genutzten Füllmuster, was zeitaufgelöste Messungen in diesem Betriebsmodus sehr erschwert. Die Konsequenzen für Elektron-Photon Koinzidenzmessungen und ein Lösungsansatz für diese Problematik werden in Kapitel 6 ausführlich diskutiert.

Neben der zeitlichen Struktur der anregenden Strahlung innerhalb einer Umlaufzeit der Elektronenbunche in dem Speicherring  $T$  ist auch der zeitliche Verlauf der Gesamtzahl der in dem Speicherring zirkulierenden Elektronen ein zu berücksichtigender experimenteller Parameter. Durch verschiedene Effekte reduziert sich die Zahl der in dem Speicherring zirkulierenden Elektronen [124], wodurch sich auch die Zahl der emittierten Photonen und damit die Anzahl der pro Periode möglichen Anregungen kontinuierlich abnimmt. Daher finden in regelmäßigen zeitlichen Abständen Injektionen von Elektronen statt. Im *Decay-Modus* finden Injektionen statt, wenn der Ringstrom einen gesetzten Grenzwert unterschreitet. Bei typischen Lebensdauern der Elektronenbunche von einigen Stunden [124], sind die zeitlichen Abstände zwischen Injektionen hier ebenfalls im Bereich von einigen Stunden, sodass die Intensität der anregenden Strahlungen während Experimenten merklich abnimmt, was in den Experimenten berücksichtigt werden muss. Um dies zu vermeiden verwenden Synchrotronstrahlungseinrichtungen heute einen *TopUp-Modus* [55, 62], bei welchem Injektionen in kurzen Intervallen erfolgen und so die Zahl der zirkulierenden Elektronen annähernd konstant gehalten wird.

## 3.2 Teilchenstrahlerzeugung

Alle untersuchten physikalischen Teilchen befanden sich in Teilchenstrahlen, welche durch eine für Überschallexpansionen geeignete Quelle erzeugt wurden. In dieser Arbeit werden verschiedene Systeme von atomaren über molekulare bis hin zu Clustern betrachtet, welche aufgrund der Abhängigkeit der Clusterbildung von den genutzten Quellenparametern [125] mit derselben Quelle erzeugt werden können. Die genutzte Quelle wurde in [126–128] beschrieben und besteht im Wesentlichen aus einer Gaszuleitung an deren Ende eine konische Düse angebracht ist. Typische Öffnungsradien der verwendeten Düsen liegen im Bereich von  $5\text{ }\mu\text{m}$  bis  $50\text{ }\mu\text{m}$ . Die Quelle kann mit Hilfe von flüssigem Stickstoff oder flüssigem Helium gekühlt werden und durch einen aktiven Temperaturregler auf der gewünschten Zieltemperatur gehalten werden. Im Allgemeinen wird durch Einstellen des Kühlmitteldurchflusses eine Temperatur unterhalb der Zieltemperatur gewählt, sodass die Zieltemperatur innerhalb des Regelbereichs des Temperaturreglers liegt. Innerhalb der Quelle lässt sich weiterhin durch Verwendung eines Durchflussregulierers in der Gaszuleitung ein einstellbarer Staudruck aufbauen.

Der zu Grunde liegende Prozess bei der Erzeugung der untersuchten van-der-Waals gebundenen Cluster ist ein Dreiteilchenstoßprozess, bei welchem zwei der Teilchen gebunden werden und die Überschussergie durch den dritten Stoßpartner aufgenommen wird [129]. Durch die mehrfache Abfolge dieses Prozesses lassen sich so auch Cluster mit einer Vielzahl von Bindungspartnern erzeugen. Häufigkeit und Erfolg dieser Prozesse hängt dabei von der Zahl der möglichen Stoßpartner und von möglichst geringen relativen Geschwindigkeiten zwischen diesen ab. Diese Bedingungen sind im Zentrum der durch Überschallexpansion erzeugten Teilchenstrahlen bestmöglich erfüllt und lassen sich über den gewählten Staudruck  $p_Q$  regulieren. Die zusätzliche Kühlung der Quelle und Düse hat dabei eine unterstützende Wirkung auf die Verteilung der Relativgeschwindigkeiten durch Reduktion der temperaturbedingten statistischen Geschwindigkeitsverteilungen [92, 129]. Es zeigt sich weiterhin, dass konische Düsen mit entlang der Propagationsrichtung zunehmenden Radien ebenfalls einen positiven Effekt auf die Clusterherstellung haben [130].

Der statistische Charakter der Clustererzeugung führt jedoch nicht zu der Produktion einer spezifischen Clustergröße, sondern resultiert in einer Verteilung verschiedener Clustergrößen. Diese kann unter anderem durch eine logarithmische Normalverteilung beschrieben werden [131]. Entsprechend werden nur mittlere Clustergrößen  $\langle N \rangle$  angegeben, deren Bestimmung auf empirische Bestimmungsgleichungen zurückgreift [125, 132–134]. Dabei muss berücksichtigt werden, dass die mittlere Clustergröße keine Aussage über die zu Grunde liegende Verteilung liefert.

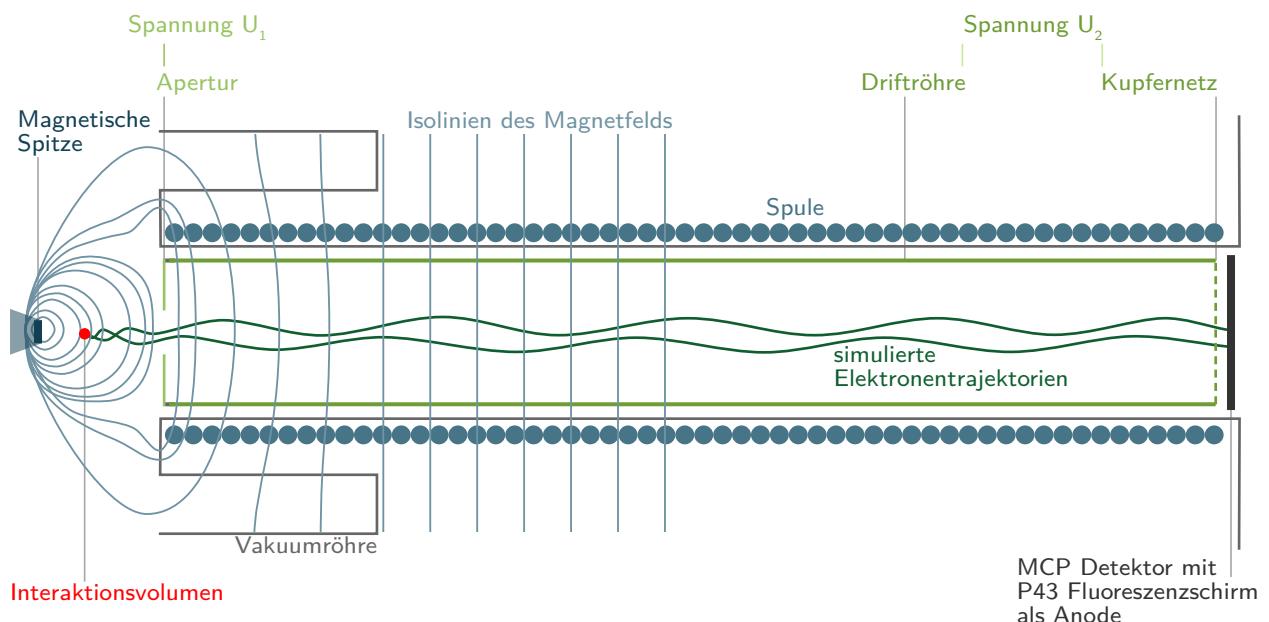
Da die Cluster vor allem im Zentrum des Teilchenstrahls erzeugt werden, enthalten die Randbereiche des Teilchenstrahls hauptsächlich einzelne Atome oder Moleküle, welche im Rahmen von Clustermessungen als *Monomere* bezeichnet werden. Diese führen bei Messungen zu einer meist unerwünschten Superposition aus Cluster- und Monomersignal. Zwischen der Quelle und dem Interaktionsvolumen befindet sich daher eine dünnwandige, näherungsweise hohlkegelstumpfförmige Apertur, welche als *Skimmer* bezeichnet wird und eine Öffnung im Millimeterbereich besitzt [135]. Die Wahl des Öffnungsduurchmessers erfolgt als Kompromiss aus Ausbeute und Reinheit des aus Clustern bestehenden Teilchenstrahls. Die Flächen des aus Kupfer bestehenden Skimmers sind hyperbolisch, um eine bessere Teilchenreflexion zu gewährleisten. Hierdurch gelangt nur der zentrale Teil des Teilchenstrahls, welcher die zu untersuchenden Cluster enthält, zu dem Interaktionsvolumen. Die reflektierten Teilchen in der Sektion der Teilchenstrahlerzeugung (Abschnitt 3.5) verbleiben dort bis sie, unter Umständen nach mehreren Reflexionen an den Wänden der Vakuumkammer, durch eine Turbomolekularpumpe das System verlassen.

### 3.3 Verwendete Detektorsysteme

Für die Detektion der Teilchen werden zwei verschiedene Detektorsysteme verwendet, welche in der Lage sind einzelne Teilchen nachzuweisen. In beiden Fällen werden hierfür Mikrokanalplatten (MCPs vom englischen *Microchannel plate*) verwendet. Diese dienen durch die Erzeugung mehrerer freier Elektronen beim Auftreffen eines geladenen Teilchens ausreichend hoher Energie als Elektronenvervielfacher [136]. Die weiteren Komponenten und die Funktionsweise des Elektronendetektors werden in Abschnitt 3.3.1 beschrieben und es wird darauf eingegangen, wie dieser eine äußerst hohe Nachweiseffizienz der emittierten Elektronen über eine Maximierung des einsehbaren Raumwinkels erreichen kann. Da der in Abschnitt 3.3.2 vorgestellte Photonendetektor für sich nur einen geringen Raumwinkel aufweist, wird dort zusätzlich auf den Spiegelaufbau eingegangen, welcher explizit für das vorhandene Experiment konzipiert wurde. Dieser erhöht deutlich den einsehbaren Raumwinkel für die Photonendetektion und stellt damit eine zentrale Komponente für die effiziente Detektion von Elektron-Photon Koinzidenzen dar.

#### 3.3.1 Elektronendetektion

Die Detektion der emittierten Elektronen erfolgte mit Hilfe einer als *magnetische Flasche* [137] bekannten Kombination aus magnetischen Feldern zur drastischen Erhöhung des Raumwinkels und eines Flugzeit-Energie-Spektrometers, welches die Bestimmung der kinetischen Energien der Elektronen erlaubt (Abbildung 3.3). Die technischen Details des verwendeten Spektrometers wurden in [127] ausführlich erläutert und in [128] durch Simulationen der Magnetfelder und Elektronentrajektorien ergänzt, sodass hier nur eine kurze Zusammenfassung des Funktionsprinzips gegeben wird.



**Abbildung 3.3:** Schematische Darstellung des Funktionsprinzips der magnetischen Flasche (Überarbeitete Version gemäß [128]). In der Simulation aus [128] wurde nur der vordere Teil der Spitze berücksichtigt. Technische Details sind in [127, 128] zu finden.

Mit Hilfe eines konischen Permanentmagneten im Bereich des Interaktionsvolumens wird ein inhomogenes Magnetfeld erzeugt. Durch dieses werden die Elektronen in den Akzeptanzbereich des eigentlichen Flugzeit-Energie-Spektrometers geführt, wodurch sich der effektive Raumwinkel der magnetischen Flasche stark erhöht. Der Magnet ist isoliert in einem XYZ-Achsen Manipulator montiert, um die Detektionswahrscheinlichkeit sowie die Energieauflösung des Spektrometers durch geeignete Positionierung des Permanentmagneten entlang der drei Raumachsen zu optimieren. Für die Justage ist es sinnvoll, eine der Raumachsen parallel zur Ausbreitungsrichtung der Synchrotronstrahlung zu wählen. Durch die elektrische Isolierung des Permanentmagneten kann eine geringe positive Spannung von wenigen Millivolt angelegt werden, um Aufladungseffekte zu vermeiden ohne dabei die kinetische Energie der Elektronen merklich zu beeinflussen.

Das Flugzeit-Energie-Spektrometer ist modular aufgebaut und besteht aus einer interaktionsvolumenseitigen Apertur, der inneren Driftröhre, einem detektorseitigen Kupfernetz, der Vakuumröhre sowie einer außerhalb des Vakuums befindlichen Kupferdrahtspule (Abbildung 3.3). Die zwischen dem Interaktionsvolumen und der Driftstrecke befindliche Apertur ist mechanisch mit der Driftröhre verbunden, aber elektrisch von dieser isoliert. Die Driftstrecke wird vor dem Detektor durch ein Kupfernetz terminiert, welches mechanisch und elektrisch leitend mit der Driftröhre verbunden ist. Diese Kombination ist schließlich elektrisch isoliert in der Vakuumröhre aufgehängt. Hierdurch lassen sich zwei verschiedene Spannungen an der Apertur und der Driftröhre anlegen, wodurch der detektierbare Energiebereich und die erreichbare Energieauflösung reguliert werden können. Die äußere Spule dient zur Optimierung der Transmission der zu detektierenden Elektronen, da durch Anlegen eines Stromes ein homogenes Magnetfeld innerhalb der Driftstrecke erzeugt wird, durch welches die Elektronen innerhalb der Driftstrecke geführt werden. Als äußerste Schicht wird eine  $\mu$ -Metall Abschirmung zur Vermeidung der Einflüsse magnetischer Störfelder verwendet. Diese ist in Abbildung 3.3 zwecks besserer Übersicht nicht eingezeichnet.

Die eigentliche Detektion der Elektronen erfolgt mit Hilfe von zwei in einem Chevronverbund betriebenen MCPs und einem als Anode fungierenden P43 Phosphorschirm, welcher zur Justage verwendet wird. Elektronen, welche mit ausreichend hoher kinetischer Energie auf die Innenseite der Mikrokanalplattenkanäle treffen, erzeugen über Sekundärelektronenemission eine mit der Anode messbare Ladungswolke. Hierdurch entsteht ein geringer Spannungseinbruch der an der Anode anliegenden Hochspannung. Dieser Einbruch kann als Spannungspuls über eine kapazitive Kopplung ausgekoppelt und entsprechend Abschnitt 3.4 verarbeitet und registriert werden. Die Potentiale der Mikrokanalplatten und der Anode sind hierbei so gewählt, dass die Mikrokanalfläche auf der Seite der Driftstrecke auf einem leicht positiven Potential bezüglich des Netzes liegt, um so die Nachweiseffizienz zu erhöhen.

### 3.3.2 Photonendetektion

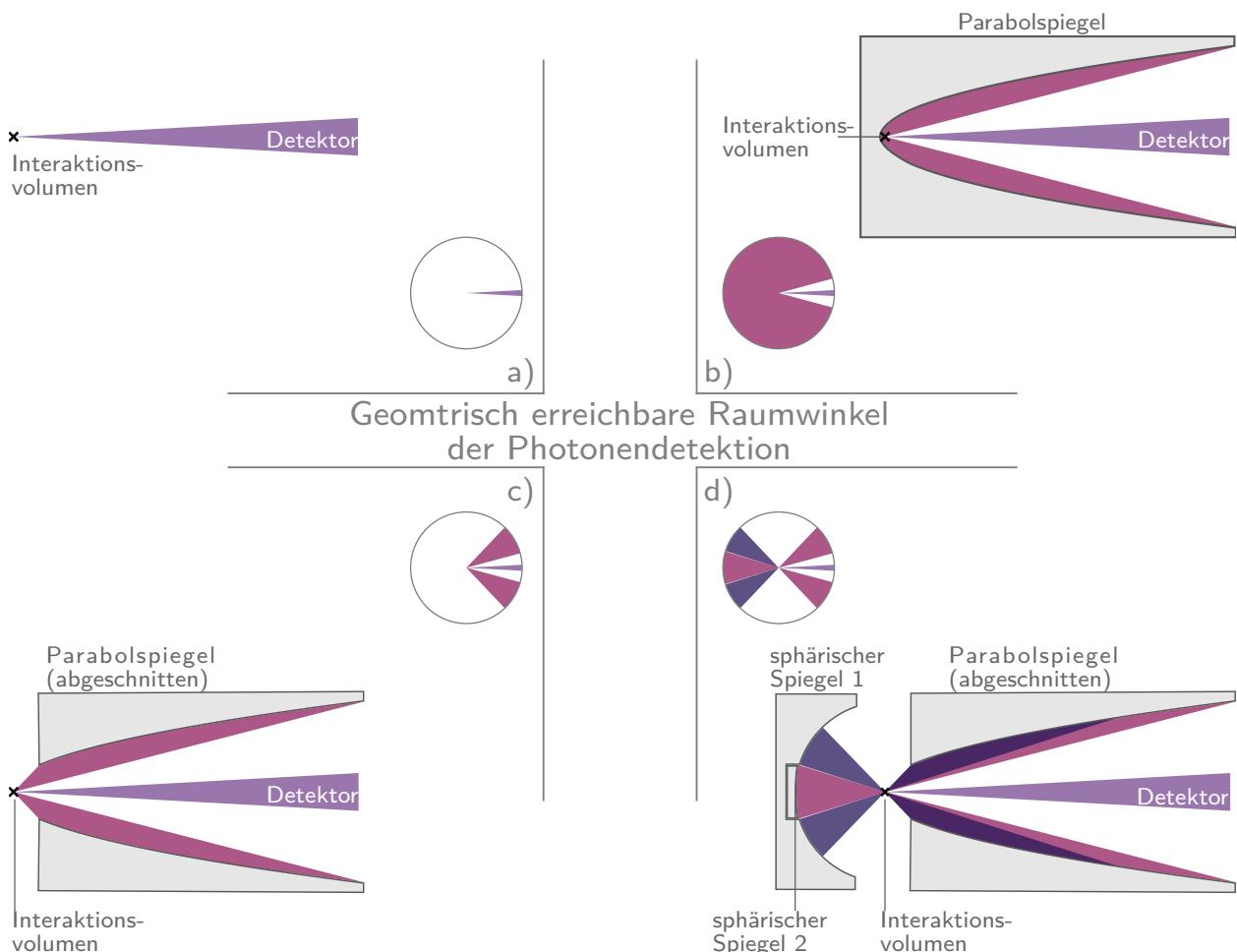
Die Photonendetektion erfolgt dadurch, dass diese zunächst mit Hilfe einer auf ein  $\text{MgF}_2$ -Fenster aufgedampften Schicht aus Cäsiumtellurid in Elektronen konvertiert werden. Mit dieser Kombination aus Fenster- und Photokathodenmaterial lassen sich Photonen in einem Wellenlängenbereich von  $\lambda \sim 115 \text{ nm}$  bis  $\lambda \sim 310 \text{ nm}$  nachweisen. Während die obere Grenze der Wellenlängendetektion durch die Austrittsarbeit des Cäsiumtellurid definiert ist, ergibt sich die untere Grenze durch die Transmissionseigenschaften des Fenstermaterials. Die so erzeugten Elektronen werden durch zwei MCPs, welche in einem Chevronverbund betrieben werden, verstärkt, wobei ein messbarer Spannungseinbruch in der Hochspannung entsteht. Dieser wird mit Hilfe einer kapazitiven Kopplung von der angelegten Hochspannung entkoppelt und als Spannungspuls an die Messelektronik übertragen. Dieser Puls wird bei einer zeitlich aufgelösten Messung der Photonen als der Zeitpunkt der Photonendetektion genutzt. Die durch die Verstärkung erzeugte Elektronenwolke trifft anschließend auf eine positionsempfindliche *Hex-Delay-Line-Anode*, welche den Auftreffort über eine Zeitmessung der abfließenden Ladungen über sechs Abgriffe kodiert an die Messelektronik weitergibt [138, 139]. Die sechs Abgriffe führen zu einer Überbestimmung, da im Prinzip auch vier Abgriffe der Anode ausreichen, um die Position zu ermitteln. Dementsprechend ist jedes detektierte Photon bei einer Messung mit diesem Detektor durch insgesamt fünf bzw. sieben Zeitsignale charakterisiert, welche so erfasst werden, dass Ort- und Zeitinformation miteinander korreliert werden können. Dies wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht genutzt, da die Ortsinformation der Anode für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente zunächst nicht relevant ist. Werden aber in zukünftigen Messungen zum Beispiel dispergierende Elementen zwischen Interaktionsvolumen und Detektor genutzt, so lassen sich mit diesem Detektor nach der Wellenlänge der detektierten Photonen aufgelöste Elektron-Photon Koinzidenzmessungen realisieren. Das im Rahmen dieser Arbeit genutzte Experiment stellt damit eine direkte Vorstufe solcher Experimente dar.

Wie auch andere Photonendetektoren, weißt auch der im Rahmen dieser Arbeit verwendete Photonendetektor eine laterale und spektrale Quanteneffizienz auf. Diese wurde zum Beispiel in [140] in Kombination mit dem in einem optischen Reflexionsgitter für die Bestimmung absoluter Wirkungsquerschnitte charakterisiert. Die dort angegebenen Werte der spektralen Quanteneffizienz können wegen des verwendeten Gitters nicht direkt auf den Detektor übertragen werden, sodass für die spektrale Quanteneffizienz der von dem Hersteller zur Verfügung gestellte Testbericht [141, 142] genutzt wird, welcher einen Wellenlängenbereich von 214 nm bis 900 nm beinhaltet.

Für die Elektron-Photon Koinzidenzmessungen ist es wichtig, dass möglichst viele emittierte Photonen auch detektiert werden, was neben der Sensitivität des Detektors vor allem durch den messbaren Raumwinkel bestimmt wird. Für einen Detektor mit der aktiven Fläche  $A_{\text{Det}}$  in einem Abstand  $D_{\text{Det}}$  zu dem Interaktionsvolumen lässt sich der hierdurch abgedeckte relative Raumwinkel  $d\Omega_{\text{Det}}$  für hinreichend große Abstände nähern als

$$d\Omega_{\text{Det}} \approx \frac{A_{\text{Det}}}{4\pi D_{\text{Det}}^2} . \quad (3.3.1)$$

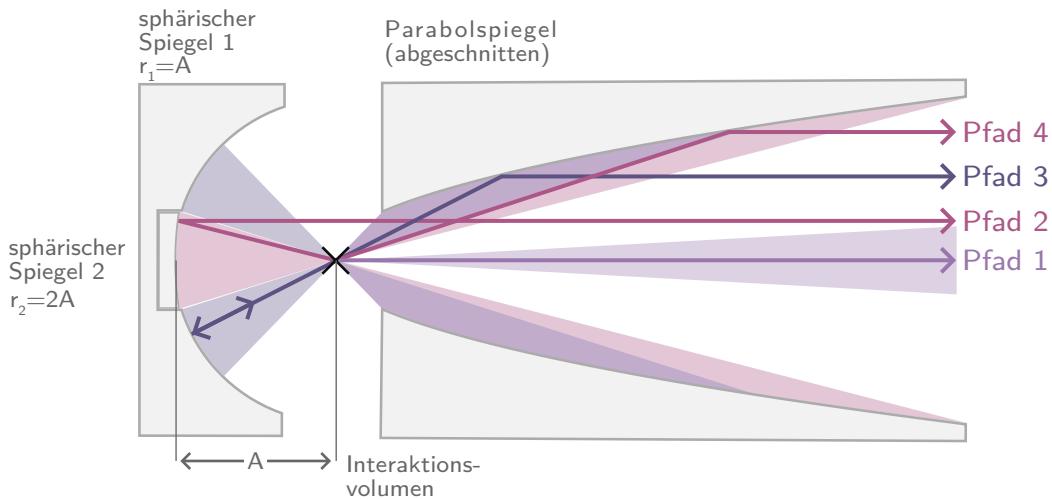
Für den verwendeten Detektor mit einer aktiven Fläche von  $A_{\text{Det}} = 1256 \text{ mm}^2$  in einem Abstand von  $D_{\text{Det}} = 365 \text{ mm}$  zu dem Interaktionsvolumen ergibt sich der abgedeckte relative Raumwinkel zu  $d\Omega_{\text{Det}} \approx 0,075 \%$ , was in Abbildung 3.4 schematisch dargestellt ist. Koinzidenzmessungen sind hierdurch nur schwer möglich, da ein Großteil der entsprechenden Koinzidenzereignisse nicht als solche detektiert werden können. Entsprechend muss die Ausbeute der Photonendetektion durch eine Vergrößerung des effektiven Raumwinkels drastisch verbessert werden. Da Photonen sich nicht durch elektrische oder



**Abbildung 3.4:** Schematische Übersicht der messbaren Raumwinkel für die Verwendung des Detektors in einem Abstand von 365 mm in Kombination mit verschiedenen Spiegeln. a) Detektor ohne Spiegelsystem b) Detektor und vollständiger Parabolspiegel c) Detektor und ein abgeschnittener Parabolspiegel zur Verwendung mit dem Elektronendetektor d) Für die Messungen genutzte Kombination aus abgeschnittenem Parabolspiegel und zwei sphärischen Spiegeln. Eine vergrößerte und annotierte Darstellung von (d) befindet sich in Abbildung 3.5.

magnetische Felder ablenken lassen, bleibt hier nur die Nutzung verschiedener Optiken, durch welche die Photonentrajektorien beeinflusst werden können. Hierdurch verringert sich allerdings auf Grund der endlichen Transmissions- beziehungsweise Reflexionskoeffizienten der verwendeten Materialien die erreichbare Photonenausbeute. So ist zum Beispiel die Nutzung transmittiver Optiken für Wellenlängen  $\lambda < 120 \text{ nm}$  nicht zu empfehlen, da hier die Absorption der Photonen so groß ist [138], dass der entsprechende Verlust größer ist als der Gewinn durch den Raumwinkel.

Die Optimierung der Photonenausbeute geschah in Hinblick darauf, einen möglichst großen Wellenlängenbereich abzudecken, welcher durch die in der Arbeitsgruppe Ehresmann verwendeten Einzelphotondetektoren messbar ist. Dieser Bereich beträgt bei undispergierten Messungen  $0 \text{ nm} < \lambda < 700 \text{ nm}$  und bei dispergierten Messungen  $40 \text{ nm} < \lambda < 700 \text{ nm}$ . Daher wurde auf die Verwendung transmittiver Optiken verzichtet.



**Abbildung 3.5:** Schematische Darstellung des Funktionsprinzips des verwendeten Spiegelsystems, bei welcher zwischen vier verschiedenen Typen von Pfaden unterschieden werden kann. Die entsprechenden Bereiche sind farbig schattiert. Photonen, welche Pfad 1 folgen, werden ohne jegliche Reflexion detektiert, während Photonen, die den Pfaden 2 oder 4 folgen, einmal reflektiert werden. Photonen, welche Pfad 3 folgen, werden zweimal reflektiert, einmal an dem äußerem sphärischen Spiegel und einmal durch den Parabolspiegel.

Ausgangspunkt der Überlegungen ist ein Parabolspiegel, dessen Fokuspunkt so gewählt ist, dass dieser mit dem Interaktionsvolumen zusammenfällt. Dies führt dazu, dass die Trajektorien der reflektierten Photonen parallel zu der Symmetriechse des Parabolspiegels verlaufen. Für eine anschließende Detektion dieser so reflektierten Photonen muss dabei der Abstand zwischen der Symmetriechse und dem Punkt der Reflexion kleiner sein als der Radius des Photonendetektors. Dies führt zu einer drastischen Erhöhung des erreichbaren Raumwinkels, was in Abbildung 3.4b dargestellt ist. Hier ist aber auch erkennbar, dass der Abstand zwischen dem Parabolspiegel und dem Interaktionsvolumen sehr gering ist, da der Bereich um das Interaktionsvolumen für die Teilchenstrahlen, die Synchrotronstrahlung und das Elektronenspektrometer erreichbar sein muss. Letzteres erfordert zur Justage des verfahrbaren Permanentmagneten (Abschnitt 3.3.1) ausreichend freien Raum um das Interaktionsvolumen, wodurch der Scheitel des Paraboloids und damit verbunden ein Großteil des hierdurch abdeckbaren Raumwinkels verloren geht (Abbildung 3.4c). Um dies teilweise auszugleichen, werden auf der gegenüberliegenden Seite des Detektors zwei sphärische Spiegel mit den Radien  $r_1 = 2 \cdot r_2$  verwendet, deren jeweilige Mittelpunkte ebenfalls auf der Symmetriechse des Detektors liegen. Der Abstand der Mittelpunkte  $M_1, M_2$  von dem Interaktionsvolumen  $I$  ist dabei so gewählt, dass  $\overline{M_1 I} = 0,0 \text{ mm}$  und  $\overline{M_2 I} = r_1$  gilt (3.4d).

Für eine genauere Betrachtung der hieraus resultierenden Trajektorien ist diese Konfiguration in Abbildung 3.5 vergrößert dargestellt. Zusätzlich sind hier einige Beispiele der möglichen Trajektorien der emittierten Photonen für eine punktförmige Emissionsquelle gezeigt. Es ergeben sich vier Typen von möglichen Trajektorien, welche den zurückgelegten Weg eines detektierten Photons beschreiben können: Photonen, deren Emissionswinkel im Akzeptanzbereich des Photonendetektors liegen, werden diesen direkt erreichen (Pfad 1 in Abbildung 3.5). Photonen, deren Emissionswinkel im Akzeptanzbereich des achsennahen, sphärischen Spiegels (Spiegel 2 in Abbildung 3.5) direkt gegenüber des Detektors

liegen, werden von diesem reflektiert. Die Trajektorien der reflektierten Photonen verlaufen anschließend parallel zu der Symmetriearchse des Spiegelaufbaus (Pfad 2 in Abbildung 3.5). Bei den zwei anderen Möglichkeiten wird der Parabolspiegel genutzt. Zum einen können emittierte Photonen direkt auf den Parabolspiegel treffen und durch diesen in Richtung des Detektors reflektiert werden. Nach der Reflexion verlaufen die Trajektorien parallel zu der Symmetriearchse des Spiegels (Pfad 4 in Abbildung 3.5). Zum anderen wird ein Teil der Photonen, welche durch den achsenfernen, sphärischen Spiegel (Spiegel 1 in Abbildung 3.5) in das Interaktionsvolumen zurückreflektiert werden, ebenfalls auf den Parabolspiegel treffen und durch diesen in Richtung des Detektors abgelenkt (Pfad 3 in Abbildung 3.5). Der relative geometrisch einsehbare Raumwinkel ergibt sich für das rotationssymmetrische Spiegelsystem zu 38,4 %. Diese Symmetrie wird durch weitere Bohrungen für die Synchrotron- und Teilchenstrahlen gebrochen (siehe Anhang C) und führt zu einer Reduktion der erreichbaren Werte für den geometrischen Raumwinkel. Zusätzlich treten auch durch Absorption bedingte Verlusteffekte durch das Auftreffen auf die Spiegeloberflächen auf, welche für Trajektorien am größten sind, welche Pfad 3 entsprechen, da hier zwei Reflexionen für eine Detektion notwendig sind. Die effektive Photonenausbeute ist daher auch abhängig von dem gewählten Material des Spiegels und die Energie der Photonen. Allerdings sollte bei der Wahl des verwendeten Materials auch berücksichtigt werden, dass die für das Elektronenspektrometer notwendigen Magnetfelder nicht zu stark gestört werden. Für den im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Prototypen wurde daher poliertes Aluminium verwendet, welches einen Kompromiss aus Reflektivität, Produktionsaufwand und Verwendbarkeit in Kombination mit äußeren Magnetfeldern darstellt. Zusätzlich ist zu bedenken, dass die Oberfläche des hier verwendeten Spiegels nicht aus reinem Aluminium besteht, sondern durch Oxidationsprozesse eine Aluminiumoxidschicht unbekannter Dicke vorhanden ist. Eine theoretische Bestimmung der erreichbaren Photonendetektionsausbeute ist daher aus den gegebenen Parametern nur schwer möglich. Diese wird stattdessen direkt aus der Messung von Elektron-Photon Koinzidenzen von Prozessen mit bekannten Wirkungsquerschnitten in Abschnitt 5.2 abgeleitet und der mögliche Einfluss der Oxidation diskutiert.

### 3.4 Datenaufnahme

Alle für die vorgestellten Koinzidenzexperimente notwendigen Daten sind als zeitabhängige, zeitlich lokalisierte Spannungsverläufe (*Pulse*) kodiert. Entsprechend Abschnitt 3.3 sind die Auftreffzeiten der Elektronen und Photonen als Einbrüche der angelegten Hochspannungen messbar, welche durch schnelle Verstärker der FAMP Produktlinie von der Firma ROENTDEK verstärkt werden. Zusätzlich stellt die Synchrotronstrahlungsanlage BESSY II eine Referenzzeit, den Bunchmarker, mit Hilfe eines Spannungspulses zur Verfügung, siehe Abschnitt 3.1. Daher ist es möglich alle Daten in vergleichbarer Weise elektronisch zu verarbeiten und computergestützt aufzunehmen. Dies ist in Abbildung 3.6 als Diagramm dargestellt. Die relevante Messgröße aller verwendeten Systeme ist die Ankunftszeit der verschiedenen Spannungspulse, welche daher möglichst exakt definiert und detektiert werden muss.

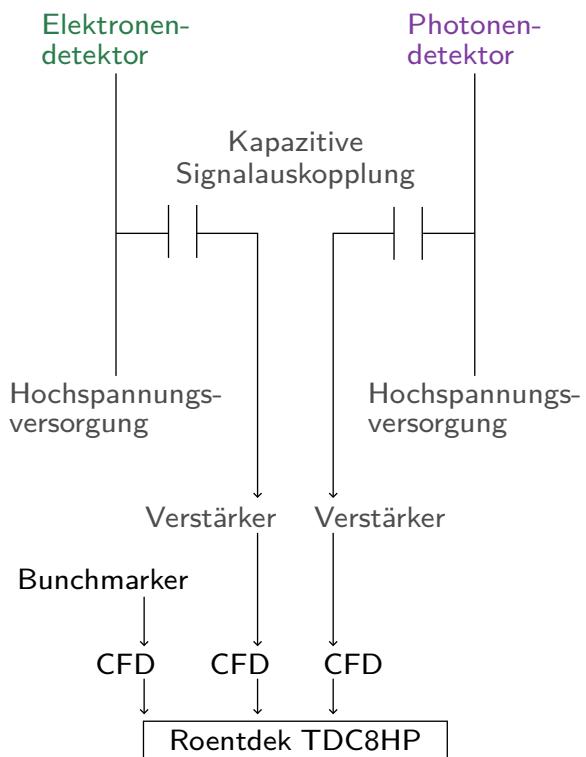
Die Definition der Auftreffzeit erfolgt durch die Verwendung von Constant Fraction Diskriminatoren (CFDs) [143], welche zwei Hauptfunktionen erfüllen, und in dem vorliegenden Fall aus der CFD Produktlinie (CFD7x sowie CFD4c) der Firma ROENTDEK stammen. Zum einen dienen diese als Filter des zeitlichen Spannungsverlaufs, da nur valide Pulse weitergegeben werden und so die Belastung auf die restliche Elektronik reduziert wird. Ein Puls wird in diesem Zusammenhang als valide gewertet, wenn dieser einen absolut definierten Schwellenwert überschreitet. Zum anderen verarbeiten CFDs die in ihrer Pulshöhe und Pulsform variierenden MCP Pulse und geben gleichförmige Rechteckpulse aus, deren fallende Flanke zur Definition der Detektionszeit genutzt wird. Die fallende Flanke gibt dabei an,

wann der von dem CFD verarbeitete Puls einen bestimmten relativen Wert seines Maximums erreicht, unabhängig von deren exakten Eigenschaften [143]. Dies hat den großen Vorteil, dass die bei jedem MCP vorliegende Pulshöhenverteilung, sowie mögliche Überschwinger oder andere Randeffekte nahezu keinen Einfluss auf die Definition der Ankunftszeit des Pulses haben und somit wesentlich besser miteinander vergleichbar sind [143]. Der im Prinzip aus Normpulsen bestehende Bunchmarker wird auch über einen CFD prozessiert, um so zum Beispiel durch die Verwendung langer Kabel zwischen Bunchmarkerausgang und verwendeter Messelektronik aufgefangene Störsignale herauszufiltern. Die von den CFDs erzeugten Pulse lassen sich als digitale Pulszüge auffassen, deren Basislevel einer logischen „0“ und die Plateau niveaus der gleichförmigen Rechteckpulse einer logischen „1“ entsprechen. Wie in Abbildung 3.6 dargestellt, erfolgt die eigentliche Zeitmessung mit Hilfe eines Mehrkanal-Time-to-Digital Converter (TDC). Hierdurch erfolgt eine Diskretisierung der Zeitinformation gemäß

$$t \xrightarrow{\text{TDC}} t_n : t \in [\Delta t_{\text{TDC}} \cdot (n - 1), \Delta t_{\text{TDC}} \cdot n], n \in \{1, \dots, N\}. \quad (3.4.1)$$

Bei dem verwendeten TDC handelt es sich um den TDC8HP der Firma ROENTDEK, welcher eine Zeitauflösung von  $\Delta t_{\text{TDC}} = 25 \text{ ps}$  (letztes signifikantes Bit) besitzt und als Messgröße der Zeit den Index  $n$  ausgibt, wenn (3.4.1) erfüllt ist. Der verwendete TDC bietet hierbei die Möglichkeit bis zu acht unterschiedliche Zeitsignale simultan zu messen, wobei mehrere Ereignisse pro Referenzzeit gespeichert werden können [144]. Die Konfiguration und Auslesung des TDCs erfolgt mit Hilfe der in PYTHON geschriebenen Messsoftware METRO [101].

Die Messungen der Koinzidenzen erfolgen als eine Variante der digitalen, beziehungsweise Software-basierten Koinzidenzmessmethoden [22, 73–78]. Hier werden die erhaltenen Detektorsignale möglichst vollständig erfasst, wodurch sich diese durch verschiedene Auswertetechniken und Wahl der Koinzidenzbedingungen auf vielfältige Weise analysieren lassen. In dem vorliegenden Experiment wird für die eigentliche Registrierung der Daten explizit der *Gruppen-Modus* des verwendeten TDC8HP ausgenutzt, dessen exakte technische Implementierung dem Handbuch [144] entnommen werden kann. Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeföhrten Messungen war dieser Modus so konfiguriert, dass der Bunchmarker als Auslöser und damit als Erzeuger einer Gruppe genutzt wird. Jede „1“ auf den verschiedenen Kanälen werden dieser Gruppe zugeordnet, wenn diese innerhalb einer gewählten Zeitspanne registriert wurden. Die Ankunftszeit der einzelnen Signale wird relativ zu der Zeit des die Gruppe erzeugenden Pulses gesetzt. Die erlaubte Zeitspanne betrug 1600 ns ( $N = 64\,000$ ) und entspricht damit ungefähr zwei ganzen Umlaufzeiten eines Elektronenbunches an der Synchrotronstrahlungsanlage BESSY II. Wird innerhalb dieser Zeitspanne auf keinem anderen Kanal als dem Bunchmarkerkanal ein Puls registriert, so wird diese Gruppe als *leer* bezeichnet und wird nicht gespeichert.



**Abbildung 3.6:** Schema der verwendeten Komponenten zur Prozessierung und Aufnahme der Messdaten.

Die erlaubte Zeitspanne betrug 1600 ns ( $N = 64\,000$ ) und entspricht damit ungefähr zwei ganzen Umlaufzeiten eines Elektronenbunches an der Synchrotronstrahlungsanlage BESSY II. Wird innerhalb dieser Zeitspanne auf keinem anderen Kanal als dem Bunchmarkerkanal ein Puls registriert, so wird diese Gruppe als *leer* bezeichnet und wird nicht gespeichert.

Bei der Registrierung von mindestens einem Puls auf mindestens einem anderen Kanal wird diese Gruppe als *Ereignis* bezeichnet. Dieses wird für eine weitere Verwendung gespeichert, wobei die relative Zeit sowie die Kanalnummer, auf welchem der Puls registriert wurde, als neue Zeile an eine kontinuierlich wachsende Tabelle angehängt wird. Hierdurch spiegelt die so erzeugte Tabelle den zeitlichen Ablauf der verschiedenen Ereignisse wieder (Abbildung 4.1a). Die Anzahl der gemessenen Pulse innerhalb einer Gruppe ist beliebig [144] und nur durch die Auflösung der verwendeten Detektoren und Elektronik nach oben limitiert, wodurch mehrere Elektronen und Photonen innerhalb einer Gruppe registriert werden können. Die Zeit zwischen zwei Ereignissen auf dem gleichen Kanal des TDCs ist dabei als  $< 5\text{ ns}$  spezifiziert [144]. Da sowohl nicht koinzidente Ereignisse als auch Koinzidenzen verschiedener Partikelkombinationen in den Datensätzen enthalten sind, handelt es sich entsprechend um keinen dedizierten Koinzidenzmesskreislauf, sondern die Identifikation der Koinzidenzen erfolgt softwarebasiert und wird in Abschnitt 4.1 erläutert.

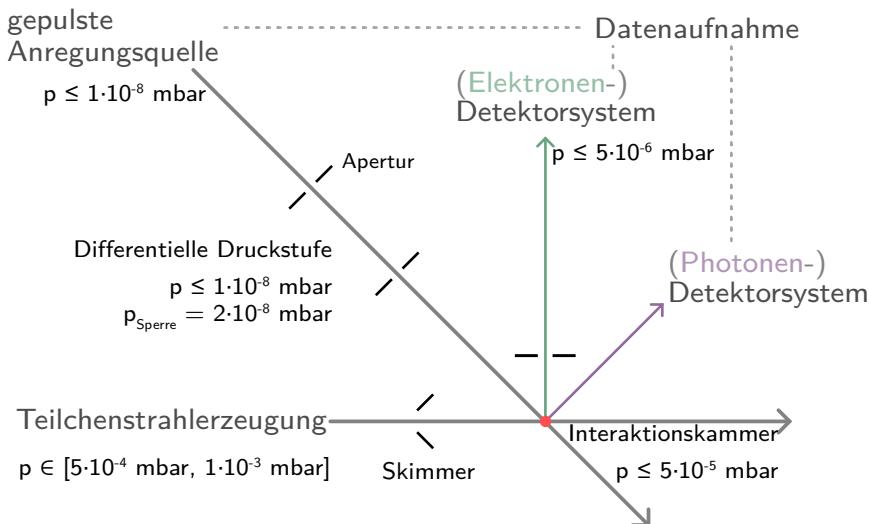
### 3.5 Vakuumsystem

Die vorgestellten Teilchenstrahlexperimente finden nach Anregung mit Synchrotronstrahlung im Hochvakuum statt, da nur so die Erzeugung, Anregung und Detektion der emittierten Teilchen erfolgen kann. Detaillierte technische Beschreibungen des Aufbaus und Schaltpläne der Vakuumkomponenten sind in [126–128] zu finden, sodass hier nur ein kurzer schematischer Überblick über das verwendete System gegeben wird.

Die Erzeugung der Teilchenstrahlen durch die Clusterquelle benötigt entsprechend Abschnitt 3.2 hohe Staudrücke  $p_0$ , was zu einer Verschlechterung der Vakuumbedingungen hin zu Druckbereichen führt, in welchen der Teilchenstrahl selbst, aber auch die emittierten Elektronen stark gestört würden. Darüber hinaus würde eine ungestörte Ausbreitung der Gasteilchen zu einer ungewollten Verschmutzung des Strahlrohres führen. Um dennoch die notwendigen Vakuumbedingungen in dem Interaktionsbereich, dem Elektronendetektor und am Anschlusspunkt zu dem Strahlrohr zu gewährleisten muss der experimentelle Aufbau entsprechend vorbereitet sein. Für die in dieser Arbeit vorgestellten Experimente wurde ein modularisierter Aufbau aus verschiedenen Sektionen auf Basis von Hochvakuum tauglichen CF-Komponenten verwendet. Die im Allgemeinen gemessenen Druckmesswerte in den einzelnen Sektionen während des Betriebes sind in Abbildung 3.7 zusammengefasst.

Die notwendigen Druckgradienten zwischen den einzelnen Sektionen werden durch entsprechende Aperaturen und eigene Vakuumpumpensysteme in den jeweiligen Bereichen erreicht. Zusätzlich können die Sektionen durch Ventile vollständig voneinander separiert werden. Die Sektion zur Teilchenstrahlerzeugung und der Interaktionskammer ist neben der direkten Verbindung auf der Teilchenstrahlachse durch den Skimmer über einen verschließbaren Bypass gekoppelt. Dieser wird während des Evakuierens des Experiments sowie dem Brechen des Vakuums geöffnet, um den empfindlichen Skimmer vor möglichen starken Druckgradienten während dieser Phasen zu schützen. Zwecks Kontrolle der Vakuumbedingungen sind die Sektionen jeweils mit Vakuummessköpfen versehen.

Als zusätzlicher, bisher nicht vorgestellter Bereich wird eine differentielle Druckstufe zwischen Interaktionsvolumen und Strahlrohr genutzt. Diese besteht aus einer Kombination von hintereinander gereihten Aperturen, deren einzelne Segmente getrennt voneinander evakuiert werden. Als Sicherheitsvorkehrung ist der Vakuummesskopf der Druckstufe mit einem Sperrkreislauf des Strahlrohrs und einem Sperrkreislauf des Experiments verbunden. Bei der Überschreitung eines regulierbaren Grenzwertes  $p_{\text{Sperr}}$  werden die automatischen Ventile an den Anschlusspunkten der Druckstufe geschlossen und die Hochspannung des Elektronendetektors kontrolliert herunter gefahren. In Rahmen dieser Arbeit wurde dieser Wert auf



**Abbildung 3.7:** Schematischer Überblick über typische Vakuumbedingungen in den verschiedenen Sektionen des Experiments. Für die differentielle Druckstufe ist zusätzlich der eingestellte Druck zur automatischen Schließung der Ventile und kontrollierten Abschaltung der Hochspannung des Elektronendetektors angegeben.

$p_{\text{Sperr}} = 2 \cdot 10^{-8}$  mbar gesetzt. Der Einsatz der Druckstufe ist für Gasphasenexperimente notwendig, um einen möglichst geringen Druckgradienten zwischen dem Strahlrohr der Synchrotronstrahlungsanlage und dem Experiment zu gewährleisten sowie zum Schutz des genutzten Strahlrohrs und der offen liegenden MCPs des Elektronendetektors.

In allen Bereichen des experimentellen Aufbaus werden die notwendigen Vakuumbedingungen durch eine Kombination aus in Reihe geschalteter Scroll-Pumpen zur Erzeugung des Fein- beziehungsweise Vorvakums und Turbomolekularpumpen zur Erzeugung des Hochvakums erfüllt. Die Wahl der Turbomolekularpumpen erfolgt in Abhängigkeit der zu erwartenen Gaslast in den jeweiligen Bereichen. In der Sektion zur Teilchenstrahlerzeugung werden Turbomolekularpumpen mit hohem Saugvermögen  $\geq 2000 \frac{1}{s}$  ( $N_2$ ) verwendet, während in den anderen Sektionen Turbomolekularpumpen mit geringeren Saugleistungen ausreichend sind.



## KAPITEL 4

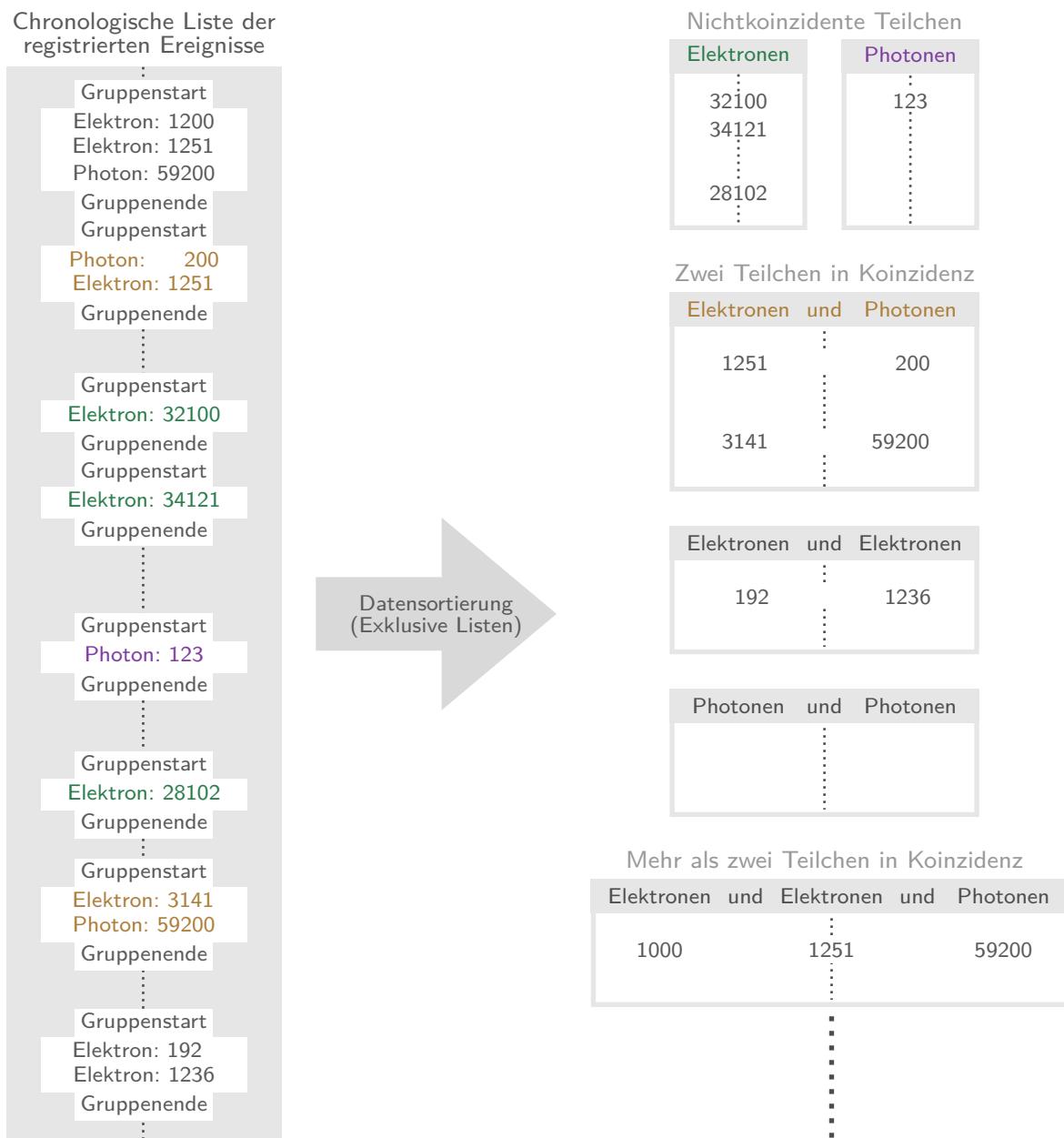
### ALLGEMEINE DATENAUSWERTUNG UND INTERPRETATION

Entsprechend den Ausführungen in Abschnitt 3.4 wird im Rahmen dieser Arbeit kein dedizierter Koinzidenzmessaufbau verwendet, sondern alle detektierten Ereignisse werden als solche mit Hilfe eines TDCs gespeichert. Die Datenverarbeitung und -auswertung nehmen daher eine zentrale Rolle in dieser Arbeit ein, wobei die eigentliche Identifikation der echten Koinzidenzen stark abhängig von der zeitlichen Verteilung der anregenden Strahlungspulse ist. Die jeweiligen Identifikationsmethoden werden in den Abschnitten 5.1 und 6.2 für die verschiedenen Füllmuster erläutert. Die grundlegende Struktur der Messdaten ist aber unabhängig von den Bedingungen des Experiments, sodass in diesem Kapitel die allgemeinen Zusammenhänge zwischen den aufgenommenen Messdaten und der physikalischen Interpretation dargelegt werden.

Abschnitt 4.1 fasst zunächst die Vorsortierung der aufgenommenen Messdaten kurz zusammen, während in Abschnitt 4.2 der wichtige Übergang von einzelnen Ereignissen zu physikalisch interpretierbaren Häufigkeitsdichteverteilung vorgenommen wird. In Abschnitt 4.3 wird abschließend der Übergang der gemessenen Flugzeiten der Elektronen zu den entsprechenden kinetischen Energien beschrieben. An dieser Stelle wird auch darauf eingegangen, inwieweit die Reihenfolge aus Zeit-zu-Energie Konvertierung und Bilden der Häufigkeitsdichteverteilung die Interpretationsfähigkeit dieser Verteilungen beeinflussen kann.

## 4.1 Vorsortierung der Datensätze

Durch die in Abschnitt 3.4 beschriebene Methode zur Speicherung der Messdaten liegen diese am Ende einer Messung als chronologische Folge von Ereignisgruppen vor. Diese ist zunächst unabhängig von den Kombinationen der gemessenen Teilchen, was auf der linken Seite in Abbildung 4.1 exemplarisch dargestellt ist.



**Abbildung 4.1:** Schematische Darstellung der Datensortierung von der chronologischen Abfolge aller Ereignisse (links) hin zu mehreren exklusiven Tabellen, welche jeweils alle gemessenen Ereignisse mit exakt einer Konstellation von gemessenen Teilchen enthält (rechts). Zwischen den gezeigten Ereignissen liegen weitere, hier nicht gezeigte Ereignisse, was durch horizontale Punkte angedeutet ist.

Im ersten Schritt der Datenauswertung wird diese Tabelle in die verschiedenen Fälle „Ein Elektron in der Gruppe“, „Ein Photon in der Gruppe“, „Ein Elektron und ein Photon in der Gruppe“, „Zwei Elektronen in der Gruppe“, ... aufgeteilt (Rechte Seite in Abbildung 4.1). Wichtig ist, dass die Kombinationen *exakt* und damit *exklusiv* sind. So enthält als Beispiel die Tabelle „Ein Elektron und ein Photon in der Gruppe“ nur die Ereignisse, bei denen genau ein Elektron und genau ein Photon in Kombination registriert wurden.

Entsprechend den Ausführungen in Abschnitt 2.3 definieren wir die Teilchen innerhalb einer Gruppe als *in Koinzidenz gemessen* und die Elektronen (Photonen) der Tabelle „Ein Elektron (Photon) in der Gruppe“ als *nicht koinzidente* Elektronen (Photonen). Erst durch diese Sortierung wird ein konsistenter Datensatz eines spezifischen Koinzidenzereignistyps erzeugt. Sie liefert allerdings keine Aussage über die Ursache der koinzidenten Messungen, sodass die Tabellen neben den echten Koinzidenzen auch zufällige Koinzidenzen enthalten. Weiterhin bleibt die Chronologie innerhalb der einzelnen Tabellen bei diesem Übergang erhalten, da die Reihenfolge der Einträge entsprechend der Abfolge in der Ursprungstabelle erfolgt. Bei längeren Messungen ermöglicht dies auch die Untersuchung zeitabhängiger Effekte. Die Chronologie zwischen Mitgliedern verschiedener Tabellen bleibt allerdings nicht erhalten, sodass die ursprüngliche Reihenfolge aus den einzelnen Tabellen nicht rekonstruiert werden kann. Diese Vorsortierung ist äußerst hilfreich, um die eigentliche physikalische Auswertung der Daten zu beschleunigen, da nur der Teil der Daten weiterverarbeitet werden muss, welcher für den jeweiligen Auswertungsschritt relevant ist.

## 4.2 Physikalische Interpretation der Messdaten

Der Übergang der chronologischen Ereignistabellen aus 4.1 zu interpretierbaren Darstellungen erfolgt über die Erstellung einer Häufigkeitsdichteverteilung (HDV) der Messereignisse. Zunächst werden in diesem Abschnitt die aus der Statistik bekannten, grundlegenden Eigenschaften der HDV allgemein zusammengefasst, bevor darauf eingegangen wird, welche physikalischen Größen der verschiedenen gemessenen Teilchen durch diese Verteilungen abgebildet werden. Im letzten Teil dieses Abschnitts wird schließlich die Anwendbarkeit wahrscheinlichkeitstheoretischer Aussagen auf die vorhandenen Messdaten motiviert, welche den verwendeten Identifikationsmethoden von echten Koinzidenzen zu Grunde liegen. Die HDV führen zu einer Klassifizierung der abzubildenden Daten, bei welchen die zu Grunde liegenden Daten mit  $M$  verschiedenen Werten in  $N$  Klassen mit einer Klassenbreite  $\Delta N_i$  der entsprechend vorliegenden Eigenschaft eingeteilt werden. Für die Identifikation der Klassen wird die Klassenmitte  $N_i$  gewählt, wobei für die Klassenbreite  $\Delta N_i$  gilt, dass die Zuordnung der Daten zu den Klassen eindeutig ist. Unter dieser Bedingung sind auch von  $N_i$  abhängige Klassenbreiten  $\Delta N_i(N_i)$  möglich. Im Allgemeinen gilt bei der Klassifizierung  $M > N$ , was zu einem Informationsverlust führt, da für alle Mitglieder einer Klasse der Wert  $N_i \pm \frac{\Delta N_i}{2}$  angenommen wird. Die erhaltenen HDV bilden dabei die *Häufigkeitsdichte*  $H(N_i)$  der jeweiligen Klasse  $N_i$  ab. Die Zahl der Mitglieder einer Klasse ergibt sich aus dem Produkt  $H(N_i) \cdot \Delta N_i$ , sodass für eine eindeutige Interpretation der betrachteten HDV sowohl die Häufigkeitsdichten  $H(N_i)$  als auch die Klassenbreite  $\Delta N_i$  bekannt sein müssen.

Bei der Klassifizierung der vorliegenden TDC Messdaten muss beachtet werden, dass diese gemäß (3.4.1) einer diskreten Menge an möglichen Zeitwerten mit einem Abstand von  $\Delta t_{TDC} = 25\text{ ps}$  entsprechen. Damit beträgt die minimale sinnvolle Klassenbreite  $\Delta N_i$  bei der Klassifizierung der Detektionszeiten ebenfalls 25 ps. Die physikalische Interpretation der so erhaltenen HDV ist abhängig von der Art der gemessenen Teilchen und dem zu Grunde liegenden Messaufbau.

Im Fall der Elektronen entspricht die gemessene eindimensionale HDV  $H_{\text{EI}}(t_{\text{EI}})$  dem Flugzeitspektrum der Elektronen, welches mit Hilfe von Methoden in Abschnitt 4.3 in die HDV bezüglich der kinetischen Energien der Elektronen  $H_{\text{EI}}(E_{\text{EI,kin}})$  konvertiert werden kann. Bei dieser Konvertierung müssen auch die Häufigkeitsdichten angepasst werden, worauf in Abschnitt 4.3 ebenfalls näher eingegangen wird. In beiden Darstellungen lassen sich klar voneinander getrennte Strukturen in der HDV feststellen, welche verschiedenen kinetischen Energien der Elektronen und damit auch verschiedenen Emissionskanälen zugeordnet werden können.

Die gemessene eindimensionale HDV  $H_{\text{Ph}}(t_{\text{Ph}})$  der Photonendetektion entspricht dem in Abschnitt 2.2.3 beschriebenen zeitlichen Verlauf der gemessenen Intensität und damit dem zeitlichen Verlauf der Populationsabnahme der Photonen emittierenden Systeme. Die Ausbreitungsgeschwindigkeit aller Photonen ist im Vakuum gleich und es wird davon ausgegangen, dass der relative Wegunterschied der verschiedenen möglichen in Abschnitt 3.3.2 beschriebenen Trajektorien vernachlässigbar ist. Entsprechend ist  $H_{\text{Ph}}(t_{\text{Ph}})$  dann um einen festen Wert zu größeren Zeiten verschoben. Dieser zeitliche Versatz ergibt sich aus der Summe der Flugzeit des jeweiligen Photons, der durch die Messelektronik induzierten Zeitdifferenz und der Zeit, welche zwischen dem Signal des Bunchmarkers und der tatsächlichen Anregung des Systems vergeht.

Für Koinzidenzereignisse ergeben sich HDV  $H_{\text{koinz}}(t_1, \dots, t_k)$  bezüglich der Kombination der Detektionszeiten der beteiligten Teilchen  $t_1, \dots, t_k$ . Für zwei in Koinzidenz gemessene Teilchen entsprechen die HDV damit Skalarfeldern der Form  $H_{\text{koinz}} : (t_1, t_2) \rightarrow H_{\text{koinz}}(t_1, t_2) \ni \mathbb{R}$  und lassen sich damit als zweidimensionale Matrizen darstellen. In die Bestimmung von  $H_{\text{koinz}}(t_1, t_2)$  gehen dabei implizit die genutzten Klassenbreiten mit ein. Für Elektron-Photon Koinzidenzen schreibt sich die HDV damit als  $H_{\text{EI-Ph}}(t_{\text{EI}}, t_{\text{Ph}})$  für die gemessenen Zeiten des Elektrons und des Photons, beziehungsweise  $H_{\text{EI-Ph}}(E_{\text{EI,kin}}, t_{\text{Ph}})$  nach der Zeit-zu-Energie Konvertierung der Elektronen, und ergibt eine  $N_{\text{Ph}} \times N_{\text{EI}}$  Matrix.  $N_{\text{Ph}}, N_{\text{EI}}$  sind die Zahl der bei den beteiligten HDV der Photonen und Elektronen genutzten Klassen, wobei die Klassenbreiten unabhängig voneinander gewählt werden können.

Die gemessenen Koinzidenzereignisse stellen nach Abschnitt 2.3 eine Superposition aus echten und zufälligen Koinzidenzereignissen dar. Für physikalisch sinnvolle Kombinationen aus  $(t_{\text{EI}}, t_{\text{Ph}})$  und damit auch  $(E_{\text{EI,kin}}, t_{\text{Ph}})$  kann nicht unterschieden werden, ob dieses Messereignis aus einer echten oder zufälligen Koinzidenz resultiert. Abhängig von den untersuchten Prozessen, dem verwendeten experimentellen Aufbau und der Art der Datenaufnahme existieren daher eine Vielzahl möglicher Methoden zur Abschätzung des Anteils der zufälligen Koinzidenzen an dem Gesamtsignal.

Die weitere Datenauswertung der vorliegenden Arbeit nutzt physikalisch sinnvolle Annahmen, um die HDV der echten Elektron-Photon Koinzidenzen  $H_{\text{EI-Ph,echt}}(t_{\text{EI}}, t_{\text{Ph}})$  auf Grundlage der gemessenen HDV  $H_{\text{EI-Ph}}(t_{\text{EI}}, t_{\text{Ph}})$  abzuschätzen. Die Darstellung erfolgt dabei für  $(t_{\text{EI}}, t_{\text{Ph}})$ , gilt aber in gleicher Weise für die Darstellung  $(E_{\text{EI,kin}}, t_{\text{Ph}})$ . Eine zentrale Rolle bei diesen Annahmen spielt der Zusammenhang zwischen der gemessenen HDV  $H_{\text{EI-Ph}}(t_{\text{EI}}, t_{\text{Ph}})$ , welche  $K$  nachgewiesene Koinzidenzereignisse enthält, den daraus resultierenden relativen HDV  $H_{\text{EI-Ph, rel}}(t_{\text{EI}}, t_{\text{Ph}})$  und den Wahrscheinlichkeitsverteilungen (WDV)  $P_{\text{EI-Ph}}(t_{\text{EI}}, t_{\text{Ph}})$ , welche die HDV erzeugen. Mit diesen Größen gilt nach dem Gesetz der großen Zahlen [145]

$$H_{\text{EI-Ph, rel}}(t_{\text{EI}}, t_{\text{Ph}}) := \frac{1}{K} H_{\text{EI-Ph}}(t_{\text{EI}}, t_{\text{Ph}}) \xrightarrow{K \rightarrow \infty} P_{\text{EI-Ph}}(t_{\text{EI}}, t_{\text{Ph}}). \quad (4.2.1)$$

Für die Datenauswertung wird davon ausgegangen, dass die HDV für genügend große  $K$  sich den WDV ausreichend annähern, wodurch sich diese mit Hilfe wahrscheinlichkeitstheoretischer Überlegungen analysieren lassen. Echte und zufällige Koinzidenzen lassen sich dann durch die Verwendung verschiede-

ner Modelle von den gemessenen HDV ableiten. Diese Modelle werden in 5.1 und 6.2 vorgestellt. Es wird jeweils davon ausgegangen, dass sich die gemessenen HDV  $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}})$  als Summe der HDV der echten Koinzidenzen  $H_{\text{El-Ph,echt}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}})$  und zufälligen Koinzidenzen  $H_{\text{El-Ph,zuf}}(\text{El}, \text{Ph})$  ergeben. Um  $H_{\text{El-Ph,echt}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}})$  zu erhalten, wird daher  $H_{\text{El-Ph,zuf}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}})$  modelliert und  $H_{\text{El-Ph,echt}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}})$  bestimmt über

$$H_{\text{El-Ph,echt}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}}) = H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}}) - H_{\text{El-Ph,zuf}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}}). \quad (4.2.2)$$

Für die Modellierung des durch zufällige Koinzidenzen erzeugten Untergrunds wird weiterhin der aus der Wahrscheinlichkeitstheorie bekannte Zusammenhang der *bedingten Wahrscheinlichkeit* verwendet. Diese Wahrscheinlichkeit ist allgemein für zwei Ereignisse  $B, A$  definiert über [145]

$$P(B|A) = \frac{P(A \cap B)}{P(A)} \quad (4.2.3)$$

und ergibt die Wahrscheinlichkeit für das Eintreten von Ereignis  $B$  unter der Bedingung, dass Ereignis  $A$  eingetreten ist. Bei Elektron-Photon Koinzidenzmessungen kann diese beispielsweise als Wahrscheinlichkeit verstanden werden, ein Photon zur Zeit  $t_{\text{Ph}}$  zu messen, wenn das Elektron zur Zeit  $t_{\text{El}}$  gemessen wurde. Damit kann auch  $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{Ph}}, t_{\text{El}})$  als bedingte Wahrscheinlichkeitsverteilung verstanden werden. Sind die Ereignisse  $A, B$  statistisch unabhängig, so gilt [145]

$$P(A \cap B) = P(A) \cdot P(B) \quad (4.2.4)$$

und damit

$$P(B|A) = \frac{P(A \cap B)}{P(A)} = \frac{P(A) \cdot P(B)}{P(A)} = P(B). \quad (4.2.5)$$

Wegen der Definition von zufälligen Koinzidenzen sind diese statistisch unabhängig und erfüllen damit Gleichung 4.2.5. Dies wird in der Modellierung des Untergrunds der zufälligen Koinzidenzen in Abschnitt 6.2 verwendet.

## 4.3 Zeit-zu-Energie Konvertierungen

Wie in Abschnitt 3.3 beschrieben, dient die Messung der Elektronenflugzeiten mit dem Flugzeit-Energie-Spektrometer dazu, die Energie der Elektronen zu bestimmen. Da experimentell über den genutzten Detektor die Flugzeiten der Elektronen  $t_{\text{El}}$  zugänglich sind, behandelt dieser Abschnitt im ersten Teil die Erstellung der Zuordnungstabellen zwischen den gemessenen Flugzeiten und den diesen entsprechenden kinetischen Energien. Diese Tabellen sind dabei für die jeweils genutzten Einstellungen des Flugzeit-Spektrometers verwendbar, sodass jeder Satz von Parametern der magnetischen Flasche eine eigene Konvertierungstabelle verwendet. Im Anschluss daran wird darauf eingegangen, welche Möglichkeiten es für ereignisbasierte Flugzeitmessungen gibt, die HDV als Funktion der Energie der Elektronen zu erhalten.

Die mit der magnetischen Flasche gemessenen Flugzeiten der Elektronen sind mit der kinetischen Energie nach [128, 146] verknüpft über

$$t_{\text{EI}}(E_{\text{EI,kin}}) = t_0 + \frac{s_1}{\sqrt{\left(\frac{2(E_{\text{EI,kin}} - eU_1)}{m_e}\right)}} + \frac{s_2}{\sqrt{\left(\frac{2(E_{\text{EI,kin}} - eU_2)}{m_e}\right)}} . \quad (4.3.1)$$

Hier gehen die Längen der verschiedenen Stufen der magnetischen Flasche  $s_1$  und  $s_2$  sowie die dort angelegten Potentiale  $U_1$  und  $U_2$  (vergleiche Abschnitt 3.3) neben der Ladung  $e$  und Masse  $m_e$  des Elektrons ein. Wie schon in [128] angemerkt, ist eine Optimierung der Parameter durch einen entsprechenden Algorithmus notwendig, da bei diesem Ansatz für die Trajektorien der Elektronen eine geradlinige Bewegung angenommen wird. Dies ist durch die angelegten Potentiale und die Ablenkung der Elektronen durch das angelegte Magnetfeld allerdings nicht gegeben.

Im Rahmen dieser Arbeit wird darauf verzichtet, die beiden Potentiale  $U_1$  und  $U_2$  unabhängig voneinander zu wählen. Daher gilt  $U_1 = U_2 = U$  und damit einhergehend  $s_1 + s_2 = s$ , sodass sich 4.3.1 reduziert auf

$$t_{\text{EI}}(E_{\text{EI,kin}}) = t_0 + \frac{s}{\sqrt{\left(\frac{2(E_{\text{EI,kin}} - eU)}{m_e}\right)}} . \quad (4.3.2)$$

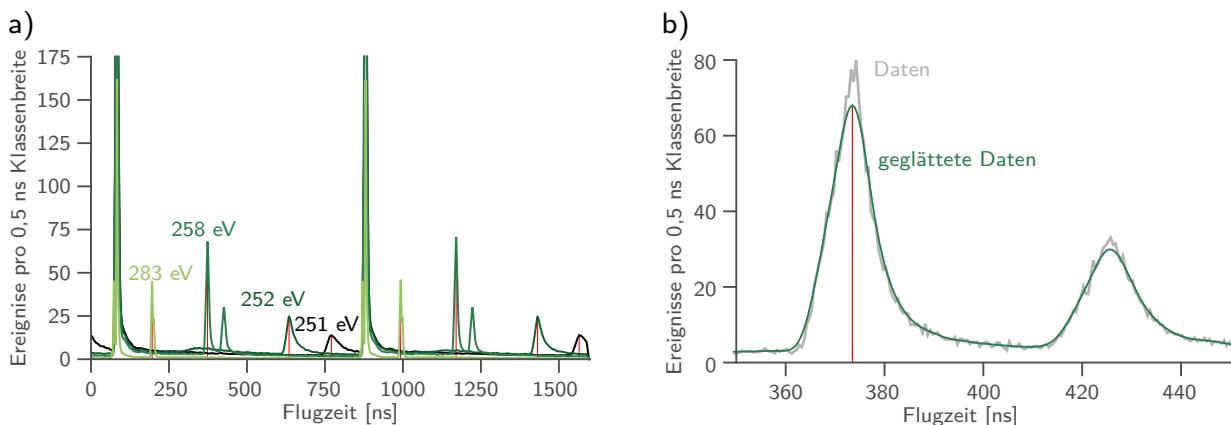
Die für die Optimierung der Konvertierungsvorschrift notwendigen Datensätze  $\{(t_{\text{EI}}, E_{\text{EI,kin}})\}$  lassen sich durch Ausnutzen der variablen Photonenergien an Synchrotronstrahlungsanlagen über die Messung der Flugzeit von Photoelektronen eines geeigneten Testsystems als Funktion der Anregungsenergie erzeugen. Ein Beispiel ist in Abbildung 4.2a gezeigt, welches die 2p-Photoionisation von atomarem Argon nach Anregung mit Synchrotronstrahlung für vier verschiedene Photonenergien darstellt.

Die Position des Maximums der Struktur, welche den  $2p_{3/2}$  Photoelektronen zugeordnet werden kann, ist mit einem roten Strich markiert. Die Bindungs- und Anregungsenergien sind für den Ionisationsprozess bekannt [147], welcher für die Erstellung des Konvertierungsdatensatzes genutzt wird. Aus den erhaltenen Werten lassen sich dann für die verschiedenen Anregungsenergien die  $E_{\text{EI,kin}}$  bestimmen, während die zugehörige Zeit  $t_{\text{EI}}$  aus dem gemessenen Elektronenspektrum bestimmt werden muss. Da sich die Form der Strukturen stark bei Variation der anregenden Photonenergie ändert, ist es in der Regel nicht zielführend, diese durch die Anpassung einer festgelegten Funktion zu erhalten. Vor allem für große kinetische Energien überlappen benachbarte Strukturen stark. Dadurch ist es schwierig den Schwerpunkt einer Struktur zu bestimmen, welche der jeweiligen kinetischen Energie als entsprechende Flugzeit zugeordnet werden kann.

Stattdessen erfolgt die Bestimmung der zugehörigen Flugzeiten durch eine Gradientensuche. Dabei werden die Datenpunkte  $(t_{\text{EI}}^i, H(t_{\text{EI}}^i))$  als Maxima identifiziert, welche

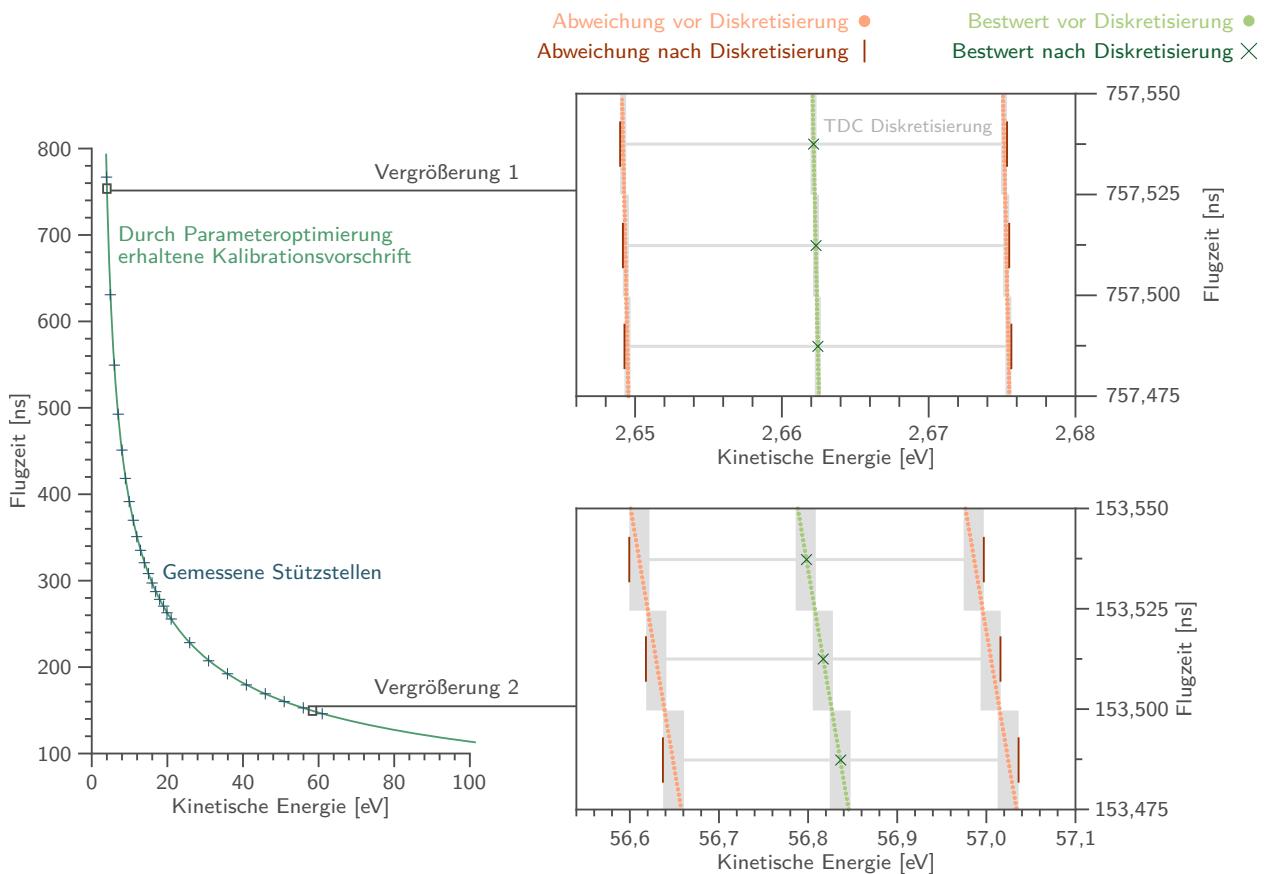
$$H_{\text{EI}}(t_{\text{EI}}^i) \geq H_{\text{EI}}(t_{\text{EI}}^j) \quad \forall \quad t_{\text{EI}}^j \in \{t_{\text{EI}}^{i-n}, \dots, t_{\text{EI}}^i, \dots, t_{\text{EI}}^{i+n}\} \quad (4.3.3)$$

erfüllen. Der Parameter  $n$  bestimmt dabei die Größe der Umgebung in welcher 4.3.3 erfüllt sein muss. Das Ergebnis dieser Suche wird als Flugzeit  $t_{\text{EI}}$  der entsprechenden kinetischen Energie  $E_{\text{EI,kin}}$  zugeordnet. Bei der Gradientensuche ist es nützlich eventuelles Rauschen der Daten durch geeignete Tiefpassfilter zu unterdrücken. Im Rahmen dieser Arbeit wird dazu ein gewichteter, gleitender Durchschnitt bestimmt. Die Gewichtung erfolgt gemäß einer Gaußverteilung, deren Breite so gewählt wird, dass die Form der Strukturen nur sehr gering durch die Mittelung beeinflusst wird (Abbildung 4.2b).



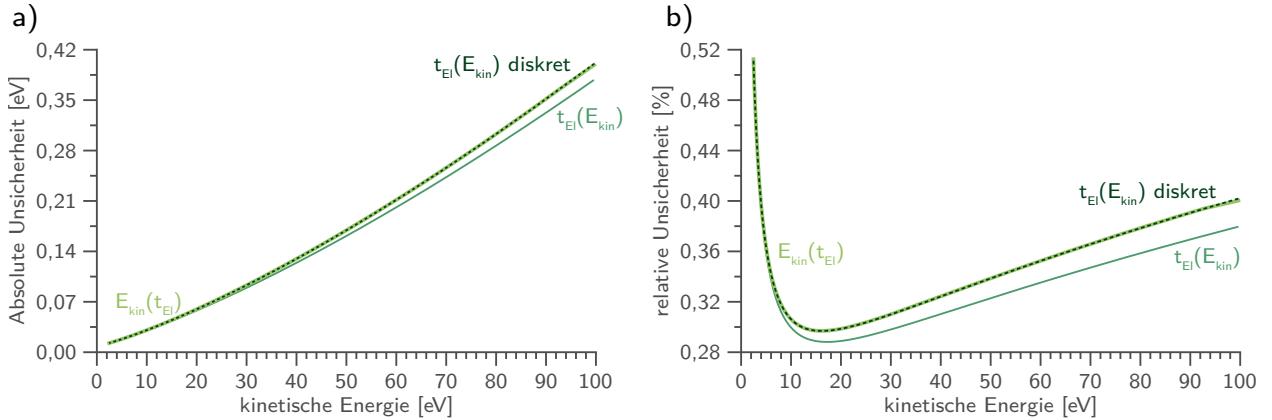
**Abbildung 4.2:** a) Gemessene Elektronenspektren für vier verschiedene Energien der anregenden Synchrotronstrahlung. Das Maximum für die durch die  $2p_{3/2}$  Photoelektronen erzeugten Strukturen ist mit einem roten vertikalen Strich markiert.  
b) Vergrößerung der gemessenen Strukturen für eine Anregungsenergie von 258 eV und Vergleich der Rohdaten mit dem Ergebnis des gleitenden, gewichteten Durchschnitts. Hier wurde das für die Konvertierung genutzte Maximum ebenfalls mit einem roten vertikalen Strich markiert.

Die Optimierung der Parameter für die genutzten Konvertierungsfunktionen erfolgt über die Minimierung der gewichteten orthogonalen Abstandsquadrate [148, 149] zwischen den Funktionswerten der angepassten Konvertierungsfunktion und den Testdatenpunkten. Der verwendete Algorithmus hat für die Konvertierungen im Vergleich zu typischen Regressionsalgorithmen den Vorteil, dass Unsicherheiten sowohl bezüglich der Flugzeiten als auch der kinetischen Energien der Elektronen berücksichtigt werden können. Mit Hilfe der so erhaltenen Optimierungsparameter lassen sich Zuordnungstabellen erstellen, welche die gemessenen Flugzeiten mit den entsprechenden kinetischen Energien verbinden. Die Unsicherheit dieser Zuordnung hängt neben der Güte der durch die Optimierung gefundenen Parameter auch von dem endlichen Auflösungsvermögen des verwendeten TDCs ab. Der Einfluss dieser Diskretisierung auf die erreichbare Energieauflösung der kinetischen Energien ist in Abbildung 4.3 für die natürliche Klassifikationsbreite  $\Delta t_{\text{TDC}} = 0,25 \text{ ps}$  des TDC8HP von ROENTDEK gezeigt. Für eine bessere Illustration wurde bewusst ein sehr kleiner Abstand der in die Rechnungen eingehenden Energiegitterpunkte von  $\Delta E_{\text{Sampling}} = 1 \cdot 10^{-5} \text{ eV}$  gewählt. Es zeigt sich, dass durch die Diskretisierung keine eindeutige Zuordnung zwischen den gemessenen Flugzeiten und den entsprechenden Energien mehr möglich ist. Dieser Effekt ist bei großen Flugzeiten ( $\cong$  kleinen kinetischen Energien) am geringsten, wie in „Vergrößerung 1“ von Abbildung 4.3 zu sehen ist. Für sinkende Flugzeiten nimmt dieser Effekt monoton zu. Für geringe Flugzeiten ( $\cong$  großen kinetischen Energien) ist dieser Effekt maximal, vergleiche „Vergrößerung 2“ von Abbildung 4.3. Entsprechend steigt auch die Unsicherheit der Konvertierungsvorschrift, da hier jeweils der äußere Rand der zu der TDC Klasse gehörenden Energieintervalle als maximale Abweichung anzunehmen ist. Die Randpunkte sind in Abbildung 4.3 als rote Punkte dargestellt. Für den Bestwert der Konvertierung wird angenommen, dass dieser im Zentrum der jeweiligen TDC Klassen liegt, welches in Abbildung 4.3 als grünes Kreuz in der jeweiligen Klasse dargestellt ist. Ein Vergleich der Unsicherheiten der Zuordnungen ist in Abbildung 4.4 exemplarisch zusammengefasst.



**Abbildung 4.3:** Effekt der TDC Diskretisierung auf die Zeit-zu-Energie Konvertierung bei der  $t(E)$ -Berechnung. Der Gitterpunktabstand zweier benachbarter Energien beträgt  $1 \cdot 10^{-5}$  eV. Die Konvertierungsvorschrift wurde über eine Parameteroptimierung von Gleichung 4.3.2 erzeugt. Vergrößerung 1 stellt einen Bereich für kleine kinetische Energien und Vergrößerung 2 einen Bereich für große kinetische Energien zusammen mit den Unsicherheiten der Konvertierung dar. Die Fläche der grauen Rechtecke zeigt dabei die Bereiche, welche durch die Diskretisierung einem einzelnen Wert der HDVs zugeordnet werden. Die Höhe der Rechtecke entspricht dem Zeitintervall, welches einem TDC Bin zugeordnet wird und wird über alle TDC Bins als konstant angenommen. Die Breite der Rechtecke spiegelt dadurch die kinetischen Energien wider, welche einem TDC Bin zugeordnet werden können, und sind dadurch abhängig von der Krümmung der Konvertierungsvorschrift.

Es lassen sich zwei Schwachpunkte der Erstellung der Zuordnungstabellen über die Vorschrift  $t_{EI}(E_{EI,kin})$  (Gleichungen 4.3.1 und 4.3.2) festhalten. Zum einen ist die Wahl der in die Rechnung eingehenden Gitterpunkte  $E_{Sampling}$  nicht trivial, da sie von der vorliegenden Konvertierung und dem für die Dateninterpretation benötigten Energiebereich abhängig ist. Für kleine kinetische Energien muss darauf geachtet werden, dass keine Lücken in dem Definitionsbereich entstehen, während im Bereich großer kinetischer Energien eine unnötige Redundanz vermieden werden sollte. Zum anderen muss die Diskretisierung des TDCs bei diesem Vorgehen künstlich eingefügt werden, um die erhaltenen Unsicherheiten korrekt abzuschätzen. Für den vorliegenden Spezialfall  $U_1 = U_2$  der angelegten Beschleunigungsspannungen an der magnetischen Flasche lässt sich die Zuordnungstabelle aber auch über eine Vorschrift  $E_{EI,kin}(t_{EI})$



**Abbildung 4.4:** Vergleich der absoluten (a) und relativen (b) Unsicherheiten der Konvertierungsvorschriften für die Erstellung der Konvertierungstabellen über  $t_{\text{El}}(E_{\text{El,kin}})$  (Gleichung 4.3.2) mit und ohne Berücksichtigung der durch den TDC induzierten Digitalisierung der Daten sowie der Konvertierungstabellen aus  $E_{\text{El,kin}}(t_{\text{El}})$  (Gleichung 4.3.4)

finden, da für Gleichung 4.3.2 im Gegensatz zu Gleichung 4.3.1 die Bestimmung der Umkehrfunktion sehr einfach ist. Für diese gilt

$$E_{\text{El,kin}}(t_{\text{El}}) = \frac{m_e}{2} \cdot \frac{s}{(t_{\text{El}} - t_0)^2} + eU . \quad (4.3.4)$$

Diese hat den Vorteil, dass sie direkt die durch die TDC Klassen vorgegebenen Gitterpunkte im Zeitraum verwenden kann und entsprechend die nachträgliche Digitalisierung entfällt. Darüber hinaus führt diese Betrachtung direkt zu einer bijektiven Abbildung  $E_{\text{El,kin}}(t_{\text{El}})$ , da jeder TDC Klasse exakt eine Klasse in der Energiedarstellung zugeordnet werden kann. Die Klassenbreite ergibt sich dabei aus  $[E_{\text{El,kin}}(t_{\text{El}} - \Delta \frac{t_{\text{TDC}}}{2}), E_{\text{El,kin}}(t_{\text{El}} - \frac{\Delta t_{\text{TDC}}}{2})]$ . Auch hier lassen sich die Parameter über die Minimierung der orthogonalen Abstandsquadrate ermitteln und liefern vergleichbare Unsicherheiten der Zuordnung wie über die Vorschrift  $t_{\text{El}}(E_{\text{El,kin}})$ , siehe Abbildung 4.4. Für  $U_1 = U_2$  ist es daher im Allgemeinen effizienter, die Zuordnungstabellen über die Darstellung  $E_{\text{El,kin}}(t_{\text{El}})$  zu erzeugen.

Mit den so erstellten Konvertierungstabellen können die HDV als Funktion der Energien  $H_{\text{El}}(E_{\text{El,kin}})$  erstellt werden. Auf Grund der in Abschnitt 3.4 und Abschnitt 4.1 beschriebenen ereignisbasierten Messungen ergeben sich zwei verschiedene Abfolgen von Schritten, welche von den Messdaten zu den HDV als Funktion der Energien der Elektronen führen. „Möglichkeit 1“ in Abbildung 4.5 stellt hierbei das übliche Verfahren der Konvertierung dar, da diese auch für Messverfahren funktioniert, welche direkt die HDV als Messgröße liefern [72]. Zunächst wird bei diesem Vorgehen die HDV bezüglich der gemessenen Flugzeiten  $H_{\text{El}}(t_{\text{El}})$  bestimmt, wobei eine konstante Klassenbreite gewählt wird. Bei dem Übergang von der Zeit- zur Energiedarstellung ist zu berücksichtigen, dass dieser Vorgang flächenerhaltend sein muss. Für HDV bedeutet dies, dass die Gesamtereigniszahl  $N$  konstant bleibt. Dies lässt sich für den allgemeinen Fall erreichen über

$$N = \int H_{t_{\text{El}}}(t_{\text{El}}) dt_{\text{El}} \stackrel{t_{\text{El}} \rightarrow t_{\text{El}}(E_{\text{El,kin}})}{=} \int H_{E_{\text{El,kin}}}(t_{\text{El}}(E_{\text{El,kin}})) \frac{dt_{\text{El}}}{dE_{\text{El,kin}}} dE_{\text{El,kin}} . \quad (4.3.5)$$

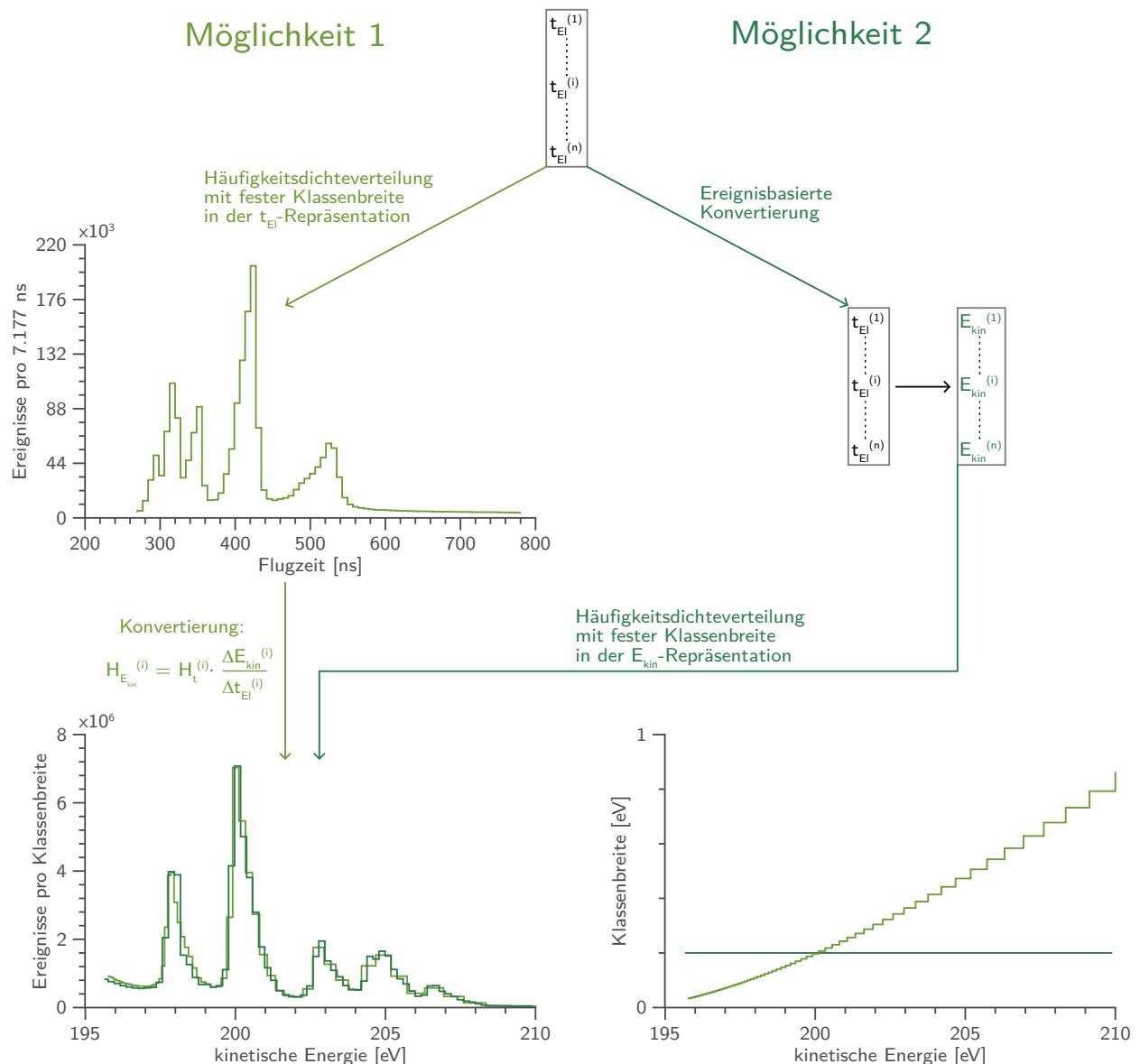
Der Ausdruck vereinfacht sich für diskrete Werte bezüglich der Klassen  $t_{\text{El}}^{(i)}$  ( $E_{\text{El,kin}}^{(i)}$ ) und den zugehörigen Klassenbreiten  $\Delta t_{\text{El}}^{(i)}$  ( $\Delta E_{\text{El,kin}}^{(i)}$ ) zu

$$N = \sum_i H_{t_{\text{El}}}^{(i)} \cdot \Delta t_{\text{El}}^{(i)} \xrightarrow{t_{\text{El}}^{(i)} \rightarrow E_{\text{El,kin}}^{(i)}} \sum_i H_{E_{\text{El,kin}}}^{(i)} \cdot \frac{\Delta t_{\text{El}}^{(i)}}{\Delta E_{\text{El,kin}}^{(i)}} \Delta E_{\text{El,kin}}^{(i)} . \quad (4.3.6)$$

Durch Vergleich der Terme, über welche die Summation stattfindet, zeigt sich, dass sich die diskrete HDV in der Energie-Repräsentation  $H_E^{(i)}$  aus der diskreten HDV in der Zeit-Repräsentation  $H_{t_{\text{El}}}^{(i)}$  bestimmen lässt über

$$H_{E_{\text{El,kin}}}^{(i)} = H_{t_{\text{El}}}^{(i)} \cdot \frac{\Delta E_{\text{El,kin}}^{(i)}}{\Delta t_{\text{El}}^{(i)}} . \quad (4.3.7)$$

Auf Grund der nicht konstanten Klassenbreiten (unteres rechtes Panel in Abbildung 4.5) ist eine Umrechnung in die Ereigniszahl allerdings nicht ohne Kenntnis über die exakte Klassenbreite möglich. Es ist daher üblich die Klassenbreite in der Energie-Repräsentation zwecks einfacherer Interpretation auf einen konstanten Wert zu setzen. Dies lässt sich zum Beispiel darüber erreichen, dass die gewünschten Ränder der äquidistanten Klassen in die entsprechenden Punkte in der Zeit-Repräsentation über Gleichung 4.3.1 (beziehungsweise 4.3.2) bestimmt werden und die HDV in der Zeit-Repräsentation bezüglich dieser Punkte interpoliert wird. Hier muss aber darauf geachtet werden, dass durch die Interpolation die Gesamtereigniszahlen nicht verfälscht werden. Eine diesbezüglich sicherere Alternative ist die Erstellung eines Satzes von Energieklassen  $E_{\text{El,kin}}^{(i)}$  mit identischer Klassenbreite  $\Delta E_{\text{El,kin}}$  und Summation der Ereignisse, welche innerhalb des Bereichs  $\left[ E_{\text{El,kin}}^{(i)} - \frac{\Delta E_{\text{El,kin}}}{2}, E_{\text{El,kin}}^{(i)} + \frac{\Delta E_{\text{El,kin}}}{2} \right]$  der jeweiligen Klassen liegen. Eine elegantere und direktere Methode äquidistante Klassen in der Energie-Repräsentation zu bestimmen ist in Abbildung 4.5 als „Möglichkeit 2“ gezeigt. Hier wird explizit ausgenutzt, dass die Ereignisse in dem vorliegenden Experiment als solche vorliegen und jede Flugzeit zunächst durch den Energiewert ersetzt wird. Anschließend lässt sich hier eine HDV mit konstanter Klassenbreite in der Energie-Repräsentation erstellen, sodass eine Reskalierung der Werte über 4.3.7 entfällt.



**Abbildung 4.5:** Einfluss der Reihenfolge vom Bilden der HDV und Zeit-zu-Energie Konvertierung auf die erhaltenen HDV in der Energiedarstellung. Möglichkeit 1 beschreibt die typische Abfolge, bei der zunächst die HDV erzeugt werden und anschließend die Zeit-zu-Energie Konvertierung durchgeführt wird. Die Klassenbreite der HDV in der Energiedarstellung ohne weitere Korrekturen ist dann eine Funktion der kinetischen Energie. Bei Möglichkeit 2 werden die Flugzeiten der Elektronen zunächst in die Energiedarstellung konvertiert und anschließend die HDV erzeugt, wodurch die Klassenbreite konstant über den gesamten betrachteten Energiebereich ist. Die Klassenbreiten sind in der unteren rechten Teilabbildung für die beiden Möglichkeiten gezeigt.



## KAPITEL 5

---

### ANREGUNG MIT PHOTONENPULSEN MIT AUSREICHEND GROSSEM ZEITLICHEN ABSTAND

Die in Kapitel 3 vorgestellte Kombination aus Detektoren, insbesondere der Spiegel zur Erhöhung der Photonendetektionseffizienz, und die Messelektronik wurde in dieser Kombination das erste Mal verwendet und benötigten daher Testmessungen, um dessen Funktionalität zu demonstrieren.

Wegen der in Abschnitt 2.3 und Abschnitt 4.2 dargestellten Superposition echter und zufälliger Koinzidenzen, wird in dem folgenden Abschnitt 5.1 zunächst darauf eingegangen, wie aus den ereignisbasierten Messergebnissen der Anteil der echten Koinzidenzen bestimmt wird. Das beschriebene Vorgehen ist vergleichbar zu der entsprechenden Bewertung der zufälligen Koinzidenzen für Elektron-Elektron-Koinzidenzen [127, 128, 150] auf Grundlage der digitalen Koinzidenzmessung [73, 75]. Diese kann als eine für Experimente mit Synchrotronstrahlung nutzbare Variante von Bestimmungsmethoden aufgefasst werden, bei denen mehrere Zeitfenster für die Koinzidenzmessungen genutzt werden, von denen eines als Referenzmessung für die zufälligen Koinzidenzen herangezogen werden kann. Solche Methoden finden zum Beispiel bei  $\gamma\gamma$ -Koinzidenzmessungen [151], Teilchenphysik [109] oder in der Positronen-Emissions-Tomographie für ungepulste [112, 152] und gepulste Quellen [153] Verwendung, wurden aber auch schon Mitte des 20. Jahrhunderts für gepulste Quellen vorgeschlagen [110].

Anschließend werden die Ergebnisse der Elektron-Photon Koinzidenzmessungen von atomarem Helium und atomarem Argon in Abschnitt 5.2 vorgestellt und diskutiert. Die Messungen an Helium werden zu einer ersten Charakterisierung der Nachweiseffizienz von Elektron-Photon Koinzidenzen genutzt, da die relativen Populationszahlen durch die Photoionisation sowie die Wirkungsquerschnitte der beteiligten Übergänge aus der entsprechenden Literatur entnommen werden können. Die Diskussion der erhaltenen Messdaten nach der Anregung von atomarem Argon dient abschließend dazu, die Vorteile des im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Messschemas der digitalen Koinzidenzmessung zu illustrieren. Insbesondere die simultane Detektion verschiedener Teilchenkombinationen ist dabei für die Untersuchung von mehreren komplementären Prozessen nützlich, bei denen die Emission eines messbaren Photons nur bei einem Teil der Relaxationspfade möglich ist.

## 5.1 Bestimmung der HäufigkeitsdichteVerteilung echter Koinzidenzen

Ausgangspunkt der Messdatenauswertung der Elektron-Photon Koinzidenzen ist die Erstellung der zweidimensionalen HDV  $H_{\text{El-Ph}}(\text{El}, \text{Ph}) = H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}})$  aus der entsprechenden Ereignisliste der vorsortierten Daten (Abschnitt 4.1). Wurde zuvor eine Zeit-zu-Energie Konvertierung bezüglich der Elektronenflugzeiten durchgeführt so gilt  $H_{\text{El-Ph}}(\text{El}, \text{Ph}) = H_{\text{El-Ph}}(E_{\text{El,kin}}, t_{\text{Ph}})$ . Die zweidimensionale  $N_{\text{Ph}} \times N_{\text{El}}$  Matrix  $H_{\text{El-Ph}}(\text{El-Ph})$  bezüglich der Klassenzahlen der Zeitmessung der Elektronen  $N_{\text{El}}$  und Photonen  $N_{\text{Ph}}$  (siehe Abschnitt 4.2) wird im weiteren Verlauf als Koinzidenzmatrix bezeichnet und ihre Falschfarbendarstellung als Koinzidenzkarte. Durch eine Projektion entlang der Photonenachse (Elektronenachse) lassen sich nun die eindimensionalen HDV der koinzidenten Elektronen (Photonen) erhalten (Abbildung 5.1a). Die HDV enthalten neben den echten Elektron-Photon Koinzidenzen allerdings auch zufällige Koinzidenzen, das heißt für jedes Matrixelement der Koinzidenzmatrix  $(H_{\text{El-Ph}})_{i,j}$  gilt nach 4.2.2

$$(H_{\text{El-Ph}})_{i,j} = (H_{\text{El-Ph,echt}})_{i,j} + (H_{\text{El-Ph,zuf}})_{i,j}. \quad (5.1.1)$$

Um eine sinnvolle Abschätzung der HDV der zufälligen Koinzidenzen  $H_{\text{El,zuf}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}})$  zu erhalten, wird gemäß Abschnitt 3.4 als maximales Zeitintervall, innerhalb dessen Ereignisse derselben Gruppe zugeordnet werden, zu  $t_{\text{Gruppe}} = 1600 \text{ ns}$  gewählt. Dies entspricht der doppelten Umlaufdauer eines Elektronenbunches bei BESSY II  $T_B \approx 800 \text{ ns}$ . Hierdurch ergibt sich statt der einfachen Koinzidenzmatrix in Abbildung 5.1a eine Koinzidenzmatrix wie sie in 5.1b gezeigt ist.

Diese lässt sich in vier Sektoren unterteilen, welche neben der Unterscheidung der beiden Teilchen auch eine Unterscheidung bezüglich der Detektionszeiten berücksichtigt. Hierfür wird das gesamte Zeitfenster auf Grundlage des zeitlichen Abstands zweier anregender Pulse  $T_B$  unterteilt in:

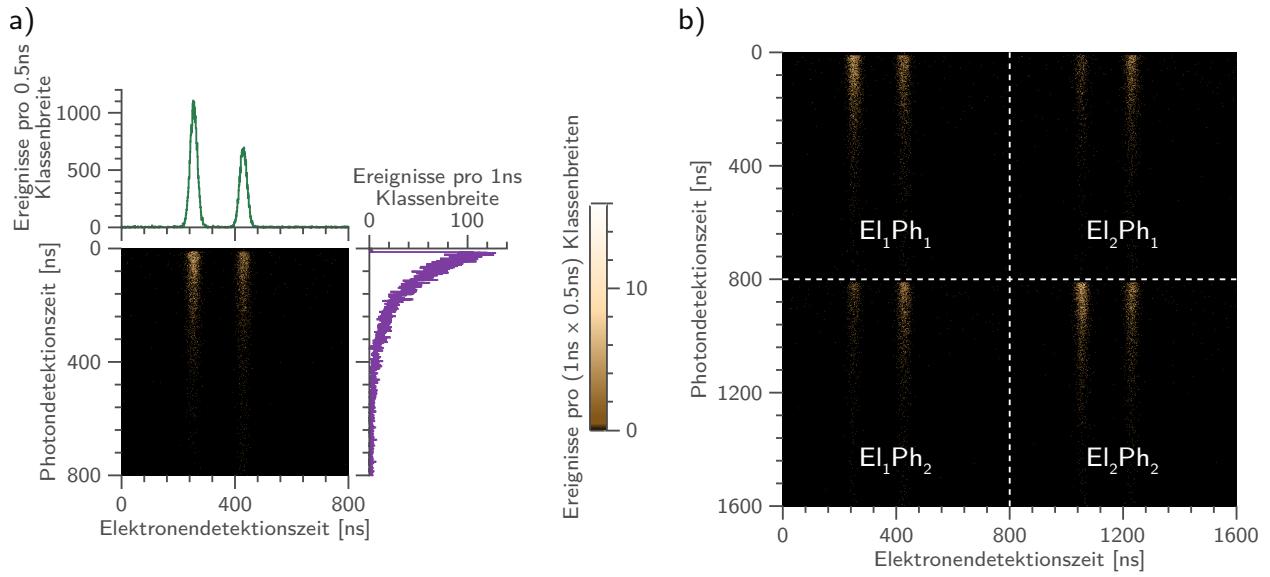
$$\begin{aligned} T_1 &= [0, T_B], \\ T_2 &= [T_B, 2 \cdot T_B]. \end{aligned} \quad (5.1.2)$$

Wird ein Elektron im Zeitintervall  $T_1$  ( $T_2$ ) gemessen, so wird dieses als El<sub>1</sub> (El<sub>2</sub>) bezeichnet. Das Entsprechende gilt für die Photonen, sodass sich insgesamt vier Sektoren in der Koinzidenzkarte ergeben, was in Abbildung 5.2b dargestellt ist.

Für die Abschätzung der Verteilung der zufälligen Koinzidenzen ist es notwendig, zwei wichtige Annahmen zu treffen:

1. Alle durch einen Anregungspuls erzeugten, freien Elektronen werden in der Zeit  $T_B$  gemessen.
2. Der Großteil der auf eine Anregung folgende Emission von Photonen findet innerhalb der Zeit  $T_B$  statt.

Punkt 1 ist experimentell für die Zeit  $T_B$  zwischen zwei anregenden Pulsen einfach zu erreichen, da durch Variation der Beschleunigungsspannungen der magnetischen Flasche die maximale Flugzeit der Elektronen passend eingestellt werden kann, siehe Abschnitt 3.3. Die zweite Annahme hingegen hängt von den Lebensdauern der angeregten Zustände ab, welche durch Photonenzerfall relaxieren. Abbildung 5.3 illustriert dies für verschiedene Werte der Lebensdauer, wobei für eine Lebensdauer  $\tau \leq 175 \text{ ns}$  maximal 1 % der Gesamtintensität nach dem zweiten Anregungspuls gemessen wird. Für diese Bedingungen wird Punkt 2 axiomatisch ebenso als erfüllt betrachtet.

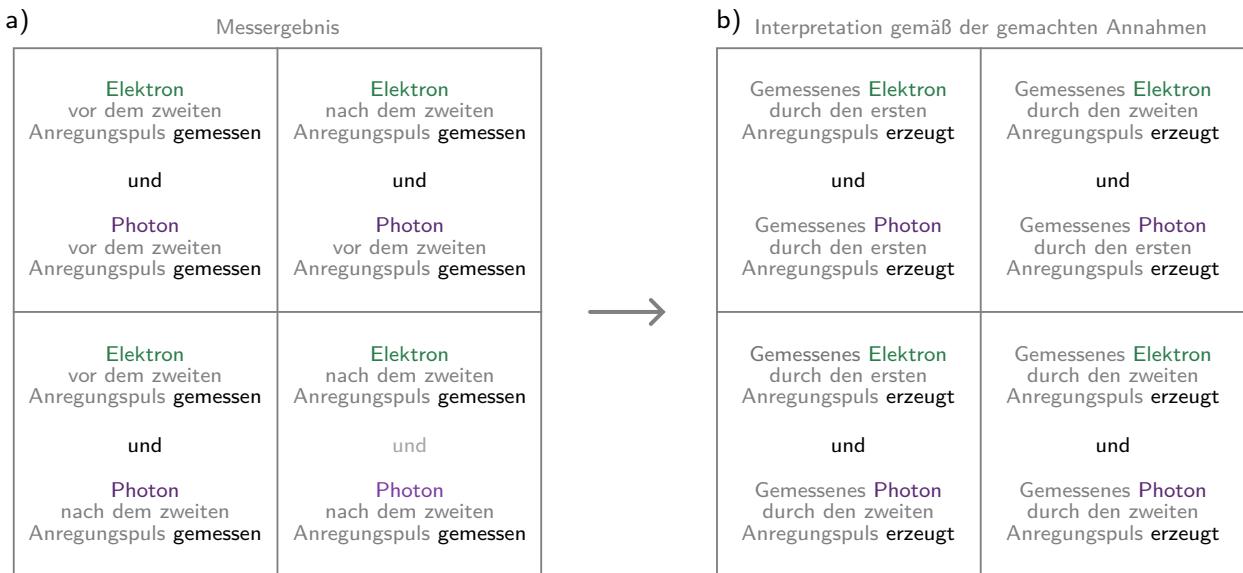


**Abbildung 5.1:** Simulierte Elektron-Photon Koinzidenzen zur Demonstration der Darstellung der zweidimensionalen HDV  $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}})$  als Koinzidenzmatrizen für a) Elektron-Photon Koinzidenzen innerhalb eines Zeitfensters von  $T_B \approx 800 \text{ ns}$  und b) Elektron-Photon Koinzidenzen innerhalb eines Zeitfenster von  $2 \cdot T_B \approx 1600 \text{ ns}$  nach einem Puls des Bunchmarkers. Die Zeit  $T_B$  entspricht der Zeit zwischen zwei Anregungspulsen im Singlebunch Betriebsmodus von BESSY II. Teilabbildung a entspricht dabei exakt El<sub>1</sub>Ph<sub>1</sub> aus Teilabbildung b.

Das Elektronenspektrum für zwei offene Elektronenemissionskanäle A und B wurde mit Hilfe zweier Gaußverteilungen erstellt, für deren zentrale Position  $t_0(\text{El}_A) = 250 \text{ ns}$ ,  $t_0(\text{El}_B) = 425 \text{ ns}$ , deren Verteilungsbreite  $FWHM(\text{El}_A) = FWHM(\text{El}_B) = 30 \text{ ns}$  und deren Verhältnis der integrierten Intensitäten  $\frac{I(\text{El}_A)}{I(\text{El}_B)} = 0,4$  gilt. Die Photonenzzeitverteilung wurde für eine Lebensdauer des oberen Zustands  $\tau = 75 \text{ ns}$  mit Hilfe von Gleichung 2.2.15 zwecks besserer Sichtbarkeit des Verlaufs in der grafischen Darstellung simuliert. Nur das Elektron A kann zu einer echten Elektron-Photon Koinzidenz führen, was durch unterschiedliche Intensitäten dieses Kanals in den verschiedenen Sektoren der Matrix b) erkennbar ist. Die Gesamtzahl der simulierten Ereignisse beträgt  $1 \cdot 10^7$  Ereignisse, von denen  $9 \cdot 10^4$  Ereignisse zu El-Ph-Koinzidenzen führen. Die Detektionswahrscheinlichkeit für die Elektronen beträgt dabei  $Q_{\text{El}} = 0,9$  und für die Photonen  $Q_{\text{Ph}} = 0,05$ . Details der Simulation sind in Anhang B zu finden.

Unter diesen Voraussetzungen lassen sich die gemessenen Ereignisse den entsprechenden Kombinationen von Anregungen zuordnen, was in Abbildung 5.2b dargestellt ist. Darüber kann dann eine mögliche Korrelation der emittierten Elektronen und Photonen abgeleitet werden. Entsprechend lässt sich auch die HDV  $H_{\text{El-Ph}}(\text{El}, \text{Ph})$  mit der Dimension  $2 \cdot N_{\text{Ph}} \times 2 \cdot N_{\text{El}}$  in vier verschiedene HDV  $H_{\text{El-Ph}}(\text{El}_i, \text{Ph}_j)$  mit Dimension  $N_{\text{Ph}} \times N_{\text{El}}$  zerlegen über

$$H_{\text{El-Ph}}(\text{El}, \text{Ph}) = \begin{pmatrix} H_{\text{El-Ph}}(\text{El}_1, \text{Ph}_1) & H_{\text{El-Ph}}(\text{El}_2, \text{Ph}_1) \\ H_{\text{El-Ph}}(\text{El}_1, \text{Ph}_2) & H_{\text{El-Ph}}(\text{El}_2, \text{Ph}_2) \end{pmatrix}. \quad (5.1.3)$$



**Abbildung 5.2:** Einteilung der Koinzidenzkarten in vier Sektoren. a) Ergebnis der Messungen.  
b) Interpretation der Ergebnisse unter Berücksichtigung der Annahme, dass die erzeugten Teilchen (zum Großteil) innerhalb des zeitlichen Abstands zweier aufeinanderfolgender Anregungen detektiert werden.

Abbildung 5.1b lässt sich daher auch als zweidimensionale Repräsentation der  $N_{\text{Ph}} \times N_{\text{El}} \times N_{\text{Kombinationen}}$  Matrix verstehen. Für das weitere Vorgehen werden nun explizit die Gleichungen 4.2.1 und 4.2.2 in der Form

$$H_{\text{El-Ph}}(\text{El}, \text{Ph}) = H_{\text{echt}}(\text{El}, \text{Ph}) + H_{\text{zuf}}(\text{El}, \text{Ph}),$$

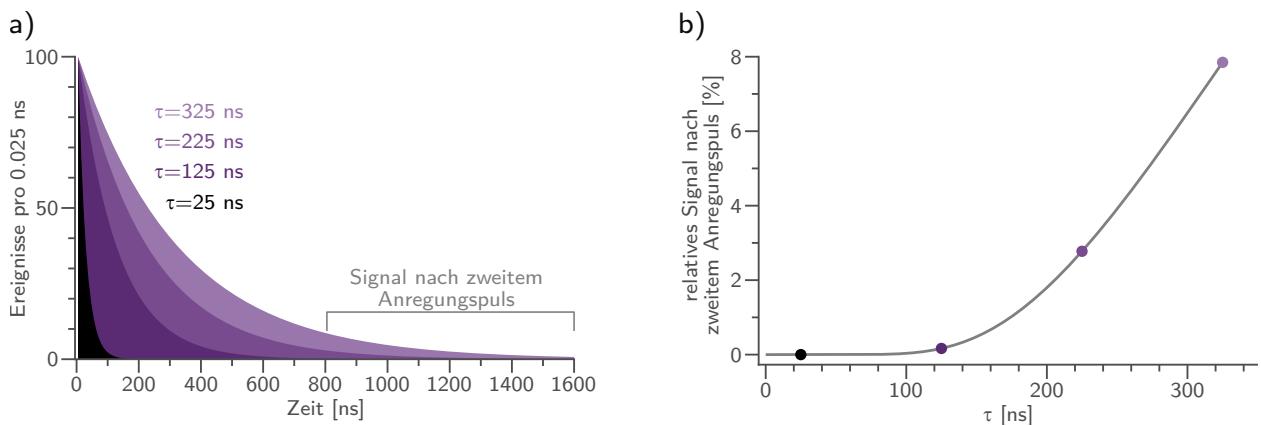
$$H_{\text{El-Ph, rel}}(\text{El}, \text{Ph}) = \frac{1}{K} H_{\text{El-Ph}}(\text{El}, \text{Ph}) \stackrel{K \gg 1}{\approx} P_{\text{El-Ph}}(\text{El}, \text{Ph})$$

ausgenutzt und auf die Wahrscheinlichkeitsdichteveverteilungen (WDV)  $P_{\text{El-Ph}}(\text{El}, \text{Ph})$  übertragen. Die WDV  $P_{\text{El-Ph}}(\text{El}, \text{Ph})$  ist hierbei die Wahrscheinlichkeit, dass ein Ereignis ( $\text{El}, \text{Ph}$ ) gemessen wird. Somit lässt sich  $P_{\text{El-Ph}}(\text{El}, \text{Ph})$  einteilen in

$$P_{\text{El-Ph}}(\text{El}, \text{Ph}) = \begin{pmatrix} P_{\text{El-Ph}}(\text{El}_1, \text{Ph}_1) & P_{\text{El-Ph}}(\text{El}_2, \text{Ph}_1) \\ P_{\text{El-Ph}}(\text{El}_1, \text{Ph}_2) & P_{\text{El-Ph}}(\text{El}_2, \text{Ph}_2) \end{pmatrix}. \quad (5.1.4)$$

Diese können ebenfalls als Matrixelemente der jeweiligen Submatrizen verstanden werden. Wahrscheinlichkeitstheoretische Aussagen der WDV  $P_{\text{El-Ph}}(\text{El}_i, \text{Ph}_j)$  lassen sich daher unter Erfüllung aller notwendigen Voraussetzungen auf die HDV  $H_{\text{El-Ph}}(\text{El}_i, \text{Ph}_j)$  übertragen. Daher werden nun zunächst die Wahrscheinlichkeiten  $P_{\text{El-Ph}}(\text{El}_i, \text{Ph}_j)$  für einen beliebigen aber festen Punkt der Submatrix  $(P_{\text{El-Ph}})_{i,j}$  bezüglich der verschiedenen Kombinationen modelliert und gleichzeitig gezeigt, dass diese Übertragungen gerechtfertigt sind.

Im nächsten Schritt werden alle Möglichkeiten betrachtet, durch welche ein Messereignis erreicht werden kann, bei dem exakt ein Elektron und exakt ein Photon gemessen werden. Somit wird auf die explizite Angabe des Index „El-Ph“ bei den WDV  $P_{\text{El-Ph}}(\text{El}_i, \text{Ph}_j)$  und HDV  $H_{\text{El-Ph}}(\text{El}_i, \text{Ph}_j)$  in den folgenden Ausführungen verzichtet. Die verschiedenen Möglichkeiten zur Detektion einer Elektron-Photon Koinzidenz



**Abbildung 5.3:** a) Zeitabhängigkeit der gemessenen Photonensintensität für verschiedene Lebensdauern. Das Maximum der Intensität ist hier bei 5,0 ns erreicht und ist für alle Verteilungen zwecks besserer Vergleichbarkeit auf denselben Wert gesetzt. b) Lebensdauerabhängigkeit des Verhältnisses der Ereignisse nach dem zweiten Anregungspuls zur Gesamtzahl der gemessenen Ereignisse. Die vier in (a) dargestellten Lebensdauern sind durch Punkte hervorgehoben.

sind in Abbildung 5.4 zusammengefasst, wobei die Wahrscheinlichkeiten für die jeweiligen Möglichkeiten angegeben sind. Die Wahrscheinlichkeiten beinhalten, abhängig von der Art des Ereignisses die Erzeugungswahrscheinlichkeiten  $Em(X)$ , die Detektionswahrscheinlichkeiten  $Q_X$  und die Wahrscheinlichkeit zum Auftreten eines Messartefakts  $MA(X)$  für  $X \in \{El, Ph\}$ .

Die hier dargestellte Einteilung folgt aus der Definition einer echten Koinzidenz (Abschnitt 2.3). Sektoren, in welchen das Elektron und das Photon durch zwei verschiedene Anregungspulse erzeugt wurden, können unter diesen Voraussetzungen keine echten Koinzidenzen enthalten.

Echte Koinzidenzen können folglich nur in den Sektoren  $(El_1, Ph_1)$  und  $(El_2, Ph_2)$  gemessen worden sein, wobei zwei Möglichkeiten zu deren Detektion bestehen. Diese sind in Abbildung 5.4 als (1) und (2) ausgezeichnet. Bei (2) handelt es sich um eine Messung zufälliger Koinzidenzen, da hier mehrere Koinzidenzergebnisse für ein Anregungsereignis stattfinden. Auf Grund der endlichen Detektionswahrscheinlichkeiten  $Q_{El}, Q_{Ph}$  werden aber nur ein Photon und ein Elektron gemessen, welche aus unterschiedlichen physikalischen Systemen stammen können. Es zeigt sich, dass der Anteil dieser zufälligen Koinzidenzen einen vernachlässigbaren Beitrag liefert. Bereits für  $N = 2$  ist das Verhältnis von (2) zu (1)

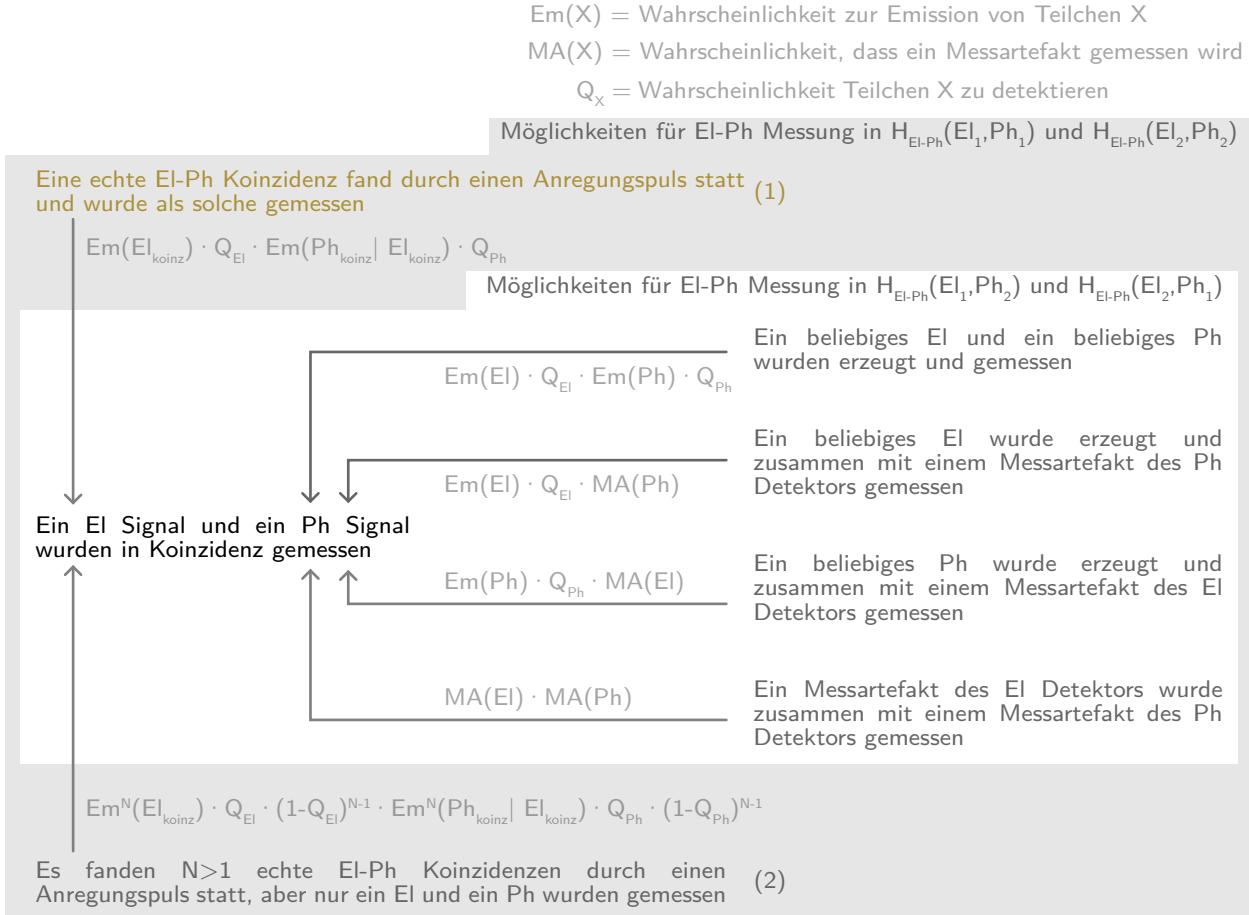
$$\frac{(2)}{(1)} = \frac{Em^2(El) \cdot Em^2(Ph|El) \cdot Q_{El} \cdot Q_{Ph} \cdot (1 - Q_{El}) \cdot (1 - Q_{Ph})}{Em(El) \cdot Em(Ph|El) \cdot Q_{El} \cdot Q_{Ph}} \quad (5.1.5)$$

$$= Em(El) \cdot Em(Ph|El) \cdot (1 - Q_{El}) \cdot (1 - Q_{Ph}). \quad (5.1.6)$$

Das Verhältnis ist folglich proportional zu der Erzeugungswahrscheinlichkeit der Koinzidenzergebnisse  $Em(El) \cdot Em(Ph|El)$  selbst, welche die gesuchte Messgröße darstellt. Eine Abschätzung der oberen Grenze gelingt mit der Wahrscheinlichkeit einer (echte oder zufällige) Elektron-Photon Koinzidenz zu messen  $P(El-Ph \text{ Koinzidenz})$  über

$$Em(El) \cdot Em(Ph|El) \cdot (1 - Q_{El}) \cdot (1 - Q_{Ph}) \leq Em(El) \cdot Em(Ph|El) \quad (5.1.7)$$

$$\leq P(El-Ph \text{ Koinzidenz}) \approx \frac{\text{Koinzidenzrate}}{\text{Rate der anregenden Pulse}}$$



**Abbildung 5.4:** Möglichkeiten zur Detektion einer Elektron-Photonen-Koinzidenz in dem gewählten Gruppenmodus des TDCs für ein Messfenster von 1600 ns, welche durch den Bunchmarker von BESSY II synchronisiert werden. Die verschiedenen Möglichkeiten sind für die einzelnen Sektoren  $(\text{El}_1, \text{Ph}_1)$ ,  $(\text{El}_1, \text{Ph}_2)$ ,  $(\text{El}_2, \text{Ph}_1)$  und  $(\text{El}_2, \text{Ph}_2)$  entsprechend aufgeschlüsselt. Die Bestimmung der Wahrscheinlichkeiten sind an den jeweiligen Pfeilen mit angegeben. Die Möglichkeiten der Detektion in  $\text{El}_1, \text{Ph}_2$  und  $\text{El}_2, \text{Ph}_1$  stellen hierbei eine echte Teilmenge der Möglichkeiten in  $(\text{El}_1, \text{Ph}_1)$  und  $(\text{El}_2, \text{Ph}_2)$  dar.

Die Rate der anregenden Pulse im SB Modus von BESSY II beträgt 1,25 MHz, sodass dieses Verhältnis bei Koinzidenzraten von wenigen hundert Ereignissen pro Sekunde sehr viel kleiner als 1 ist. Dies gilt entsprechend auch für den Ausdruck in Gleichung 5.1.6. Formal korrekter lassen sich die Ionisationsprozesse und damit verbunden die Elektron-Photonen-Koinzidenzen wegen der geringen Ereigniswahrscheinlichkeiten pro Anregungspuls über Poisson-Verteilungen beschreiben. Da die dort eingehenden Erwartungswerte aber nicht als bekannt vorausgesetzt werden können, ist die hier gezeigte Anschätzung als erste Näherung sinnvoll.

Die vier Möglichkeiten zur Detektion einer zufälligen Koinzidenz auf der rechten Seite in Abbildung 5.4 beschreiben die weiteren Möglichkeiten zur Detektion einer zufälligen Koinzidenz. Während diese einen endlichen Beitrag zu  $P(\text{El}_1, \text{Ph}_1)$  und  $P(\text{El}_2, \text{Ph}_2)$  liefern, sind es für  $P(\text{El}_1, \text{Ph}_2)$  und  $P(\text{El}_2, \text{Ph}_1)$  die einzigen Möglichkeiten in diesen Sektoren eine Elektron-Photon Koinzidenz zu messen. Das Ziel ist es daher den Beitrag der zufälligen Koinzidenzen in den Sektoren  $\text{El}_1, \text{Ph}_1$  und  $\text{El}_2, \text{Ph}_2$  zu den Wahrscheinlichkeitsverteilungen  $P(\text{El}_1, \text{Ph}_1)$ ,  $P(\text{El}_2, \text{Ph}_2)$  mit Hilfe der Wahrscheinlichkeitsverteilungen  $P(\text{El}_1, \text{Ph}_2)$ ,  $P(\text{El}_2, \text{Ph}_1)$  zu modellieren. Es lässt sich davon ausgehen, dass die Detektionswahrscheinlichkeiten  $Q_{\text{El}}$ ,  $Q_{\text{Ph}}$  sowie die Wahrscheinlichkeiten zur Detektion eines Messartefakt  $\text{MA}(\text{El})$ ,  $\text{MA}(\text{Ph})$  unter regulären experimentellen Bedingungen zeitlich unabhängig sein werden. Entsprechend gilt

$$\begin{aligned} Q_{\text{El}}(\text{El}_1) &= Q_{\text{El}}(\text{El}_2) := Q_{\text{El}}, \\ Q_{\text{Ph}}(\text{Ph}_1) &= Q_{\text{Ph}}(\text{Ph}_2) := Q_{\text{Ph}}, \\ \text{MA}(\text{El}_1) &= \text{MA}(\text{El}_2) := \text{MA}(\text{El}), \\ \text{MA}(\text{Ph}_1) &= \text{MA}(\text{Ph}_2) := \text{MA}(\text{Ph}). \end{aligned} \quad (5.1.8)$$

Die Wahrscheinlichkeit zur Erzeugung eines freien Elektrons  $\text{Em}(\text{El})$  und die Wahrscheinlichkeit zur Emission eines Photons  $\text{Em}(\text{Ph})$  sind abhängig von der Zahl der anregenden Photonen und damit der Intensität der Synchrotronstrahlung. Im Folgenden wird daher kurz dieser Einfluss diskutiert. Hierfür reicht es aus, die Abhängigkeit zur Erzeugung der Teilchen von der Intensitätsverteilung der anregenden Synchrotronstrahlung des  $k$ -ten Pulses  $I^{\text{Anregung}}(t, k)$  mit der Photonenzahl  $n(k)$  und der zeitlichen Verteilungsfunktion  $u(t, k)$  zu betrachten. Diese lässt sich formal über die Bunchlänge  $t_{\text{Bunch}}$ , die Anfangszahl der Photonen  $N_0$  und die Lebensdauer des Bunches  $\tau_{\text{Bunch}}$  in dem Synchrotron ausdrücken. Zusammen mit der Zahl der seit der letzten Injektion der Elektronen vergangenen Perioden  $k_0$  und der zuvor definierten Periodendauer  $T_B = 800 \text{ ns}$  gilt dann

$$\begin{aligned} I^{\text{Anregung}}(t, k) &= n(k) \cdot u(t, k), \\ \int_{-\frac{t_{\text{Bunch}}}{2}}^{\frac{t_{\text{Bunch}}}{2}} u(t, k) dt &= 1, \quad n(k) = N_0 \cdot \exp\left(-\frac{k \cdot T_B + k_0}{\tau_{\text{Bunch}}}\right). \end{aligned} \quad (5.1.9)$$

Für eine einzige Elektron-Photon Koinzidenz werden zwei Anregungspulse  $k, k+1$  betrachtet, sodass sich die Zahl der Photonen  $n(k), n(k+1)$  für ausreichend große  $\tau_{\text{Bunch}} \gg T_B$  kaum unterscheiden. Außerdem lässt sich davon ausgehen, dass  $u(t, k) \approx u(t, k+1)$  gilt. Damit folgt mit den Definitionen der Zeitintervalle der Messung

$$I_1^{\text{Anregung}} = I^{\text{Anregung}}(t, k) \approx I^{\text{Anregung}}(t + T_B, k+1) = I_2^{\text{Anregung}}. \quad (5.1.10)$$

Da in Abbildung 5.2 eine direkte Korrelation zwischen den gemessenen Teilchen und den anregenden Pulsen erstellt wurde, lassen sich die Emissionswahrscheinlichkeiten als bedingte Wahrscheinlichkeiten auffassen. Dies bedeutet

$$\begin{aligned} \text{Em}(\text{El}_i) &= \text{Em}(\text{El}|I = I_i^{\text{Anregung}}), \\ \text{Em}(\text{Ph}_i) &= \text{Em}(\text{Ph}|I = I_i^{\text{Anregung}}). \end{aligned} \quad (5.1.11)$$

Dies führt wegen Gleichung 5.1.10 direkt zu

$$\begin{aligned} \text{Em}(\text{El}_1) &= \text{Em}(\text{El}|I = I_1^{\text{Anregung}}) \approx \text{Em}(\text{El}|I = I_2^{\text{Anregung}}) = \text{Em}(\text{El}_2), \\ \text{Em}(\text{Ph}_1) &= \text{Em}(\text{Ph}|I = I_1^{\text{Anregung}}) \approx \text{Em}(\text{Ph}|I = I_2^{\text{Anregung}}) = \text{Em}(\text{Ph}_2). \end{aligned} \quad (5.1.12)$$

Die Wahrscheinlichkeit einer statistisch unabhängigen, zufällige Koinzidenz in einem beliebigen Sektor  $P_{\text{zuf}}^{\text{unab}}(\text{El}_i, \text{Ph}_j)$  zu finden ergibt sich als Summe der vier Beiträge aus Abbildung 5.4 zusammen mit Gleichung 5.1.8 zu

$$\begin{aligned} P_{\text{zuf}}^{\text{unab}}(\text{El}_i, \text{Ph}_j) &= \text{Em}(\text{El}_i) \cdot Q_{\text{El}} \cdot \text{Em}(\text{Ph}_j) \cdot Q_{\text{Ph}} \\ &\quad + \text{Em}(\text{El}_i) \cdot Q_{\text{El}} \cdot \text{MA}(\text{Ph}) + \text{Em}(\text{Ph}_j) \cdot Q_{\text{Ph}} \cdot \text{MA}(\text{El}) + \text{MA}(\text{El}) \cdot \text{MA}(\text{Ph}). \end{aligned} \quad (5.1.13)$$

Wegen 5.1.12 gilt damit die wichtige Approximation

$$P_{\text{zuf}}^{\text{unab}}(\text{El}_1, \text{Ph}_1) \approx P_{\text{zuf}}^{\text{unab}}(\text{El}_1, \text{Ph}_2) \approx P_{\text{zuf}}^{\text{unab}}(\text{El}_2, \text{Ph}_1) \approx P_{\text{zuf}}^{\text{unab}}(\text{El}_2, \text{Ph}_2). \quad (5.1.14)$$

Durch analoge Überlegungen gilt mit der Definition der bedingten Wahrscheinlichkeit 4.2.3 auch für die Wahrscheinlichkeiten einer echten Koinzidenz zu detektieren

$$P_{\text{echt}}(\text{El}_1, \text{Ph}_1) = \text{Em}(\text{El}_1) \cdot Q_{\text{El}} \cdot \text{Em}(\text{Ph}_1|\text{El}_1) \cdot Q_{\text{Ph}} \quad (5.1.15)$$

$$\approx \text{Em}(\text{El}_2) \cdot Q_{\text{El}} \cdot \text{Em}(\text{Ph}_2|\text{El}_2) \cdot Q_{\text{Ph}} = P_{\text{echt}}(\text{El}_2, \text{Ph}_2). \quad (5.1.16)$$

Die Wahrscheinlichkeiten einer Elektron-Photon Koinzidenz in den jeweiligen Sektoren zu messen lässt sich daher ausdrücken über

$$\begin{aligned} P(\text{El}_1, \text{Ph}_1) &= P_{\text{echt}}(\text{El}_1, \text{Ph}_1) + P_{\text{zuf}}^{\text{unab}}(\text{El}_1, \text{Ph}_1) + O(\text{El}_1, \text{Ph}_1) \\ &\approx P_{\text{echt}}(\text{El}_1, \text{Ph}_1) + P_{\text{zuf}}^{\text{unab}}(\text{El}_1, \text{Ph}_2) + O(\text{El}_1, \text{Ph}_1), \end{aligned} \quad (5.1.17)$$

$$P(\text{El}_1, \text{Ph}_2) = P_{\text{zuf}}^{\text{unab}}(\text{El}_1, \text{Ph}_2), \quad (5.1.18)$$

$$P(\text{El}_2, \text{Ph}_1) = P_{\text{zuf}}^{\text{unab}}(\text{El}_2, \text{Ph}_1), \quad (5.1.19)$$

$$\begin{aligned} P(\text{El}_2, \text{Ph}_2) &= P_{\text{echt}}(\text{El}_2, \text{Ph}_2) + P_{\text{zuf}}^{\text{unab}}(\text{El}_2, \text{Ph}_2) + O(\text{El}_2, \text{Ph}_2) \\ &\approx P_{\text{echt}}(\text{El}_2, \text{Ph}_2) + P_{\text{zuf}}^{\text{unab}}(\text{El}_2, \text{Ph}_1) + O(\text{El}_2, \text{Ph}_2). \end{aligned} \quad (5.1.20)$$

$O(\text{El}_1, \text{Ph}_1)$  und  $O(\text{El}_2, \text{Ph}_2)$  bezeichnen den durch dieses Modell nicht berücksichtigten Fehler aufgrund der Möglichkeit, dass mehr als ein koinzidenter Prozess durch den anregenden Puls induziert wurde, aber jeweils nur ein Elektron und Photon gemessen wurden. Wie an der Abschätzung über Gleichung 5.1.7 zu sehen, ist dieser Beitrag bei den vorliegenden experimentellen Bedingungen aber sehr gering. Für den Übergang von den WDV einer beliebigen Elektron-Photon Koinzidenz zu den gemessenen HDV ist es notwendig, noch einmal die Definition der Intensität der anregenden Photonen zu betrachten. Wegen  $\tau_{\text{Bunch}} \gg t_0$  gilt  $n(k+1) \approx n(k)$  für ein beliebiges  $k_0$  (Gleichung 5.1.9). Dies bedeutet insbesondere, dass die Zahl der Photonen bei dem Umlauf  $k$  einen vernachlässigbaren Einfluss auf die Wahrscheinlichkeiten hat, das Teilchen in Bunch  $k$  oder  $k+1$  zu messen, sondern nur darauf überhaupt ein Teilchen während einer dieser Perioden zu messen. Somit gelten die hier gemachten Überlegungen sowohl im TopUp Modus als auch im Decay Modus der Synchrotronstrahlungsanlage.

Wichtiger ist die Annahme, dass auch die Intensitätsverteilung  $u(t, k)$  möglichst unabhängig von  $k$  ist, da die erhaltene WDV eine Faltung aus der tatsächlichen WDV mit  $u(t, k)$  sowie der jeweiligen Detektorfunktion darstellt. Nur unter dieser Voraussetzung lassen sich die gemessenen HDV als Ergebnis einer  $K$ -fachen Durchführung des Experiments mit den WDV gemäß Gleichungen 5.1.17 bis 5.1.20 ansehen. Die gemessenen HDV lassen sich dann beschreiben als

$$\begin{aligned} H(\text{El}_1, \text{Ph}_1) &= H_{\text{echt}}(\text{El}_1, \text{Ph}_1) + H_{\text{zuf}}^{\text{unab}}(\text{El}_1, \text{Ph}_1) + O(\text{El}_1, \text{Ph}_1) \\ &\approx H_{\text{echt}}(\text{El}_1, \text{Ph}_1) + H_{\text{zuf}}^{\text{unab}}(\text{El}_1, \text{Ph}_2) + O(\text{El}_1, \text{Ph}_1), \end{aligned} \quad (5.1.21)$$

$$H(\text{El}_1, \text{Ph}_2) = H_{\text{zuf}}^{\text{unab}}(\text{El}_1, \text{Ph}_2), \quad (5.1.22)$$

$$H(\text{El}_2, \text{Ph}_1) = H_{\text{zuf}}^{\text{unab}}(\text{El}_2, \text{Ph}_1), \quad (5.1.23)$$

$$\begin{aligned} H(\text{El}_2, \text{Ph}_2) &= H_{\text{echt}}(\text{El}_2, \text{Ph}_2) + H_{\text{zuf}}^{\text{unab}}(\text{El}_2, \text{Ph}_2) + O(\text{El}_2, \text{Ph}_2) \\ &\approx H_{\text{echt}}(\text{El}_2, \text{Ph}_2) + H_{\text{zuf}}^{\text{unab}}(\text{El}_2, \text{Ph}_1) + O(\text{El}_2, \text{Ph}_2). \end{aligned} \quad (5.1.24)$$

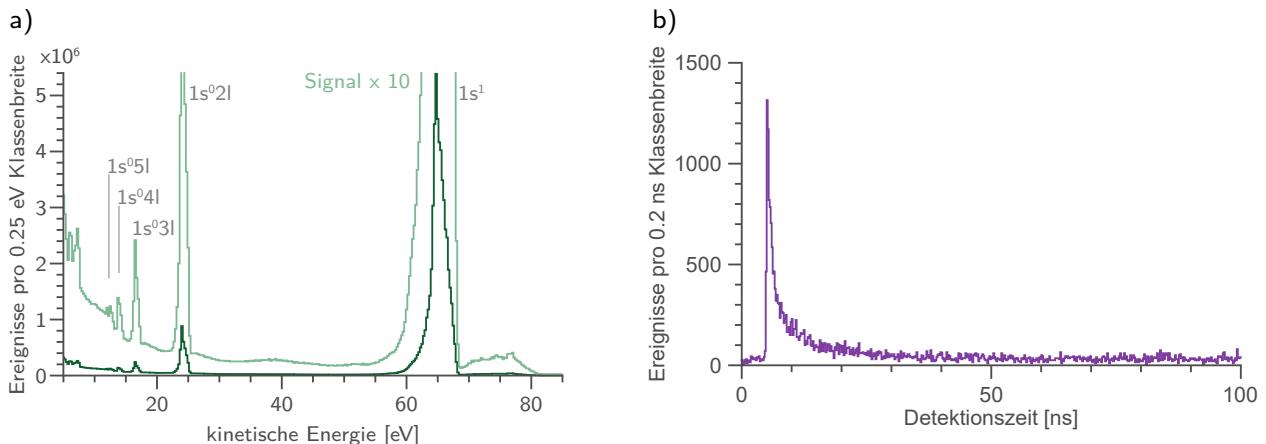
Die Matrixelemente der HDV der echten Elektron-Photon Koinzidenzen  $(H_{\text{echt}})_{i,j}$  lassen sich demnach aus den gemessenen HDV der verschiedenen Kombinationsmöglichkeiten 5.1.21 bis 5.1.24 im Rahmen der vorgestellten Annahmen bestimmen, wobei diese die Reste  $O(\text{El}_1, \text{Ph}_1)$  und  $O(\text{El}_2, \text{Ph}_2)$  als (vernachlässigbare) Fehler enthalten. Dies geschieht über

$$(H_{\text{echt}})_{i,j} \approx H_{i,j}(\text{El}_1, \text{Ph}_1) + H_{i,j}(\text{El}_2, \text{Ph}_2) - [H_{i,j}(\text{El}_1, \text{Ph}_2) + H_{i,j}(\text{El}_2, \text{Ph}_1)] \quad (5.1.25)$$

und wird in diesem Kapitel zur Bestimmung der echten Koinzidenzen genutzt. Diese wird ebenfalls in Kapitel 6 zum Vergleich mit der dort vorgestellten Methode verwendet und dort als Sufficient Temporal Distance (SuTeD) Methode bezeichnet, da diese nur für einen ausreichend großen zeitlichen Abstand der Anregungen verwendet werden kann.

## 5.2 Diskussion der Ergebnisse

Als erstes zu untersuchendes System wurde atomares Helium gewählt, da es sich hier mit zwei Elektronen in der Elektronenhülle um das einfachst mögliche System handelt, bei dem die Emission eines Elektrons koinzident mit der Emission eines Photons des ionisierten Systems gemessen werden kann. Zusätzlich ist dieses System auf Grund dieser Prototypeigenschaften bereits in einer Vielzahl von Studien untersucht worden (unter anderem in [97, 98, 154–159] sowie [96] und Referenzen darin). Diese können für einen Vergleich und eine Interpretation der erhaltenen Messergebnisse genutzt werden.

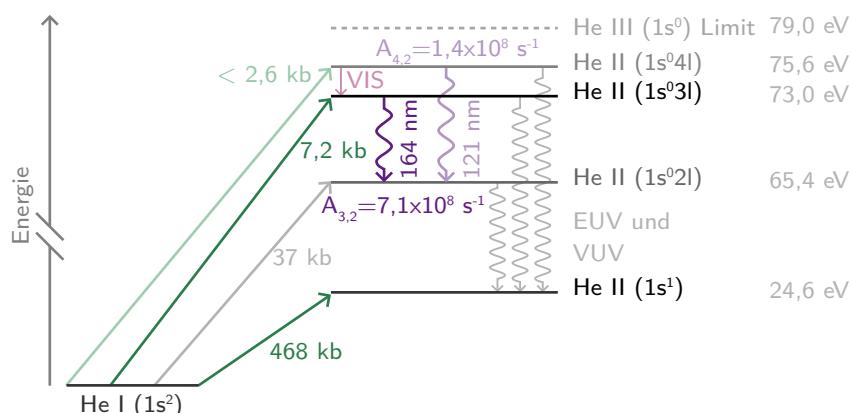


**Abbildung 5.5:** Über zwei Anregungspulse summiertes, gemessenes Elektronenspektrum ohne Beschleunigungsspannung ( $U_1 = U_2 = 0 \text{ V}$ ) (a) und Photonenzzeitverteilung (b) nach der Anregung von atomarem He mit 90 eV Photonen. Die Hauptlinie sowie Satellitenlinien in dem Elektronenspektrum sind bis  $n = 5$  ausgezeichnet.

Für die Anregung wurden Photonen mit einer anregenden Photonenenergie von  $h\nu = 90 \text{ eV}$  verwendet, welche von dem Strahlrohr U49-2 PGM1 der Synchrotronstrahlungsanlage BESSY II in Berlin (HZB) zur Verfügung gestellt wurden [160]. Durch eine verwendete Größe des Austrittspalts von  $50 \mu\text{m}$  beträgt die Bandbreite der anregenden Photonen in den gezeigten Messungen  $9,0 \text{ meV}$ .

Der dominante Prozess ist die direkte Photoionisation eines He 1s Elektrons [97, 154, 155] gemäß  $\text{He}(1s^2) + h\nu \rightarrow \text{He}^+(1s^1) + e^-$ . Dieser wird von mehreren Satellitenlinien begleitet, welche aus der simultanen Emission eines Elektrons und der Anregung des zweiten Elektrons resultieren. In den gemessenen nicht koinzidenten Elektronenspektren lassen sich diese in einer vergrößerten Ansicht bis zu einer Hauptquantenzahl des angeregten Elektrons von  $n = 5$  durch Vergleich mit hochauflösten Elektronenspektren [98, 156] auszeichnen (vergleiche Abbildung 5.5a). Die Konvertierung der kinetischen Energien erfolgte ereignisbasiert mit Hilfe einer Konvertierungstabelle, welche mit Hilfe von der Photonenenergie abhängigen Messungen der 2p-Photoionisation von atomarem Argon [147] erzeugt wurde. Die grafische Darstellung der zugehörigen Konvertierung befindet sich in Anhang A. Sowohl für das Elektronenspektrum der nicht koinzidenten Elektronen als auch für die in Abbildung 5.5b gezeigte Zeitverteilung der nicht koinzidenten Photonen wurde das Signal für die beiden aufeinanderfolgenden Anregungspulse aufsummiert.

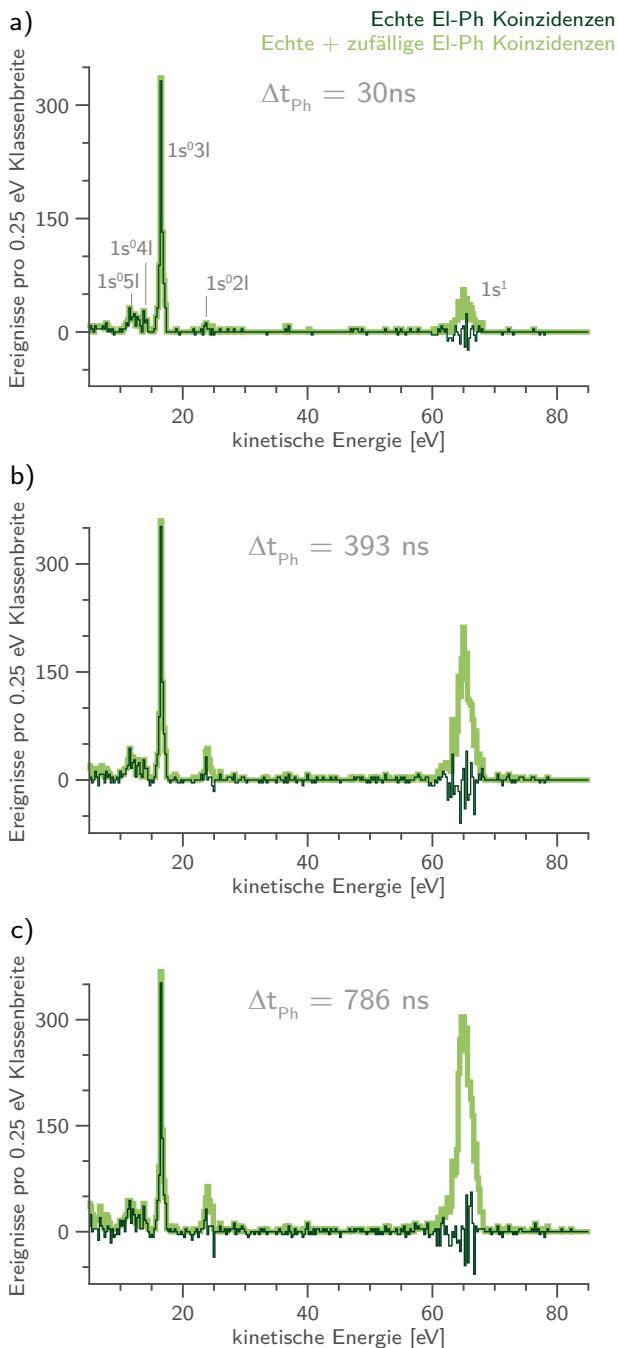
Für die Betrachtung der Anregung und Relaxation von Helium im Rahmen der Elektron-Photon Koinzidenzmessung sind die relevanten Zustände in Abbildung 5.6 grafisch zusammengefasst. Die partikulären Wechselwirkungsquerschnitte der verschiedenen Zustände sind [155] entnommen. Der Photonen-detektor verwendet eine CsTe Photokathode zur Erzeugung freier Elektronen durch die auftreffenden Photonen. Diese ist auf ein  $\text{MgF}_2$  Fenster aufgedampft, wodurch der Detektor nur für Photonen in einem Wellenlängenbereich von  $\lambda \sim 115 \text{ nm}$  bis  $\lambda \sim 310 \text{ nm}$  sensitiv ist, was einem Energiebereich von  $\sim 4,1 \text{ eV}$  bis  $\sim 10,8 \text{ eV}$  entspricht. Nach [161] sind für HeII in diesem Bereich die Übergänge  $n = 4 \rightarrow n = 2 (\lambda = 121,51 \text{ nm})$ ,  $n = 3 \rightarrow n = 2 (\lambda = 164,04 \text{ nm})$  und  $n = 6 \rightarrow n = 3 (\lambda = 273,41 \text{ nm})$  beobachtbar. Von diesen werden auf Grundlage der relativen Intensitäten der Strukturen, welche sich in dem nicht koinzidenten Elektronenspektrum erkennen lassen, nur die Übergänge  $n = 4 \rightarrow n = 2$  und  $n = 3 \rightarrow n = 2$  einen Beitrag zu den auftretenden Elektron-Photon Koinzidenzen liefern, da die Ausbeute des  $n = 6 \rightarrow n = 3$  Übergangs zu gering ist. Für diese wurden die Einstein-Koeffizienten der über die verschiedenen  $I$ -Unterniveaus gemittelten Werte der spontanen Emission aus [158] übernommen.



**Abbildung 5.6:** Schematische Darstellung der für die Diskussion notwendigen Zustände von atomarem Helium sowie der relevanten Übergänge. Die Schwellenenergien für die Anregung der jeweiligen ionischen Zustände sind in der rechten Spalte angegeben. Die Wirkungsquerschnitte  $\sigma_n$  der unter Emission eines Elektrons erreichbaren Zustände für eine anregende Photonenenergie von 90 eV sind [155] entnommen. Die Einstein-Koeffizienten der spontanen Emission  $A_{n_2 n_1}$  ( $n_2 \leq 5$ ) der mit dem Detektor beobachtbaren, strahlenden Übergänge wurden aus [158] übernommen.

Abbildung 5.7a zeigt das Spektrum der Elektronen, welche in Koinzidenz mit einem Photon gemessen wurden, sowie das Elektronenspektrum nach Abzug der zufälligen Koinzidenzen gemäß der in Abschnitt 5.1 vorgestellten Methode. In der Tat ist die  $n = 3$  Satellitenlinie des Elektronenspektrums die stärkste zu beobachtende Struktur und nur ein geringer Beitrag der echten koinzidenten Elektronen entfällt auf die  $n = 4$  und  $n = 5$  Satellitenlinien. Eine mögliche Erklärung für den Beitrag der  $n = 5$  Satellitenlinie sind kaskadierende Prozesse, bei welchen zunächst ein strahlender Übergang von  $n = 5 \rightarrow n = 3$ , (320,4 nm) stattfindet. Dieser relaxiert anschließend weiter und emittiert so ein detektierbares Photon.

Nach Abbildung 5.5b resultiert das echte Photonsignal aus Detektionsereignissen innerhalb eines kurzen Zeitfensters nach der Anregung. Daher wurden in Abbildung 5.7a nur die Elektronen berücksichtigt, welche mit Photonen in Koinzidenz gemessen wurden, die in einem Zeitfenster von 30 ns nach den jeweiligen Anregungspulsen detektiert wurden. Hier zeigt das Spektrum der insgesamt für  $(\text{El}_1, \text{Ph}_1)$  und



**Abbildung 5.7:** Gemessene Elektron-Photon Koinzidenzen vor und nach Abzug der zufälligen Koinzidenzen nach der Anregung von atomarem Helium mit einer anregenden Photonenenergie von  $h\nu = 90 \text{ eV}$  für eine Messdauer von 373 s. Das Zeitfenster  $\Delta t_{\text{ph}}$  der erlaubten Detektionszeiten der Photonen wurde von 30 ns (a) über die halbe Länge des zweiten gemessenen Bunches (b) zur vollen Länge des zweiten gemessenen Bunches (c) variiert. Die Abweichung von  $\Delta t_{\text{ph}}$  und  $T_B = 800 \text{ ns}$  resultiert aus der zeitlichen Verzögerung zwischen der gemessenen Zeit des Bunchmarkers und der Anregung.

(El<sub>2</sub>, Ph<sub>2</sub>) gemessenen koinzidenten Elektronen einen geringen Beitrag der Hauptphotoionisationslinie, welche nach Abzug der zufälligen Koinzidenzen verschwindet. Eine Vergrößerung des für die Photonen zugelassenen Zeitbereichs in 5.7b und 5.7c und führt zu keinem Gewinn der echten Koinzidenzen sondern nur der zufälligen Koinzidenzen. Diese lassen sich zwar durch die genutzte Methode zum Abzug der zufälligen Koinzidenzen fast vollständig entfernen, führen aber zu einer Vergrößerung der statistischen Unsicherheit, welcher sich vor allem im Bereich der 1s<sup>1</sup> Linie durch negative Intensitäten zeigt.

Eine genauere Analyse der gemessenen Photonen detektionszeiten der He II  $n = 3$  Satellitenlinie in [157] zeigt, dass sich die Lebensdauern der verschiedenen  $l$ -Unterniveaus ausreichend stark unterscheiden, um bei Elektron-Photon Koinzidenzmessungen als Filter fungieren zu können. Hierfür ist die Statistik der vorliegenden Messung mit  $N_{\text{El-Ph},M} = 176$  Ereignissen des  $n = 3$  Satelliten, aufsummiert über die gesamte Breite der Struktur, bei einer Datenakkumulationszeit von 373 s allerdings zu gering. Die entsprechende Koinzidenzrate beträgt  $\approx 0,5 \text{ Hz}$ , während sich die Rate der nicht koinzidenten Elektronen für die  $n = 3$  Satellitenlinie zu  $\approx 364 \text{ Hz}$  ergibt, was  $N_{\text{El},M} = 136\,000$  Ereignissen entspricht.

Mit Hilfe dieser Werte ist es aber möglich, eine erste Abschätzung für den effektiven Raumwinkel des verwendeten Spiegelsystems zu bestimmen. Hierfür ist es notwendig, eine Abschätzung für den Anteil der zu der  $n = 3$  Satellitenlinie beitragenden Elektronen zu bestimmen, bei deren Relaxation ein durch den Detektor messbares Photon emittiert wird. Diese können folglich zu den Elektron-Photon Koinzidenzen beitragen. Theoretische Rechnungen [159] zeigen, dass sich  $n_{\text{rel}}(3s) = 51,6\%$  aller Elektronen in dem 3s Unterniveau,  $n_{\text{rel}}(3p) = 47,3\%$  in dem 3p Unterniveau und  $n_{\text{rel}}(3d) = 1,1\%$  in dem 3d Unterniveau befinden. Für das 3p Unterniveau muss zusätzlich das Verzweigungsverhältnis  $B$  bezüglich der Relaxation in einen 2s und

einen 1s Zustand berücksichtigt werden, welches nach [157]  $B(3p \rightarrow 2s) = \frac{3p \rightarrow 2s}{3p \rightarrow 1s} = 12\%$  beträgt. Um die Gültigkeit der angegebenen relativen Zustandspopulationen zu prüfen, werden die relativen Beiträge der Emission der  $l$ -Unterniveaus zu der gesamten zu erwartenden Photonemission bestimmt. Neben den Populationszahlen werden dazu die zugehörigen Einsteinkoeffizienten  $A_{3s2p} = 1,01 \cdot 10^8$  Hz,  $A_{3p2s} = 3,59 \cdot 10^8$  Hz und  $A_{3d2p} = 10,34 \cdot 10^8$  Hz der jeweiligen Photonemissionskanäle aus [158] genutzt. Die aus diesen Werten zu erwartende HDV der Photonendetektionszeit wird mit der gemessenen HDV der Detektionszeit der nicht koinzidenten Photonen in Abbildung 5.8 verglichen. Auf Grund der genutzten Klassenbreite lassen sich die Lebensdauern  $\tau(3p \rightarrow 2s) = 0,3$  ns und  $\tau(3d \rightarrow 2p) = 0,9$  ns nicht unterscheiden, sodass deren gemeinsamer zu erwartender Beitrag als Gewichtungsfaktor eingeht. Das Photonensignal lässt sich in diesem Fall als Summe von zwei exponentiellen Zerfällen modellieren. Für die in Abbildung 5.8 genutzten Intensitätsverhältnisse gilt

$$\begin{aligned} I_{\text{rel}}(3p \rightarrow 2s + 3d \rightarrow 2p) &= \frac{A_{3l2s} \cdot n_{\text{rel}}(3p) \cdot B(3p \rightarrow 2s) + A_{3d2p} \cdot n_{\text{rel}}(3d)}{A_{3l2s} \cdot n_{\text{rel}}(3p) \cdot B(3p \rightarrow 2s) + A_{3d2p} \cdot n_{\text{rel}}(3d) + A_{3s2p} \cdot n_{\text{rel}}(3s)} \\ &= 37,7\% \\ I_{\text{rel}}(3s \rightarrow 2p) &= \frac{A_{3s2p} \cdot n_{\text{rel}}(3s)}{A_{3l2s} \cdot n_{\text{rel}}(3p) \cdot B(3p \rightarrow 2s) + A_{3d2p} \cdot n_{\text{rel}}(3d) + A_{3s2p} \cdot n_{\text{rel}}(3s)} \\ &= 62,3\%. \end{aligned} \quad (5.2.1)$$

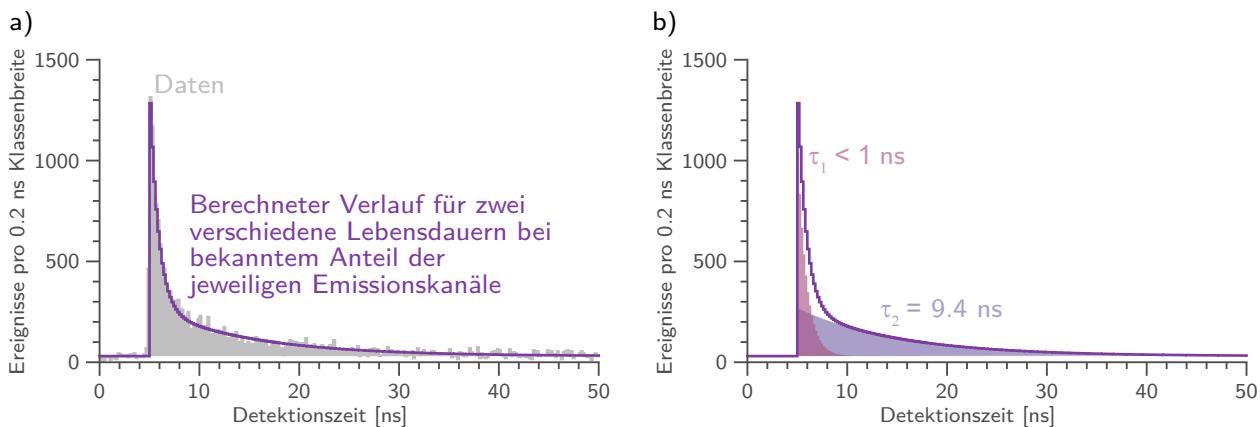
Der sich aus diesen Gewichtungsfaktoren ergebende Verlauf zeigt eine gute Übereinstimmung mit den gemessenen Photonendetektionszeiten, sodass die zu Grunde liegenden relativen Populationszahlen aus [159] für eine Abschätzung der zu erwartenden Elektron-Photon Koinzidenzen genutzt werden können. Die bedingte Wahrscheinlichkeit, dass ein detektierbares Photon nach  $n = 3$  Satellitenanregung emittiert wird, ergibt sich zu

$$P(n = 3 \rightarrow n = 2 | n = 3) = n_{\text{rel}}(3d) + n_{\text{rel}}(3s) + n_{\text{rel}}(3p) \cdot B(3p \rightarrow 2s) \approx 58,4\%. \quad (5.2.2)$$

Da die Gesamtzahl der detektierten Ereignisse in der Messung im Bereich von  $20 \cdot 10^6$  Ereignisse liegt, wird davon ausgegangen, dass die gemessenen HDV sich ausreichend gut den zu Grunde liegen Wahrscheinlichkeitsverteilungen gemäß Gleichung 4.2.1 angenähert haben. Für das Verhältnis der gemessenen Ereignisse für den  $n = 3$  Satelliten des in Koinzidenz mit einem Photon gemessenen Elektronenspektrums  $N_{\text{EI-Ph}}(n = 3)$  zu den nicht koinzidenten Elektronenspektrums  $N_{\text{EI}}(n = 3)$  gilt

$$\begin{aligned} \frac{N_{\text{EI-Ph}}(n = 3)}{N_{\text{EI}}(n = 3)} &\approx \frac{P(n = 3 \rightarrow n = 2 | n = 3) \cdot Q_{\text{Ph}} \cdot P(\text{EI} \in n = 3) \cdot Q_{\text{EI}}}{P(\text{EI} \in n = 3) \cdot Q_{\text{EI}}} \\ &= P(n = 3 \rightarrow n = 2 | n = 3) \cdot Q_{\text{Ph}}. \end{aligned} \quad (5.2.3)$$

Dabei werden die in Abbildung 5.4 definierten Wahrscheinlichkeiten für die Detektion der Elektronen  $Q_{\text{EI}}$  und Photonen  $Q_{\text{Ph}}$  und die Wahrscheinlichkeit der Anregung eines  $n = 3$  Satelliten  $P(\text{EI} \in n = 3)$  genutzt. Die Detektionswahrscheinlichkeit der Photonen  $Q_{\text{Ph}}$  ist das Produkt aus der wellenlängenabhängigen Quanteneffizienz des Photonendetektors  $Q_{\text{Ph,det}}(\lambda)$ , dem abgedeckten Raumwinkel  $d\Omega_{\text{Ph}}$  und der Reflektivität des verwendeten Spiegels  $R_{\text{Sp}}(\lambda, \Phi)$ .  $\Phi$  bezeichnet den Winkel zwischen Oberfläche und der Photonentrajektorie. Zwar zeigen spiegelnde Oberflächen aus reinem Aluminium in dem untersuchten Wellenlängenbereich sehr gute Reflektivitäten oberhalb von 90 %, jedoch sinken diese stark durch die Oberflächenoxidation der unbehandelten Spiegeloberflächen [162–166]. So reduziert sich nach [165]



**Abbildung 5.8:** a) Gemessene Detektionszeitverteilung der detektierten Photonen (grau) und theoretischer, aus zwei verschiedenen Lebensdauern bestehender Verlauf der Detektionszeiten (violett) des Übergangs  $\text{He}^+(n=3) \rightarrow \text{He}^+(n=2)$  nach Anregung von atomarem Helium mit Photonen der Energie  $h\nu = 90 \text{ eV}$ .  
 b) Theoretischer zeitlicher Verlauf der Photonendetektionszeiten (violette Kurve) und der beiden einzelnen exponentiellen Zerfälle (schattierte Flächen). Die Lebensdauern und die relativen Intensitäten wurden anhand der Einstein-koeffizienten [158] und der relativen Besetzungsichten der Unterniveaus [159] bestimmt.

die Reflektivität bei einer Oxidschicht von 2,2 nm bei einer Wellenlänge von 165 nm auf  $\approx 70\%$ . Da die Reflexionsverluste abhängig von der Anzahl der Reflexionen sind, ist es ohne Kenntnis der Verteilung der Photonen auf die verschiedenen mit dem Spiegelsystem möglichen Pfade nicht möglich die Verluste direkt zu berücksichtigen. Daher kann nur eine Abschätzung für den effektiven Raumwinkel des Spiegels  $d\Omega_{\text{Sp}}^{\text{eff}}$  angegeben werden, welcher sich aus dem abgedeckten Raumwinkel und der über die Zahl der Reflexionen gemittelten Reflektivität zusammensetzt. Zusätzlich ist die Quanteneffizienz für den Detektor bei einer Wellenlänge von 164 nm nicht bekannt, da seitens des Herstellers nur die Quanteneffizienzen in einem Wellenlängenbereich von 214 nm bis 900 nm angegeben sind. Daher wird für diese die von dem Hersteller angegebene, maximale Quanteneffizienz des Detektors  $Q_{\text{Ph}, \text{det}}^{(\text{max})} = 25,5\%$  bei einer Wellenlänge von 254 nm [141, 142] angenommen. Der minimale effektive Raumwinkel des Spiegels ergibt sich mit diesen Werten zu

$$d\Omega_{\text{Sp}}^{\text{eff}} = \frac{N_{\text{EI-Ph}}(n=3)}{Q_{\text{Ph}, \text{det}}^{(\text{max})} \cdot P(n=3 \rightarrow n=2 | n=3) \cdot N_{\text{EI}}(n=3)} - d\Omega_{\text{Det}} \geq 0,8\%. \quad (5.2.4)$$

$d\Omega_{\text{Det}} = 0,075\%$  ist der in Abschnitt 3.3.2 bestimmte prozentuale Raumwinkel des Detektors und wird von dem gesamten prozentualen effektiven Raumwinkel abgezogen, um den Wert für das Spiegelsystem zu erhalten. Der mit dem Spiegel erreichbare effektive Raumwinkel als Produkt aus der Reflektivität und dem geometrischen Raumwinkel stellt somit eine relative Vergrößerung des abdeckbaren Raumwinkels um mindestens einen Faktor 10 dar, ist aber dennoch deutlich geringer als der zu erwartende Gewinn durch den abgedeckten geometrischen Raumwinkel von maximal  $d\Omega_{\text{Sp, geometrisch}}^{\text{max}} 38,4\%$ . Eine genauere Quantifizierung ist auf Grund verschiedener, unzureichend bekannter Parameter kaum möglich.

Trotz dieses geringeren Zahlenwerts legen erste von uns mit dem vorgestellten Spiegelsystem erfolgreich durchgeführte Messungen an NeKr-Clustern [79] und Argon-Clustern [80] im SB Modus von BESSY II nahe, dass dieses für den Nachweis von Prozessen mit vergleichsweise geringen Wirkungsquerschnitten genutzt werden kann.

Als zweites Testsystem wurde atomares Argon gewählt, für welches zwei Messungen mit unterschiedlichen Retardierungsspannungen und Anregungsenergien diskutiert werden. Bei den Messungen wurden für die Retardierungsspannungen  $U_1 = U_2 = -190\text{ V}$  und  $U_1 = U_2 = -175\text{ V}$  genutzt, um so verschiedene LMM Augerkanäle aufgelöst zu detektieren. Ähnliche Spektren wurden unter anderem schon in [167–175] untersucht und dienen daher zum Vergleich der erhaltenen Ergebnisse. Die Energie der anregenden Photonen betrug 449 eV für  $U_{\text{Ret}} = -190\text{ V}$  und 434 eV für  $U_{\text{Ret}} = -175\text{ V}$ , sodass die 2p-Photoionisationslinien energetisch nahe bei den  $\text{L}_{2,3}\text{L}_{2,3}\text{M}_{2,3}$  Augerstrukturen liegen. Dadurch lassen sich diese bei den gewählten Retardierungsspannungen ebenfalls detektieren. In beiden Fällen liegt die anregende Photonenergie oberhalb der 2s Bindungsenergie von Argon  $E_B = 325\text{ eV}$  [171].

Die anregenden Photonen wurden auch hier von dem Strahlrohr U49-2 PGM1 der Synchrotronstrahlungsanlage BESSY II in Berlin (HZB) [160] zur Verfügung gestellt, wobei für eine ausreichend hohe Detektionsrate eine Austrittsspaltgröße von  $80\text{ }\mu\text{m}$  gewählt wurde. Dies entspricht bei einer anregenden Photonenergie von  $h\nu = 434\text{ eV}$  einer Bandbreite von  $\sim 150\text{ meV}$ . Für beide Retardierungsspannungen wurden die notwendigen Messpunkte für die Flugzeit-Energie-Konvertierung durch die Photonenergieabhängigkeit der 2p-Photoionisation von atomarem Neon [176, 177] erzeugt und die Flugzeiten ereignisbasiert den entsprechenden Energiewerten zugeordnet. Die grafische Darstellung der zugehörigen Konvertierung befindet sich in Anhang A.

**Abbildung 5.9:** Gemessene Elektronenspektren von Argon Monomeren nach der Anregung mit 449 eV Photonen und unter Verwendung einer Retardierungsspannung von  $U_1 = U_2 = -190\text{ V}$ . Die Zuordnung der Auger-Strukturen erfolgt durch Vergleich mit hochauflösten Spektren aus [168, 172].

- a) Über beide Anregungspulse summiertes, nicht koinzidentes Elektronenspektrum mit
- (I)  $\text{Ar}^+\text{L}_3\text{M}_{2,3}\text{M}_{2,3}(^1\text{D}_2)$ ,
  - (II)  $\text{Ar}^+\text{L}_3\text{M}_{2,3}\text{M}_{2,3}(^3\text{P}_{0,1,2})$  und
  - $\text{Ar}^+\text{L}_2\text{M}_{2,3}\text{M}_{2,3}(^1\text{D}_2)$  (nicht aufgelöst),
  - (III)  $\text{Ar}^+\text{L}_2\text{M}_{2,3}\text{M}_{2,3}(^3\text{P}_{0,1,2})$ .

b) Elektronenspektren der Elektron-Photon Koinzidenzen vor und nach Abzug der zufälligen Koinzidenzen. Die Augerkanäle (I) bis (III) sind hier nicht mehr zu detektieren, sodass nur noch eine Struktur sichtbar ist, welche in [178] als  $\text{Ar}^+\text{L}_2\text{M}_{2,3}\text{M}_{2,3}(^1\text{S}_0)$  Prozess identifiziert wurde. Eine nähere Untersuchung dieser Struktur wirft aber Zweifel an dieser Zuordnung auf. Weitere Details zu der Diskussion befinden sich im Text und in Abbildung 5.10.

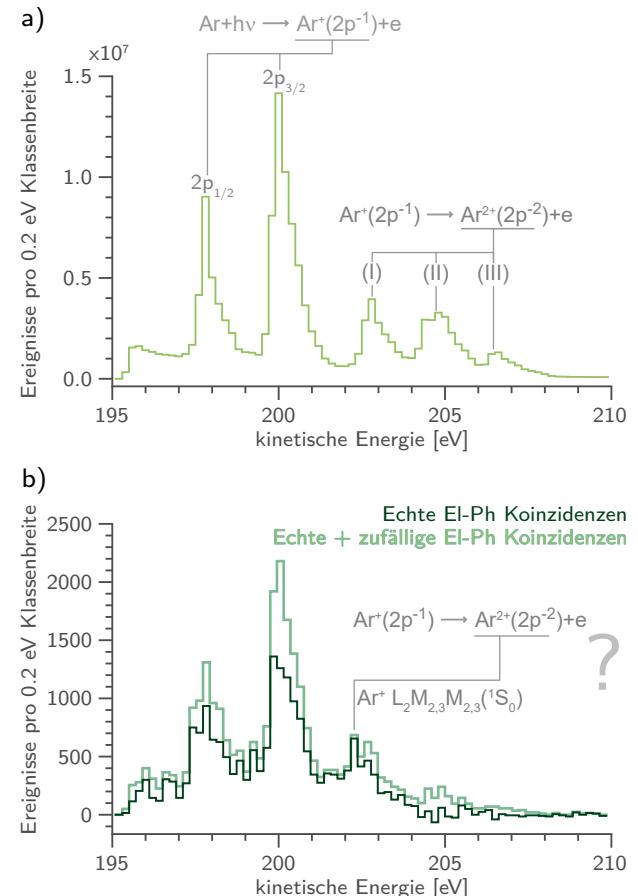
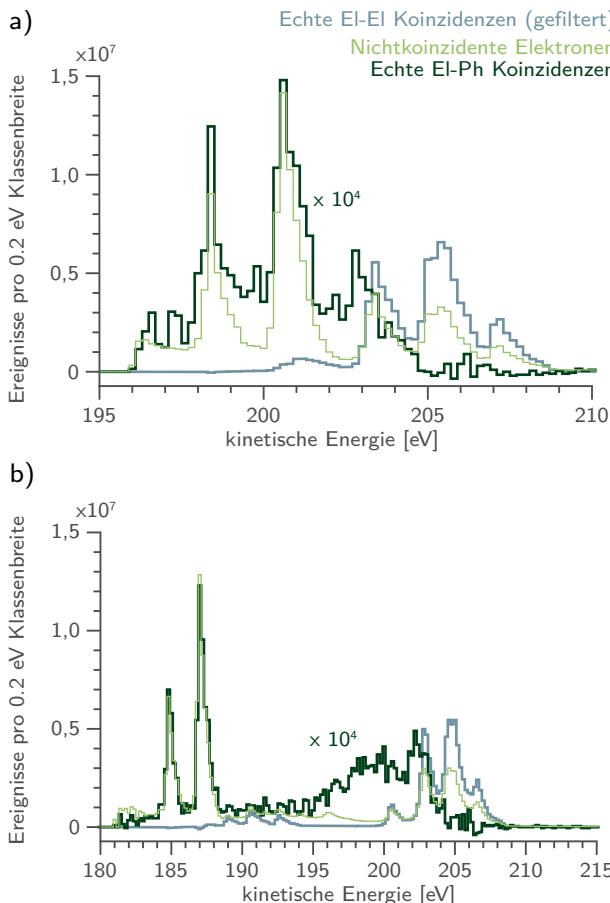


Abbildung 5.9a zeigt das nicht koinzident aufgenommene Elektronenspektrum, welches neben den zwei Feinstrukturkomponenten der 2p Photoionisation die  $\text{L}_{2,3}\text{M}_{2,3}\text{M}_{2,3}$  Auger-Kanälen aufweist. Diese wurden mit Hilfe von [168, 172] zugeordnet. Die Endzustände der in 5.9a zugewiesenen  $\text{Ar}^+\text{L}_{2,3}\text{M}_{2,3}\text{M}_{2,3}$  Augerprozesse der Form  $\text{Ar}^{2+}(3\text{p}^{-2})$  sind ionische Zustände, deren weitere Relaxation keine mit dem

verwendeten Detektor messbaren Photonen emittieren. Messbare Elektron-Photon Koinzidenzen können somit nicht auftreten. Neben diesen Relaxationspfaden resultiert die 2p-Photoionisation auch in  $L_{2,3}M_1M_{2,3}$  und  $L_{2,3}M_1M_1$  Augerprozessen [167, 172] sowie der Anregung verschiedener Satellitenzustände [175]. Diese können über Photonenemission relaxieren, besitzen jedoch zu niedrige kinetische Energien, um bei  $U_1 = U_2 = -190$  V detektiert werden zu können und tragen somit nicht zu den gemessenen Elektron-Photon Koinzidenzen bei. Die emittierten Photonen treten daher koinzident zu den 2p-Photoelektronen ohne Detektion der Augerelektronen auf und tragen daher zu dem gemessenen Elektron-Photon Koinzidenzsignal bei. In der Tat lassen sich diese Strukturen in dem Elektronenspektrum der in Koinzidenz gemessenen Elektronen in Abbildung 5.9b gut erkennen. Eine weitere Struktur ist bei  $E_{El,kin} = 203,3$  eV zu erkennen, welche in dem Spektrum der nicht koinzidenten Elektronen nicht sichtbar ist. Diese wurde in [178] zuvor als  $Ar^+L_2M_{2,3}M_{2,3}(^1S_0)$  Augerprozess identifiziert und der Beitrag zu dem Elektron-Photon Koinzidenzsignal über magnetische Dipol- und elektrische Quadrupolübergänge erklärt. Es ist aber auffällig, dass diese bei den Elektron-Photon Koinzidenzen einen im Vergleich zu der 2p-Photoionisation großen Beitrag liefert, während der Beitrag in der HDV der nicht koinzidenten Elektronen vernachlässigbar erscheint.

Für eine nähere Untersuchung dieser Struktur wurde die anregende Photonenenergie auf  $h\nu = 434$  eV reduziert, um so die 2p-Photoionisationsstrukturen energetisch von dieser zu trennen. Hierdurch lassen sich die Elektronenemissionskanäle in einem Bereich der kinetischen Energien von  $E_{El,kin} = 183$  eV bis  $E_{El,kin} = 215$  eV untersuchen, in welchem unter anderem die  $L_{2,3}M_1M_{2,3}$  und  $L_{2,3}M_1M_1$  Augerstrukturen sowie einige der Satellitenlinien der  $L_{2,3}LM_{2,3}$  Augerprozesse beobachtbar sind [168, 172].



**Abbildung 5.10:** Gemessene Spektren der nicht koinzidenten Elektronen, der Elektron-Photon Koinzidenzen sowie Elektron-Elektron Koinzidenzen. Bei der HDV der Elektron-Elektron Koinzidenzen sind nur diejenigen Elektronen berücksichtigt, welche in Koinzidenz mit einem Photoelektron der 2p-Photoionisation gemessen wurden. Diese HDV stellt damit das Augerelektronenspektrum dar, unter der Bedingung, dass der Prozess auf eine 2p-Photoionisation folgt. Das Spektrum der in Koinzidenz mit einem Photon gemessenen Elektronen ist hierbei um einen Faktor  $1 \cdot 10^4$  vergrößert dargestellt um so eine bessere Vergleichbarkeit zu gewährleisten.

- a) Anregende Photonenenergie  $h\nu = 449$  eV mit  $U_{Ret} = -190$  V und einer Messdauer von 30 min,
- b) Anregende Photonenenergie  $h\nu = 434$  eV mit  $U_{Ret} = -175$  V und einer Messdauer von 25 min.

In Abbildung 5.10 ist das Elektronenspektrum der nicht koinzidenten Elektronen, der Elektron-Elektron Koinzidenzen und das der Elektronen, welche in Koinzidenz mit einem Photon gemessenen wurden, dargestellt. Für einen direkten Vergleich sind die Spektren in Teilabbildung a) für eine Photonenenergie von  $h\nu = 449 \text{ eV}$  ( $U_{\text{Ret}} = -190 \text{ V}$ ) und in Teilabbildung b) für eine Photonenenergie von  $h\nu = 434 \text{ eV}$  ( $U_{\text{Ret}} = -175 \text{ V}$ ) gezeigt. Für beide Anregungsenergien zeigen die 2p Photoionisationsstrukturen dieser Spektren eine sehr gute Übereinstimmung. Durch die Änderung der Anregungsenergie wird in Abbildung 5.10b aber eine breite Struktur in dem Elektronenspektrum der Elektron-Photon Koinzidenzen sichtbar, welche keine Übereinstimmung mit den relativen Intensitäten des nicht koinzidenten Elektronenspektrums zeigt. Um die physikalische Ursache dieser Struktur näher zu bestimmen, lässt sich ausnutzen, dass durch das genutzte Messschema neben den Elektron-Photon Koinzidenzen auch weitere Teilchenkombinationen in Koinzidenz gemessen wurden. Als weitere Information werden die ebenfalls gemessenen Elektron-Elektron Koinzidenzen herangezogen, mit welchen die Korrektheit der gemessenen Augerspektren nach der 2p-Photoionisation überprüft wird. Die Auswertung dieser Koinzidenzen erfolgt in vergleichbarer Weise zu den Elektron-Photon Koinzidenzen, da sich auch hier zweidimensionale HDV ergeben. Diese lassen sich nach bestimmten Kombinationen filtern, vergleichbar zu den Filtern der Photonendetektionszeit, welche zuvor für die Messungen von Helium diskutiert wurden. In Abbildung 5.10 sind in blau daher die Ereignisse gezeigt, bei welchen eines der zwei detektierten Elektronen sich zu den 2p-Photoionisationslinien zuordnen lassen. Diese HDV stellt damit das Augerelektronenspektrum dar, unter der Bedingung, dass der Prozess auf eine 2p-Photoionisation folgt. Hier lassen sich gut die bereits besprochenen Augerkanäle sowie der  $\text{Ar}^+ \text{L}_3 \text{M}_{2,3} \text{M}_{2,3} ({}^1\text{S}_0)$  Augerprozess bei  $E_{\text{El,kin}} = 201,1 \text{ eV}$  [167] erkennen. Bei einer Anregung mit einer Photonenenergie von  $h\nu = 449 \text{ eV}$  ist dieser von der  $2p_{3/2}$  Struktur überlagert. Für eine Photonenenergie von  $h\nu = 434 \text{ eV}$  lassen sich weiterhin verschiedene Strukturen erkennen, welche  $\text{Ar}^+ \text{L}_{2,3} \text{M}_1 \text{M}_{2,3} ({}^1\text{S}_0)$  Prozessen entsprechen [172]. Insgesamt zeigen die gemessenen Elektron-Elektron Koinzidenzspektren eine gute Übereinstimmung mit den bekannten Augerspektren nach der 2p-Photoionisation. Jedoch erklären auch diese nicht die breite Struktur im Signal der Elektron-Photon Koinzidenzen.

Eine mögliche Erklärung ist, dass bei den gewählten Photonenenergien neben der 2p-Photoionisation auch die 2s-Photoionisation möglich [171] ist, welche zu  $\sim 89\%$  über Kaskadenprozesse zur Erzeugung von  $\text{Ar}^{3+}$  Ionen führt [179]. Neben  $\text{Ar}^{3+}(3s, 3p)^{-3}$  Endzuständen können dabei auch Zustände der Form  $\text{Ar}^{3+}(3s, 3p)^{-4}nl$  erreicht werden [179].  $\text{Ar}^{3+}(3p)^{-4}4p$  Zustände relaxieren anschließend über Photonenemission, die in dem sensitiven Bereich des Detektors liegen. Bei diesen Kaskaden werden insgesamt drei Elektronen emittiert, von welchen bei den gewählten Retardierungsspannungen lediglich die Elektronen der  $\text{Ar}^{2+} 2p^{-1}(3p, 3s)^{-1} \rightarrow \text{Ar}^{3+}(3s, 3p)^{-4}nl$  Auger-Zerfälle in dem Bereich der kinetischen Energien liegen, welche in den vorliegenden Messungen nachweisbar sind. Es ist daher wahrscheinlich, dass der Großteil der gemessenen Elektron-Photon Koinzidenzen im Bereich von  $E_{\text{El,kin}} = (200 \pm 5) \text{ eV}$  aus diesen Prozessen resultieren und der in [178] angegebene Prozess  $\text{Ar}^+ \text{L}_2 \text{M}_{2,3} \text{M}_{2,3} ({}^1\text{S}_0)$  nur einen geringen Beitrag liefert.



## KAPITEL 6

### ANREGUNG MIT PHOTONENPULSZÜGEN MIT BELIEBIGER ZEITSTRUKTUR DER INTENSITÄT

Erfolgt die Anregung der zu untersuchenden Systeme durch Photonenpulse mit unterschiedlichen Intensitäten sowie unterschiedlichen zeitlichen Abständen zwischen diesen, so lassen sich die Strukturen in der zweidimensionalen HDV  $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}})$  nicht mehr eindeutig zuordnen, wenn die Breite beziehungsweise der zeitliche Abstand dieser Strukturen vergleichbar zum zeitlichen Abstand der anregenden Pulse ist. Ebenso lässt sich die in Abschnitt 5.1 vorgestellte Methode zur Bewertung der zufälligen Koinzidenzen nicht mehr verwenden. Da die zeitliche Struktur der Anregungspulse bei Synchrotronstrahlungsanlagen durch das verwendete Füllmuster definiert ist, wird in Abschnitt 6.1 dessen Einfluss auf die gemessenen zweidimensionalen HDV  $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}})$  diskutiert. Zusätzlich wird die Differenz der gemessenen Zeiten  $\Delta_t = t_{\text{Ph}} - t_{\text{El}}$  als eine alternative Darstellung von Messdaten der Elektron-Photon Koinzidenzen für allgemeine Füllmuster motiviert. Mit dieser lassen sich die Elektron-Photon Koinzidenzen für beliebige zeitliche Verteilungen der Anregungspulse in einfacher Weise darstellen. Durch den Wechsel der Darstellung muss auch die Methode zur Ermittlung des Untergrunds der zufälligen Koinzidenzen für die  $\Delta_t$ -Darstellung angepasst werden. Eine geeignete Methode wird in Abschnitt 6.2 mit Hilfe allgemeiner wahrscheinlichkeitstheoretischer Aussagen abgeleitet.

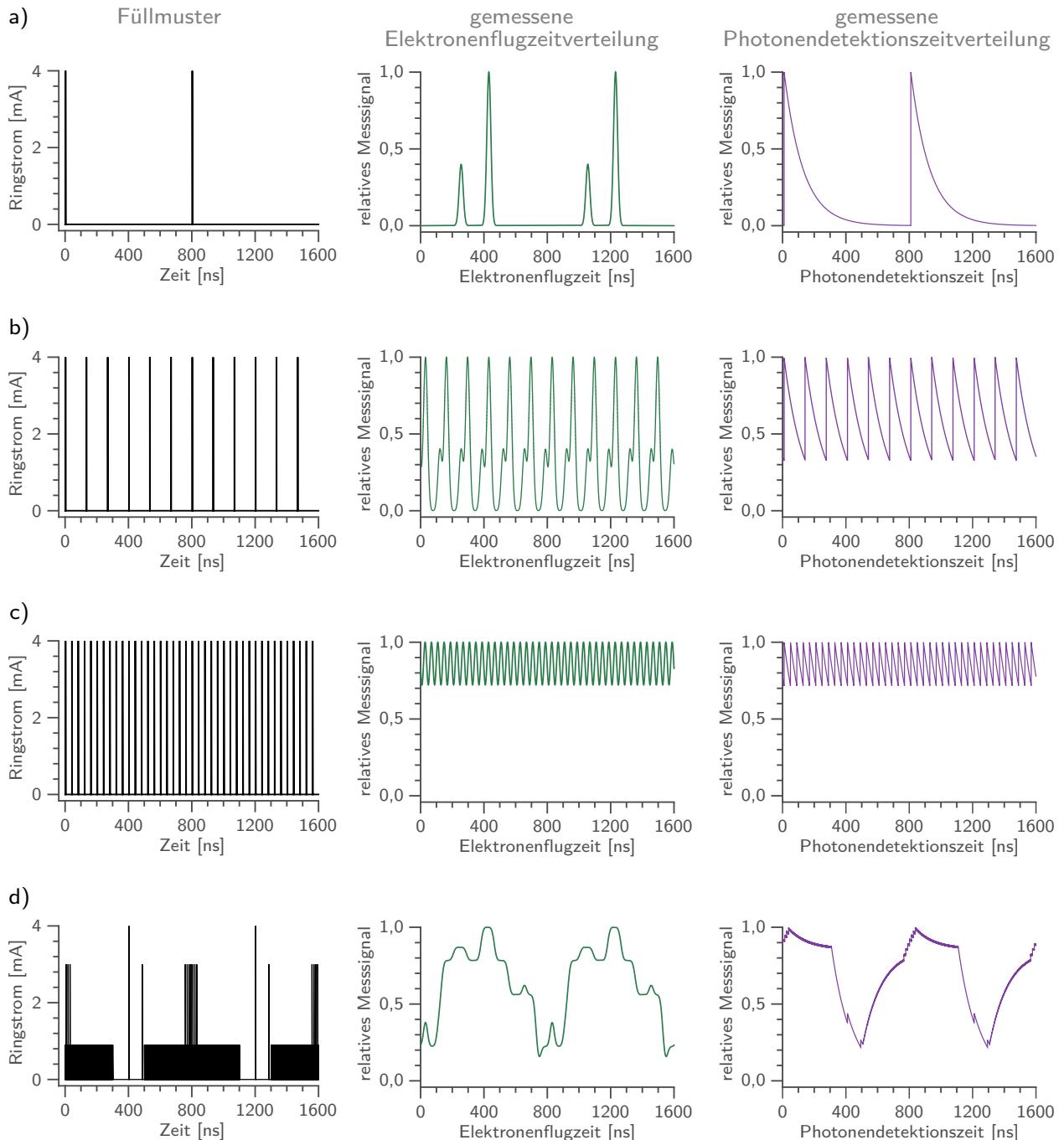
Der alternative Ansatz wird in Abschnitt 6.3 genutzt, um echte Elektron-Photon Koinzidenzen aus experimentellen Daten zu erhalten, welche bei Messungen im SB Modus und im MBH Modus von BESSY II (HZB, Berlin) aufgenommen wurden. Für die Daten aus Experimenten, welche im SB Modus statt fanden, wird diese Methode zusätzlich mit der in Kapitel 5 verwendeten Methode verglichen. Als experimentelles Beispiel für eine Elektron-Photon Koinzidenzmessung nach Anregung mit einer zeitlich stark strukturierten Photonenintensität dient die Photoionisation von CO<sub>2</sub>. Echte Elektron-Photon Koinzidenzen sind für den gewählten Photonendetektor für genau einen Elektronenemissionskanal zu erwarten, wodurch CO<sub>2</sub> ein ideales erstes Testsystem für die vorgestellte Datenverarbeitungsmethode darstellt. Die Erkenntnisse für einen offenen Kanal zur Erzeugung von echten Elektron-Photon Koinzidenzen aus den experimentellen Daten werden anschließend durch simulierte Elektron-Photon Koinzidenzen ergänzt. Diese basieren auf Messungen im SB Modus, bei welchen mehrere Elektronenemissionskanäle in Koinzidenz mit Photonen gemessen wurden. Die Simulation überführt die dort erhaltenen Werte in Messwerte, welche im MBH Modus zu erwarten sind und an welchen die  $\Delta_t$ -Darstellung sowie die Bestimmung des Untergrunds zufälliger Koinzidenzen auch für solche Systeme getestet werden kann.

## 6.1 $\Delta_t$ -Darstellung von Elektron-Photon Koinzidenzen

Sind die zeitlichen Abstände zwischen zwei möglichen Anregungen ausreichend groß, so können entsprechend den Ausführungen in Abschnitt 5.1 die gemessenen Ereignisse den Anregungspulsen zugeordnet werden. Es wird allerdings nicht der anregende Puls direkt gemessen, sondern es wird die von BESSY II zur Verfügung gestellte Referenzuhr – der Bunchmarker – zur Synchronisation verwendet. Die bisher verwendete Methode funktioniert dann nur, wenn der zeitliche Abstand der zirkulierenden Elektronenpakete groß gegenüber den Elektronenflugzeiten und den Lebensdauern der lumineszierenden Zustände ist, sodass die in Abschnitt 5.1 diskutierten Bedingungen weiterhin erfüllt sind. Gelten diese nicht mehr, ergeben sich die HDV der gemessenen Zeiten als Superposition der durch die verschiedenen Elektronenbunche erzeugten HDV.

Abbildung 6.1 zeigt diesen Einfluss verschiedener Füllmuster auf die simulierten HDV der Detektionszeit von nicht in Koinzidenz auftretenden Elektronen und Photonen. Hier wird der Bunchmarker weiterhin als zeitliche Referenz genutzt. Als Beispiel werden hier dieselben Verteilungen der Elektronen und Photonen wie für die Erstellung der Koinzidenzmatrixsimulation in Abschnitt 5.1 verwendet. Schon ein in Abbildung 6.1b dargestellter Sechsbatch-Modus lässt bei unveränderten Einstellungen der Beschleunigungsspannungen keine eindeutige Analyse mehr zu. Wird die Zahl der Elektronenbunche weiter erhöht, nähert sich das Messsignal einem konstanten Wert an, was in Abbildung 6.1c für ein Füllmuster mit 20 Bunchen illustriert ist. Es ist anzumerken, dass dieser Effekt für die Detektion der Elektronen nur eingeschränkt durch eine Optimierung der Parameter der magnetischen Flasche abgefangen werden kann. Abbildung 6.1d zeigt den Einfluss eines Füllmusters mit verschiedenen zeitlichen Abständen zwischen den Bunchen und verschiedenen Elektronenzahlen pro Bunch auf die zu erwartenden Messsignale für den MBH Modus von BESSY II. Die sichtbare Struktur folgt direkt aus dem Intensitätsverlauf der anregenden Strahlung sowie den Spektren aus Abbildung 6.1a im Intervall von 0 ns bis 800 ns, da sich das Messsignal im Allgemeinen als Faltung aus der Anregungsfunktion und der Antwortfunktion des physikalischen Systems darstellen lässt [102, 180]. Unter exakter Kenntnis der Anregungsfunktion lassen sich die gesuchten Spektren daher über einen Entfaltungsansatz erhalten. Da die zeitaufgelöste Messung der Intensität der anregenden Photonen allerdings die Nutzung zusätzlicher Detektoren benötigt, sind die exakten Intensitätsverteilungen in dem vorliegenden Experiment nicht genau bekannt, sodass Entfaltungsansätze typischerweise sehr aufwändig sind [180].

Die Faltung aus Anregungsfunktion und Antwort der untersuchten Systeme ist aber nicht nur in den HDV der nichtkoinzidenten Teilchen  $H_{\text{El}}(t_{\text{El}})$ ,  $H_{\text{Ph}}(t_{\text{Ph}})$  erkennbar, sondern auch für die zweidimensionale HDV  $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}})$  der Elektron-Photon Koinzidenzen. Letzteres ist in Abbildung 6.2 mit Hilfe einer simulierten HDV illustriert, wobei von zwei offenen Elektronenemissionskanälen nur einer mit einem Photonenemissionskanal korreliert ist. Bei der Simulation der Koinzidenzkarte wurden bis auf die zeitliche Struktur des Füllmusters dieselben Parameter wie für die Simulation im SB Modus in Abbildung 5.1 verwendet. Die zu Grunde liegenden Verteilungen der Elektronenflugzeiten und der Photonendetektionszeiten entsprechen damit denen in Abbildung 5.1 und 6.1a, ebenso die genutzte Gruppenlänge  $2 \cdot T_B = 1600$  ns. Im Gegensatz zu den Messungen im SB Modus lässt sich  $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}})$  offenbar nicht in verschiedene Sektoren einteilen. In Anlehnung an Arbeiten mit kontinuierlichen Strahlungsquellen, bei denen Photon-Ion Koinzidenzen [46] sowie Elektron-Photon Koinzidenzen [181] detektiert wurden, und Arbeiten, bei denen Elektron-Elektron Koinzidenzen nach Anregung mit Synchrotronstrahlung detektiert wurden [69, 70, 72], kann diese Problematik durch eine einfache Parametrisierung umgangen werden.

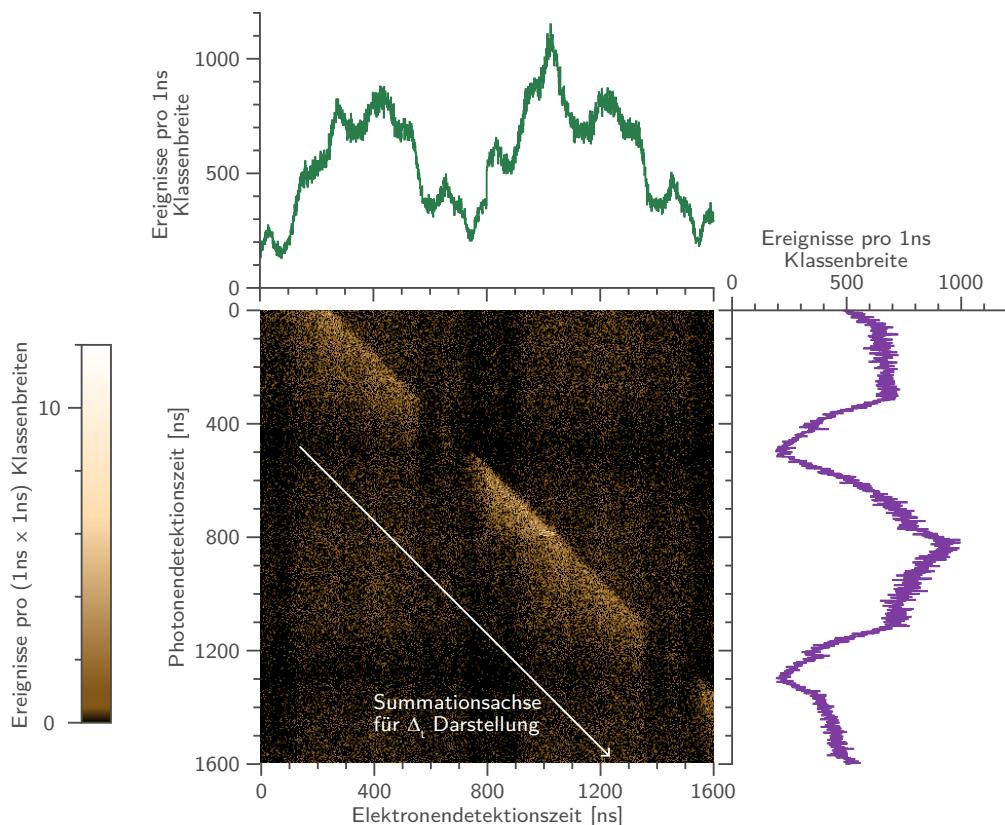


**Abbildung 6.1:** Einfluss verschiedener Füllmuster der Speicherringe und damit verbunden zeitlichen Struktur der Intensität der anregenden Strahlung auf die HDV der gemessenen Elektronenflugzeit sowie der Photonendetektionszeiten. Die Gruppenlänge beträgt 1600 ns und die Umlaufzeit eines Elektronenbunches beträgt  $T_B = 800$  ns. Die erzeugenden WDV entsprechen denen, welche für die Simulation der zweidimensionalen HDV in Abschnitt 5.1 und Abbildung 5.1 genutzt wurden. a) Ein zirkulierender Bunch b) Sechs zirkulierende, äquidistante Bunche mit vergleichbaren Elektronenzahlen pro Bunch c) 20 zirkulierende, äquidistante Bunche mit vergleichbaren Elektronenzahlen pro Bunch d) MBH Modus von BESSY II nach [64, 120]. Der Ringstrom der Bunche wurden in (a) bis (c) zwecks besseren Vergleichs auf den Ringstrom des Camshaft Bunches im Multibunch Hybrid Modus ( $T \approx 401$  ns) gesetzt.

Statt einer von außen vorgegebenen Referenzuhr wird die Detektionszeit eines Teilchens als Referenz genutzt und die übrigen Teilchen relativ zu dieser Zeit aufgetragen. Dies lässt sich auf die vorliegenden Datensätze übertragen, indem statt der getrennten Zeiten  $t_{\text{El}}$  und  $t_{\text{Ph}}$  die Differenz dieser Zeiten betrachtet wird. Im Rahmen dieser Arbeit wird hierbei das Elektron als Referenzteilchen genutzt, sodass sich die Zeitdifferenz  $\Delta_t$  darstellen lässt als

$$\Delta_t = t_{\text{Ph}} - t_{\text{El}}, \quad (6.1.1)$$

was die zweidimensionale HDV  $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}})$  auf die eindimensionale HDV  $H_{\text{El-Ph}}(\Delta_t)$  projiziert. Alle Ereignisse von  $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}})$  werden dabei entlang einer um  $\Delta_t$  verschobenen Diagonalen aufsummiert, um die Zahl der Ereignisse für  $\Delta_t$  zu erhalten. Abbildung 6.2 veranschaulicht dies durch einen weißen Pfeil. In der Datenauswertung ist es allerdings einfacher, die erhaltenen Ereignisse einzeln über Gleichung 6.1.1 ( $(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}}) \rightarrow \Delta_t$ ) abzubilden und die eindimensionale HDV  $H_{\text{El-Ph}}(\Delta_t)$  direkt zu erhalten.



**Abbildung 6.2:** Simulationen von HDV  $H(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}})$  für ein zeitliche Struktur der Anregung, welche dem des MBH Modus von BESSY II entspricht. Es wurden dieselben erzeugenden WDV genutzt, welche auch für die Simulationen in Abbildung 5.1 verwendet wurden. Das Elektronenspektrum für zwei offene Elektronenemissionskanäle A und B wurde mit Hilfe zweier Gaußverteilungen erstellt, für welche  $t_0(\text{El}_A) = 250 \text{ ns}$ ,  $t_0(\text{El}_B) = 425 \text{ ns}$ ,  $FWHM(\text{El}_A) = FWHM(\text{El}_B) = 30 \text{ ns}$  gilt. Das Verhältnis der integrierten Intensitäten beträgt  $\frac{I(\text{El}_A)}{I(\text{El}_B)} = 0,4$ . Die Photonenzzeitverteilung wurde für  $\tau = 75 \text{ ns}$  mit Hilfe von Gleichung 2.2.15 simuliert. Nur das Elektron A kann in dieser Simulation zu einer echten Elektron-Photon Koinzidenz führen. Es wurde zusätzlich die Summationsachse eingezeichnet, durch welche die  $\Delta_t$  Darstellung aus der zweidimensionalen HDV  $H(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}})$  alternativ erhalten werden kann. Die Gesamtzahl der simulierten Ereignisse beträgt  $1 \cdot 10^8$  Ereignisse, von denen  $9 \cdot 10^5$  Ereignisse zu El-Ph-Koinzidenzen führen. Hierfür wurde  $Q_{\text{El}} = 0,9$  und  $Q_{\text{Ph}} = 0,05$  angenommen. Details der Simulation sind in Anhang B zu finden.

Die Wahl des Referenzteilchens ist mathematisch beliebig. Physikalisch ist aber die Wahl des Elektrons als Referenzteilchen der Elektron-Photon Koinzidenzmessung sinnvoll, da dies besser die Abfolge der ablaufenden Prozesse widerspiegelt. Dies folgt daraus, dass Relaxationsprozesse, welche zu einer Emission von Elektronen führen, auf Zeitskalen  $< 25$  ps und damit im Rahmen dieses Experiments quasi-instantan bei der Anregung stattfinden. Diese Relaxationsprozesse hinterlassen ein Ensemble von Zuständen, von denen angeregte Zustände dann unter Photonenemission weiter relaxieren können. Nach Abschnitt 2.2.3 lässt sich deren gemessene Intensitätsverteilungsfunktion durch ein Produkt einer Heaviside-Funktion und einer abfallenden Exponentialfunktion entsprechend Gleichung 2.2.15 beschreiben. Somit markiert die Elektronenemission den Start des Anregungs- und Relaxationsprozesses und die Photonenemission das (mögliche) Ende des Prozesses, was durch Gleichung 6.1.1 formal wiedergegeben wird. Die unterschiedlichen Flugzeiten der Elektronen und Photonen führen dazu, dass die Photonen bei typischen Lebensdauern der relaxierenden Zustände zum Großteil zeitlich vor den Elektronen gemessen werden. Bei der Wahl der Elektronendetektionszeit als Referenz zeigen die gemessenen Strukturen für einen offenen Elektron-Photon Koinzidenzkanal dadurch eine Form entsprechend Abbildung 6.3. Diese stellt die HDV  $H_{\text{El-Ph}}(\Delta_t)$  für die Simulationsdaten aus Abbildung 6.2 dar, welche aus einer deutlichen Struktur der echten Elektron-Photon Koinzidenzen und einem nicht konstanten Untergrund zufälliger Koinzidenzen besteht. Die Modellierung dieses Untergrunds ist Gegenstand von Abschnitt 6.2. Die Struktur der echten Elektron-Photon Koinzidenzen ist um einen negativen Wert für  $\Delta_t$  lokalisiert und nimmt für zunehmende  $\Delta_t$ -Werte exponentiell ab. Eine solche qualitative Zeitabhängigkeit ist für strahlende Relaxationsprozesse zu erwarten und ergibt sich aus der Definition von  $\Delta_t$ .

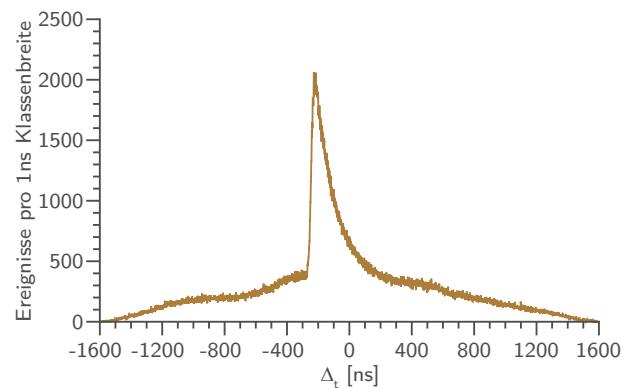
Eine quantitative Beschreibung der Struktur der echten Elektron-Photon Koinzidenzen lässt sich aus den HDV der Elektronen  $H_{\text{El},\text{echt}}(t_{\text{El}}) = H_{\text{El}}(t_{\text{El}}|\{\text{Echte El-Ph Koinzidenz}\})$  und der Photonen  $H_{\text{Ph},\text{echt}}(t_{\text{Ph}}) = H_{\text{Ph}}(t_{\text{Ph}}|\{\text{Echte El-Ph Koinzidenz}\})$  ableiten. Um diesen Zusammenhang zu modellieren, wird zunächst nur eine feste aber beliebige Zeit  $t_{\text{El}}$  für das gemessene Elektron betrachtet.  $H_{\text{El-Ph},\text{echt}}(\Delta_t)$  lässt sich dann schreiben als

$$H_{\text{El-Ph},\text{echt}}(\Delta_t, t_{\text{El}}) = H_{\text{Ph},\text{echt}}(t_{\text{Ph}} = t_{\text{El}} + \Delta_t | t_{\text{El}}) \cdot H_{\text{El},\text{echt}}(t_{\text{El}}), \quad (6.1.2)$$

wobei  $t_{\text{Ph}}$  nicht frei wählbar ist, sondern durch die Wahl von  $\Delta_t$  und  $t_{\text{El}}$  durch Gleichung 6.1.1 festgelegt wird. Die Erweiterung auf ein beliebiges  $t_{\text{El}}$  gelingt für diskrete Messungen der Zeiten (vergleiche Abschnitt 3.4 und 4.2) durch die Summation über den gesamten verfügbaren Wertebereich

$$H_{\text{El-Ph},\text{echt}}(\Delta_t) = \sum_{\{t_{\text{El}}\}} H_{\text{Ph},\text{echt}}(t_{\text{El}} + \Delta_t) \cdot H_{\text{El},\text{echt}}(t_{\text{El}}). \quad (6.1.3)$$

Dieser Ausdruck entspricht der Definition der diskreten Kreuzkorrelation [102], da die Verteilungsfunktionen  $H_{\text{Ph},\text{echt}}(t_{\text{Ph}})$  und  $H_{\text{El},\text{echt}}(t_{\text{El}})$  reell sind.



**Abbildung 6.3:**  $\Delta_t$ -Darstellung entsprechend Gleichung 6.1.1 der in Abbildung 6.2 simulierten Elektron-Photon Koinzidenzen, welche aus der Verwendung des Multibunch Hybrid Modus von BESSY II resultieren.

Existieren verschiedene Prozesse, welche zur Detektion echter Elektron-Photon Koinzidenzen führen, ergeben sich die gemessenen HDV als Superposition der HDV der einzelnen Prozesse. Für das weitere Vorgehen reicht es daher aus, sich auf eine echte Korrelation zwischen einem Elektronenemissionsprozess und einem Photonemissionsprozess zu beschränken. Die Form der gemessenen HDV der Elektronen  $H_{\text{El},\text{echt}}(t_{\text{El}})$  wird stark durch die Apparatefunktion der magnetischen Flasche beeinflusst. Für die weitere Betrachtung wird diese in erster Näherung durch eine Gaußverteilung approximiert. Damit lässt sich die Kreuzkorrelation<sup>1</sup> schreiben als

$$H_{\text{El-Ph,echt}}(\Delta_t) = \frac{\alpha}{2 \cdot \tau} \cdot \exp\left(\frac{\sigma^2}{2 \cdot \tau^2} - \frac{\Delta_t - t_0}{\tau}\right) \cdot \operatorname{erfc}\left(\frac{\sigma}{\sqrt{2} \cdot \tau} - \frac{\Delta_t - t_0}{\sqrt{2} \cdot \sigma}\right). \quad (6.1.4)$$

$\tau$  ist wie zuvor die Lebensdauer des oberen, strahlenden Zustands, während  $\sigma$  die Standardabweichung und  $t_0$  das Zentrum der Gaußverteilung der Elektronen angibt. Der Parameter  $t_0$  lässt sich somit als mittlere Flugzeit der Elektronen verstehen.  $\alpha$  stellt die Fläche der so dargestellten HDV dar, sodass sich die Gesamtzahl der Elektron-Photon Koinzidenzen in diesem Modell aus dem Produkt der genutzten Klassenbreite und der Zahl der Koinzidenzen  $\alpha$  ergibt.

Bei verschiedenen Relaxationsprozessen des angeregten Systems, welche als echte Elektron-Photon Koinzidenzen gemessen werden können, lassen sich die einzelnen Strukturen gemäß Gleichung 6.1.4 modellieren und über die verschiedenen Kanäle aufsummieren. Sind die Lebensdauern  $\tau$  der beteiligten Zustände  $i, j$  hierbei groß gegenüber den zeitlichen Abständen der Strukturen  $t_{0i} - t_{0j}$ , kann die Analyse der so erhaltenen Spektren auf Grund des Überlapps der Strukturen ohne Kenntnis einiger der Parameter allerdings herausfordernd sein.

---

<sup>1</sup>Wegen der Achsensymmetrie der Gaußverteilung ist die Kreuzkorrelation identisch zu der Faltung der beiden Verteilungen.

## 6.2 Bestimmung des Untergrunds durch zufällige Koinzidenzen in der $\Delta_t$ -Darstellung

Wie im vorigen Abschnitt dargestellt, lassen sich die zufälligen Koinzidenzen bei der Nutzung von Anregungspulsen, deren zeitlicher Abstand klein gegenüber dem Argumentebereich der Verteilungen in HDV  $H_{EI}(t_{EI})$  und  $H_{Ph}(t_{Ph})$  ist, nicht durch geeignete Separation der HDV  $H_{EI-Ph}(t_{EI}, t_{Ph})$  erreichen.

Ansätze zur Modellierung der zufälligen Koinzidenzen für die Verwendung solcher Füllmuster wurden zuvor in [69, 70] für die Verwendung von auf Zeit-zu-Analog Wandlern basierenden Koinzidenzmessschaltungen zur Messung von Elektron-Elektron Koinzidenzen nach der Anregung von Festkörperproben diskutiert. Diese wurden später von [71, 72] für die Detektion von Elektron-Elektron Koinzidenzen nach der Anregung von Gasphasenproben verwendet. Da in [69–71] hemisphärische Elektronenenergianalysatoren für alle in Koinzidenz detektierten Teilchen verwendet werden, ist dort die Energiemessung von dem Zeitsignal der Detektoren entkoppelt, insbesondere für fest eingestellte Elektronenenergien [69]. Dies führt dazu, dass die zeitliche Struktur hauptsächlich durch die Eigenschaften des Detektionssystems und der zeitlichen Struktur der anregenden Photonen definiert wird. Durch diese wird die gemessene Gesamtintensität moduliert, was bei der Modellierung ausgenutzt wurde. Diese Methode wurde auch von Ulrich et al. [72] angewendet, welche eine Kombination aus Elektronenflugzeitspektrometern und einem hemisphärischen Elektronenanalysator einsetzen. Die zufälligen Koinzidenzen werden hier aus Koinzidenzereignissen bestimmt, bei denen die gemessenen Teilchen aus zwei verschiedenen Füllmustersequenzen stammten. Dies ist in dieser Form allerdings nur möglich, da das Messsignal der Elektronenflugzeitspektrometer bezüglich der bekannten Energien der durch die hemisphärischen Detektors nachgewiesenen Elektronen gefiltert werden kann. Die zugehörige Flugzeit ist daher bis auf eine experimentell variierbare Verbreiterung [182, 183] definiert und stellt damit eine gute Referenz für die Detektionszeiten des Elektronenflugzeitspektrometers dar [72].

Im Gegensatz zu diesen Arbeiten ist durch die Messung der Elektronenflugzeiten und der Lebensdauern der lumineszierenden Zustände die gesamte erhaltene physikalische Information aller in Koinzidenz detektierten Teilchen gemäß Abschnitt 6.1 in den gemessenen Zeitstrukturen enthalten. Für arbiträre Füllmuster führt dies zu komplexen Abhängigkeiten der Detektionszeiten. Die Abschätzung der zufälligen Koinzidenzen erfolgt daher durch eine andere Methode als im SB Modus und in den zuvor diskutierten Arbeiten. Es wird aber auch für beliebige Füllmuster davon ausgegangen, dass sich die gemessene HDV als Summe der jeweiligen HDV der echten und zufälligen Koinzidenzen schreiben lässt. Im Speziellen wird hier ausgenutzt, dass durch die nicht auf eine Teilchenkombination beschränkte Messung über den TDC auch die nicht koinzidenten HDV bekannt sind und es wird diskutiert, wie sich diese zur Modellierung des Untergrunds zufälliger Koinzidenzen nutzen lassen. Die nicht koinzidenten Spektren wurden auch in [71, 72] gemessen, aber nicht für die Modellierung genutzt, sondern dienten in [71] nur zur Überwachung der Nachweiseffizienz der einzelnen Detektoren. In [72] wurden die koinzidenten Spektren mit den nicht koinzidenten Spektren der durch den hemisphärischen Detektors gemessenen Augerelektronen verglichen.

Ausgangspunkt der folgenden Überlegungen ist die Definition der Zeitdifferenz  $\Delta_t$  (Gleichung 6.1.1) und der zugehörigen gemessenen HDV  $H_{EI-Ph}(\Delta_t)$ . Die Modellierung des Untergrunds zufälliger Koinzidenzen erfolgt in Abschnitt 6.2.1 zunächst in vergleichbarer Weise zur Betrachtung der Form der echten Koinzidenzen in Abschnitt 6.1, um die Grundidee vorzustellen. In dem darauf folgenden Abschnitt 6.2.2 wird diese Betrachtung dann auf die vorliegenden ereignisbasierten Messungen angepasst.

### 6.2.1 Formale Modellierung des Untergrunds

In diesem Abschnitt werden statt der gemessenen Häufigkeitsverteilungen  $H_{\text{El-Ph}}$  die diskreten WDV  $P_{\text{El-Ph}}$  betrachtet, aus welcher die HDV durch entsprechend häufige Ausführung des Zufallsexperiments hervorgehen. Wie schon für die HDV wird nun davon ausgegangen, dass sich die WDV für die Messung einer Elektron-Photon Koinzidenz zur Zeit  $\Delta_t$  schreiben lässt als

$$P_{\text{El-Ph}}(\Delta_t) = P_{\text{El-Ph, echt}}(\Delta_t) + P_{\text{El-Ph, zuf}}(\Delta_t). \quad (6.2.1)$$

Nach 6.1.4 sind für echte Elektron-Photon Koinzidenzen keine beliebigen Zeitdifferenzen möglich, sondern werden durch die Elektronen- und Photonenverteilungsfunktionen definiert, da sie aus demselben physikalischen Prozess folgen. Für zufällige Koinzidenzen hingegen sind alle messbaren Zeitdifferenzen möglich, da hier Photonenpulse von verschiedenen Elektronenbunchen des Füllmusters zur Erzeugung des gemessenen Elektrons und Photons dienen können. Demnach sind die WDV der Photonen  $P_{\text{Ph, zuf}}(t_{\text{Ph}}|t_{\text{El}})$  und der Elektronen  $P_{\text{El, zuf}}(t_{\text{El}})$ , welche zu dem Ereignis  $(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}})$  führen, statistisch unabhängig voneinander.  $P_{\text{Ph, zuf}}(t_{\text{Ph}}|t_{\text{El}})$  ist die bedingte Wahrscheinlichkeit ein Photon zur Zeit  $t_{\text{Ph}}$  zu messen, wenn ein Elektron zur Zeit  $t_{\text{El}}$  gemessen wurde. Aus diesen beiden Verteilungen ergibt sich die WDV der zufälligen Koinzidenzen  $P_{\text{zuf}}(\Delta_t)$ . Analog zu den Überlegungen zu den echten Koinzidenzen in Abschnitt 6.1 lässt sich diese als Kreuzkorrelation der beiden reellwertigen Verteilungen schreiben gemäß

$$P_{\text{El-Ph, zuf}}(\Delta_t) = \sum_{\{t_{\text{El}}\}} P_{\text{Ph, zuf}}(t_{\text{El}} + \Delta_t | t_{\text{El}}) \cdot P_{\text{El, zuf}}(t_{\text{El}}). \quad (6.2.2)$$

Wegen der statistischen Unabhängigkeit von  $P_{\text{El, zuf}}(t_{\text{El}})$  und  $P_{\text{Ph, zuf}}(t_{\text{Ph}})$  gilt für die bedingte Wahrscheinlichkeit  $P_{\text{Ph, zuf}}(t_{\text{Ph}}|t_{\text{El}})$  zusätzlich

$$P_{\text{Ph, zuf}}(t_{\text{Ph}}|t_{\text{El}}) = \frac{P_{\text{El-Ph, zuf}}(t_{\text{Ph}} \cap t_{\text{El}})}{P_{\text{El, zuf}}(t_{\text{El}})} = \frac{P_{\text{Ph, zuf}}(t_{\text{Ph}}) \cdot P_{\text{El, zuf}}(t_{\text{El}})}{P_{\text{El, zuf}}(t_{\text{El}})} = P_{\text{Ph, zuf}}(t_{\text{Ph}}). \quad (6.2.3)$$

Hierdurch schreibt sich Gleichung 6.2.2 als

$$P_{\text{El-Ph, zuf}}(\Delta_t) = \sum_{\{t_{\text{El}}\}} P_{\text{Ph, zuf}}(t_{\text{El}} + \Delta_t) \cdot P_{\text{El, zuf}}(t_{\text{El}}). \quad (6.2.4)$$

$P_{\text{Ph, zuf}}(t_{\text{Ph}})$  und  $P_{\text{El, zuf}}(t_{\text{El}})$  sind allerdings nicht für beliebige  $t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}}$  direkt experimentell zugänglich, sodass hierfür passende Messgrößen identifiziert werden müssen. Es wird ausgenutzt, dass sowohl  $P_{\text{Ph, zuf}}(t_{\text{Ph}})$  und  $P_{\text{El, zuf}}(t_{\text{El}})$  selbst als bedingte Wahrscheinlichkeiten von physikalisch nicht koinzidenten Ereignissen aufgefasst werden können. Mit der erneuten Anwendung von 6.2.3 folgt, dass sich die WDV  $P_{\text{Ph, zuf}}(t_{\text{Ph}})$  und  $P_{\text{El, zuf}}(t_{\text{El}})$  durch deren experimentell zugängliche Daten, den WDV der nicht koinzidenten Photonen  $P_{\text{Ph,nk}}(t_{\text{Ph}})$  und Elektronen  $P_{\text{El,nk}}(t_{\text{El}})$ , ausdrücken lassen. Dies führt zu

$$P_{\text{El-Ph, zuf}}(\Delta_t) = \sum_{\{t_{\text{El}}\}} P_{\text{Ph,nk}}(t_{\text{El}} + \Delta_t) \cdot P_{\text{El,nk}}(t_{\text{El}}) \quad (6.2.5)$$

und stellt das Ergebnis der formalen Herleitung von  $P_{\text{El-Ph, zuf}}(\Delta_t)$  dar. Dies lässt sich ebenso über eine ereignisbasierte Betrachtung der Koinzidenzen erreichen, was zusammen mit dem Zusammenhang zwischen  $P_{\text{El-Ph, zuf}}(\Delta_t)$  und den gemessenen HDV  $H_{\text{El-Ph}}(\Delta_t)$  in Abschnitt 6.2.2 dargestellt ist.

### 6.2.2 Ereignisbasierte Modellierung des Untergrunds

Das Ergebnis des vorigen Abschnitts lässt sich auch aus der ereignisbasierten Messung der Elektron-Photon Koinzidenzen ableiten, bei welcher für jedes Elektron-Photon Koinzidenzereignis  $i$  ein Tupel  $(t_{\text{El}}^{(i)}, t_{\text{Ph}}^{(i)})$  gemessen wurde, was Gegenstand dieses Abschnitts ist. Zusätzlich wird dieses Ergebnis hier auch wieder auf die gemessenen HDV übertragen.

Angenommen jedes gemessene Elektron-Photon Koinzidenzereignis ließe sich jeweils als echt oder zufällig klassifizieren. In diesem Fall lässt sich die Menge aller Koinzidenzen schreiben als

$$\left\{ \left( t_{\text{El}}^{(i)}, t_{\text{Ph}}^{(i)} \right) \mid i \in \mathbb{N} \right\} = \left\{ \left( t_{\text{El}}^{(j)}, t_{\text{Ph}}^{(j)} \right) \mid j \in \mathbb{N} \right\}_{\text{echt}} \cup \left\{ \left( t_{\text{El}}^{(k)}, t_{\text{Ph}}^{(k)} \right) \mid k \in \mathbb{N} \right\}_{\text{zufällig}} \quad (6.2.6)$$

mit  $\max(i) = \max(j) + \max(k)$ .

Für die Modellierung des durch die zufälligen Koinzidenzen entstehenden Untergrunds wird nur die Menge aller zufälligen Koinzidenzen betrachtet, welche  $K = \max(k)$  Tupel beinhaltet. Entsprechend wird explizit nur die Teilmenge der zufälligen Koinzidenzen betrachtet und auf den Index „zufällig“ verzichtet. Zunächst wird die Zahl der zufälligen Koinzidenzen  $K(\Delta_t)$  bestimmt, welche zur Zeitdifferenz  $\Delta_t$  gemessen werden. Diese lässt sich mit Hilfe der IVERSON KLAMMER [184] ausdrücken, welche für eine beliebige Aussage  $A$  definiert ist als

$$[A] = \begin{cases} 1, & A \text{ ist wahr} \\ 0, & \text{sonst} \end{cases} \quad (6.2.7)$$

Wird die Definition der Zeitdifferenzen in Gleichung 6.1.1 bezüglich der Tupel an Messwerten  $(t_{\text{El}}^{(k)}, t_{\text{Ph}}^{(k)})$  und einem beliebigen, aber festen  $\Delta_t$  als Aussage interpretiert

$$t_{\text{El}}^{(k)} + \Delta_t = t_{\text{Ph}}^{(k)} \begin{cases} \text{ist wahr} \\ \text{ist falsch} \end{cases}, \quad (6.2.8)$$

so gilt

$$K(\Delta_t) = \sum_{k=1}^K [A((t_{\text{El}}^{(k)}, t_{\text{Ph}}^{(k)}))] = \sum_{k=1}^K [t_{\text{El}}^{(k)} + \Delta_t = t_{\text{Ph}}^{(k)}]. \quad (6.2.9)$$

Durch die Digitalisierung des TDCs nehmen  $t_{\text{El}}$ ,  $t_{\text{Ph}}$  und damit auch  $\Delta_t$  entsprechend 6.1 diskrete Werte an, welche 6.1.1 erfüllen. Die Zeit wird im Referenzraum der Elektronendetektionszeiten angegeben, wodurch die Photonendetektionszeit  $t_{\text{Ph}}$  für ein beliebiges aber festes  $\Delta_t$  nicht frei wählbar ist. Es ist daher sinnvoll  $K(\Delta_t)$  als Funktion der möglichen Zeiten  $\{t_{\text{El}}\}$  darzustellen über

$$K(\Delta_t) = \sum_{\{t_{\text{El}}\}} \left( \sum_{k=1}^K ([t_{\text{El}}^{(k)} + \Delta_t = t_{\text{Ph}}^{(k)}] \cdot [t_{\text{El}}^{(k)} = t_{\text{El}}]) \right). \quad (6.2.10)$$

Die Summanden lassen sich bezüglich dem Wert für  $t_{\text{El}}$  sortieren und als Teilsummen auffassen. Die Anzahl der Summanden in diesen Teilsummen entspricht dann der Häufigkeit  $\#\{t_{\text{El}}^{(k)} \mid K \geq k \in \mathbb{N}\}$

$$\#(t_{\text{El}}) = \sum_{k=1}^K [t_{\text{El}}^{(k)} = t_{\text{El}}]. \quad (6.2.11)$$

Daraus folgt mit der Konvention  $\sum_{i=1}^0 f_i := 0$  für ein beliebiges  $f_i$

$$K(\Delta_t) = \sum_{\{t_{EI}\}} \left( \sum_m^{\#(t_{EI})} [t_{EI} + \Delta = t_{Ph}^{(m)}] \right). \quad (6.2.12)$$

Die Summation über  $m$  in 6.2.12 bestimmt die Häufigkeit, dass ein Tupel  $(t_{EI}, t_{EI} + \Delta)$  in der Menge aller zufälligen Koinzidenzen enthalten ist

$$\#(t_{EI} \cap t_{Ph} = t_{EI} + \Delta_t) = \sum_m^{\#(t_{EI})} [t_{EI} + \Delta = t_{Ph}^{(m)}]. \quad (6.2.13)$$

Dies führt mit einer Einsmultiplikation  $\frac{K}{K}$  auf der linken Seite und Umsortieren zu dem Ausdruck

$$\frac{K(\Delta_t)}{K} = \sum_{\{t_{EI}\}} \frac{\#(t_{EI} \cap t_{Ph} = t_{EI} + \Delta_t)}{K}. \quad (6.2.14)$$

Der Quotient aus Häufigkeit  $\#(X)$  und Gesamtzahl der Ereignisse entspricht der relativen Häufigkeit  $r_{EI-Ph}(X)$  des entsprechenden Ereignisses  $X$ . Dies gilt insbesondere für den Quotienten der speziell ausgezeichneten Häufigkeit  $K(\Delta_t)$  und der Gesamtzahl der zufälligen Koinzidenzen  $K$ . Es folgt

$$r_{EI-Ph,zuf}(\Delta_t) = \sum_{\{t_{EI}\}} r_{EI-Ph,zuf}(t_{EI} \cap t_{Ph} = t_{EI} + \Delta_t). \quad (6.2.15)$$

Für die weitere Betrachtung werden drei wichtige Annahmen gemacht:

1. Die Anzahl der gemessenen Koinzidenzen ist groß, also  $K \gg 1$ .
2. Für  $K \gg 1$  nähert sich die relative Häufigkeit  $r(X)$  entsprechend dem Gesetz der großen Zahlen der WDV  $P(X)$  an, durch welche die relative HDV erzeugt wird (Gleichung 4.2.1).
3. Für zufällige Koinzidenzen besteht kein physikalischer Zusammenhang zwischen  $t_{EI}$  und  $t_{Ph}$ , sodass deren relative HDV  $r_{EI,zuf}(t_{EI})$  und  $r_{Ph,zuf}(t_{Ph})$  als statistisch unabhängig betrachtet werden können. Dies gilt insbesondere auch für  $r_{EI-Ph,zuf}(t_{EI} | EI-Ph Koinzidenz gemessen)$  und  $r_{EI-Ph,zuf}(t_{Ph} | EI-Ph Koinzidenz gemessen)$ .

Aus Punkt 1 und Punkt 2 folgt, dass für eine ausreichend große Menge gemessener Koinzidenzen davon ausgegangen werden kann, dass die relativen HDV mit Hilfe wahrscheinlichkeitstheoretischer Überlegungen betrachtet werden können. Zusammen mit Punkt 3 führt dies zu

$$r_{EI-Ph,zuf}(t_{EI} \cap t_{Ph} = t_{EI} + \Delta_t) = r_{Ph,zuf}(t_{Ph} = t_{EI} + \Delta_t) \cdot r_{EI,zuf}(t_{EI}). \quad (6.2.16)$$

Wird dies in 6.2.15 eingesetzt, ergibt sich

$$r_{EI-Ph,zuf}(\Delta_t) = \sum_{\{t_{EI}\}} r_{Ph,zuf}(t_{Ph} = t_{EI} + \Delta_t) \cdot r_{EI,zuf}(t_{EI}), \quad (6.2.17)$$

was für große  $K$  wegen Punkt 2 das Äquivalent zu 6.2.5 darstellt.

Entgegen der zu Beginn dieses Abschnitts gemachten Annahme, ist es allerdings nicht möglich die Koinzidenzeignisse nach *echt* oder *zufällig* zu klassifizieren. Entsprechend sind auch die relativen HDV  $r_{\text{El}, \text{zuf}}(t_{\text{El}})$  und  $r_{\text{Ph}, \text{zuf}}(t_{\text{Ph}})$  nicht direkt experimentell zugänglich. Es ist daher, wie in 6.2.1 beschrieben, notwendig Messgrößen zu identifizieren, welche  $r_{\text{El}, \text{zuf}}(t_{\text{El}})$  und  $r_{\text{Ph}, \text{zuf}}(t_{\text{Ph}})$  entsprechen.

Für  $K \gg 1$  stabilisieren sich  $r_{\text{El}, \text{zuf}}(t_{\text{El}})$  und  $r_{\text{Ph}, \text{zuf}}(t_{\text{Ph}})$  bei dem Wert der bedingten Wahrscheinlichkeiten  $P(t_{\text{El}}|\text{El-Ph Koinzidenz gemessen})$ , beziehungsweise  $P(t_{\text{Ph}}|\text{El-Ph Koinzidenz gemessen})$ . Im Sinne der Wahrscheinlichkeitstheorie und unter erneuter Anwendung von Annahme 3 lassen sich die bedingten Häufigkeitsverteilungen schreiben als

$$r_{\text{El}, \text{zuf}}(t_{\text{El}}) = \frac{r_{\text{El}, \text{zuf}}(t_{\text{El}} \cap \{t_{\text{Ph}} \text{ beliebig}\})}{r_{\text{Ph}}(t_{\text{Ph}} \text{ beliebig})} = \frac{r_{\text{El}}(t_{\text{El}}) \cdot r_{\text{Ph}}(t_{\text{Ph}} \text{ beliebig})}{r_{\text{Ph}}(t_{\text{Ph}} \text{ beliebig})} = r_{\text{El}, \text{nk}}(t_{\text{El}}) \quad (6.2.18)$$

$$r_{\text{Ph}, \text{zuf}}(t_{\text{Ph}}) = \frac{r_{\text{Ph}, \text{zuf}}(t_{\text{Ph}} \cap \{t_{\text{El}} \text{ beliebig}\})}{r_{\text{El}}(t_{\text{El}} \text{ beliebig})} = \frac{r_{\text{El}}(t_{\text{El}} \text{ beliebig}) \cdot r_{\text{Ph}}(t_{\text{Ph}})}{r_{\text{El}}(t_{\text{El}} \text{ beliebig})} = r_{\text{Ph}, \text{nk}}(t_{\text{Ph}}). \quad (6.2.19)$$

Die relativen HDV  $r_{\text{El}, \text{nk}}(t_{\text{El}})$  und  $r_{\text{Ph}, \text{nk}}(t_{\text{Ph}})$  sind die relativen Häufigkeiten der nicht koinzidenten Elektronen beziehungsweise Photonen, welche gemäß Abschnitt 4.1 experimentell zugängliche Messgrößen sind. Für die relative Häufigkeit der zufälligen Koinzidenzen  $r_{\text{El-Ph}, \text{zuf}}(\Delta_t)$  ergibt sich abschließend

$$r_{\text{El-Ph}, \text{zuf}}(\Delta_t) = \sum_{\{t_{\text{El}}\}} r_{\text{El}, \text{nk}}(t_{\text{El}}) \cdot r_{\text{Ph}, \text{nk}}(t_{\text{Ph}} = t_{\text{El}} + \Delta_t). \quad (6.2.20)$$

Damit der so bestimmte Untergrund zufälliger Koinzidenzen mit den gemessenen HDV  $H_{\text{El-Ph}}(\Delta_t)$  verrechnet werden kann, muss die in Gleichung 6.2.20 bestimmte relative Häufigkeit  $r_{\text{El-Ph}, \text{zuf}}(\Delta_t)$  in die HDV der zufälligen Koinzidenzen  $K(\Delta_t)$  überführt werden. Gemäß der Definition relativer Häufigkeiten wird dazu die Gesamtzahl  $K$  der zufälligen Koinzidenzen benötigt, welche ebenso wie die Gesamtzahl der echten Koinzidenzen nicht direkt aus der Messung abgeleitet werden kann. Aus diesem Grund wird ausgenutzt, dass nach Abschnitt 6.1 die gemessenen Datensätze Zeitbereiche enthalten, in welchen nur zufällige Koinzidenzen zu erwarten sind. Dies bedeutet, dass die Menge der möglichen Zeitdifferenzen  $\{\Delta_t\}$  dargestellt werden kann als

$$\{\Delta_t\} = \{\Delta_t\}_{\text{nur zufällige Koinzidenzen}} \cup \{\Delta_t\}_{\text{zufällige und echte Koinzidenzen}}. \quad (6.2.21)$$

Die Gesamtzahl der zufälligen Koinzidenzen  $K$  lässt sich nun über ein Optimierungsverfahren durch die Minimierung der Abstandsquadrate zwischen der approximierten HDV der zufälligen Koinzidenzen  $K \cdot r_{\text{El-Ph}, \text{zuf}}(\Delta_t)$  und der HDV der gemessenen Elektron-Photon Koinzidenzen  $H_{\text{El-Ph}}(\Delta_t)$  finden. Dies lässt sich über

$$\sum_{\{\Delta_t\}_{\text{nur zufällige Koinzidenzen}}} (H_{\text{El-Ph}}(\Delta_t) - K \cdot r_{\text{El-Ph}, \text{zuf}}(\Delta_t))^2 \leq \epsilon \quad (6.2.22)$$

beschreiben, wobei  $\epsilon$  den zu unterschreitenden Gesamtabstand angibt. Hierbei wird explizit davon ausgegangen, dass der so gefundene Optimierungsparameter  $K$  nicht nur für  $\{\Delta_t\}_{\text{nur zufällige Koinzidenzen}}$  sondern die Menge aller Zeitdifferenzen  $\{\Delta_t\}$  gültig ist.

Die HDV der echten Koinzidenzen  $H_{\Delta_t, \text{echt}}$  der Zeitdifferenzen  $\Delta_t$  wird mit dem so erhaltenen Ergebnis abschließend bestimmt gemäß

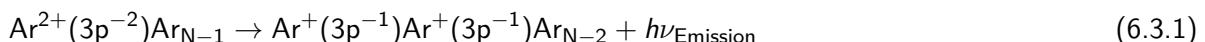
$$H_{\Delta_t, \text{echt}}(\Delta_t) = H_{\text{El-Ph}}(\Delta_t) - K \cdot r_{\text{El-Ph}, \text{zuf}}(\Delta_t). \quad (6.2.23)$$

Dieses Vorgehen wird im weiteren Verlauf als Arbitrary Temporal Distance (ArTeD) Methode bezeichnet.

### 6.3 Diskussion der Ergebnisse

Die Darstellung der Elektron-Photon Koinzidenzen in der  $\Delta_t$ -Repräsentation gemäß Abschnitt 6.1 und die Gültigkeit der Abschätzung der zufälligen Koinzidenzen gemäß Abschnitt 6.2 wird für experimentelle Daten getestet, welche bei Experimenten im SB Modus und MBH Modus von BESSY II aufgenommen wurden. Diese beiden Modi stellen zwei Grenzfälle der Zeitstruktur der anregenden Photonenpulse dar. Die im SB Modus erhaltenen Elektron-Photon Koinzidenz Daten stammen aus Messungen, welche von Hans et al. in [80] unter Verwendung der in Abschnitt 5.1 vorgestellten Methode zur Bestimmung der echten Koinzidenzen veröffentlicht wurden. In dieser Veröffentlichung wurden Relaxationsprozesse von Argonclustern untersucht, welche sich direkt mit den in Abschnitt 5.2 vorgestellten Ergebnissen von atomarem Argon vergleichen lassen. Die Argoncluster wurden per Überschallexpansion von atomarem Argon durch eine Düse mit einem Düsendurchmesser von 80 µm und einem Halböffnungswinkel von 15° bei einem Stagnationsdruck von  $p_0 = 0,44$  bar und einer Temperatur von 120 K erzeugt [80]. Bei diesen Bedingungen beträgt die mittlere Clustergröße aus einer Abschätzung mit Hilfe empirischer Abhängigkeiten [80, 133]  $\langle N \rangle \approx 50$ .

Elektron-Photon Koinzidenzen lassen sich bei der Anregung von atomarem Argon mit  $h\nu = 449$  eV Photonen strahlenden Relaxationsprozessen von verschiedenen Satellitenzuständen zuordnen, welche über die 2p- und 2s-Photoionisation und anschließende Augerprozesse populiert werden. Direkte Augerprozesse, welche im Elektronenspektrum im Bereich von 200 eV bis 210 eV kinetischer Energie beobachtbar sind, liefern nach den Ausführungen in Abschnitt 5.2 lediglich einen Beitrag zu den zufälligen Koinzidenzen, da die  $\text{Ar}^{2+}(3p)^{-2}$  Endzustände nur durch höhere Multipolübergänge relaxieren können [161]. In Clustern können diese Zustände jedoch über Photonenemission durch interatomare Prozesse weiter relaxieren, sodass diese einen wesentlichen Beitrag zu den Elektron-Photon Koinzidenzen liefern [80]. Der vorliegende Radiative Charge Transfer (RCT) Prozess kann über [80, 91, 93]

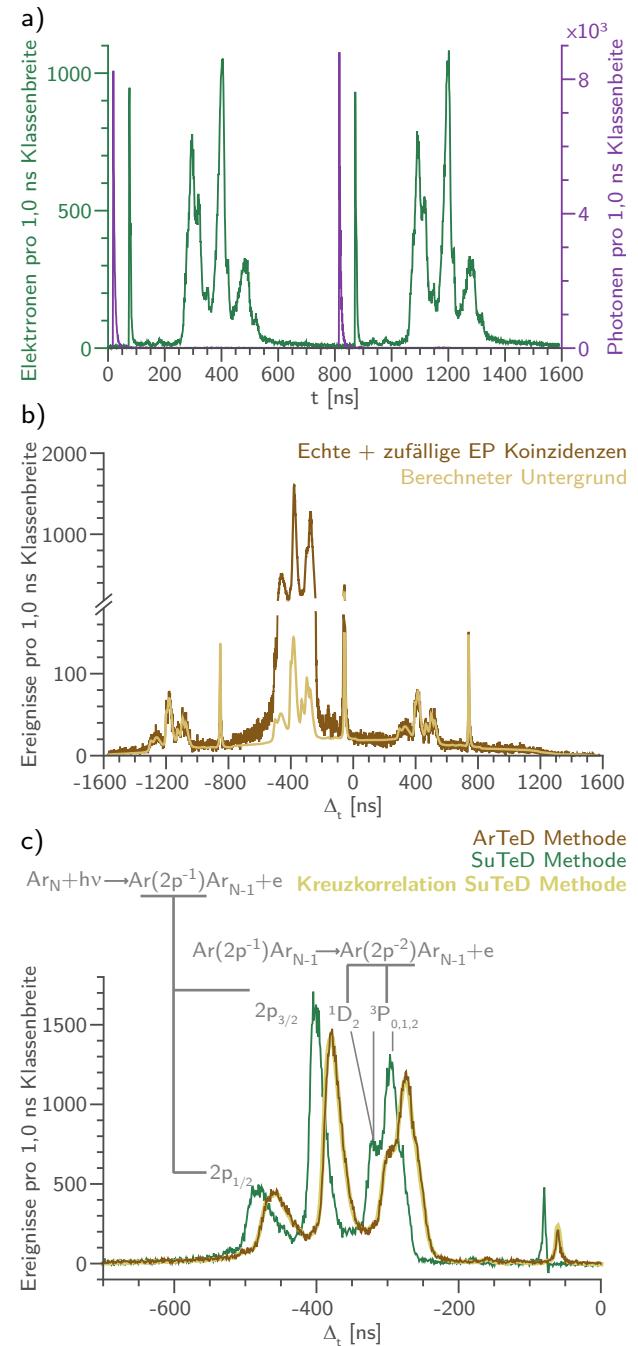


beschrieben werden. Die Wellenlängen der emittierten Photonen werden in [80] mit 149,4 nm (6,6 eV) für die beteiligten  $\text{Ar}^{2+}(3p^{-2})^3P_{0,1,2}$  Auger-Endzustände und mit 187,9 nm (8,3 eV) für die beteiligten  $\text{Ar}^{2+}(3p^{-2})^3P_{0,1,2}$  Auger-Endzustände angegeben. Die Werte ergeben sich dabei für einen interatomaren Abstand von  $\approx 2,7$  Å auf Grundlage der entsprechenden Potentialkurven [91, 93].

Die Bewertung des Untergrunds zufälliger Koinzidenzen dieser experimentellen Daten erfolgt über zwei unterschiedliche Methoden. Zum einen wird die in Abschnitt 5.1 vorgestellte Sufficient Temporal Distance (SuTeD) Methode genutzt, welche für ausreichend große zeitliche Abstände der anregenden Pulse nutzbar ist. Zum anderen wird die in Abschnitt 6.2.2 vorgestellte Arbitrary Temporal Distance (ArTeD) Methode zur Bewertung des Untergrunds zufälliger Koinzidenzen genutzt, welche für die  $\Delta_t$ -Darstellung nutzbar ist. Die gemessenen HDV der Elektronen- und Photonendetektionszeiten sind in Abbildung 6.4a und die daraus resultierende  $\Delta_t$ -Darstellung zusammen mit dem über die ArTeD Methode bestimmten Untergrund zufälliger Koinzidenzen in 6.4b gezeigt. Der modellierte Untergrund stimmt für  $\Delta_t < -800$  ns und  $\Delta_t > 0$  ns sehr gut mit den gemessenen Elektron-Photon Koinzidenzen überein. Diese Zeitbereiche entsprechen für Messungen im SB Modus den Sektoren ( $\text{El}_1, \text{Ph}_2$ ) und ( $\text{El}_2, \text{Ph}_1$ ) der zweidimensionalen HDV  $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}})$ , in denen nach Abschnitt 5.1 nur zufällige Koinzidenzen zu erwarten sind. Da der Bereich  $\Delta_t < -800$  ns für die Skalierung des berechneten Untergrunds genutzt wurde, spricht vor allem die gute Übereinstimmung im Zeitbereich  $\Delta_t > 0$  ns dafür, dass die ArTeD Methode zu einer quantitativen Bewertung des Untergrunds zufälliger Koinzidenzen genutzt werden kann.

Dies zeigt sich auch beim Vergleich des Elektronenflugzeitspektrums der echten Elektron-Photon Koinzidenzen  $H_{\text{El-Ph,echt}}(t_{\text{El}})$ , welche mit der SuTeD Methode erhalten wurde, und der  $\Delta_t$ -HDV  $H_{\Delta_t,\text{echt}}(\Delta_t)$  in Abbildung 6.4c. Es ist zu beachten, dass das Vorzeichen der Zeitachse von  $H_{\text{El,echt}}(t_{\text{El}})$  für eine bessere Vergleichbarkeit invertiert wurde.

**Abbildung 6.4:** a) Die HDV der Photonen und Elektronen der gemessenen Elektron-Photon Koinzidenzen nach der Anregung von Argonclustern mit 449 eV Photonen und unter Verwendung einer Retardierungsspannung von  $U_1 = U_2 = -190$  V. Die Messdauer beträgt 95 min. b)  $\Delta_t$ -Darstellung der in a) gezeigten Elektron-Photon Koinzidenzen mit dem durch die ArTeD Methode bestimmten Untergrund zufälliger Koinzidenzen. c) Vergleich des Elektronenspektrums, welches sich aus der Elektron-Photon Koinzidenz Auswertung mit der SuTeD Methode ergibt, und der durch die ArTeD Methode bestimmten  $\Delta_t$ -Häufigkeitsverteilung. Es ist zusätzlich die Kreukorrelation der Elektronen- und Photonen-HDV gezeigt. Diese beiden HDV ergeben sich aus der SuTeD Methode



Die über die ArTeD- und SuTeD-Methode erhaltenen Verteilungen der Elektronendetektionszeiten zeigen außer einem zeitlichen Versatz eine gute Übereinstimmung, sowohl im Bezug auf die absoluten Werte der erhaltenen Häufigkeitsdichten als auch bezüglich der Relationen der verschiedenen sichtbaren Strukturen. Die Strukturen in  $H_{\Delta_t,\text{echt}}(\Delta_t)$  sind gegenüber denen in  $H_{\text{El,echt}}(t_{\text{El}})$  nur gering verbreitert. Dies lässt sich durch die Lebensdauer von  $\tau = (4,63 \pm 0,12)$  ns der bei den strahlenden Übergängen involvierten,

energetisch höheren Zustände erklären, da die Kreuzkorrelation der Elektronen- und Photonen-HDV aus der SuTeD Methode gemäß Gleichung 6.1.3 nur gering von  $H_{\text{El},\text{echt}}(t_{\text{El}})$  abweicht. Die Lebensdauer und die zugehörige Unsicherheit ergeben sich durch eine Anpassung von Gleichung 2.2.15 an  $H_{\text{Ph},\text{echt}}(t_{\text{Ph}})$ , wobei davon ausgegangen wird, dass die Pulsdauer der anregenden Strahlung einen vernachlässigbaren Beitrag  $\leq 100 \text{ ps}$  aufweisen [122]. Der zeitliche Versatz zwischen  $H_{\text{El},\text{echt}}(t_{\text{El}})$  und  $H_{\Delta_t,\text{echt}}(\Delta_t)$  ergibt sich zum einen aus dem zeitlichen Versatz zwischen Referenzuhr und Anregungspuls und zum anderen aus unterschiedlichen Zeitverzögerungen der Messsignale. Bei dem Übergang von  $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{El}}, t_{\text{Ph}}) \rightarrow H_{\Delta_t}(\Delta_t)$  hebt sich der Versatz zwischen Referenzuhr und Anregungspuls wegen der Zeitdifferenzbildung auf, jedoch verbleiben hier die unterschiedlichen Verzögerungen der verwendeten Elektronik.

Um die Richtigkeit der  $\Delta_t$ -Darstellung als Kreuzkorrelation gemäß Gleichung 6.1.3 zu überprüfen, ist in Abbildung 6.4c zusätzlich die diskrete Kreuzkorrelation der über die SuTeD Methode erhaltenen Verteilungen  $H_{\text{El},\text{echt}}(t_{\text{El}})$  und  $H_{\text{Ph},\text{echt}}(t_{\text{Ph}})$  dargestellt. Diese korrigiert sowohl die zeitliche Verschiebung durch die verschiedenen Verzögerungszeiten als auch die Verbreiterung der Strukturen durch die endliche Lebensdauer und zeigt eine überaus gute Übereinstimmung mit dem Ergebnis aus der ArTeD Methode.

Als Beispiel für den Grenzfall der Untersuchung von Elektron-Photon Koinzidenzen nach Anregung durch Photonenpulse zeitlich stark strukturierter Anregungsmuster wurde die Photoionisation von molekularen CO<sub>2</sub> nach Anregung mit  $h\nu = 22,0 \text{ eV}$  Photonen untersucht. Die anregenden Photonen wurden von dem Strahlrohr U125/2 10m NIM [185, 186] während dem Betrieb des Speicherrings im MBH Modus von BESSY II zur Verfügung gestellt. Der Strahl der CO<sub>2</sub> Moleküle wurde über Expansion durch eine Düse mit einem Düsendurchmesser von 80 μm und einem Halböffnungswinkel von 15° bei einem Stagnationsdruck der Quelle von  $p_0 = 0,5 \text{ bar}$  und einer Quelltemperatur von  $T = 243 \text{ K}$  erzeugt. Von den für diese Anregungsenergie erreichbaren ionischen Zuständen lassen sich im Rahmen der Elektron-Photon Koinzidenzen nur die CO<sub>2</sub><sup>+</sup> B Zustände detektieren, da nur die CO<sub>2</sub><sup>+</sup> B → X Übergänge einen Beitrag zu der Photonendetektion in dem Sensitivitätsbereich des verwendeten Detektors von  $\sim 115 \text{ nm}$  bis  $\sim 310 \text{ nm}$  liefern [187–190]. Bei der eingestellten Temperatur ist der Beitrag durch die Photoionisation vibrationsangeregter, neutraler CO<sub>2</sub> Moleküle stark reduziert [191], da die Potentialkurven der CO<sub>2</sub> X- und CO<sub>2</sub><sup>+</sup> X, B Zustände nahezu parallel verlaufen [192, 193] und daher die Franck-Condon-Faktoren für  $\Delta\nu = 0$  maximal sind. Der primär stattfindende Prozess ist daher [191]

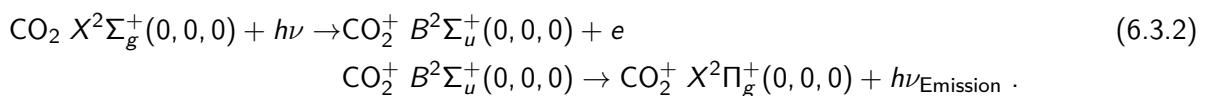
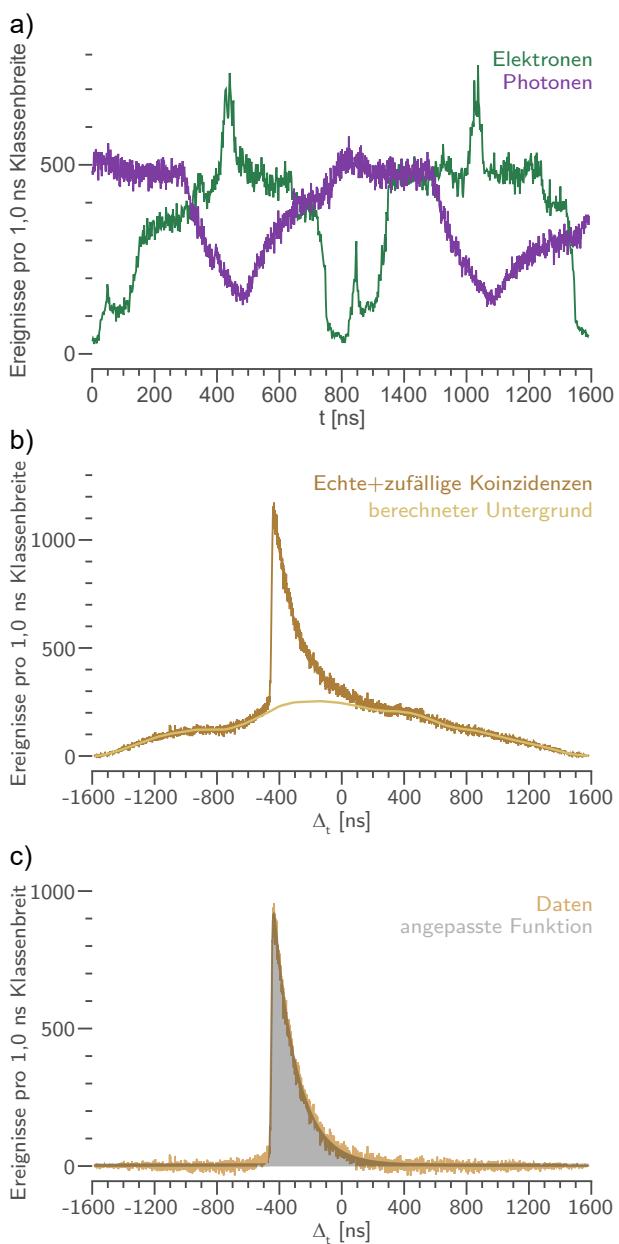


Abbildung 6.5a zeigt die HDV  $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{El}})$  und  $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{Ph}})$  der Elektron-Photon Koinzidenzen. Diese lassen eine physikalische Interpretation des Elektronenflugzeitspektrums und der zeitabhängigen Intensität der Photonenemission wegen des statistisch verteilten zeitlichen Abstands zwischen dem Bunchmarker als Referenzuhr und dem anregenden Photonenpuls kaum zu. Die  $\Delta_t$ -Darstellung in Abbildung 6.5b andererseits zeigt eine einzelne asymmetrische Struktur auf einem nicht konstanten Untergrund, was qualitativ durch die Ergebnisse des simulierten  $\Delta_t$ -Spektrums in Abbildung 6.3 für einen offenen Elektron-Photon Koinzidenzanals gemäß dem Prozess 6.3.3 zu erwarten ist. Der über die ArTeD Methode bestimmte Untergrund gemäß Gleichung 6.2.20 zeigt in den Bereichen  $\Delta_t < -800 \text{ ns}$  und  $\Delta_t > 800 \text{ ns}$  eine gute Übereinstimmung mit  $H_{\text{El-Ph}}(\Delta_t)$ , wie zuvor für die Daten, welche während einer Messzeit im SB Modus erhalten wurden. Analog zu der vorigen Bestimmung wurde der Bereich  $\Delta_t < -800 \text{ ns}$  zur Skalierung des Untergrunds gemäß 6.2.22 bestimmt.

Die gute Übereinstimmung zwischen bestimmten Untergrund und  $H_{\Delta_t}(dt)$  zeigt sich auch nach Abzug des Untergrunds in Abbildung 6.5c, da hier nur die in 6.5b sichtbare Struktur auf einem nahezu konstanten Untergrund übrig bleibt. Geringe negative Häufigkeitsdichten lassen sich durch die bereits in Abbildung 6.5b sichtbare Statistik der Messung erklären. An das so erhaltene Signal lässt sich die durch Gleichung 6.1.4 approximierte Form von  $H_{\Delta_t,\text{echt}}(\Delta_t)$  anpassen, welche eine Lebensdauer der Photonen emittierenden Zustände von  $\tau = (148,1 \pm 0,8) \text{ ns}$  ergibt. Ein Vergleich mit einer Übersicht von experimentell erhaltenen Lebensdauern [194] zeigt eine gute Übereinstimmung mit Experimenten, welche ebenso Elektron-Photon Koinzidenzen gemessen haben. Hier ergaben sich die Lebensdauern zu  $\tau = 150 \text{ ns}$  [44],  $\tau = (138 \pm 12) \text{ ns}$  [181] und  $\tau = (140 \pm 7) \text{ ns}$  [195]. Die mittlere Flugzeit der Elektronen ergibt sich für die Approximation durch eine Gauß-Funktion zu  $t_0 = (-450,6 \pm 0,1) \text{ ns}$  mit einer FWHM von  $(2,90 \pm 0,06) \text{ ns}$ . Diese kann im Prinzip zur Bestimmung der Bindungsenergie herangezogen werden.

Alternativ lässt sich durch Kenntnis der Lebensdauer  $\tau$  das unverbreiterte Elektronenspektrum  $H_{\text{El},\text{echt}}(-t_{\text{El}})$  durch einen Entfaltungsansatz gewinnen, bei welchem die Detektionszeitabhängigkeit der Photonenhäufigkeit über einen exponentiellen Ansatz gemäß Gleichung 2.3 unter Verwendung der durch die Anpassung gefundenen Lebensdauer modelliert wird. Das Signal aus Abbildung 6.5c wird mit Hilfe eines gewichteten, gleitenden Durchschnitts vergleichbar zu dem Vorgehen in Abschnitt 4.3 geglättet, um den Einfluss des statistischen Rauschens zu minimieren und ist zusammen mit dem Ergebnis der Entfaltung in Abbildung 6.6a dargestellt. Diese zeigt eine einzelne, zeitlich stark lokalisierte Struktur, welche anschließend über eine Zeit-zu-Energie Konvertierung als Funktion der kinetischen Energien erhalten werden kann. Für die Bestimmung der für die Konvertierungstabelle notwendigen Datenpunkte wurden Elektron-

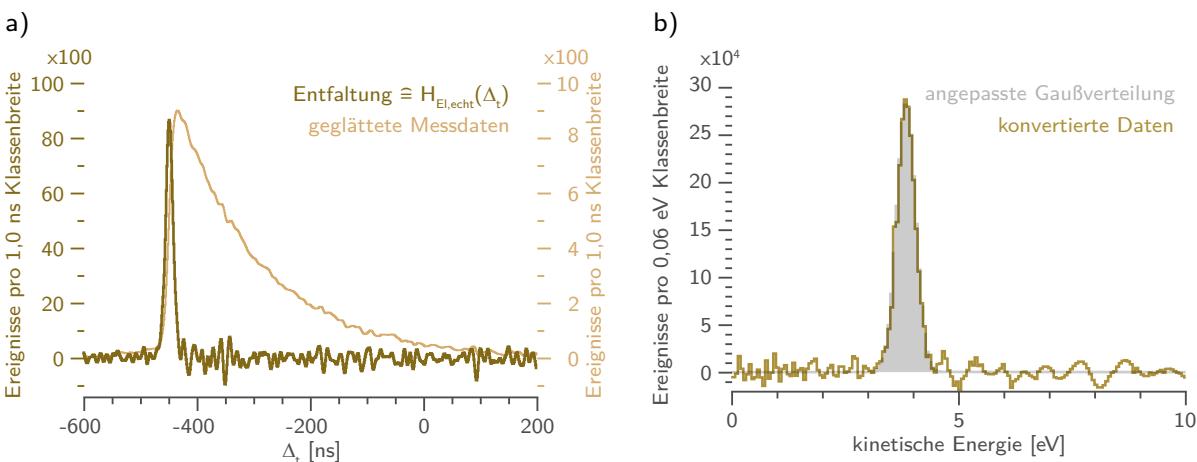


**Abbildung 6.5:** Elektron-Photon Koinzidenzmessung nach der Anregung von molekularen  $\text{CO}_2$  mit  $h\nu = 22,0 \text{ eV}$  Photonen und einer Beschleunigungsspannung von  $U_{\text{Bes}} = 4 \text{ V}$  ( $U_1 = U_2 = 4 \text{ V}$ ) bei einer Messdauer von 73 min.

- $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{El}})$  und  $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{Ph}})$  der in Koinzidenz gemessenen Elektronen und Photonen.
- $\Delta_t$ -Darstellung der Elektron-Photon Koinzidenzen sowie der über die ArTeD Method bestimmte Untergrund.
- $H_{\Delta_t,\text{echt}}(\Delta_t)$  sowie die durch Gleichung 6.1.4 approximierte Form der Struktur. Die Parameteroptimierung erfolgte durch Minimierung der Abstandsquadrate.

Photon Koinzidenzen genutzt, welche aus RCT Prozessen in NeKr Clustern stammen. Dieser Prozess wurde zuvor mit dem identischen Messaufbau untersucht [79] und lässt sich durch Photonenenergien induzieren, welche an dem Strahlrohr U125/2 10m NIM nutzbar sind. Eine grafische Darstellung der Konvertierungsfunktion ist in Anhang A zu finden.

Das Ergebnis der Zeit-zu-Energie Konvertierung ist in Abbildung 6.6b dargestellt und zeigt eine Struktur, die mit Hilfe einer Gaußfunktion approximiert wurde (grau schattierte Fläche). Die zentrale kinetische Energie der so approximierten Verteilung ergibt sich zu  $E_{\text{El,kin}}(3,84 \pm 0,06) \text{ eV}$ , was für eine Photonenanregungsenergie von  $h\nu = (22,000 \pm 0,007) \text{ eV}$  einer Bindungsenergie von  $E_{\text{El,Bind}} = (18,16 \pm 0,07) \text{ eV}$  entspricht. Für den Fehler der kinetischen Energie wird trotz der großen statistischen Unsicherheit der verwendeten Kalibration die verwendete Klassenbreite als Fehler angenommen, da die große statistische Unsicherheit der Kalibration aus der geringen Zahl an (nah benachbarten) Datenpunkten folgt. Für die Umrechnung der Detektionszeit in die Bindungsenergie ist weiterhin keine Extrapolation der Konvertierungsvorschrift notwendig und die Kalibrationsdatenpunkte zeigen eine sehr gute Übereinstimmung mit dem Bestwert der Kalibration. Der Wert von  $E_{\text{El,Bind}} = (18,16 \pm 0,07) \text{ eV}$  ist vergleichbar mit bereits zuvor berichteten Werten für die Anregungsenergie des  $\text{CO}_2 X(0,0,0) \rightarrow \text{CO}_2^+ B(0,0,0)$  Übergangs [196] von  $E_{\text{El,Bind}} = 18,1 \text{ eV}$ .



**Abbildung 6.6:** a)  $H_{\Delta_t, \text{echt}}(\Delta_t)$ -HDV der gemessenen Elektron-Photon Koinzidenzen und über Entfaltung erhaltene Flugzeitspektrum der koinzidenten Elektronen  $H_{\text{El}, \text{echt}}(-t_{\text{El}})$ . b) Zeit-zu-Energiekonvertierung der Elektronenflugzeiten mit über eine Gaußfunktion angepasste Verteilungsfunktion.

Für die Untersuchung des Einflusses von mehreren echten Elektron-Photon Koinzidenzkanälen auf die sich ergebende HDV  $H_{\Delta_t}(\Delta_t)$  wurde auf Simulationsdaten zurückgegriffen, da hier einzelne Parameter isoliert voneinander betrachtet werden können. Zusätzlich kann so die Güte des aus der ArTeD Methode erhaltenen Untergrunds für diesen Fall getestet werden. Dazu wurden die zu erwartenden Ereignisse der nicht koinzidenten Elektronen und Photonen und der Elektron-Photon Koinzidenzen als mehrstufiges Zufallsexperiment ereignisbasiert simuliert, sodass die Simulationen einen zu den Messdaten vergleichbaren Datensatz erzeugen (Anhang B). Diese können somit in gleicher Weise wie die tatsächlichen Messdaten des TDCs sortiert und ausgewertet werden. Als Grundlage für die Simulation dienen die Messungen von Hans et al. an Argonclustern nach der Anregung mit  $h\nu = 449 \text{ eV}$  Photonen [80], welche im ersten Teil dieses Abschnitts für den Vergleich der SuTeD und ArTeD Methode verwendet wurden.

Für die zuvor bestimmte Lebensdauer der lumineszierenden Zustände  $\tau = 4,6 \text{ ns}$  sind die Simulationsergebnisse der koinzidenten Verteilungen  $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{El}})$  und  $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{Ph}})$  in Abbildung 6.7a dargestellt. Der stark ausgeprägte Unterschied zwischen den gemessenen Ereignissen im Bereich von  $t \leq 800 \text{ ns}$  und  $t \geq 800 \text{ ns}$  ist eine Folge des heuristisch bestimmten Verhältnisses der zufälligen und echten Koinzidenzen. Dieser ist auch in den Messungen von CO<sub>2</sub> erkennbar, dort allerdings in einem geringen Maße. Wie erwartet lässt sich in  $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{El}})$  kein interpretierbares Elektronenflugzeitspektrum erkennen.  $H_{\Delta t}(\Delta t)$  in Abbildung 6.7b zeigt andererseits mehrere gut erkennbare Strukturen auf einem nicht konstanten Untergrund von zufälligen Koinzidenzen. Es wird ebenfalls deutlich, dass der über die ArTeD Methode bestimmte Untergrund auch für mehrere echte Elektron-Photon Koinzidenzkanäle eine gute Approximation ist. Dies ist bei einem Vergleich mit dem simulierten Messsignal der Elektron-Photon Koinzidenzen in den Zeitbereichen  $\Delta t < -800 \text{ ns}$  und  $\Delta t > 0 \text{ ns}$  erkennbar, für welche nur zufällige Koinzidenzen erwartet werden.

6.7c zeigt das Signal nach Abzug des Untergrunds, welches in identischer Weise zu den CO<sub>2</sub>-Daten in Abbildung 6.6 geglättet und entfaltet wurde. Dies wird mit den echten Koinzidenzen der Messdaten verglichen, welche mit Hilfe der SuTeD Methode wie zuvor beschrieben ausgewertet und hier auf die Fläche der Simulationsdaten reskaliert wurden. Dies ermöglicht einen Vergleich der simulierten Daten vor und nach Abzug des Untergrunds und zeitgleich einen qualitativen Vergleich mit der für den MBH Modus simulierten Flugzeitspektrums mit dem im SB gemessenen Flugzeitspektrum, welches mit der SuTeD Methode ausgewertet wurde. Es zeigt sich insgesamt eine gute Übereinstimmung zwischen den gemessenen und simulierten Flugzeitspektren, wobei die Abweichung der relativen Intensitäten sowie der Verschiebung der Struktur bei  $\Delta t = -150 \text{ ns}$  aus den heuristisch erhaltenen Verteilungen resultieren, welche für die Simulation genutzt wurden. Im Gegensatz zu dem Vergleich der ArTeD und SuTeD Methode der gemessenen Daten in Abbildung 6.4 sind diese hier kaum gegeneinander verschoben, da innerhalb der Simulation die konstante Verschiebung auf Grund der Signalübertragung und -verarbeitung auf 0 ns für das Photonen- und Elektronensignal gesetzt wurde.

Um zu überprüfen, welchen Einfluss die Lebensdauer der lumineszierenden Zustände auf dieses Ergebnis hat, wurden die entsprechenden Verteilungen für  $\tau_{\text{Sim}} = 40 \text{ ns}$  simuliert und ergeben die in Abbildung 6.7(d-f) dargestellten Verteilungen. Die restlichen Simulationsparameter wurden identisch zu der Simulation für  $\tau = 4,6 \text{ ns}$  gewählt, um einen Vergleich zwischen diesen zu ermöglichen und führen auch zu einer vergleichbaren Zahl der Elektron-Photon Koinzidenzen von  $(301 \pm 1) \cdot 10^3$  Koinzidenzereignissen. Die vergrößerte Lebensdauer führt zu einer Umverteilung der Photonendetektionszeiten in Abbildung 6.7d und damit zu einer Verbreitung der Strukturen in der  $\Delta t$ -Darstellung 6.7(e+f), sodass die Strukturen im Zeitbereich von  $-250 \text{ ns}$  bis  $-350 \text{ ns}$  nicht mehr aufgelöst werden können. Dies entspricht dem zu erwartenden Verhalten. Mit Hilfe der Entfaltung von Elektronenflugzeit und Photonendetektionszeit lassen sich diese separieren und führen zu einer guten qualitativen Übereinstimmung mit den über die SuTeD Methode ausgewerteten Messdaten sowie mit dem für  $\tau = 4,6 \text{ ns}$  erhaltenen Verlauf in Abbildung 6.7c. Für  $\tau_{\text{Sim}} = 40 \text{ ns}$  führt die Entfaltung jedoch trotz der identischen Glättung bei gleichen Koinzidenzzahlen zu einem starken Einfluss des Rauschens, sodass die Struktur bei  $-180 \text{ ns}$  sich nur schwach von dem Rauschsignal abhebt. Da eine stärkere Glättung des in die Entfaltung eingehenden Signals zu einer Verbreitung der erhaltenen Strukturen führt, deutet dies darauf hin, dass bei einer starken Verbreiterung der  $\Delta t$ -Verteilung durch eine große Lebensdauer der lumineszierenden Zustände eine größere Zahl an Koinzidenzen detektiert werden müssen. Dadurch kann das Signal-zu-Rausch Verhältnis verbessert werden ohne die Daten zu stark glätten zu müssen.

Ein weiterer Punkt, der im Fall nicht vorhandener theoretischer Modelle bedacht werden muss, ist die Bestimmung der Lebensdauer, welche zur Entfaltung genutzt wird. In dem hier gezeigten Beispiel ist der Überlapp der Strukturen in  $H_{\text{El-Ph, echt}}(\Delta_t)$  so groß, dass eine Bestimmung der Lebensdauer über Gleichung 6.1.3 nur durch eine Summation über verschiedene Verteilungen erreicht werden kann, was zu einer großen Zahl von anzupassenden Parametern führt. Alternativ kann versucht werden  $H_{\text{El-Ph}}(t_{\text{Ph}})$  in Abbildung 6.7d mit einem exponentiellen Zerfall anzupassen und so eine für die Entfaltung nutzbare Lebensdauer zu bestimmen, da hier die Parameter der Elektronen nicht mit eingehen. Für den Fall, dass nur ein Photonenemissionskanal detektierbar ist, kann für eine bessere Statistik der Messung auch das Signal der nicht in Koinzidenz gemessenen Photonen verwendet werden. Bei der gewählten Lebensdauer von  $\tau_{\text{Sim}} = 40 \text{ ns}$  ist der durch den einzelnen Anregungspuls des MBH Modus bei  $t \approx 401 \text{ ns}$  noch ausreichend von der durch den Multibunchanteil induzierten Verteilung und dem folgenden PPRE-Puls separiert und eignet sich daher für die Anpassung der beobachtbaren Lebensdauern. Diese Anpassung liefert eine Lebensdauer von  $\tau_A = (37 \pm 4) \text{ ns}$  und zeigt bereits für die genutzte Lebensdauer  $\tau_{\text{Sim}}$  eine Abweichung von 7,5 % des Bestwerts auf Grund des Einflusses der zeitlich benachbarten Anregungspulse. Es kann daher davon ausgegangen werden, dass dieser Ansatz für größere Lebensdauern nicht mehr zielführend sein wird.

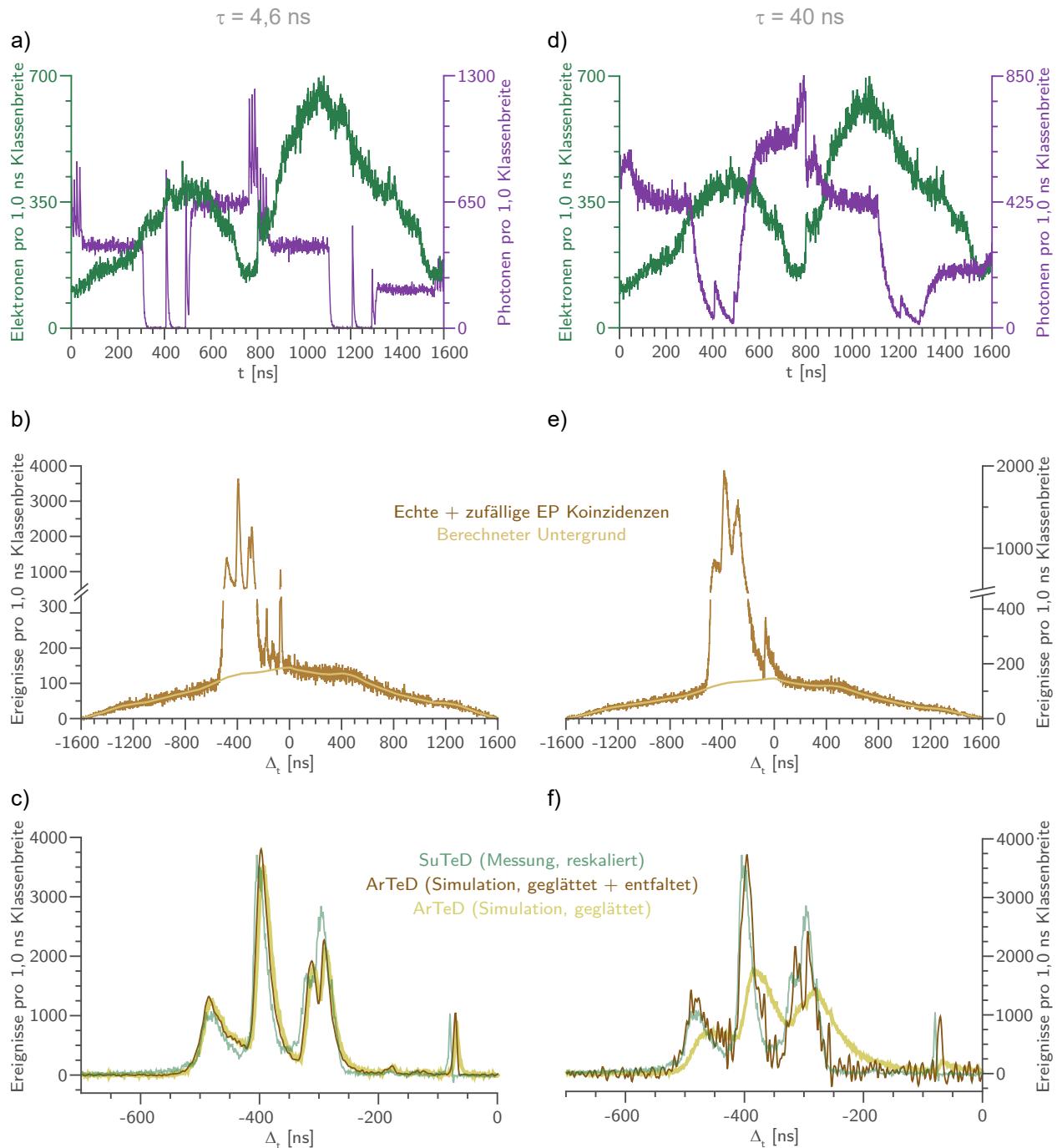
Darüber hinaus liegt hier der einfache Fall vor, dass nur eine Lebensdauer für die Simulation der Photonendetektionszeiten verwendet wird. In komplexeren Fällen von verschiedenen Lebensdauern, deren Zuordnung zu den verschiedenen echten und zufälligen Koinzidenzen unklar ist, muss auch hier ein Superpositionsansatz der zeitabhängigen Intensitäten  $I_{\tau_i}(\tau_i)$  durchgeführt werden. Hierbei kann ausgenutzt werden, dass sich diese in Beiträge von echten und zufälligen Koinzidenzen aufteilen lässt gemäß

$$H_{\text{Ph}}^{\text{koinzident}}(t_{\text{Ph}}) = \frac{N_{\text{El-Ph, echt}}}{N_{\text{El, Ph}}} \cdot \left( \sum_i I_{\tau_i}(\tau_i) \right) + \frac{N_{\text{El-Ph, zufällig}}}{N_{\text{El, Ph}}} \cdot \left( \sum_j I_{\tau_j}(\tau_j) \right), \quad (6.3.3)$$

wobei sich  $N_{\text{El-Ph, echt}}$  und  $N_{\text{El-Ph, zufällig}}$  aus der ArTeD Auswertung ergeben.

Die Situation ändert sich stark, falls  $H_{\text{El, echt}}(t_{\text{El}})$  oder  $H_{\text{Ph, echt}}(t_{\text{Ph}})$  sich aus theoretischen Modellen ableiten lassen. Dann kann die Messung von Elektron-Photon Koinzidenzen bei beliebigen Zeitstrukturen der anregenden Pulse und anschließende Auswertung über die ArTeD Methode mit diesen gut verglichen werden, da hierdurch der Satz der für die Entfaltung der Signale notwendigen Parameter stark eingeschränkt werden kann. Sind sowohl  $H_{\text{El, echt}}(t_{\text{El}})$  als auch  $H_{\text{Ph, echt}}(t_{\text{Ph}})$  aus theoretischen Modellen ableitbar, können diese auch direkt über Gleichung 6.1.3 mit den Ergebnissen aus der ArTeD Methode verglichen werden.

Auf Grundlage dieser Simulationen am Beispiel des MBH Modus von BESSY II kann insgesamt angenommen werden, dass die ArTeD Methode auch bei realen Messungen mit mehreren offenen Elektron-Photon Koinzidenzkanälen bei einer beliebigen Zeitstruktur der anregenden Photonenpulse zu einem interpretierbaren Signal führt. Die so erhaltenen Ergebnisse liefern dabei eine Übereinstimmung mit den für eine Anregung durch Pulse mit ausreichen großen zeitlichen Abstand erhaltenen und über die SuTeD Methode ausgewerteten Signalen. Die Auswertung solcher Daten kann bei einem starken Überlapp der Strukturen ohne Teilkenntnis der involvierten Prozesse und damit verbundenen Größen aber herausfordernd sein.



**Abbildung 6.7:** Simulation von approximierten Elektron-Photon Koinzidenzen von Argon Clustern nach einer Anregung mit  $h\nu = 449 \text{ eV}$  Photonen im Multibunch Hybrid Modus von BES-SY II (HZB, Berlin) auf Grundlage der im Singlebunch von BESSY II erhaltenen Messdaten [80] (Abbildung 6.4) für die ursprüngliche Lebensdauer der lumineszierenden Zustände von  $\tau = 4,6 \text{ ns}$  (a-c) sowie für eine Lebensdauer der lumineszierenden Zustände von  $\tau = 40 \text{ ns}$  (d-f). Für die Entfaltung in (f) wurde die angepasste Lebensdauer von  $\tau_A = (37 \pm 4) \text{ ns}$  genutzt. Die Fläche der Messdaten wurde auf die Fläche der Simulationsdaten reskaliert, um einen Vergleich des simulierten Signals vor und nach dem Abzug des Untergrunds zufälliger Koinzidenzen sowie einen qualitativen Vergleich zwischen Simulation und Messdaten zu ermöglichen. Die Gesamtzahl der simulierten Ereignisse beträgt  $2,5 \cdot 10^7$  Ereignisse, von denen  $5,5 \cdot 10^5$  Ereignisse zu El-Ph-Koinzidenzen führen. Hierfür wurde  $Q_{\text{El}} = 0,9$  und  $Q_{\text{Ph}} = 0,05$  angenommen. Details der Simulation sind in Anhang B zu finden.



## KAPITEL 7

### ZUSAMMENFASSUNG UND FAZIT

Gegenstand dieser Arbeit war die Weiterentwicklung effizienter Detektions- und Identifikationsmethoden von korrelierten Elektron- und Photonenemissionsprozessen, welche durch die Anregung mit hochenergetischen Photonen induziert wurden. Speziell für die Messung von Photonen ist die Detektionseffizienz ein kritischer Parameter, da diese im Gegensatz zur Detektion geladener Teilchen nicht durch die Verwendung magnetischer oder elektrischer Felder gesteigert werden kann. Die anregenden Photonen werden hierbei von Synchrotronstrahlungsanlagen zur Verfügung gestellt, an denen die Durchführungszeit von Experimenten auf Grund der hohen Nachfrage stark limitiert ist und die zur Untersuchung physikalischer Prozesse notwendigen Messergebnisse damit in möglichst kurzer Zeit erreicht werden müssen. Die verfügbare Zeit zur Durchführung der Experimente wird zusätzlich dadurch reduziert, dass nicht jeder Betriebsmodus von Synchrotronstrahlungsanlagen, welche sich in der zeitlichen Struktur der zirkulierenden Elektronenpakete und damit verbunden der anregenden Photonenpulse unterscheiden, für zeitabhängige Messungen nur eingeschränkt verwendet werden kann.

Der Fokus des ersten Teils dieser Arbeit lag daher darauf zu zeigen, wie ein Spiegelsystem an ein existierendes Experiment zur Detektion von Elektronen von Teilchenstrahlen nach der Anregung mit Synchrotronstrahlung angepasst werden kann. Die hierdurch erreichbaren Elektron-Photon Koinzidenzdetektionsraten sind nach Kapitel 5 ausreichend hoch, um Messungen innerhalb der von Synchrotronstrahlungsanlagen zur Verfügung gestellten Zeiten zu erlauben. Das Spiegelsystem nutzt dabei den durch das Elektronenspektrometer ungenutzten freien Raum um das Interaktionsvolumen bestmöglich aus, wodurch der geometrisch einsehbare Raumwinkel der Photondetektion maximiert wird. Dieses System wurde erfolgreich bei Testmessungen von Elektron-Photon Koinzidenzen nach der Anregung von atomarem Helium und atomarem Argon getestet. Der effektive relative Raumwinkel der Photondetektion unter Verwendung des Spiegelsystems wird mit Hilfe der bekannten Wirkungsquerschnitte von Helium auf  $d\Omega_{\text{Det}+\text{Sp}}^{\text{eff}} \geq 0,875\%$  abgeschätzt. Dieser Wert stellt gegenüber dem effektiven relativen Raumwinkel des Detektors ohne weitere Optiken von  $d\Omega_{\text{Det}} \approx 0,075\%$  eine starke Erhöhung dar. Dieser Wert liegt allerdings noch immer weit unter dem durch den geometrischen Raumwinkel erreichbaren Wert. Dies wird zum Einen der Oberflächenoxidation des Aluminiumspiegels zugeschrieben, durch welche die Reflektivität in diesem Wellenlängenbereich stark reduziert wird. Zum Anderen wurde für diese Abschätzung wegen der unbekannten Quanteneffizienz des Photonendetektors bei der detektierten Photonenwellenlänge von 164,04 nm statt dessen die maximale Quanteneffizienz des Detektors herangezogen. Damit stellt der so bestimmte Wert eine untere Grenze dar und es liegt nahe, dass die echte Steigerung größer ausfällt als hier angegeben. Insbesondere konnte der hier vorgestellte und diskutierte Aufbau von uns bereits erfolgreich für den Nachweis von RCT-Prozessen eingesetzt werden, welche in echten Elektron-Photon Koinzidenzen resultieren [79, 80].

Ein Vergleich mit anderen Spiegelsystemen, so zum Beispiel [41, 58, 59], ist allerdings aufgrund der abweichenden untersuchten Prozesse und damit verbunden auch den jeweiligen Wirkungsquerschnitten nur bedingt möglich. Ein Vergleich mit der Arbeit von Meyer et al. [58] zur Untersuchung von Ion-Photon Koinzidenzen zeigt aber, dass die mit Spiegelsystemen abdeckbaren Raumwinkel noch vergrößert werden können, wenn die verwendeten Detektorsysteme dies erlauben und dies als zentraler Aspekt des Experiments definiert wird. So wurde hier ein relativer Raumwinkel von  $\approx 60\%$  erreicht und zusätzlich eine entsprechende Beschichtung des Spiegels zur Erhöhung der Reflektivität in dem zu untersuchenden Spektralbereich genutzt. Das dort vorgestellte Spiegeldesign ist für die im Rahmen dieser Arbeit genutzte Flasche in dieser Form allerdings nicht nutzbar. Das im Rahmen dieser Arbeit genutzte Spiegelsystem kann daher als sehr gute Lösung zur Integration einer effizienten Photonendetektion in ein bestehendes Experiment zur effizienten Detektion von Elektronen angesehen werden. Mögliche Weiterentwicklung werden für die hier diskutierte Kombination aus Elektronen- und Photonendetektion daher vor allem im Bereich der Oberflächenbeschichtung des Spiegelsystems gesehen.

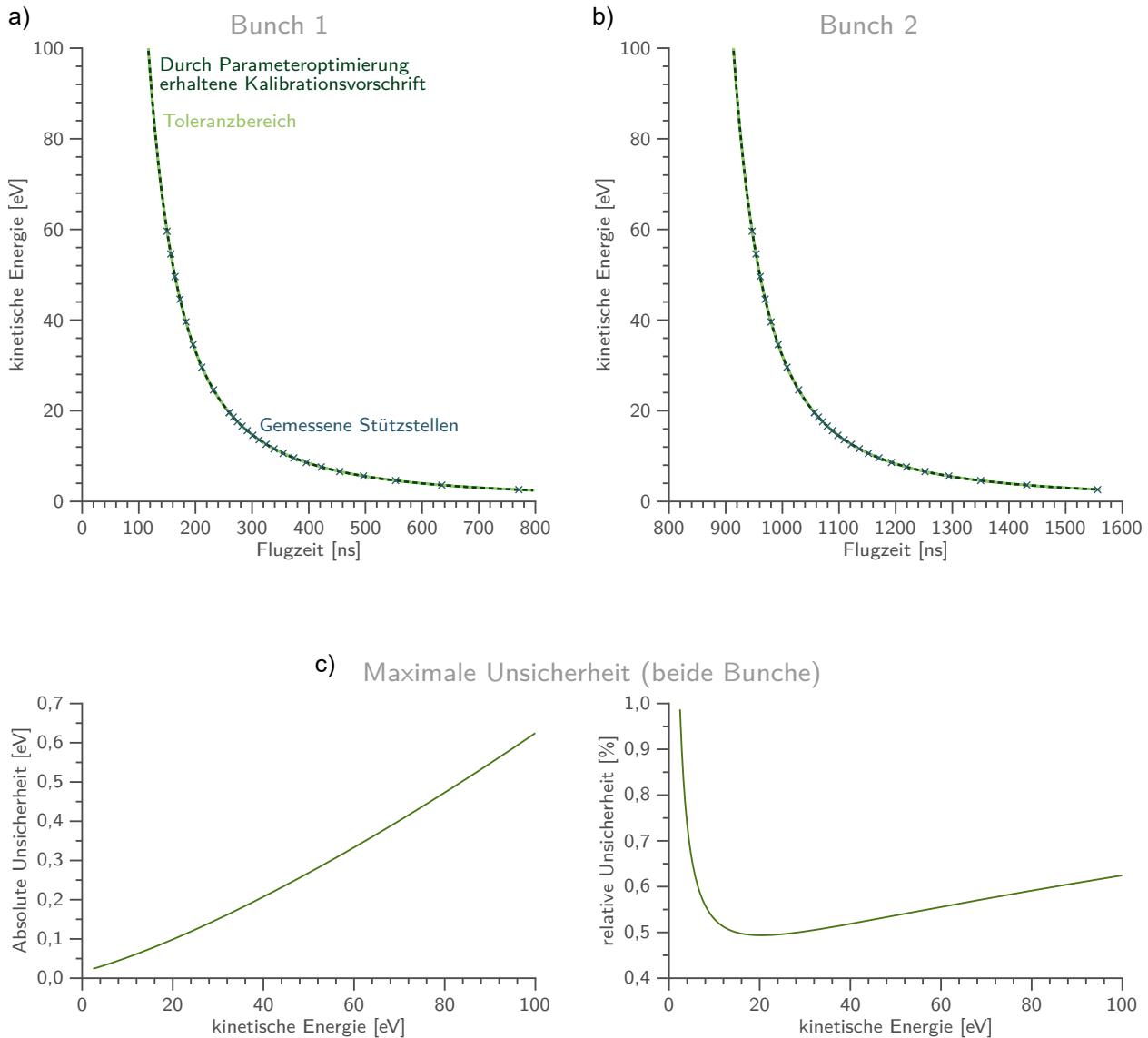
An Hand der Identifikation der  $3s$ -Satellitenzustände bei der Anregung von atomaren Argon mit einer Photonenenergie von  $h\nu = 449\text{ eV}$  wurde für den Fall von Anregungspulsen mit ausreichend großem zeitlichen Abstand weiterhin gezeigt, dass mit Hilfe dieses Aufbaus zur Elektron-Photon Koinzidenzdetektion auch Anregungskanäle identifiziert werden können, welche allein mit der Detektion der Elektronen nicht direkt messbar sind. Zusätzlich illustriert dieses Beispiel, wie die Messung aller auftretenden Teilchenkombinationen durch einen Verzicht auf eine Hardware basierte Koinzidenzmessung bei der Interpretation der erhaltenen Daten helfen kann.

Im zweiten Teil der Arbeit wurde die Messung der Elektron-Photon auf Anregungsmuster mit beliebigem zeitlichen Abstand zwischen den anregenden Pulsen verallgemeinert und hierfür auf Grundlage der bekannten Darstellung der Koinzidenzen über die Zeitdifferenzen zwischen den beteiligten Teilchen eine ereignisbasierte Modellierung des Untergrunds zufälliger Koinzidenzen dargestellt. Diese nutzt insbesondere die zeitgleiche Messung der koinzidenten und nichtkoinzidenten Teilchen aus, um so den Untergrund auf einfache Weise zu bestimmen. Im Grenzfall von zeitlich stark separierten Anregungspulsen und kurzen Lebensdauern der fluoreszierenden Zustände führt diese Methode auch bei mehreren möglichen Elektronenemissionskanälen zu mit der zuvor genutzten Methodik vergleichbaren Ergebnissen. Dies wurde am Beispiel von Elektron-Photon Koinzidenzen illustriert, welche aus der Anregung von Argon-Clustern mit einer anregenden Photonenenergie von  $h\nu = 449\text{ eV}$  Photonen resultieren. Messungen im Multibunch Hybrid Modus von BESSY, bei denen molekulares  $\text{CO}_2$  mit  $h\nu = 22\text{ eV}$  Photonen angeregt wurde, zeigen eine gute Übereinstimmung mit der aus der Literatur bekannten Anregungsenergie und Lebensdauer des  $\text{CO}_2^+ B(0,0,0)$  Zustands und damit die Anwendbarkeit der Methode für einen möglichen Elektron-Photon Koinzidenzprozess. Mit Hilfe einer auf mehrstufigen Zufallsexperimenten beruhenden ereignisbasierten Simulation der Elektron-Photon Koinzidenzen konnte diese Aussage darüber hinaus auf den Fall erweitert werden, bei denen mehr als ein möglicher Elektronenemissionskanal in Koinzidenz mit Photonen detektiert werden kann.

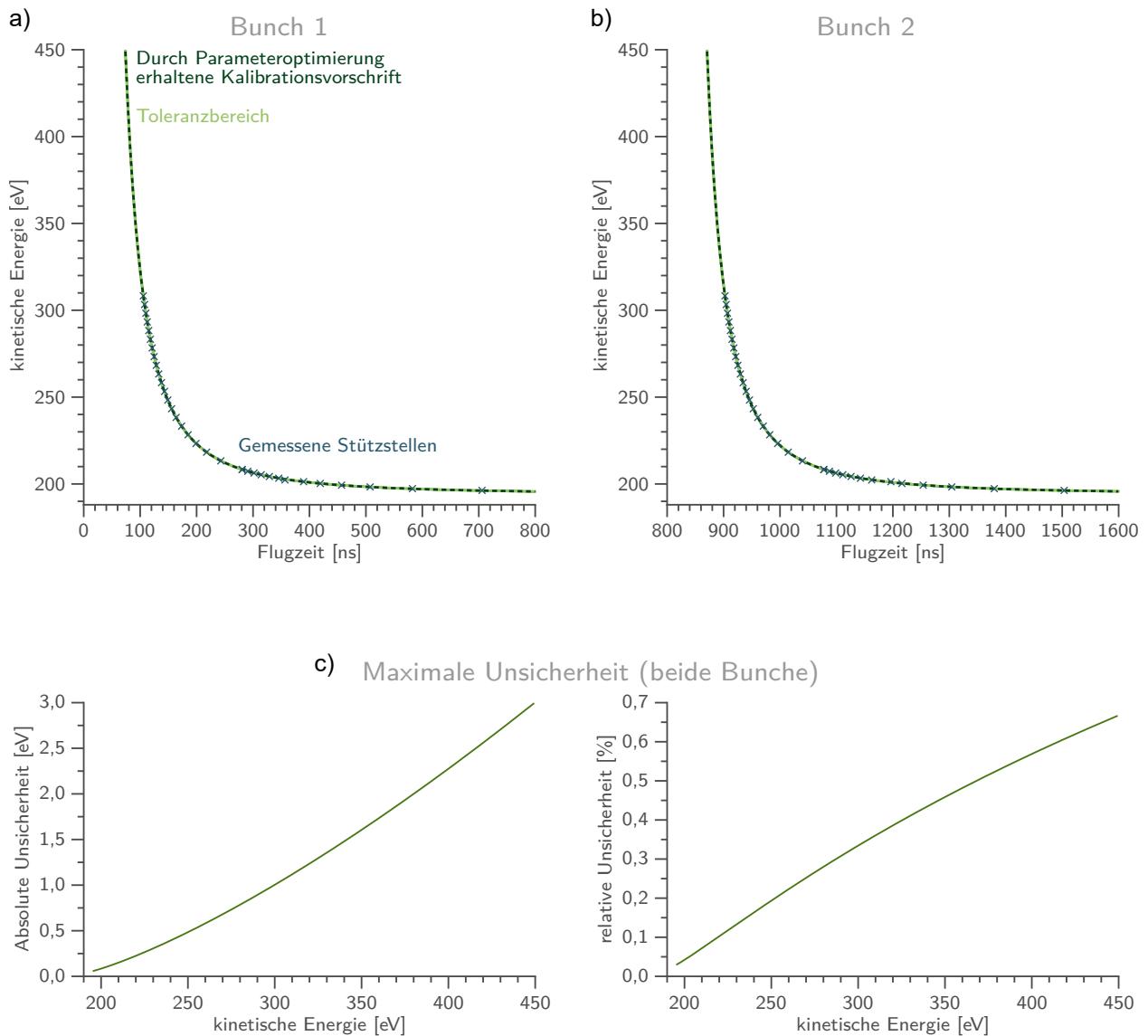
## ANHANG A

### ZEIT-ZU-ENERGIE KONVERTIERUNGEN

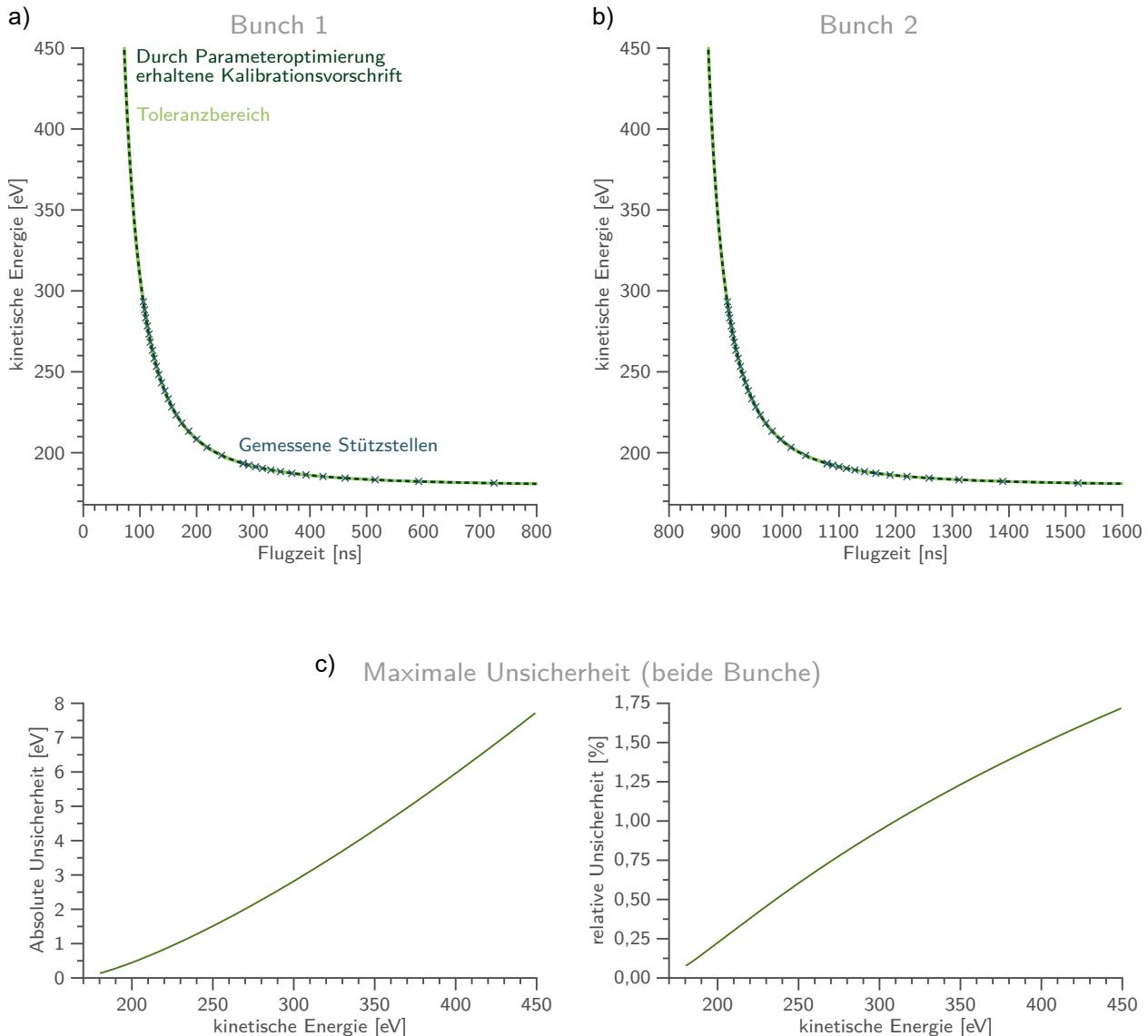
Im folgenden werden die verschiedenen Konvertierungsfunktionen inklusive der berechneten Unsicherheiten für die Auswertung der Experimente gezeigt. Die Bestimmung erfolgte gemäß des in Abschnitt 4.3 beschriebenen Vorgehens. Dabei wurde der dort zuletzt vorgestellte Ansatz verwendet, bei dem die Detektionszeiten über Gleichung 4.3.4 mit den entsprechenden kinetischen Energien verknüpft werden. Die Bestimmung der HDV erfolgt über die Möglichkeit 2 aus Abbildung 4.5. Eine Kalibration der Anregungsenergien der Synchrotronstrahlung erfolgte für keines der gezeigten Experimente.



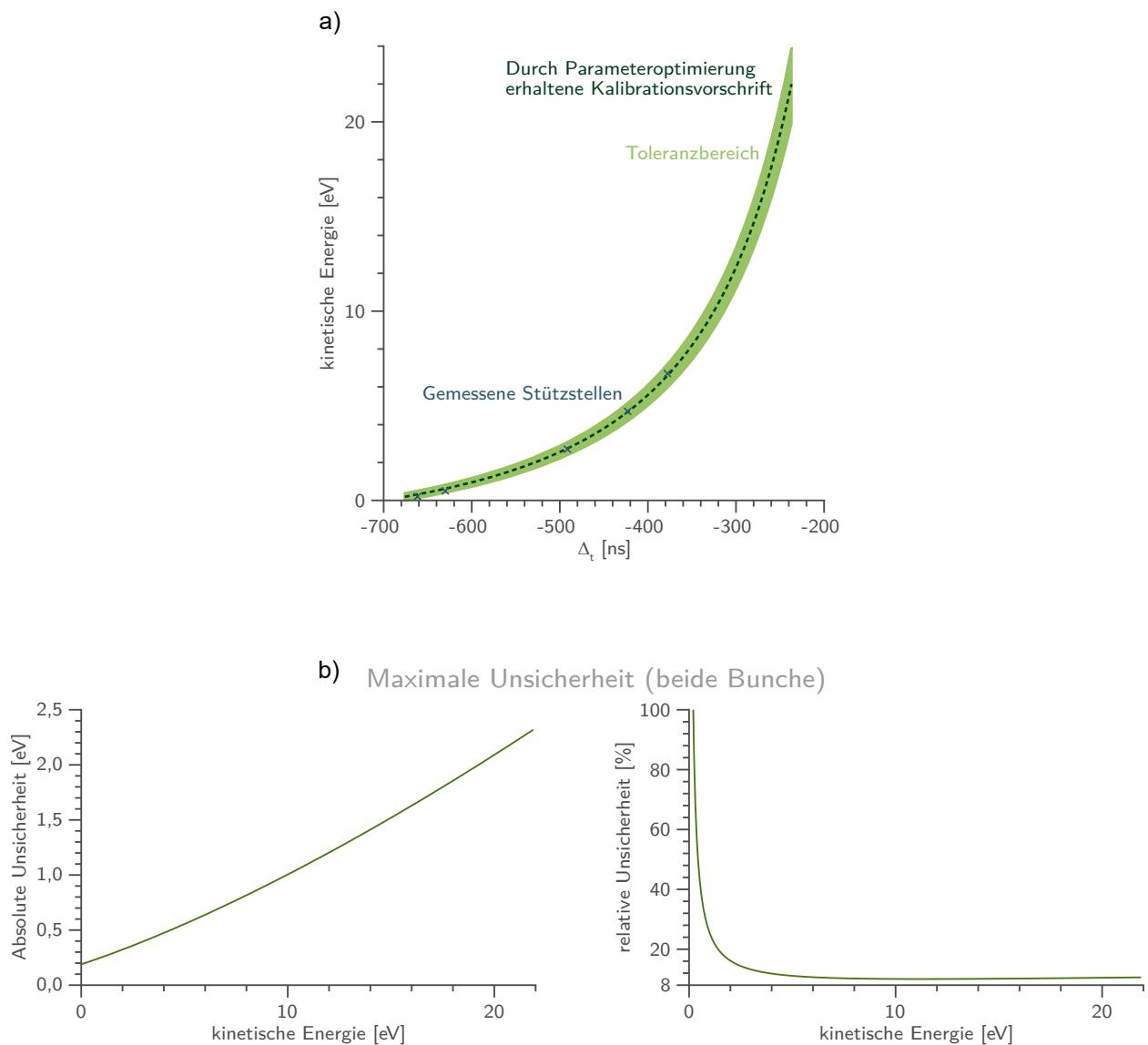
**Abbildung A.1:** Bestimmung der Zeit-zu-Energie Konvertierung der in Abschnitt 5.2 gezeigten Spektren der emittierten Elektronen von Helium. Die Spannungen der magnetischen Flaschen betragen  $U_1 = U_2 = 0\text{ V}$  bei einem Spulenstrom von  $I_B = 2,1\text{ A}$ . An dem Permanentmagneten wurde eine Spannung von  $U_{PM} = 0,1\text{ V}$  zur Verhinderung von Aufladeeffekten angelegt. Zur Kalibration wurde atomares Argon mit varierenden Photonenenergien im Bereich von  $h\nu = 248\text{ eV}$  bis  $h\nu = 308\text{ eV}$  angeregt und die Flugzeit der  $2p_{\frac{3}{2}}$  Photoionisationsstruktur sowie die daraus resultierende Konvertierungsvorschrift gemäß den Ausführungen in Abschnitt 4.3 bestimmt. Die Bindungsenergie der Struktur beträgt  $E_B = 248,63\text{ eV}$  und wurde [147] entnommen. Die Konvertierung über  $E(t)$  und  $t(E)$  liefert äquivalente Konvertierungsvorschriften für die beiden Zeitbereiche der aufeinanderfolgenden Anregungspulse sowie Unsicherheiten der Konvertierung. Die Unsicherheit der Datenpunkte ist geringer als die Symbolgröße und daher nicht mit angegeben.



**Abbildung A.2:** Bestimmung der Zeit-zu-Energie Konvertierung der in Abschnitt 5.2 gezeigten Spektren der emittierten Elektronen von Argon, bei denen die Spannungen der magnetische Flaschen  $U_1 = U_2 = -190\text{ V}$  betragen. Der Spulenstrom wurde auf  $I_B = 2,1\text{ A}$  eingestellt und an dem Permanentmagneten wurde eine Spannung von  $U_{PM} = 0,1\text{ V}$  zur Verhinderung von Aufladeeffekten angelegt. Zur Kalibration wurde atomares Neon mit varierenden Photonenenergien im Bereich von  $h\nu = 210\text{ eV}$  bis  $h\nu = 330\text{ eV}$  angeregt und die Flugzeit der  $2p_{\frac{3}{2}}$  Photoionisationsstruktur sowie die daraus resultierende Konvertierungsvorschrift gemäß den Ausführungen in Abschnitt 4.3 bestimmt. Die Bindungsenergie der Struktur beträgt  $E_B = 21,66\text{ eV}$  und wurde [176, 177] entnommen. Die Konvertierung über  $E(t)$  und  $t(E)$  liefert äquivalente Konvertierungsvorschriften für die beiden Zeitbereiche der aufeinanderfolgenden Anregungspulse sowie Unsicherheiten der Konvertierung. Die Unsicherheit der Datenpunkte ist geringer als die Symbolgröße und daher nicht mit angegeben.



**Abbildung A.3:** Bestimmung der Zeit-zu-Energie Konvertierung der in Abschnitt 5.2 gezeigten Spektren der emittierten Elektronen von Argon, bei denen die Spannungen der magnetischen Flaschen  $U_1 = U_2 = -175$  V betragen. Der Spulenstrom wurde auf  $I_B = 2,1$  A eingestellt und an dem Permanentmagneten wurde eine Spannung von  $U_{PM} = 0,1$  V zur Verhinderung von Aufladeeffekten angelegt. Zur Kalibration wurde atomares Neon mit varierenden Photonenenergien im Bereich von  $h\nu = 195$  eV bis  $h\nu = 315$  eV angeregt und die Flugzeit der  $2p_{\frac{3}{2}}$  Photoionisationsstruktur sowie die daraus resultierende Konvertierungsvorschrift gemäß den Ausführungen in Abschnitt 4.3 bestimmt. Die Bindungsenergie der Struktur beträgt  $E_B = 21,66$  eV und wurde [176, 177] entnommen. Die Konvertierung über  $E(t)$  und  $t(E)$  liefert äquivalente Konvertierungsvorschriften für die beiden Zeitbereiche der aufeinanderfolgenden Anregungspulse sowie Unsicherheiten der Konvertierung. Die Unsicherheit der Datenpunkte ist geringer als die Symbolgröße und daher nicht mit angegeben.



**Abbildung A.4:** Bestimmung der Zeit-zu-Energie Konvertierung der in Abschnitt 6.3 gezeigten Spektren der emittierten Elektronen von  $\text{CO}_2$ . Die Spannungen der magnetischen Flaschen betragen  $U_1 = U_2 = 4 \text{ V}$  bei einem Spulenstrom von  $I_B = 2,1 \text{ A}$ . An dem Permanentmagneten wurde eine Spannung von  $U_{\text{PM}} = 0,1 \text{ V}$  zur Verhinderung von Aufladeeffekten angelegt. Zur Kalibrierung wurde der RCT von NeKr Clustern bei varierenden Photonenergien im Bereich von  $h\nu = 2 \text{ eV}$  bis  $h\nu = 22 \text{ eV}$  induziert und die Flugzeit der entsprechenden Photoionisationsstruktur sowie die daraus resultierende Konvertierungsvorschrift gemäß den Ausführungen in Abschnitt 4.3 in der  $\Delta_t$ -Representation bestimmt. Die Bindungsenergie der Struktur wurde [79] entnommen. Die Konvertierung über  $E(t)$  und  $t(E)$  liefert äquivalente Konvertierungsvorschriften sowie Unsicherheiten der Konvertierung. Die Unsicherheit der Datenpunkte ist geringer als die Symbolgröße und daher nicht mit angegeben.



## ANHANG B

### EREIGNISBASIERTE SIMULATION VON ELEKTRON-PHOTON KOINZIDENZEN

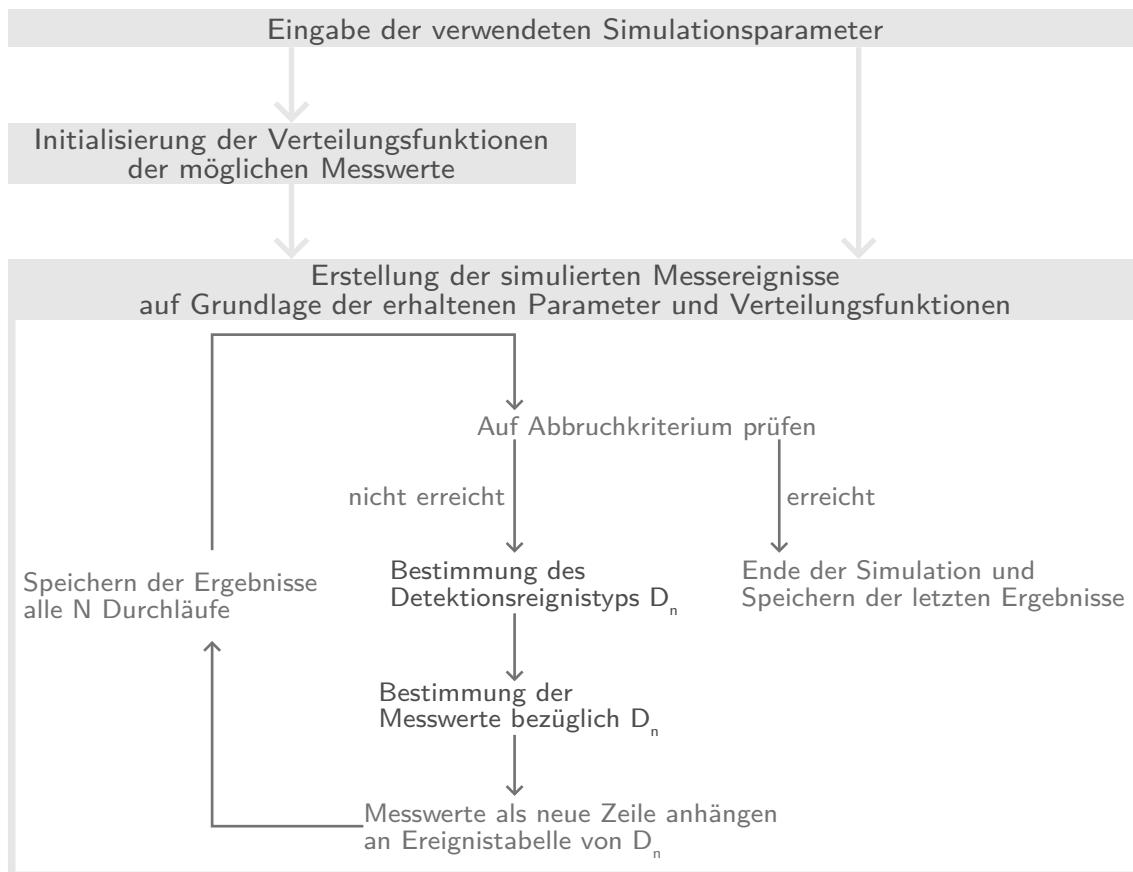
Die in dieser Arbeit gezeigten Simulationen werden dafür genutzt die Detektionszeiten der verschiedenen Teilchenkombinationen zu bestimmen, welche bei einer Messung mit dem verwendeten TDC8HP der Firma ROENTDEK zu erwarten sind [144]. Die Simulationsdaten folgen dabei der Struktur der in den Abschnitten bezüglich der Datenaufnahme (Abschnitt 3.4) und Datensortierung (Abschnitt 4.1) vorgestellten Struktur der tatsächlichen Messdaten. Dadurch entspricht das Ergebnis der Simulation den nach Teilchenkombinationen sortierten Tabellen aus Abbildung 4.1.

Insgesamt wird ein zweistufiger, stochastischer Ansatz verwendet, um die Art des Detektionereignisses sowie die simulierten Detektionszeiten der dazu beitragenden Teilereignisse zu bestimmen. Bei der Implementation wurde sich auf die Berücksichtigung der nicht in Koinzidenz gemessenen Elektronen und Photonen, der Elektron-Photon-Koinzidenzen und zu diesen Signalen beitragende Messartefakte als mögliche Ereignisse beschränkt.

Die Grundidee des Algorithmus ist es, die verschiedenen zeitlichen Verteilungen in vergleichbarer Weise zu berücksichtigen, wobei sich die Verteilungsfunktionen der Ereignisse aus den einzelnen Prozessen konstruieren lassen, welche zu diesen beitragen. Es gelten daher folgende Annahmen:

1. Alle HDV sowie die zeitliche Verteilung der anregenden Pulse lassen sich in WDV übersetzen.
2. Die insgesamt zu erwartenden HDV (WDV) lassen sich gemäß des Superpositionsprinzips aus den HDV (WDV) der einzelnen Kanäle konstruieren.
3. Die WDV der verschiedenen Ereignisse können im Rahmen der bedingten Wahrscheinlichkeiten reskaliert werden.

Abbildung B.1 zeigt einen schematischen Überblick über die durchgeführte Simulation. Als Abbruchbedingung wird hier verwendet, dass insgesamt  $N \in \mathbb{N}$  Ereignisse simuliert worden sind, die sich auf die einzelnen Ereignistabellen verteilen. Bei längeren Simulationen können die erhaltenen Simulationsdaten nach einer vorher festgelegten Zahl von Durchläufen abgespeichert werden, um so einem unnötigen Datenverlust vorzubeugen. Im ersten Schritt wird zunächst der Typ des Detektionereignisses  $D_n$ ,  $n \in \mathbb{N}$  entsprechend der WDV der verschiedenen Detektionereignisse  $P(D_n)$  aus den  $N \in \mathbb{N}$  betrachteten Ereignistypen bestimmt. Hierdurch wird festgelegt, welche der Ereignistabellen um eine Zeile erweitert wird. Anschließend werden die simulierten Detektionszeiten der Elektronen  $t_{EI}$  und  $t_{Ph}$  bestimmt, welche zu dem Detektionereignis  $D_n$  gehören.



**Abbildung B.1:** Schematische Darstellung der durchgeführten Rechnungen.

### Verwendete Simulationsparameter

Bei den Simulationsparametern wird zwischen zwei Klassen von Parametern unterschieden. Die erste Klasse beinhaltet die Parameter, welche die zu simulierenden Prozesse physikalisch beschreiben. Dies sind zunächst die  $I \in \mathbb{N}$  zu betrachtenden Emissionskanäle der Elektronen und Photonen mit den jeweiligen diskreten WDV  $P(t_X, X_i)$  bezüglich der Zeitkanäle des TDCs und dem Wirkungsquerschnitt  $\sigma(X_i)$  für  $I \geq i \in \mathbb{N}$ . Diese WDV sind dabei so formuliert, dass die Anregung zur Zeit  $t_{An} = 0$  statt findet, da der zeitliche Versatz in dieser Simulation separat durch das Füllmuster des Speicherrings definiert wird. Zusätzlich werden dieser Klasse die Korrelationsstärke zwischen den verschiedenen Emissionskanälen  $c(X_i, X_j)$ ,  $I \geq i, j \in \mathbb{N}$  zugeordnet. Diese kann als Verzweigungsverhältnis aufgefasst werden und bestimmt damit maßgeblich die zu erwartenden echten Koinzidenzen.

Zu der zweiten Klasse von Parametern gehören die vom Experiment abhängigen Größen, welche für eine Beschreibung der zu erwartenden Ereignisse notwendig sind. Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Simulationen sind dies:

1. Die Detektionswahrscheinlichkeiten  $Q(EI)$ ,  $Q(Ph)$ .
2. Die Wahrscheinlichkeiten zur Messung eines Messartefakts  $MA(X_i)$ .
3. Die Teilchendichte im Interaktionvolumen während eines Anregungsprozesses  $n_{Te}$ .
4. Die über den betrachteten Ereigniszeitraum integrierte anregende Photonendichte  $n_{h\nu}$ .

5. Das Füllmuster der Synchrotronstrahlungsanlage, welche die zeitliche Struktur der anregenden Pulse vorgibt. Als Maß hierfür wird der Ringstrom  $I_{\text{Ring}}(t_{\text{An}})$  bezüglich der Zeit der möglichen Anregungen  $t_{\text{An}}$  verwendet.
6. Die Eigenschaften der Zeitmessungen, welche die möglichen simulierten Detektionszeiten vorgibt. Dies sind hier die Einstellungen des TDCs:
  - Die Gruppenlänge  $\Delta T_{\text{Gruppe}}$ .
  - Die Kanalbreite des TDCs  $\Delta t_{\text{TDC}}$ .
  - Die maximale Zahl der verfügbaren TDC Kanäle  $N_{\text{TDC}}$ . Diese Angabe ist redundant wenn  $\Delta T_{\text{Gruppe}}$  und  $\Delta t_{\text{TDC}}$  gegeben sind.
7. Eine konstante zeitliche Verzögerung der Detektion für den Elektronendetektor  $O_{\text{El}}$  und Photondetektor  $O_{\text{Ph}}$  durch die Messelektronik.

In der aktuellen Implementation dienen  $n_{\text{Te}}$  und  $n_{h\nu}$  nur zur Skalierung des Verhältnisses des echten Signals zu möglichen Messartefakten. Existieren aber für verschiedene Emissionskanäle unterschiedliche, bekannte Teilchenzahldichten, so können diese mitberücksichtigt werden. Ein Beispiel hierfür sind unterschiedliche Relaxationskanäle von Clustern und atomaren Systemen, bei denen die Wirkungsquerschnitte bekannt sind.

Durch die Entkopplung der Photonenzahl von dem Füllmuster kann letzteres als WDV der Anregungszeiten aufgefasst werden. Das Auftreten von Messartefakten wird in vergleichbarer Weise wie die echten Signale modelliert. Dadurch lassen sich diese als Superposition von unterschiedlichen Artefaktkanälen  $ma_k$ ,  $k \in \mathbb{N}$  auffassen. Beispiele für solche Kanäle sind das statistisch auf die Detektionskanäle verteilte thermische Rauschen oder Häufungspunkte auf Grund der Fehlfunktion einzelner Kanäle. Diese werden über die Messartefakte pro Zeiteinheit  $N_{\text{ma}}(ma_k, \Delta t(ma_k))$  sowie die zugehörige Zeitverteilungsfunktion  $P_{\text{ma}}(tx, ma_k)$ , welche die Wahrscheinlichkeit ein Messartefakt zur Zeit  $tx$  auf dem Detektor für Teilchensorte  $X$  aufzunehmen liefert, beschrieben.

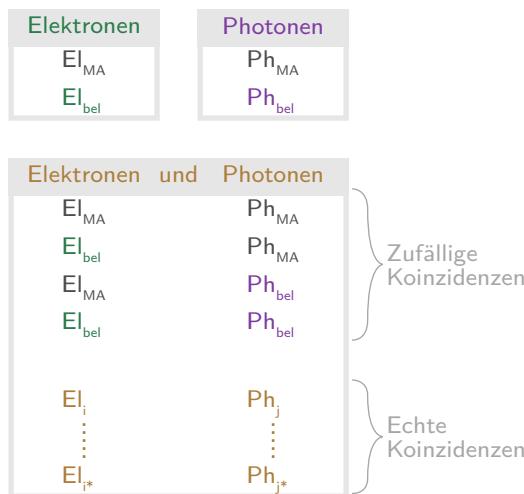
### Initialisierung der Verteilungsfunktionen

In diesem Schritt werden aus den Simulationsparametern die benötigten WDV festgelegt. Zunächst werden die Wahrscheinlichkeiten  $P(D_n)$  der verschiedenen möglichen Detektionsereignisse  $D_n$  bestimmt. Da sich nur auf Elektron-Photon Koinzidenzen und die jeweiligen nicht koinzidenten Ereignisse beschränkt wird, ergeben sich die in Abbildung B.2 gezeigten Möglichkeiten ein entsprechendes Detektionsereignis  $D_n$  zu erhalten.

Es wird dabei explizit zwischen der Detektion eines Teilchens und einem Messartefakt unterschieden. Für jedes dieser Ereignisse kann die Auftrittswahrscheinlichkeit aus den genutzten Simulationsparametern bestimmt werden. Diese sind in Abbildung B.3 gezeigt. Die dort auftretenden Emissionswahrscheinlichkeiten einer Teilchenkombination werden dabei bestimmt über

$$\begin{aligned} \text{Em}(\text{El}_i) &= \sigma(\text{El}_i) \cdot n_{h\nu} \cdot n_{\text{Te}}, \\ \text{Em}(\text{Ph}_j) &= \sigma(\text{Ph}_j) \cdot n_{h\nu} \cdot n_{\text{Te}}, \\ \text{Em}(\text{El}_i \text{Ph}_j) &= \text{Em}(\text{Ph}_j|\text{El}_i) \cdot \text{Em}(\text{El}_i) = c(\text{El}_i, \text{Ph}_j) \cdot \text{Em}(\text{El}_i). \end{aligned} \quad (\text{B.1})$$

Für die Wahrscheinlichkeit ein Messartefakt aufzunehmen wird angenommen, dass diese für jeden Messzyklus gleichberechtigt sind. Im Fall der echten Elektron-Photon Koinzidenzen wird entsprechend der Ausführungen in Abschnitt 6.1 angenommen, dass zunächst die Elektronenemission statt findet und die



**Abbildung B.2:** Nach den in der Simulation berücksichtigten Teilchenkombinationen aufgeschlüsselte Ereignistypen. Es wird dabei explizit zwischen durch die Detektion von emittierten Elektronen und Photonen ( $\text{El}$ ,  $\text{Ph}$ ) und durch Messartefakte unechte Signale der Detektoren ( $\text{El}_{\text{MA}}$ ,  $\text{Ph}_{\text{MA}}$ ) unterschieden. Die Indizes  $i$ ,  $i^*$ ,  $j$ ,  $j^*$  stellen spezifische Emissionskanäle der Elektronen und Photonen dar, während der Index bel der Superposition aller betrachteten Emissionskanäle entspricht.

Photonenemission darauf folgt. Ein Messzyklus besteht entsprechend Abschnitt 3.4 aus einer Gruppe des TDCs. Die Wahrscheinlichkeit  $\text{MA}(ma_k)$  ein Messartefakt  $ma_k$  zu erhalten wird bestimmt über

$$\text{MA}(ma_k) = \frac{N_{\text{ma}}(ma_k, \Delta t(ma_k))}{\Delta t} \cdot \Delta t_{\text{Gruppe}} . \quad (\text{B.2})$$

Für die Wahrscheinlichkeiten der  $D_n$  wird angenommen, dass bei fehlender Korrelationen zwischen den Teilereignissen die in Abbildung B.3 angegebenen Reihenfolgen vertauschbar sind. Die in Abbildung B.3 angegeben Wahrscheinlichkeiten werden anschließend über

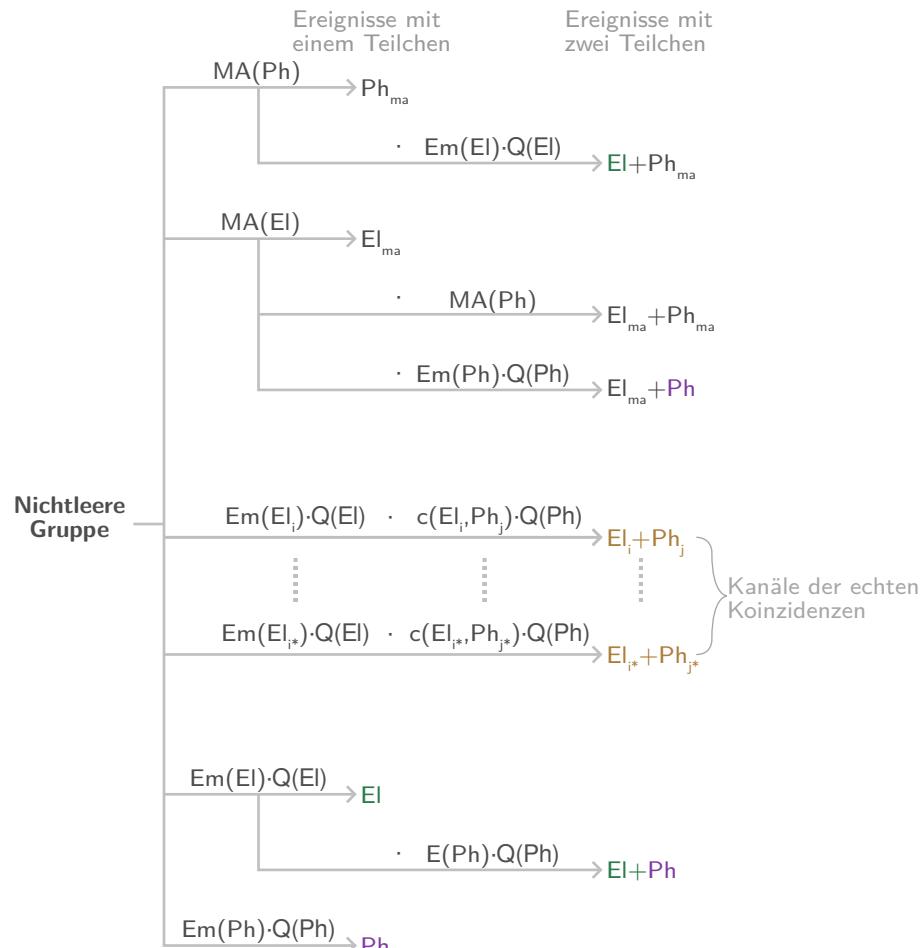
$$\tilde{P}(D_n) = \frac{P(D_n)}{\sum_{n \leq N} P(D_n)} \quad (\text{B.3})$$

reskaliert, sodass die Summe der verschiedenen Wahrscheinlichkeiten exakt Eins ergibt. Es handelt sich bei der WDV  $\tilde{P}(D_n)$  somit um bedingte Wahrscheinlichkeiten, bei denen davon ausgegangen wird, dass eines der betrachteten Ereignisse auf jeden Fall eintritt. Der Fall das kein Teilchen bei einem Anregungspuls detektiert wurde wird somit explizit ausgeschlossen, um so die Zahl der notwendigen Iterationen für die Simulation der Messereignisse drastisch zu reduzieren. Hierdurch wird gewährleistet, dass definitiv eines der in Abbildung B.3 gezeigten Ereignisse eintritt.

Um die Detektionszeiten zu simulieren werden neben der WDV  $\tilde{P}(D_n)$  zusätzlich die WDV der eigentlichen Messwerte benötigt, aus denen dann für jedes Ereignis ein Satz von Messwerten gemäß der ihnen zugeordneten Wahrscheinlichkeiten ausgewählt werden kann. In der vorliegenden Simulation gilt für die möglichen Messwerte wegen  $\Delta T_{\text{Gruppe}} = 1600 \text{ ns}$  und  $\Delta t_{\text{TDC}} = 0,025 \text{ ps}$

$$\begin{aligned} \text{Nicht koinzidente Elektronen : } & t_{\text{EI}} & \in \{t_{\text{EI}}\} = \{0; 0,25; \dots; 1599,75\} \cdot 1 \text{ ns} \\ \text{Nicht koinzidente Photonen : } & t_{\text{Ph}} & \in \{t_{\text{Ph}}\} = \{0; 0,25; \dots; 1599,75\} \cdot 1 \text{ ns} \\ \text{Elektron-Photon Koinzidenzen : } & (t_{\text{EI}}, t_{\text{Ph}}) & \in \{t_{\text{EI}}\} \times \{t_{\text{Ph}}\} \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

Im Fall der Elektron-Photon Koinzidenzen werden nicht die Tupel  $(t_{\text{EI}}, t_{\text{Ph}})$  gemeinsam bestimmt, sondern jede Komponente wird für sich behandelt. Damit können dort  $t_{\text{EI}}$  und  $t_{\text{Ph}}$  als eigenständige Zufallsvariablen betrachtet werden. Für die Konstruktion der Messwerte bezüglich der verschiedenen Detekti-



$Em(X)$  = Wahrscheinlichkeit zur Erzeugung von Teilchen X

$MA(X)$  = Wahrscheinlichkeit, dass ein unechtes Signal gemessen wird

$Q(X)$  = Wahrscheinlichkeit Teilchen X zu detektieren

**Abbildung B.3:** Bestimmung der Wahrscheinlichkeiten für die Ereignisse aus Abbildung B.2.  
 Die Zahl der echten Koinzidenzkanäle entspricht der Zahl an Kombinationen aus Elektronen und Photonen, welche in Abbildung B.2 zu echten Koinzidenzen führen.

onstypen wird zwischen Messartefakten und Messwerten von Teilchen unterschieden. Für Messartefakte wird eine WDV konstruiert, durch welche aus der Menge der möglichen Messwerte ein Messwert entsprechend der ihr zugeordneten Wahrscheinlichkeit ausgewählt wird.

Die Messzeiten der Teilchen werden dagegen aus der Anregungszeit  $t_{An}$ , der durch die Messelektronik bedingten Verzögerung  $O_{EI}$  (beziehungsweise  $O_{Ph}$ ) und der Zeit zwischen der Teilchenerzeugung und dem Auftreffen auf dem Detektor  $t_{rel,X}$  konstruiert. So lassen sich für fest definierte Emissionskanäle unterschiedliche zeitliche Verteilungen der anregenden Pulse nutzen, durch welche die Simulationen der SB und MBH Modi in einfacher Weise möglich sind. Damit gilt

$$\begin{aligned} t_{An} + t_{rel,EI} + O_{EI} &= t_{EI} \in \{t_{EI}\}, \\ t_{An} + t_{rel,Ph} + O_{Ph} &= t_{Ph} \in \{t_{Ph}\}. \end{aligned} \quad (B.5)$$

Ein valides Ereignis liegt vor wenn die Summe dieser Zeiten in Gleichung B.5 einem Element der möglichen Messwerte entsprechen und ist durch ein „!“ symbolisiert. Die Zeitverteilungsfunktionen für die Emission sind so konstruiert, dass die Anregung bei 0 ns statt findet und dabei Gleichung B.5 erfüllt ist. Das bedeutet aber, dass für beliebige zeitliche Verteilungen der Anregungspulse auch Anregungen zu einer Zeit  $t_{An} < \min(\{t_{El}\}, \{t_{Ph}\})$  zu einem validen Ereignis führen können. Dies wird in der Simulation in der Art berücksichtigt, dass das Füllmuster des Speicherrings nicht auf der Menge der Detektionszeiten betrachtet wird, sondern auf einer separaten Menge von Werten  $\{t_{An}\}$ , welche auch negative Zeiten enthalten. Im Bezug auf das Messschema bedeutet dies, dass auch der Umlauf vor der eigentlichen Detektion in der Simulation mitberücksichtigt wird, weswegen insgesamt drei Umläufe der Elektronenbunche betrachtet werden. Die WDV  $P_{FM}(t_{An})$ , dass eine Anregung zur Zeit  $t_{An}$  statt findet, wird aus dem Füllmuster des Speicherrings  $I_{Ring}(t_{An})$  konstruiert gemäß

$$P_{FM}(t_{An}) = \frac{1}{\sum_{\{t_{An}\}} I_{Ring}(t_{An})} \cdot I_{Ring}(t_{An}) . \quad (B.6)$$

Schließlich werden nach Abbildung B.2 noch verschiedene andere WDV benötigt. Für diese gilt

„**El<sub>bel</sub>**“

Die WDV ein beliebiges Elektron zur Zeit  $t_{El}$  für eine Anregung bei  $t_{An} = 0$  zu messen wird aus allen betrachteten Elektronenemissionskanälen  $El_i$  konstruiert. Dabei gilt

$$P_{El}^*(t_{El}|El_{bel}) = \sum_{i \leq I} \sigma(El_i) \cdot P(t_{El}, El_i) \quad (B.7)$$

$$P_{El}(t_{El}|El_{bel}) = \frac{1}{\sum_{\{t_{El}\}} P_{El}^*(t_{El}|El_{bel})} \cdot P_{El}^*(t_{El}|El_{bel}) . \quad (B.8)$$

„**Ph<sub>bel</sub>**“

Die WDV ein beliebiges Photon zur Zeit  $t_{Ph}$  für eine Anregung bei  $t_{An} = 0$  zu messen wird aus allen betrachteten Photonenemissionskanälen  $Ph_j$  konstruiert. Dabei gilt

$$P_{Ph}^*(t_{Ph}|Ph_{bel}) = \sum_{j \leq J} \sigma(Ph_j) \cdot P(t, Ph_j) \quad (B.9)$$

$$P_{Ph}(t_{Ph}|Ph_{bel}) = \frac{1}{\sum_{\{t_{Ph}\}} P_{Ph}^*(t_{Ph}|Ph_{bel})} \cdot P_{Ph}^*(t_{Ph}|Ph_{bel}) . \quad (B.10)$$

„**El<sub>ma</sub>**“ und „**Ph<sub>ma</sub>**“

In den gezeigten Simulationen wurde für die Zeitverteilungsfunktion der Messartefakte angenommen, dass ein möglicher Kanal *ma* zur Erzeugung von Messartefakten existiert. Dieser liefert einen auf alle betrachteten TDC-Kanäle  $t_{Ph}$  gleichmäßig verteilten Beitrag. Dabei werden die WDV ein Messartefakt  $ma_k$  zur Zeit  $t_{Ph}$  auf dem Elektronendetektor  $P_{El}(t_{El}|El_{ma})$  beziehungsweise auf dem Photonendetektor  $P_{Ph}(t_{Ph}|Ph_{ma})$  zu erhalten im Rahmen der gezeigten Simulationen gleich behandelt. Für diese gilt

$$P_{El}(t_{El}|E_{ma}) = \frac{1}{\sum_{\{t_{El}\}} 1} , \quad (B.11)$$

$$P_{Ph}(t_{Ph}|E_{ma}) = \frac{1}{\sum_{\{t_{Ph}\}} 1} . \quad (B.12)$$

### Erstellung der simulierten Messereignisse

Mit den zuvor definierten WDV werden für jeden Durchlauf der Simulationsschleife in Abbildung B.1 die Art des Detektionsereignisses erzeugt über

$$\{D_n\} \xrightarrow{\tilde{P}(D_n)} D_n . \quad (\text{B.13})$$

Die Messwerte der verschiedenen Ereignisse  $D_n$  werden dann erzeugt gemäß Gleichungen B.14 bis B.22. Diese werden dann an die Ereignistabelle von  $D_n$  als letzte Zeile angehängt und der nächste Durchlauf der Schleife in Abbildung B.1 beginnt.

$$D_n = \mathbf{EI}_{\text{ma}}$$

$$\begin{array}{ccc} \{t_{\text{EI}}\} & & \\ \downarrow P_{\text{EI}}(t_{\text{EI}}|\mathbf{EI}_{\text{ma}}) & & \\ t_{\text{EI}} & = & t_{\text{EI}} \end{array} \quad (\text{B.14})$$

$$D_n = \mathbf{Ph}_{\text{ma}}$$

$$\begin{array}{ccc} t_{\text{Ph}} & & = t_{\text{Ph}} \\ \uparrow P_{\text{Ph}}(t_{\text{Ph}}|\mathbf{Ph}_{\text{ma}}) & & \\ \{t_{\text{Ph}}\} & & \end{array} \quad (\text{B.15})$$

$$D_n = \mathbf{EI}_{\text{bel}}$$

$$\begin{array}{ccccc} \{t_{\text{An}}\} & & \{t_{\text{rel},\text{EI}}\} & & \\ \downarrow P_{\text{FM}}(t_{\text{An}}) & & \downarrow P_{\text{EI}}(t_{\text{rel},\text{EI}}|\mathbf{EI}_{\text{bel}}) & & \\ t_{\text{An}} & + & t_{\text{rel},\text{EI}} & + & O_{\text{EI}} = t_{\text{EI}} \end{array} \quad (\text{B.16})$$

$$D_n = \mathbf{Ph}_{\text{bel}}$$

$$\begin{array}{ccccc} t_{\text{An}} & + & t_{\text{rel},\text{Ph}} & + & O_{\text{Ph}} = t_{\text{Ph}} \\ \uparrow P_{\text{FM}}(t_{\text{An}}) & & \uparrow P_{\text{Ph}}(t_{\text{rel},\text{Ph}}|\mathbf{Ph}_{\text{bel}}) & & \\ \{t_{\text{An}}\} & & \{t_{\text{rel},\text{Ph}}\} & & \end{array} \quad (\text{B.17})$$

$$D_n = \mathbf{El}_{\text{ma}} - \mathbf{Ph}_{\text{ma}}$$

$$\begin{array}{ccc}
 \{t_{\text{El}}\} & & \\
 \downarrow P_{\text{El}}(t_{\text{El}}|\mathbf{El}_{\text{ma}}) & & \\
 t_{\text{El}} & = t_{\text{El}} & \\
 & & \\
 t_{\text{Ph}} & = t_{\text{Ph}} & \\
 \uparrow P_{\text{Ph}}(t_{\text{Ph}}|\mathbf{Ph}_{\text{ma}}) & & \\
 \{t_{\text{Ph}}\} & &
 \end{array} \tag{B.18}$$

$$D_n = \mathbf{El}_{\text{bel}} - \mathbf{Ph}_{\text{ma}}$$

$$\begin{array}{ccccccccc}
 \{t_{\text{An}}\} & & \{t_{\text{rel},\text{El}}\} & & & & & & \\
 \downarrow P_{\text{FM}}(t_{\text{An}}) & + & \downarrow P_{\text{El}}(t_{\text{rel},\text{El}}|\mathbf{El}_{\text{bel}}) & + & O_{\text{El}} & = t_{\text{El}} & & & \\
 t_{\text{An}} & + & t_{\text{rel},\text{El}} & + & O_{\text{El}} & = t_{\text{El}} & & & \\
 & & & & & & & & \\
 t_{\text{Ph}} & = t_{\text{Ph}} & & & & & & & \\
 \uparrow P_{\text{Ph}}(t_{\text{Ph}}|\mathbf{Ph}_{\text{ma}}) & & & & & & & & \\
 \{t_{\text{Ph}}\} & & & & & & & &
 \end{array} \tag{B.19}$$

$$D_n = \mathbf{El}_{\text{ma}} - \mathbf{Ph}_{\text{bel}}$$

$$\begin{array}{ccccccccc}
 \{t_{\text{El}}\} & & & & & & & & \\
 \downarrow P_{\text{El}}(t_{\text{El}}|\mathbf{El}_{\text{ma}}) & & & & & & & & \\
 t_{\text{El}} & = t_{\text{El}} & & & & & & & \\
 & & & & & & & & \\
 t_{\text{An}} & + & t_{\text{rel},\text{Ph}} & + & O_{\text{Ph}} & = t_{\text{Ph}} & & & \\
 \uparrow P_{\text{FM}}(t_{\text{An}}) & & \uparrow P_{\text{Ph}}(t_{\text{rel},\text{Ph}}|\mathbf{Ph}_{\text{bel}}) & & & & & & \\
 \{t_{\text{An}}\} & & \{t_{\text{rel},\text{Ph}}\} & & & & & &
 \end{array} \tag{B.20}$$

$$D_n = \mathbf{El}_{bel} - \mathbf{Ph}_{bel}$$

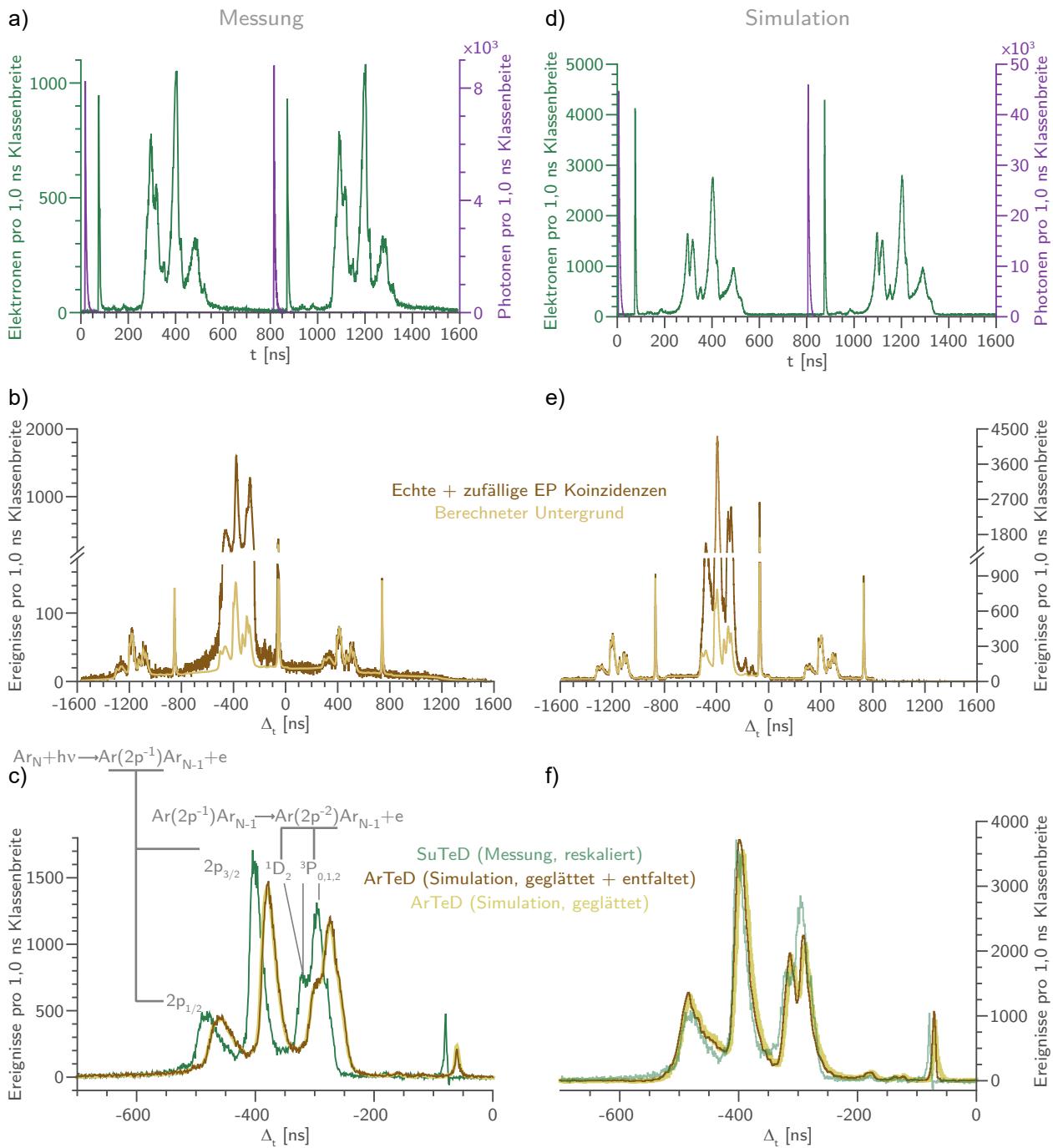
$$\begin{array}{ccccccc}
 \{t_{An}\} & & \{t_{rel,El}\} & & & & \\
 \downarrow P_{FM}(t_{An}) & & \downarrow P_{El}(t_{rel,El}|El_{bel}) & & & & \\
 t_{An} & + & t_{rel,El} & + & O_{El} & = & t_{El} \\
 & & & & & & \\
 t_{An} & + & t_{rel,Ph} & + & O_{Ph} & = & t_{Ph} \\
 \uparrow P_{FM}(t_{An}) & & \uparrow P_{Ph}(t_{rel,Ph}|Ph_{bel}) & & & & \\
 \{t_{An}\} & & \{t_{rel,Ph}\} & & & & \\
 \end{array} \tag{B.21}$$

$$D_n = \mathbf{El}_i - \mathbf{Ph}_j \text{ (Echte Koinzidenzkanäle)}$$

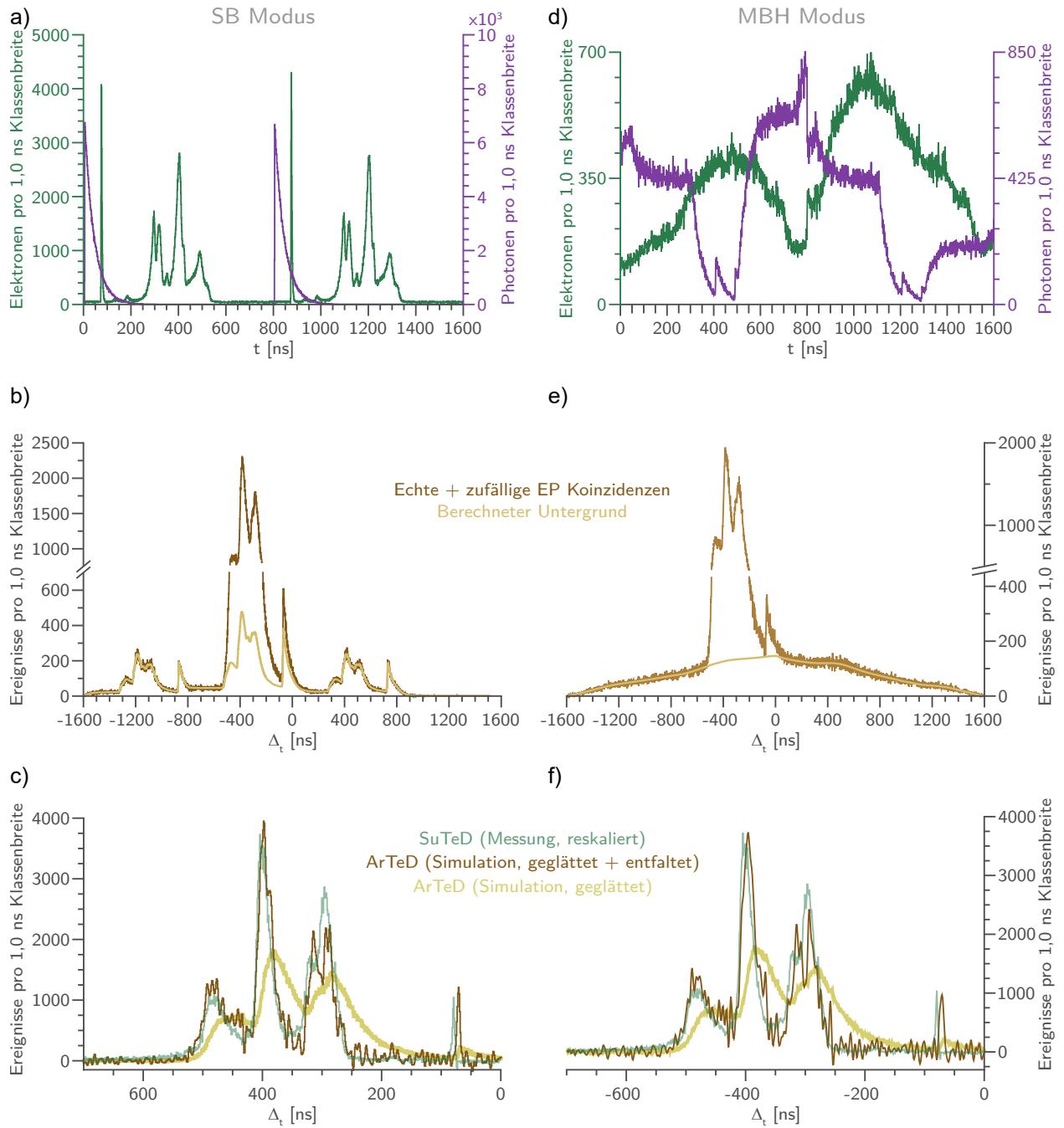
$$\begin{array}{ccccccc}
 \{t_{An}\} & & \{t_{rel,El}\} & & & & \\
 \downarrow P_{FM}(t_{An}) & & \downarrow P_{El}(t_{rel,El}|El_i) & & & & \\
 t_{An} & + & t_{rel,El} & + & O_{El} & = & t_{El} \\
 \parallel & & & & & & \\
 t_{An} & + & t_{rel,Ph} & + & O_{Ph} & = & t_{Ph} \\
 & & \uparrow P_{Ph}(t_{rel,Ph}|Ph_j) & & & & \\
 & & \{t_{rel,Ph}\} & & & & \\
 \end{array} \tag{B.22}$$

### Vergleich der Simulationsergebnisse

Für einen Test der Simulationen wurden die in Abschnitt 6.3 diskutierten Daten aus [80] bezüglich des RCT an Argonclustern genutzt. Die für die Simulation notwendigen Parameter der Elektronenkanäle  $El_i$ , insbesondere die Kopplungskonstanten  $c(i,j)$ , wurden aus den koinzidenten und nicht koinzidenten Elektronenspektren abgeschätzt. Hierzu wurde das Elektronenspektrum der nicht koinzidenten Elektronen durch mehrere einzelne Verteilungsfunktionen approximiert und die Intensitätsvariationen bei dem Übergang zu den Elektron-Photon Koinzidenzen bestimmt. Für die Lebensdauer der Photonen wurde der in 6.3 angegebene Wert von  $\tau = (4,63 \pm 0,12)$  ns verwendet. Auch die durchschnittlichen Zählraten des Detektorrauschen wurde aus diesen Spektren abgeschätzt. Die Ergebnisse der Simulation sind für  $\tau = (4,63 \pm 0,12)$  ns in Abbildung B.4 und für  $\tau = 40$  ns in B.5 dargestellt. Die Abweichungen zwischen Simulation und Messergebnissen resultieren aus den stark vereinfachten Approximationen der Strukturen sowie den heuristisch erhaltenen Emissionswahrscheinlichkeiten. Dennoch weisen die Ergebnisse auf die Funktionsfähigkeit der durchgeführten Simulationen hin.



**Abbildung B.4:** Vergleich der Messdaten von Argon-Clustern nach einer Anregung mit  $h\nu = 449 \text{ eV}$  Photonen im Singlebunch Modus von BESSY II [80] (HZB, Berlin) mit simulierten Daten von approximierten Elektron-Photon Koinzidenzen. (a) bis (c) entsprechen den Darstellungen in Abbildung 6.4. Für die Entfaltung in (f) wurde die angepasste Lebensdauer von  $\tau = (4,63 \pm 0,12) \text{ ns}$  genutzt. Die Fläche der Messdaten in (f) wurde auf die Fläche der Simulationsdaten reskaliert, um einen Vergleich des simulierten Signals vor und nach dem Abzug des Untergrunds zufälliger Koinzidenzen sowie einen qualitativen Vergleich zwischen Simulation und Messdaten zu ermöglichen. Die Gesamtzahl der simulierten Ereignisse beträgt  $2,5 \cdot 10^7$  Ereignisse, von denen  $5,5 \cdot 10^5$  Ereignisse zu El-Ph-Koinzidenzen führen. Hierfür wurde  $Q_{\text{EI}} = 0,9$  und  $Q_{\text{Ph}} = 0,05$  angenommen.



**Abbildung B.5:** Vergleich der Simulation von approximierten Elektron-Photon Koinzidenzen von Argon-Clustern nach einer Anregung mit  $h\nu = 449$  eV Photonen im Singlebunch Modus von BESSY II (a-c) mit entsprechenden Simulationen für Messungen im Multibunch Hybrid Modus von BESSY II (d-f) auf Grundlage der im Singlebunch von BESSY II erhaltenen Messdaten [80] (Abbildung 6.4) für eine Lebensdauer der lumineszierenden Zustände von  $\tau = 40$  ns. Für die Entfaltung in (c) und (f) wurde die Lebensdauer von  $\tau_A = (37 \pm 4)$  ns genutzt. Die Fläche der Messdaten wurde auf die Fläche der Simulationsdaten reskaliert, um einen Vergleich des simulierten Signals vor und nach dem Abzug des Untergrunds zufälliger Koinzidenzen sowie einen qualitativen Vergleich zwischen Simulation und Messdaten zu ermöglichen. Die Gesamtzahl der simulierten Ereignisse beträgt je Betriebsmodus  $2,5 \cdot 10^7$  Ereignisse, von denen jeweils  $5,5 \cdot 10^5$  Ereignisse zu El-Ph-Koinzidenzen führen. Hierfür wurde  $Q_{\text{El}} = 0,9$  und  $Q_{\text{Ph}} = 0,05$  angenommen.



## ANHANG C

### TECHNISCHE ZEICHNUNGEN DES VERWENDETEN SPIEGELSYSTEMS

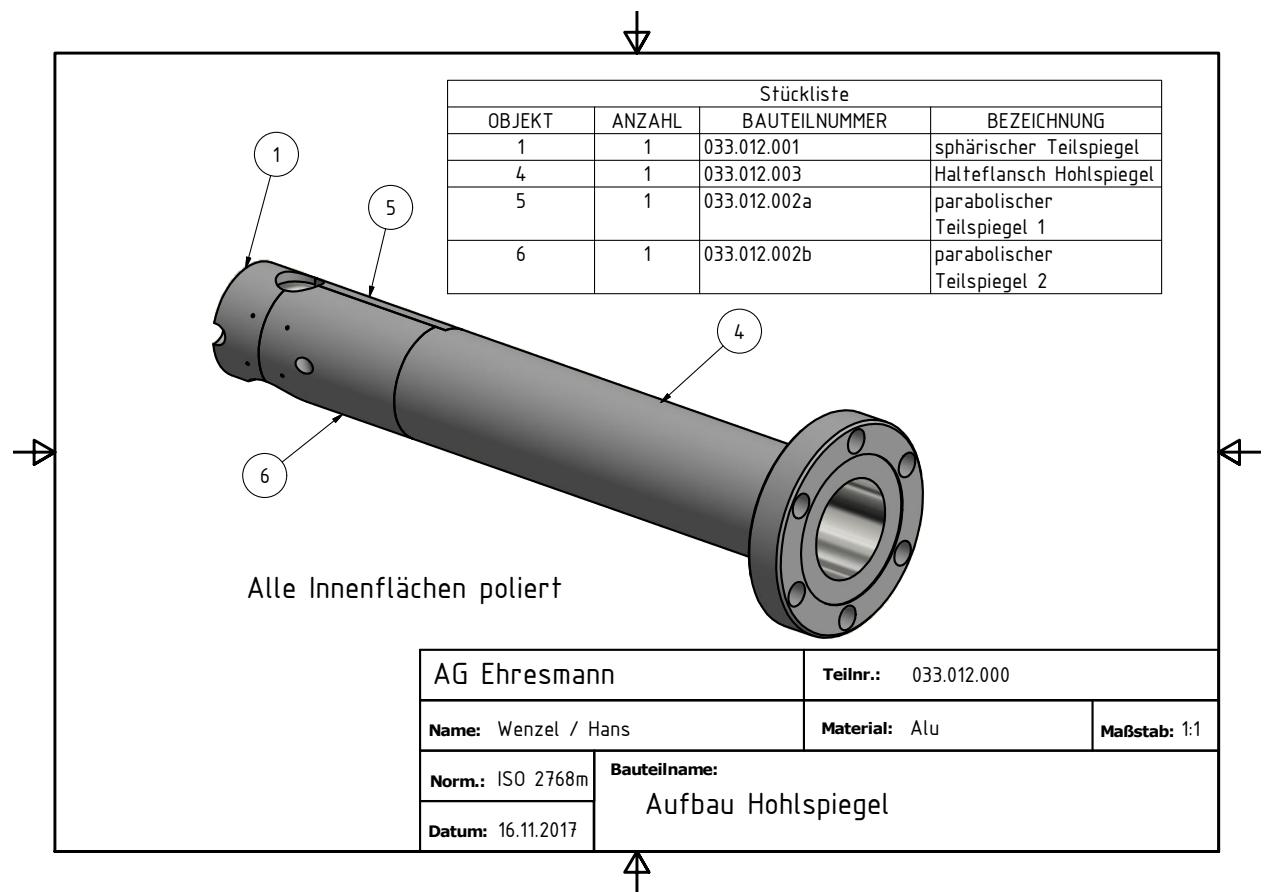
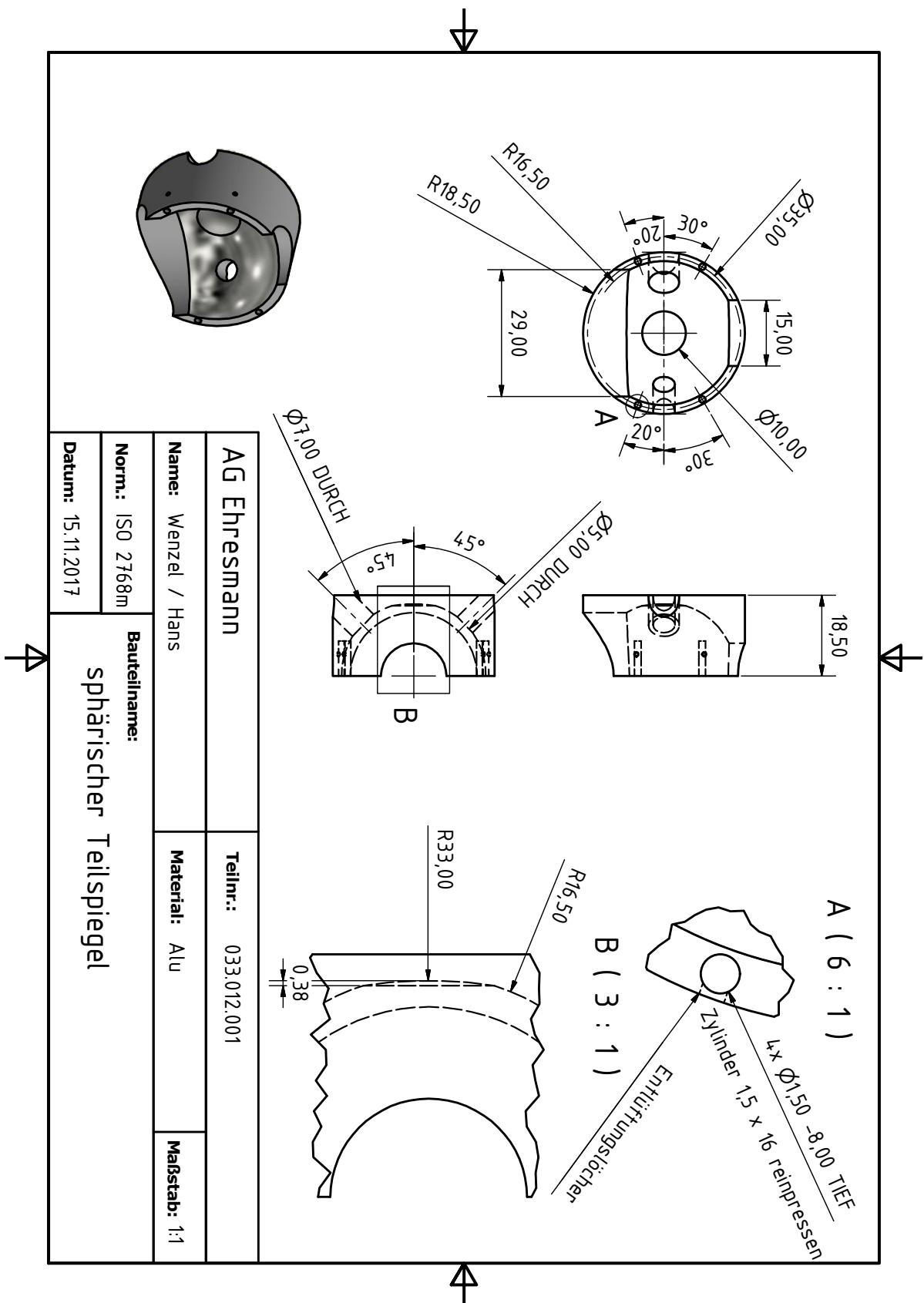


Abbildung C.1: Technische Zeichnung des verwendeten Spiegelsystems: Überblick



**Abbildung C.2:** Technische Zeichnung des verwendeten Spiegelsystems; Sphärische Spiegel

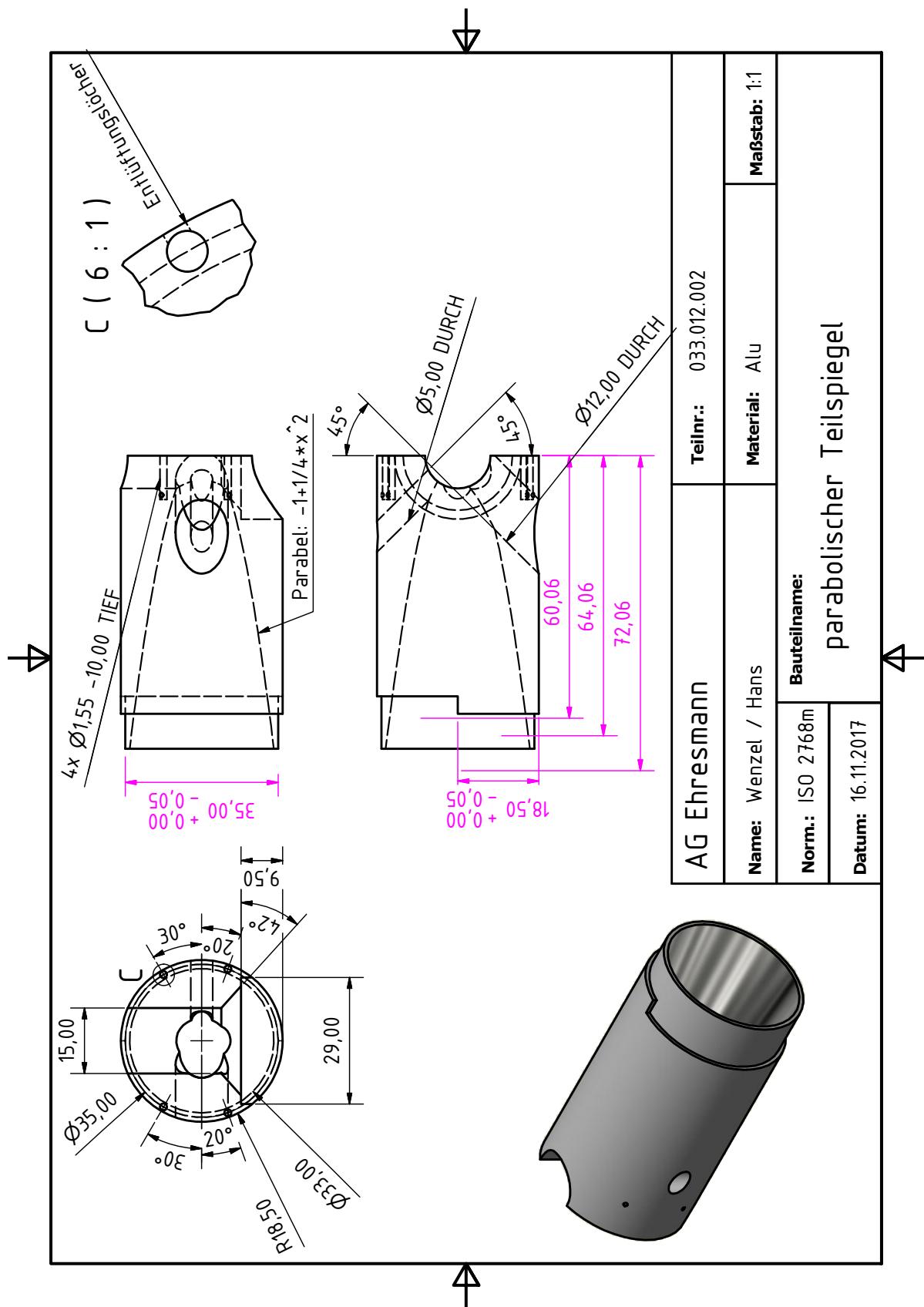


Abbildung C.3: Technische Zeichnung des verwendeten Spiegelsystems: Parabolspiegel

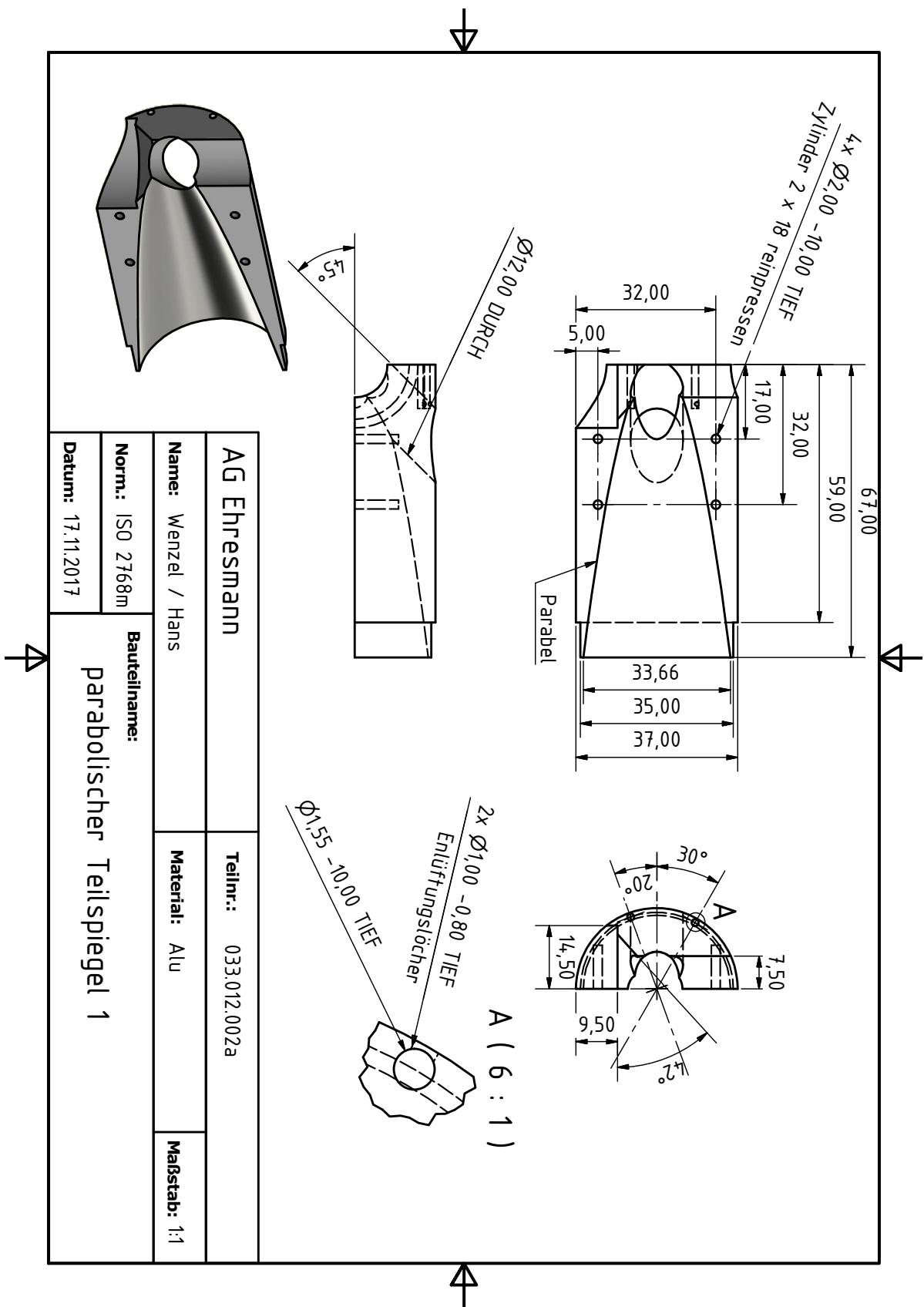


Abbildung C.4: Technische Zeichnung des verwendeten Spiegelsystems: Parabolspiegel A

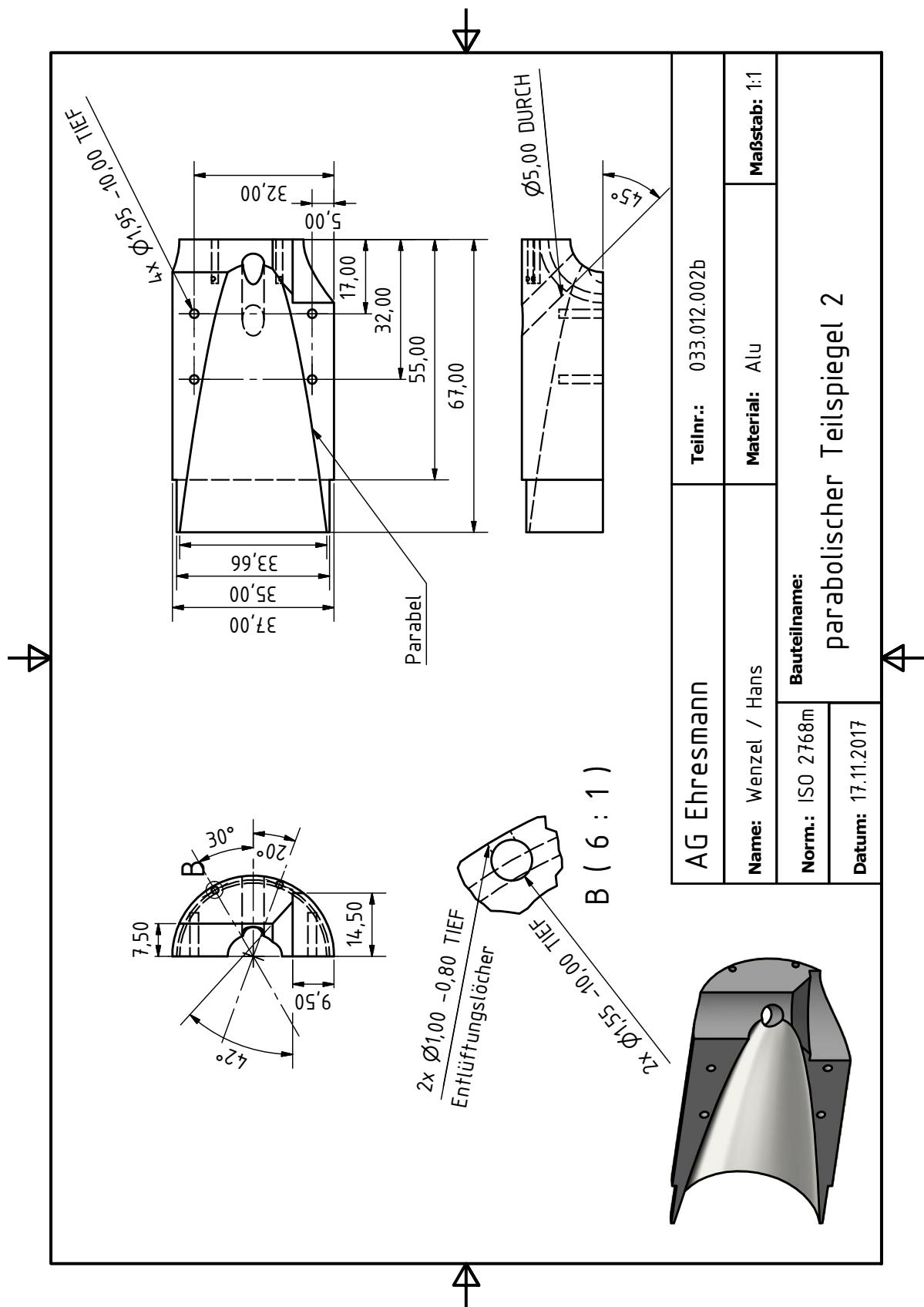


Abbildung C.5: Technische Zeichnung des verwendeten Spiegelsystems: Parabolspiegel B

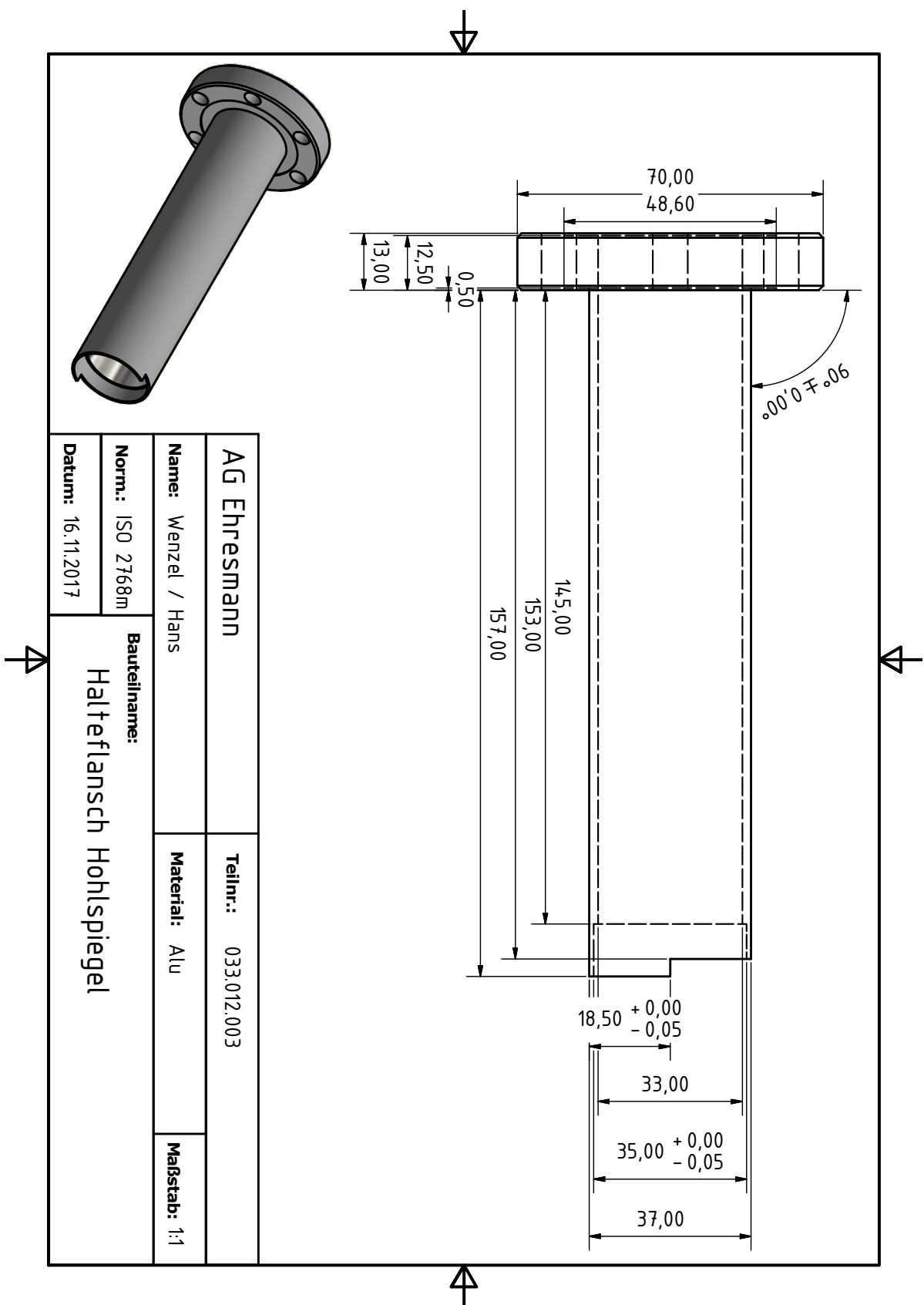


Abbildung C.6: Technische Zeichnung des verwendeten Spiegelsystems: Spiegelhalter

## LITERATURVERZEICHNIS

- [1] W. Bothe und H. Geiger. "Ein Weg zur experimentellen Nachprüfung der Theorie von Bohr, Kramers und Slater". *Z. Physik* **26**.1 (1924), S. 44. ISSN: 1434-6001. DOI: [10.1007/BF01327309](https://doi.org/10.1007/BF01327309).
- [2] W. Bothe und H. Maier-Leibnitz. "Eine neue experimentelle Prüfung der Photonenvorstellung". *Z. Physik* **102**.3-4 (1936), S. 143–155. DOI: [10.1007/BF01336683](https://doi.org/10.1007/BF01336683).
- [3] W. Bothe und M. Born. *Nobel Prize Lecture: The Coincidence Method*. 1954. URL: <https://www.nobelprize.org/prizes/physics/1954/bothe/lecture/>.
- [4] R. E. Imhof und F. H. Read. "An electron-photon coincidence method for measuring atomic and molecular lifetimes". *Chem. Phys. Lett.* **3**.8 (1969), S. 652–654. ISSN: 00092614. DOI: [10.1016/0009-2614\(69\)85134-1](https://doi.org/10.1016/0009-2614(69)85134-1).
- [5] J. Macek und D. H. Jaecks. "Theory of Atomic Photon-Particle Coincidence Measurements". *Phys. Rev. A* **4**.6 (1971), S. 2288–2300. ISSN: 0556-2791. DOI: [10.1103/PhysRevA.4.2288](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.4.2288).
- [6] J. Eland. "Photoelectron-photoion coincidence spectroscopy". *Int. J. Mass Spectrom.* **8**.2 (1972), S. 143–151. ISSN: 00207381. DOI: [10.1016/0020-7381\(72\)80004-4](https://doi.org/10.1016/0020-7381(72)80004-4).
- [7] R. D. DuBois. "Coincidence techniques to study electron emission in ion-atom collisions". *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **10-11** (1985), S. 120–123. ISSN: 0168583X. DOI: [10.1016/0168-583X\(85\)90216-2](https://doi.org/10.1016/0168-583X(85)90216-2).
- [8] J. L. Robins. "A review of Auger photoelectron coincidence spectroscopy". *Progress in Surface Science* **48**.1 (1995). Proceedings of the Seventeenth International Seminar on Surface Physics, S. 167–178. ISSN: 0079-6816. DOI: [10.1016/0079-6816\(95\)93424-6](https://doi.org/10.1016/0079-6816(95)93424-6).
- [9] P. Lablanquie, M. Lavallee, J. H. D. Eland, F. Penent u. a. "A threshold-photoelectron coincidence spectrometer using a single detector and time-of-flight analysis". *Meas. Sci. Technol.* **6**.7 (1995), S. 939–946. ISSN: 0957-0233. DOI: [10.1088/0957-0233/6/7/013](https://doi.org/10.1088/0957-0233/6/7/013).
- [10] R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger u. a. "Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy: a 'momentum microscope' to view atomic collision dynamics". *Physics Reports* **330**.2-3 (2000), S. 95–192. ISSN: 03701573. DOI: [10.1016/S0370-1573\(99\)00109-X](https://doi.org/10.1016/S0370-1573(99)00109-X).
- [11] R. Continetti. "Coincidence Spectroscopy". *Annual Review of Physical Chemistry* **52**.1 (2001), S. 165–192. DOI: [10.1146/annurev.physchem.52.1.165](https://doi.org/10.1146/annurev.physchem.52.1.165).

- [12] J. Ullrich, R. Moshammer, A. Dorn, R. Dörner u. a. "Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: reaction-microscopes". *Rep. Prog. Physics* **66**.9 (2003), S. 1463–1545. ISSN: 0034-4885. DOI: [10.1088/0034-4885/66/9/203](https://doi.org/10.1088/0034-4885/66/9/203).
- [13] C. Miron und P. Morin. "High-resolution inner-shell coincidence spectroscopy". *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **601**.1 (2009). Special issue in honour of Prof. Kai Siegbahn, S. 66–77. ISSN: 0168-9002. DOI: [10.1016/j.nima.2008.12.104](https://doi.org/10.1016/j.nima.2008.12.104).
- [14] T. Arion und U. Hergenhahn. "Coincidence spectroscopy: Past, present and perspectives". *J. Electron Spectros. Relat. Phenom.* **200** (2015), S. 222–231. ISSN: 03682048. DOI: [10.1016/j.elspec.2015.06.004](https://doi.org/10.1016/j.elspec.2015.06.004).
- [15] P. Lablanquie, M. A. Khalal, L. Andric, J. Palaudoux u. a. "Multi-electron coincidence spectroscopy: Triple Auger decay of Ar 2p and 2s holes". *J. Electron Spectros. Relat. Phenom.* **220** (2017), S. 125–132. ISSN: 03682048. DOI: [10.1016/j.elspec.2017.04.003](https://doi.org/10.1016/j.elspec.2017.04.003).
- [16] J. V. Dunworth. "The Application of the Method of Coincidence Counting to Experiments in Nuclear Physics". *Rev. Sci. Instrum.* **11**.5 (1940), S. 167–180. ISSN: 0034-6748. DOI: [10.1063/1.1751673](https://doi.org/10.1063/1.1751673).
- [17] P. Campion. "The standardization of radioisotopes by the beta-gamma coincidence method using high efficiency detectors". *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **4**.3 (1959), S. 232–248. ISSN: 0020-708X. DOI: [10.1016/0020-708X\(59\)90199-1](https://doi.org/10.1016/0020-708X(59)90199-1).
- [18] R. B. Galloway. "An introduction to the use of coincidence counting techniques in the study of rays". *Physics Education* **5**.1 (1970), S. 25–34. ISSN: 0031-9120. DOI: [10.1088/0031-9120/5/1/004](https://doi.org/10.1088/0031-9120/5/1/004).
- [19] R. Broda. "A review of the triple-to-double coincidence ratio (TDCR) method for standardizing radionuclides". *Appl. Radiat. Isot.* **58**.5 (2003), S. 585–594. ISSN: 09698043. DOI: [10.1016/S0969-8043\(03\)00056-3](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(03)00056-3).
- [20] S. Judge, D. Arnold, B. Chauvenet, R. Collé u. a. "100 Years of radionuclide metrology". *Applied Radiation and Isotopes* **87** (2014). Proceedings of the 19th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications 17–21 June 2013, Antwerp, Belgium, S. 27–31. ISSN: 0969-8043. DOI: [10.1016/j.apradiso.2013.11.121](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.11.121).
- [21] M. Demarteau, R. Lipton, H. Nicholson und I. Shipsey. "Particle and nuclear physics instrumentation and its broad connections". *Rev. Mod. Phys.* **88**.4 (2016), S. 045007. ISSN: 0034-6861. DOI: [10.1103/RevModPhys.88.045007](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.88.045007).
- [22] J. M. O'Donnell. "A new method to reduce the statistical and systematic uncertainty of chance coincidence backgrounds measured with waveform digitizers". *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **805** (2016), S. 87–94. ISSN: 01689002. DOI: [10.1016/j.nima.2015.07.044](https://doi.org/10.1016/j.nima.2015.07.044).
- [23] K. Strauch. "On the Detection of High Energy Particles with a Fast Coincidence System". *Rev. Sci. Instrum.* **24**.4 (1953), S. 283–289. ISSN: 0034-6748. DOI: [10.1063/1.1770685](https://doi.org/10.1063/1.1770685).
- [24] R. Mankel. "Pattern recognition and event reconstruction in particle physics experiments". *Rep. Prog. Physics* **67**.4 (2004), S. 553–622. ISSN: 0034-4885. DOI: [10.1088/0034-4885/67/4/R03](https://doi.org/10.1088/0034-4885/67/4/R03).
- [25] H. de Kerret, T. Abrahão u. a. "Double Chooz  $\Theta_{13}$  measurement via total neutron capture detection". *Nature Physics* **16**.5 (2020), S. 558–564. ISSN: 1745-2473. DOI: [10.1038/s41567-020-0831-y](https://doi.org/10.1038/s41567-020-0831-y).

- [26] B. H. Foing und P. Ehrenfreund. "Detection of two interstellar absorption bands coincident with spectral features of C60+". *Nature* **369**.6478 (1994), S. 296–298. ISSN: 0028-0836. DOI: [10.1038/369296a0](https://doi.org/10.1038/369296a0).
- [27] L. Bonolis. "Walther Bothe and Bruno Rossi: The birth and development of coincidence methods in cosmic-ray physics". *American Journal of Physics* **79**.11 (2011), S. 1133–1150. ISSN: 0002-9505. DOI: [10.1119/1.3619808](https://doi.org/10.1119/1.3619808).
- [28] S. S. Kimura, K. Murase, P. Mészáros und K. Kiuchi. "High-energy Neutrino Emission from Short Gamma-Ray Bursts: Prospects for Coincident Detection with Gravitational Waves". *The Astrophysical Journal* **848**.1 (2017), S. L4. DOI: [10.3847/2041-8213/aa8d14](https://doi.org/10.3847/2041-8213/aa8d14).
- [29] R. Twiss und A. Little. "The detection of time-correlated photons by a coincidence counter". *Australian Journal of Physics* **12**.1 (1959), S. 77–93.
- [30] M. Fiorentino, P. L. Voss, J. E. Sharping und P. Kumar. "All-fiber photon-pair source for quantum communications". *IEEE Photonics Technology Letters* **14**.7 (2002), S. 983–985. ISSN: 1041-1135. DOI: [10.1109/LPT.2002.1012406](https://doi.org/10.1109/LPT.2002.1012406).
- [31] H. Takesue und K. Inoue. "Generation of 1,5 µm band time-bin entanglement using spontaneous fiber four-wave mixing and planar light-wave circuit interferometers". *Phys. Rev. A* **72**.4 (2005), 041804(R). ISSN: 1050-2947. DOI: [10.1103/PhysRevA.72.041804](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.72.041804).
- [32] J. Leach, B. Jack, J. Romero, A. K. Jha u. a. "Quantum correlations in optical angle-orbital angular momentum variables". *Science* **329**.5992 (2010), S. 662–665. DOI: [10.1126/science.1190523](https://doi.org/10.1126/science.1190523).
- [33] M. B. Agüero, A. A. Hnilo und M. G. Kovalsky. "Measuring the entanglement of photons produced by a nanosecond pulsed source". *JOSA B* **31**.12 (2014), S. 3088. ISSN: 0740-3224. DOI: [10.1364/JOSAB.31.003088](https://doi.org/10.1364/JOSAB.31.003088).
- [34] M. E. Phelps, E. J. Hoffman, N. A. Mullani und M. M. Ter-Pogossian. "Application of annihilation coincidence detection to transaxial reconstruction tomography". *J. Nucl. Med.* **16**.3 (1975). PMID: 1113170, S. 210–224. ISSN: 0161-5505. URL: <https://pubmed.ncbi.nlm.nih.gov/1113170/>.
- [35] M. M. Ter-Pogossian, M. E. Phelps, E. J. Hoffman und N. A. Mullani. "A positron-emission transaxial tomograph for nuclear imaging (PETT)". *Radiology* **114**.1 (1975), S. 89–98. ISSN: 0033-8419. DOI: [10.1148/114.1.89](https://doi.org/10.1148/114.1.89).
- [36] W. Kunze, M. Baehre und E. Richter. "PET with a dual-head coincidence camera: Spatial resolution, scatter fraction, and sensitivity". *J. Nucl. Med.* **41** (Juli 2000). PMID: 10855637, S. 1067–74. URL: <https://pubmed.ncbi.nlm.nih.gov/10855637/>.
- [37] M. Singh und V. Waluch. "Physics and instrumentation for imaging in-vivo drug distribution". *Advanced Drug Delivery Reviews* **41**.1 (2000). Non-invasive Drug Monitoring, S. 7–20. ISSN: 0169-409X. DOI: [10.1016/S0169-409X\(99\)00053-8](https://doi.org/10.1016/S0169-409X(99)00053-8).
- [38] D. L. Bailey, D. W. Townsend, P. E. Valk und M. N. Maisey. *Positron Emission Tomography*. London: Springer-Verlag, 2005. ISBN: 1-85233-798-2. DOI: [10.1007/b136169](https://doi.org/10.1007/b136169).
- [39] D. Kulkarni, L. Joseph, R. Anuradha, M. Kulkarni u. a. "Standardization of  $^{68}\text{Ge}$ – $^{68}\text{Ga}$  using  $4\pi\beta(\text{LS}) - \gamma$  coincidence counting system for activity measurements". *Applied Radiation and Isotopes* **123** (2017), S. 6–10. ISSN: 0969-8043. DOI: [10.1016/j.apradiso.2017.01.045](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2017.01.045).

- [40] N. Bose. "Direct coincident detection of two D(2p) dissociation products from a doubly excited state of D<sub>2</sub>". *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **11**.9 (1978), S. L309–L312. ISSN: 0022-3700. DOI: [10.1088/0022-3700/11/9/006](https://doi.org/10.1088/0022-3700/11/9/006).
- [41] F. Penent, J. L. Montmagnon, J. P. Grouard, D. Modeley u. a. "Contribution of the H( $n = 3$ ) + e<sup>-</sup> detachment channel in H<sup>-</sup>/rare gas collisions". *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **154**.1-4 (1999), S. 214–219. ISSN: 0168583X. DOI: [10.1016/S0168-583X\(99\)00009-9](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(99)00009-9).
- [42] N. H. Gale. "Lifetimes of the first excited states of B<sup>10</sup>, O<sup>17</sup> and F<sup>17</sup> (II)". *Nuclear Physics* **38** (1962), S. 252–258. ISSN: 00295582. DOI: [10.1016/0029-5582\(62\)91032-5](https://doi.org/10.1016/0029-5582(62)91032-5).
- [43] R. E. Imhof und F. H. Read. "A new electron-photon coincidence method for the measurement of lifetimes in atoms and molecules". *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **4**.4 (1971), S. 450–460. ISSN: 0022-3700. DOI: [10.1088/0022-3700/4/4/007](https://doi.org/10.1088/0022-3700/4/4/007).
- [44] M. Bloch und D. W. Turner. "Radiative lifetimes of ions measured with the photoelectron spectrometer". *Chem. Phys. Lett.* **30**.3 (1975), S. 344–346. ISSN: 00092614. DOI: [10.1016/0009-2614\(75\)80003-0](https://doi.org/10.1016/0009-2614(75)80003-0).
- [45] G. C. King, F. H. Read und R. E. Imhof. "The measurement of molecular lifetimes by the photon-photon delayed coincidence method". *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **8**.4 (1975), S. 665–673. ISSN: 0022-3700. DOI: [10.1088/0022-3700/8/4/027](https://doi.org/10.1088/0022-3700/8/4/027).
- [46] J. Eland, M. Devoret und S. Leach. "Quantum yields and lifetimes of molecular ion fluorescence". *Chem. Phys. Lett.* **43**.1 (1976), S. 97–101. ISSN: 00092614. DOI: [10.1016/0009-2614\(76\)80765-8](https://doi.org/10.1016/0009-2614(76)80765-8).
- [47] K. A. Mohamed und G. C. King. "Measured lifetimes of excited levels in krypton II, xenon II and molecular hydrogen by the photon-photon delayed-coincidence technique". *J. Phys. B* **12**.17 (1979), S. 2809–2819. ISSN: 0022-3700. DOI: [10.1088/0022-3700/12/17/011](https://doi.org/10.1088/0022-3700/12/17/011).
- [48] G. Dujardin, S. Leach und G. Taieb. "Fluorescence quantum yields and lifetimes of nine fluorobenzene cations. Electronic state relaxation processes". *Chemical Physics* **46**.3 (1980), S. 407–421. ISSN: 03010104. DOI: [10.1016/0301-0104\(80\)85217-7](https://doi.org/10.1016/0301-0104(80)85217-7).
- [49] G. Dujardin und S. Leach. "Photoion–fluorescence photon coincidence study of radiative and dissociative relaxation processes in VUV photoexcited SO<sub>2</sub>. Fluorescence of SO<sup>+2</sup>, SO<sup>+</sup>, and SO". *J. Chem. Phys.* **75**.6 (1981), S. 2521–2531. DOI: [10.1063/1.442428](https://doi.org/10.1063/1.442428).
- [50] T. Field und J. H. Eland. "Light emissions accompanying molecular ionization". *Chem. Phys. Lett.* **197**.6 (1992), S. 542–548. ISSN: 00092614. DOI: [10.1016/0009-2614\(92\)85813-P](https://doi.org/10.1016/0009-2614(92)85813-P).
- [51] M. Kitajima, M. Ukai, S. Machida, K. Kameta u. a. "One-electron and multi-electron transitions observed in the excitation function of the dissociative photoionization excitation of N<sub>2</sub>". *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **29**.9 (1996), S. 1711–1722. ISSN: 0953-4075. DOI: [10.1088/0953-4075/29/9/017](https://doi.org/10.1088/0953-4075/29/9/017).
- [52] M. Doğan und A. Crowe. "Electron-photon coincidences in electron-impact ionization-excitation of helium". *ARI* **51**.1 (1998), S. 34–40. ISSN: 1434-5641. DOI: [10.1007/s007770050029](https://doi.org/10.1007/s007770050029).
- [53] L. Ishikawa, T. Odagiri, K. Yachi, N. Ohno u. a. "Doubly excited states of H<sub>2</sub> as studied by angle-resolved electron energy loss spectroscopy in coincidence with detecting Lyman- $\alpha$  photons". *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **44**.6 (2011), S. 065203. ISSN: 0953-4075. DOI: [10.1088/0953-4075/44/6/065203](https://doi.org/10.1088/0953-4075/44/6/065203).

- [54] T. Tsuchida, T. Odagiri, L. Ishikawa, K. Yachi u. a. "Doubly excited states of water as studied by electron energy loss spectroscopy in coincidence with detecting Lyman- $\alpha$  photons". *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **44**.17 (2011), S. 175207. ISSN: 0953-4075. DOI: [10.1088/0953-4075/44/17/175207](https://doi.org/10.1088/0953-4075/44/17/175207).
- [55] S. Mobilio, F. Boscherini und C. Meneghini, Hrsg. *Synchrotron Radiation: Basics, Methods and Applications*. Heidelberg: Springer, 2015. ISBN: 978-3-642-55315-8. DOI: [10.1007/978-3-642-55315-8](https://doi.org/10.1007/978-3-642-55315-8).
- [56] R. Wehlitz, J. Viehhaus, K. Wieliczek, B. Langer u. a. "Coincidence experiments following synchrotron radiation excitation". *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **99**.1-4 (1995), S. 257–260. ISSN: 0168583X. DOI: [10.1016/0168-583X\(94\)00700-4](https://doi.org/10.1016/0168-583X(94)00700-4).
- [57] H. Biehl, K. Boyle, D. Smith und R. Tuckett. "The use of threshold photoelectron - fluorescence photon coincidence spectroscopy for the measurement of the radiative lifetimes of emitting states of  $\text{CF}_3\text{X}^+$  ( $\text{X} = \text{F}, \text{H}, \text{Cl}, \text{Br}$ ) ions". *Chemical Physics* **214**.2 (1997), S. 357–366. ISSN: 0301-0104. DOI: [10.1016/S0301-0104\(96\)00325-4](https://doi.org/10.1016/S0301-0104(96)00325-4).
- [58] M. Meyer, J. Lacoursière, M. Simon und P. Morin. "Fluorescence–photoion–coincidence spectroscopy on ICN core excited molecules". *Rev. Sci. Instrum.* **66**.2 (1995), S. 1554–1557. ISSN: 0034-6748. DOI: [10.1063/1.1145906](https://doi.org/10.1063/1.1145906).
- [59] S. Taylor und J. H. Eland. "Light emissions accompanying molecular ionization found by a new triple coincidence technique". *Chemical Physics* **315**.1-2 (2005), S. 8–16. ISSN: 03010104. DOI: [10.1016/j.chemphys.2005.03.018](https://doi.org/10.1016/j.chemphys.2005.03.018).
- [60] S. Taylor, J. H. D. Eland und M. Hochlaf. "Fluorescence and metastability of  $\text{N}_2\text{O}_2^+$ : Theory and experiment". *J. Chem. Phys.* **124**.20 (2006), S. 204319. DOI: [10.1063/1.2192517](https://doi.org/10.1063/1.2192517).
- [61] P. Reiß, P. Schmidt, I. Tulin, A. Knie u. a. "Photon-photon coincidence apparatus with position sensitive detectors". *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **776** (2015), S. 57–64. ISSN: 01689002. DOI: [10.1016/j.nima.2014.11.108](https://doi.org/10.1016/j.nima.2014.11.108).
- [62] A. Lüdeke, M. Bieler, R. H. A. Farias, S. Krecic u. a. "Common operation metrics for storage ring light sources". *Phys. Rev. Accel. Beams* **19**.8 (2016), S. 082802. DOI: [10.1103/PhysRevAccelBeams.19.082802](https://doi.org/10.1103/PhysRevAccelBeams.19.082802).
- [63] S. Plogmaker, P. Linusson, J. H. D. Eland, N. Baker u. a. "Versatile high-repetition-rate phase-locked chopper system for fast timing experiments in the vacuum ultraviolet and x-ray spectral region". *Rev. Sci. Instrum.* **83**.1 (2012), S. 013115. DOI: [10.1063/1.3677329](https://doi.org/10.1063/1.3677329).
- [64] D. F. Förster, B. Lindenau, M. Leyendecker, F. Janssen u. a. "Phase-locked MHz pulse selector for x-ray sources". *Opt. Lett.* **40**.10 (2015), S. 2265–2268. DOI: [10.1364/OL.40.002265](https://doi.org/10.1364/OL.40.002265).
- [65] Y. Hikosaka. "A virtual stretch of light pulse interval by pulsed electron extraction introduced into a magnetic bottle electron spectrometer". *Rev. Sci. Instrum.* **90**.5 (2019), S. 053105. DOI: [10.1063/1.5093465](https://doi.org/10.1063/1.5093465).
- [66] M. Ries, J. Feikes, T. Goetsch, P. Goslawski u. a. "Transverse Resonance Island Buckets at the MLS and BESSY II". Englisch. *Proc. 6th International Particle Accelerator Conference (IPAC'15), Richmond, VA, USA, May 3-8, 2015* (Richmond, VA, USA). International Particle Accelerator Conference 6. Geneva, Switzerland: JACoW, Juni 2015, S. 138–140. ISBN: 978-3-95450-168-7. DOI: [10.18429/JACoW-IPAC2015-MOPWA021](https://doi.org/10.18429/JACoW-IPAC2015-MOPWA021).

- [67] K. Holldack, R. Ovsyannikov, P. Kuske, R. Müller u. a. "Single bunch X-ray pulses on demand from a multi-bunch synchrotron radiation source". *Nat. Commun.* **5** (2014), S. 4010. DOI: [10.1038/ncomms5010](https://doi.org/10.1038/ncomms5010).
- [68] R. Müller, T. Birke, F. Falkenstern, K. Holldack u. a. "Pseudo Single Bunch Qualities Added to Short Pulse Operation of BESSY II". Englisch. *Proc. of International Particle Accelerator Conference (IPAC 2017), Copenhagen, Denmark, May, 2017* (Copenhagen, Denmark). International Particle Accelerator Conference 8. Geneva, Switzerland: JACoW, Mai 2017, S. 2574–2577. DOI: [10.18429/JACoW-IPAC2017-WEPAB007](https://doi.org/10.18429/JACoW-IPAC2017-WEPAB007).
- [69] E. Jensen, R. A. Bartynski, S. L. Hulbert und E. D. Johnson. "Auger photoelectron coincidence spectroscopy using synchrotron radiation". *Rev. Sci. Instrum.* **63**.5 (1992), S. 3013–3026. ISSN: 0034-6748. DOI: [10.1063/1.1142602](https://doi.org/10.1063/1.1142602).
- [70] P. Calicchia, S. Lagomarsino, F. Scarinci, C. Martinelli u. a. "A study on background subtraction in Auger and photoelectron time coincidence spectroscopy using third generation synchrotron radiation source". *Rev. Sci. Instrum.* **70**.9 (1999), S. 3529–3536. ISSN: 0034-6748. DOI: [10.1063/1.1149955](https://doi.org/10.1063/1.1149955).
- [71] P. Bolognesi, M. Coreno, G. Alberti, R. Richter u. a. "Photodouble ionization beyond the helium case". *J. Electron Spectros. Relat. Phenom.* **141**.2-3 (2004), S. 105–119. ISSN: 03682048. DOI: [10.1016/j.elspec.2004.06.011](https://doi.org/10.1016/j.elspec.2004.06.011).
- [72] V. Ulrich, S. Barth, T. Lischke, S. Joshi u. a. "Photoelectron-Auger electron coincidence spectroscopy of free molecules: New experiments". *J. Electron Spectros. Relat. Phenom.* **183**.1-3 (2011), S. 70–79. ISSN: 03682048. DOI: [10.1016/j.elspec.2010.03.001](https://doi.org/10.1016/j.elspec.2010.03.001).
- [73] S. M. Buckman und D. Ius. "Digital coincidence counting". *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **369**.2-3 (1996), S. 368–374. ISSN: 01689002. DOI: [10.1016/S0168-9002\(96\)80011-8](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(96)80011-8).
- [74] K. Butcher, G. Watt, D. Alexiev, H. van der Gaast u. a. "Digital coincidence counting – initial results". *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **450**.1 (2000), S. 30–34. ISSN: 0168-9002. DOI: [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(00\)00249-7](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(00)00249-7). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900200002497>.
- [75] M. Havelka, P. Auerbach und J. Sochorová. "Software coincidence counting". *Appl. Radiat. Isot.* **56**.1-2 (2002), S. 265–268. ISSN: 09698043. DOI: [10.1016/S0969-8043\(01\)00198-1](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(01)00198-1).
- [76] J. D. Keightley und G. C. Watt. "Digital coincidence counting (DCC) and its use in the corrections for out-of-channel gamma events in  $4\pi\beta - \gamma$  coincidence counting". *Appl. Radiat. Isot.* **56**.1-2 (2002), S. 205–210. ISSN: 09698043. DOI: [10.1016/S0969-8043\(01\)00189-0](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(01)00189-0).
- [77] G. Prümper, Y. Tamenori, A. de Fanis, U. Hergenhahn u. a. "Ultrafast dissociation of F 1s excited SF 6 probed by electron-ion momentum coincidence spectroscopy". *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **38**.1 (2005), S. 1–10. ISSN: 0953-4075. DOI: [10.1088/0953-4075/38/1/001](https://doi.org/10.1088/0953-4075/38/1/001).
- [78] G. Prümper und K. Ueda. "Electron–ion–ion coincidence experiments for photofragmentation of polyatomic molecules using pulsed electric fields: Treatment of random coincidences". *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **574**.2 (2007), S. 350–362. ISSN: 01689002. DOI: [10.1016/j.nima.2007.02.071](https://doi.org/10.1016/j.nima.2007.02.071).

- [79] A. Hans, T. Miteva, X. Holzapfel, C. Ozga u. a. "Electronic Decay of Singly Charged Ground-State Ions by Charge Transfer via van der Waals Bonds". *Phys. Rev. Lett.* **123**.21 (2019), S. 213001. DOI: [10.1103/PhysRevLett.123.213001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.123.213001).
- [80] A. Hans, C. Küstner-Wetekam, P. Schmidt, C. Ozga u. a. "Core-level interatomic Coulombic decay in van der Waals clusters". *Phys. Rev. Research* **2**.1 (2020), 012022(R). DOI: [10.1103/PhysRevResearch.2.012022](https://doi.org/10.1103/PhysRevResearch.2.012022).
- [81] F. Schwabl. *Quantenmechanik (QM I): Eine Einführung*. 7. Aufl. Springer-Lehrbuch. Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag, 2007. ISBN: 978-3-540-73674-5. DOI: [10.1007/978-3-540-73675-2](https://doi.org/10.1007/978-3-540-73675-2).
- [82] I. V. Hertel und C.-P. Schulz. *Atome, Moleküle und optische Physik 1: Atome und Grundlagen ihrer Spektroskopie*. 2. Auflage. Springer-Lehrbuch. Berlin, Heidelberg: Springer Spektrum, 2017. ISBN: 978-3-662-53104-4. DOI: [10.1007/978-3-662-53104-4](https://doi.org/10.1007/978-3-662-53104-4).
- [83] W. Nolting. *Grundkurs Theoretische Physik 5/1: Quantenmechanik - Grundlagen*. 7., aktualisierte Aufl. Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag, 2009. ISBN: 978-3-540-68868-6. DOI: [10.1007/978-3-540-68869-3](https://doi.org/10.1007/978-3-540-68869-3).
- [84] W. Demtröder. *Atoms, Molecules and Photons: An Introduction to Atomic-, Molecular- and Quantum Physics*. 2. ed. Graduate Texts in Physics. Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2010. ISBN: 978-3-642-10297-4. DOI: [10.1007/978-3-642-10298-1](https://doi.org/10.1007/978-3-642-10298-1).
- [85] H. Haken, W. D. Brewer und H. C. Wolf. *The Physics of Atoms and Quanta: Introduction to Experiments and Theory*. Seventh Revised and Enlarged Edition With 300 Figures, 30 Tables, 177 Problems and Solutions. Advanced Texts in Physics. Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2005. ISBN: 978-3-540-20807-5. DOI: [10.1007/3-540-29281-0](https://doi.org/10.1007/3-540-29281-0).
- [86] G. Racah. "On a New Type of Vector Coupling in Complex Spectra". *Phys. Rev.* **61**.7-8 (1942), S. 537. ISSN: 0031-899X. DOI: [10.1103/PhysRev.61.537](https://doi.org/10.1103/PhysRev.61.537).
- [87] G. Racah. "Theory of Complex Spectra. II". *Phys. Rev.* **62**.9-10 (1942), S. 438–462. ISSN: 0031-899X. DOI: [10.1103/PhysRev.62.438](https://doi.org/10.1103/PhysRev.62.438).
- [88] W. Demtröder. *Moleküophysik: Theoretische Grundlagen und experimentelle Methoden*. Berlin, Boston: De Gruyter, 2013. ISBN: 3486249746. DOI: [10.1524/9783486714890](https://doi.org/10.1524/9783486714890).
- [89] I. V. Hertel und C.-P. Schulz. *Atome, Moleküle und optische Physik 2*. Springer-Lehrbuch. Berlin und Heidelberg: Springer Spektrum, 2010. ISBN: 978-3-642-11973-6. DOI: [10.1007/978-3-642-11973-6](https://doi.org/10.1007/978-3-642-11973-6).
- [90] H. Haken und H. C. Wolf. *Moleküophysik und Quantenchemie: Einführung in die experimentellen und theoretischen Grundlagen ; mit 43 Tabellen und 133 Aufgaben*. Springer-Lehrbuch. Berlin: Springer, 2006. ISBN: 978-3-540-30315-2. DOI: [10.1007/3-540-30315-4](https://doi.org/10.1007/3-540-30315-4).
- [91] S. D. Stoychev, A. I. Kuleff, F. Tarantelli und L. S. Cederbaum. "On the doubly ionized states of Ar<sub>2</sub> and their intra- and interatomic decay to Ar<sub>2</sub><sup>3+</sup>". *J. Chem. Phys.* **128**.1 (2008), S. 014307. DOI: [10.1063/1.2814241](https://doi.org/10.1063/1.2814241).
- [92] A. Hans. "Fluoreszenzspektroskopie an Clustern & Flüssigkeiten - Untersuchung interatomarer und intermolekulärer Prozesse in dichten Medien". Dissertation. Universität Kassel, 2018. URL: <https://kobra.uni-kassel.de/handle/123456789/2018061155650>.

- [93] N. Saito, Y. Morishita, I. H. Suzuki, S. D. Stoychev u. a. "Evidence of radiative charge transfer in argon dimers". *Chem. Phys. Lett.* **441**.1-3 (2007), S. 16–19. ISSN: 00092614. DOI: [10.1016/j.cplett.2007.04.077](https://doi.org/10.1016/j.cplett.2007.04.077).
- [94] X. Ren, E. Jabbour Al Maalouf, A. Dorn und S. Denifl. "Direct evidence of two interatomic relaxation mechanisms in argon dimers ionized by electron impact". *Nat. Commun.* **7** (2016), S. 11093. DOI: [10.1038/ncomms11093](https://doi.org/10.1038/ncomms11093).
- [95] J. D. Jackson. *Classical electrodynamics*. 3. ed., [Nachdr.] Hoboken, NY: Wiley, 1999. ISBN: 978-0-471-30932-1. URL: <https://www.wiley.com/en-us/Classical+Electrodynamics%2C+3rd+Edition-p-9780471309321>.
- [96] V. Schmidt. "Photoionization of atoms using synchrotron radiation". *Rep. Prog. Phys.* **55**.9 (Sep. 1992), S. 1483–1659. DOI: [10.1088/0034-4885/55/9/003](https://doi.org/10.1088/0034-4885/55/9/003).
- [97] Lindle, Heimann, Ferrett und Shirley. "Helium photoelectron satellites: Low-energy behavior of the  $n = 3 - 5$  lines". *Phys. Rev. A* **35**.3 (1987), S. 1128–1131. ISSN: 0556-2791. DOI: [10.1103/PhysRevA.35.1128](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.35.1128).
- [98] R. Wehlitz, B. Langer, N. Berrah, S. B. Whitfield u. a. "Angular distributions of helium satellites  $\text{He}^+ n l (n = 2 - 7)$ ". *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **26**.22 (1993), S. L783–L788. ISSN: 0953-4075. DOI: [10.1088/0953-4075/26/22/002](https://doi.org/10.1088/0953-4075/26/22/002).
- [99] M. Amusia, L. Chernysheva und V. Yarzhemsky. *Handbook of Theoretical Atomic Physics: Data for Photon Absorption, Electron Scattering, and Vacancies Decay*. Berlin, Heidelberg: Springer, 2012. ISBN: 978-3-642-24752-1. DOI: [10.1007/978-3-642-24752-1](https://doi.org/10.1007/978-3-642-24752-1).
- [100] M. Siegbahn. "Relations between the K and L Series of the High-Frequency Spectra". *Nature* **96**.2416 (1916), S. 676. ISSN: 0028-0836. DOI: [10.1038/096676b0](https://doi.org/10.1038/096676b0).
- [101] P. Schmidt. "Visualizing the electronic structure of small molecules with rovibronic photon emission spectroscopy". Dissertation. Universität Kassel, 2018. DOI: [10.17170/kobra-20190206178](https://doi.org/10.17170/kobra-20190206178).
- [102] T. Butz. *Fouriertransformation für Fußgänger*. 7., aktualisierte Auflage. Wiesbaden: Vieweg+Teubner Verlag / Springer Fachmedien Wiesbaden GmbH Wiesbaden, 2012. ISBN: 9783834809469. DOI: [10.1007/978-3-8348-8295-0](https://doi.org/10.1007/978-3-8348-8295-0).
- [103] K. Ueda, Y. Shimizu, H. Chiba, M. Kitajima u. a. "Experimental and theoretical study of the Auger cascade following  $2p \rightarrow 4s$  photoexcitation in Ar". *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **34**.1 (2001), S. 107–119. ISSN: 0953-4075. DOI: [10.1088/0953-4075/34/1/308](https://doi.org/10.1088/0953-4075/34/1/308).
- [104] C. Ozga, P. Reiβ, W. Kielich, S. Klumpp u. a. "Fluorescence cascades after excitation of Xell  $5p^4 6p$  satellite states by synchrotron radiation". *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **48**.1 (2015), S. 015004. ISSN: 0953-4075. DOI: [10.1088/0953-4075/48/1/015004](https://doi.org/10.1088/0953-4075/48/1/015004).
- [105] W. Bothe und H. Geiger. "Über das Wesen des Comptoneffekts; ein experimenteller Beitrag zur Theorie der Strahlung". *Z. Physik* **32**.1 (1925), S. 639–663. ISSN: 1434-6001. DOI: [10.1007/BF01331702](https://doi.org/10.1007/BF01331702).
- [106] C. Eckart und F. R. Shonka. "Accidental Coincidences in Counter Circuits". *Physical Review* **53**.9 (1938), S. 752–756. ISSN: 0031-899X. DOI: [10.1103/PhysRev.53.752](https://doi.org/10.1103/PhysRev.53.752).
- [107] E. Schrödinger. "Rate of n-fold Accidental Coincidences". *Nature* **153**.3889 (1944), S. 592–593. ISSN: 0028-0836. DOI: [10.1038/153592b0](https://doi.org/10.1038/153592b0).

- [108] J. Bryant. "Coincidence counting corrections for dead-time loss and accidental coincidences". *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* **14**.3 (1963), S. 143–151. ISSN: 0020708X. DOI: [10.1016/0020-708X\(63\)90109-1](https://doi.org/10.1016/0020-708X(63)90109-1).
- [109] J.-Y. Yu, Z. Wang und S.-M. Chen. "A precise calculation of delayed coincidence selection efficiency and accidental coincidence rate". *Chinese Physics C* **39**.5 (2015), S. 056201. ISSN: 1674-1137. DOI: [10.1088/1674-1137/39/5/056201](https://doi.org/10.1088/1674-1137/39/5/056201).
- [110] R. M. Littauer. "Random Coincidence Rates with Unsteady Sources". *Rev. Sci. Instrum.* **21**.8 (1950), S. 750–752. ISSN: 0034-6748. DOI: [10.1063/1.1745703](https://doi.org/10.1063/1.1745703).
- [111] E. Strick und D. Ter Haar. "Production of  $\pi$ -Mesons by High Energy Electrons". *Physical Review* **78**.1 (1950), S. 68–69. ISSN: 0031-899X. DOI: [10.1103/PhysRev.78.68.3](https://doi.org/10.1103/PhysRev.78.68.3).
- [112] J. F. Oliver und M. Rafecas. "Modelling Random Coincidences in Positron Emission Tomography by Using Singles and Prompts: A Comparison Study". *PLOS ONE* **11**.9 (Sep. 2016), S. 1–22. DOI: [10.1371/journal.pone.0162096](https://doi.org/10.1371/journal.pone.0162096).
- [113] I. Powis und P. Downie. "Background correction in electron-ion coincidence experiments using a self-optimizing, pseudorandom count generator". *Rev. Sci. Instrum.* **69**.9 (1998), S. 3142–3145. ISSN: 0034-6748. DOI: [10.1063/1.1149074](https://doi.org/10.1063/1.1149074).
- [114] A. E. Slattery, T. A. Field, M. Ahmad, R. I. Hall u. a. "A method of false coincidence removal from measurements of quadruple coincidences between two photoelectrons and two photoions generated in molecular double photoionization". *Meas. Sci. Technol.* **13**.12 (2002), S. 2007–2016. ISSN: 0957-0233. DOI: [10.1088/0957-0233/13/12/328](https://doi.org/10.1088/0957-0233/13/12/328).
- [115] D. L. Osborn, C. C. Hayden, P. Hemberger, A. Bodi u. a. "Breaking through the false coincidence barrier in electron-ion coincidence experiments". *J. Chem. Phys.* **145**.16 (2016), S. 164202. DOI: [10.1063/1.4965428](https://doi.org/10.1063/1.4965428).
- [116] C. Giffin, A. Kaufman und W. Broecker. "Delayed coincidence counter for the assay of actinon and thoron". *Journal of Geophysical Research* **68**.6 (1963), S. 1749–1757. ISSN: 01480227. DOI: [10.1029/JZ068i006p01749](https://doi.org/10.1029/JZ068i006p01749).
- [117] E. B. Shera, K. J. Casper und B. L. Robinson. "Analysis of chance coincidences in fast-slow coincidence systems". *Nuclear Instruments and Methods* **24** (1963), S. 482–492. ISSN: 0029554X. DOI: [10.1016/0029-554X\(63\)90371-9](https://doi.org/10.1016/0029-554X(63)90371-9).
- [118] F. R. Elder, A. M. Gurewitsch, R. V. Langmuir und H. C. Pollock. "Radiation from Electrons in a Synchrotron". *Phys. Rev.* **71** (1947), S. 829. DOI: [10.1103/PhysRev.71.829.5](https://doi.org/10.1103/PhysRev.71.829.5).
- [119] A. Hofmann, T. Ericson und P. Y. Landshoff. *The Physics of Synchrotron Radiation*. Bd. v.20. Cambridge Monographs on Particle Physics, Nuclear Physics and Cosmology. Cambridge: Cambridge University Press, 2004. ISBN: 978-0-511-19416-0. DOI: [10.1017/CBO9780511534973](https://doi.org/10.1017/CBO9780511534973).
- [120] P. Goslawski, J. Feikes, K. Holldack, A. Jankowiak u. a. "Resonance Island Experiments at BESSY II for User Applications". Englisch. *Proc. of International Particle Accelerator Conference (IPAC'16), Busan, Korea, May 8-13, 2016* (Busan, Korea). International Particle Accelerator Conference 7. Geneva, Switzerland: JACoW, Juni 2016, S. 3427–3430. ISBN: 978-3-95450-147-2. DOI: [10.18429/JACoW-IPAC2016-THPMR017](https://doi.org/10.18429/JACoW-IPAC2016-THPMR017).
- [121] H.-Z. B. für Materialien und Energie. *Operating Modi BESSY II*. 2021. URL: [https://www.helmholtz-berlin.de/forschung/oe/be/operation-accelerator/betriebsmodi\\_en.html](https://www.helmholtz-berlin.de/forschung/oe/be/operation-accelerator/betriebsmodi_en.html) (besucht am 18.02.2021).

- [122] R. Müller, T. Birke, F. Falkenstern, H. Glass u. a. "BESSY II Supports an Extensive Suite of Timing Experiments". Englisch. *Proc. of International Particle Accelerator Conference (IPAC'16), Busan, Korea, May 8-13, 2016* (Busan, Korea). International Particle Accelerator Conference 7. Geneva, Switzerland: JACoW, Juni 2016, S. 2840–2843. ISBN: 978-3-95450-147-2. DOI: [10.18429/JACoW-IPAC2016-WEPOW011](https://doi.org/10.18429/JACoW-IPAC2016-WEPOW011).
- [123] K. Holldack, J. Bahrdt, A. Balzer, U. Bovensiepen u. a. "FemtoSpeX: a versatile optical pump-soft X-ray probe facility with 100 fs X-ray pulses of variable polarization". *J. Synchrotron Rad.* **21**.5 (2014), S. 1090–1104. DOI: [10.1107/S1600577514012247](https://doi.org/10.1107/S1600577514012247).
- [124] S. Khan. *Collective Phenomena in Synchrotron Radiation Sources: Prediction, diagnostics, countermeasures*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2006. ISBN: 9783540343127. DOI: [10.1007/978-3-540-34313-4](https://doi.org/10.1007/978-3-540-34313-4).
- [125] O. F. Hagena und W. Obert. "Cluster Formation in Expanding Supersonic Jets: Effect of Pressure, Temperature, Nozzle Size, and Test Gas". *J. Chem. Phys.* **56**.5 (1972), S. 1793–1802. DOI: [10.1063/1.1677455](https://doi.org/10.1063/1.1677455).
- [126] S. P. Marburger. "Experimentelle Untersuchungen zum Interatomaren Coulomb Zerfall an Neon Clustern". Dissertation. Technische Universität Berlin, 2004. DOI: [10.14279/depositonce-855](https://doi.org/10.14279/depositonce-855).
- [127] M. Mucke. "Employing electron-electron coincidence techniques to investigate the autoionisation of clusters". Dissertation. Technische Universität Berlin, 2011. DOI: [10.14279/depositonce-2853](https://doi.org/10.14279/depositonce-2853).
- [128] M. Förstel. "Investigation of non-local autoionization processes in rare gas clusters". Dissertation. Technische Universität Berlin, 2012. DOI: [10.14279/depositonce-3321](https://doi.org/10.14279/depositonce-3321).
- [129] H. Haberland, Hrsg. *Clusters of Atoms and Molecules: Theory, Experiment, and Clusters of Atoms*. Bd. 52. Springer Series in Chemical Physics. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 1994. ISBN: 978-3-642-84329-7. DOI: [10.1007/978-3-642-84329-7](https://doi.org/10.1007/978-3-642-84329-7).
- [130] O. F. Hagena. "Cluster ion sources (invited)". *Rev. Sci. Instrum.* **63**.4 (1992), S. 2374–2379. DOI: [10.1063/1.1142933](https://doi.org/10.1063/1.1142933).
- [131] C.-R. Wang, R.-B. Huang, Z.-Y. Liu und L.-S. Zheng. "Lognormal size distributions of elemental clusters". *Chem. Phys. Lett.* **227**.1-2 (1994), S. 103–108. ISSN: 00092614. DOI: [10.1016/0009-2614\(94\)00790-X](https://doi.org/10.1016/0009-2614(94)00790-X).
- [132] R. Karnbach, M. Joppien, J. Stapelfeldt, J. Wörmer u. a. "CLULU: An experimental setup for luminescence measurements on van der Waals clusters with synchrotron radiation". *Rev. Sci. Instrum.* **64**.10 (1993), S. 2838–2849. ISSN: 0034-6748. DOI: [10.1063/1.1144371](https://doi.org/10.1063/1.1144371).
- [133] U. Buck und R. Krohne. "Cluster size determination from diffractive He atom scattering". *J. Chem. Phys.* **105**.13 (1996), S. 5408–5415. ISSN: 00219606. DOI: [10.1063/1.472406](https://doi.org/10.1063/1.472406).
- [134] X. Holzapfel, A. Schrödt, G. Hartmann, L. Marder u. a. "Determination of Mean Cluster Sizes by Fluorescence Detection upon Site-Specific Photoexcitation". *J. Phys. Chem. A* **124**.26 (2020), S. 5352–5358. DOI: [10.1021/acs.jpca.0c02726](https://doi.org/10.1021/acs.jpca.0c02726).
- [135] I. Beam Dynamics. *Molecular Beam Skimmers*. 2020. URL: [www.beamdynamicsinc.com/molecular-beam-skimmers](http://www.beamdynamicsinc.com/molecular-beam-skimmers) (besucht am 21.10.2020).

- [136] J. Ladislas Wiza. "Microchannel plate detectors". *Nuclear Instruments and Methods* **162**.1-3 (1979), S. 587–601. ISSN: 0029554X. DOI: [10.1016/0029-554X\(79\)90734-1](https://doi.org/10.1016/0029-554X(79)90734-1).
- [137] P. Kruit und F. H. Read. "Magnetic field paralleliser for  $2\pi$  electron-spectrometer and electron-image magnifier". *J. Phys. E: Sci. Instrum.* **16**.4 (1983), S. 313. DOI: [10.1088/0022-3735/16/4/016](https://doi.org/10.1088/0022-3735/16/4/016).
- [138] A. Hans, P. Schmidt, C. Ozga, G. Hartmann u. a. "Extreme Ultraviolet to Visible Dispersed Single Photon Detection for Highly Sensitive Sensing of Fundamental Processes in Diverse Samples". *Materials* **11**.6 (2018), S. 869. ISSN: 1996-1944. DOI: [10.3390/ma11060869](https://doi.org/10.3390/ma11060869).
- [139] O. Jagutzki, A. Cerezo, A. Czasch, R. Dorner u. a. "Multiple hit readout of a microchannel plate detector with a three-layer delay-line anode". *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **49**.5 (2002), S. 2477–2483. ISSN: 0018-9499. DOI: [10.1109/TNS.2002.803889](https://doi.org/10.1109/TNS.2002.803889).
- [140] P. Reiß. "Dispergierte und zeitaufgelöste Untersuchung der Neutraldissoziation des Wasserstoffmoleküls über Lyman- $\alpha$ -Lyman- $\alpha$ -Koinzidenzen und der Fluoreszenz von Diamantoiden nach Anregung mit Synchrotronstrahlung". Dissertation. Universität Kassel, 2016. URL: <https://kobra.uni-kassel.de/handle/123456789/2016121951760>.
- [141] *PMT240 Test Summary*. PHOTEK. Sep. 2010.
- [142] A. Knie. "Photon induced inner-shell excitation processes of nitrous oxide probed by angle resolved fluorescence and Auger-Electron spectrometry". Dissertation. Universität Kassel, 2012. URL: <https://www.uni-kassel.de/ub/index.php?id=39129&s=978-3-86219-458-2>.
- [143] "Building Blocks of Advanced TCSPC Devices". *Advanced Time-Correlated Single Photon Counting Techniques*. Hrsg. von A. W. Castleman, J. Toennies und W. Zinth. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2005, S. 47–60. ISBN: 978-3-540-28882-4. DOI: [10.1007/3-540-28882-1\\_4](https://doi.org/10.1007/3-540-28882-1_4).
- [144] O. Jagutzki und T. Jahnke. *TDC8HP Manual*. 2020. URL: <http://www.roentdek.com/manuals/TDC8HP%20Manual.pdf> (besucht am 16.10.2019).
- [145] H.-O. Georgii. *Stochastik: Einführung in die Wahrscheinlichkeitstheorie und Statistik*. 3rd ed. De Gruyter Lehrbuch. Berlin: De Gruyter, 2007. ISBN: 9783110193497. DOI: [10.1515/9783110206777](https://doi.org/10.1515/9783110206777).
- [146] M. Mucke, M. Förstel, T. Lischke, T. Arion u. a. "Performance of a short "magnetic bottle" electron spectrometer". *Rev. Sci. Instrum.* **83**.6 (2012), S. 063106. DOI: [10.1063/1.4729256](https://doi.org/10.1063/1.4729256).
- [147] G. C. King, M. Tronc, F. H. Read und R. C. Bradford. "An investigation of the structure near the  $L_{2,3}$  edges of argon, the  $M_{4,5}$  edges of krypton and the  $N_{4,5}$  edges of xenon, using electron impact with high resolution". *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **10**.12 (1977), S. 2479–2495. DOI: [10.1088/0022-3700/10/12/026](https://doi.org/10.1088/0022-3700/10/12/026).
- [148] P. T. Boggs, R. H. Byrd und R. B. Schnabel. "A Stable and Efficient Algorithm for Nonlinear Orthogonal Distance Regression". *SIAM J. Sci. and Stat. Comput.* **8**.6 (1987), S. 1052–1078. ISSN: 0196-5204. DOI: [10.1137/0908085](https://doi.org/10.1137/0908085).
- [149] P. T. Boggs, J. R. Donaldson, R. h. Byrd und R. B. Schnabel. "Algorithm 676: ODRPACK: Software for Weighted Orthogonal Distance Regression". *ACM Trans. Math. Softw.* **15**.4 (1989), S. 348–364. ISSN: 0098-3500. DOI: [10.1145/76909.76913](https://doi.org/10.1145/76909.76913).

- [150] M. Mucke, T. Arion, M. Förstel, T. Lischke u. a. "Competition of inelastic electron scattering and Interatomic Coulombic Decay in Ne clusters". *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* **200** (2015). Special Anniversary Issue: Volume 200, S. 232–238. ISSN: 0368-2048. DOI: [10.1016/j.elspec.2015.04.017](https://doi.org/10.1016/j.elspec.2015.04.017).
- [151] B. W. Huber und K. Krämer. "A method of correction for false and accidental events in  $\gamma\gamma$ -coincidence experiments". *Nuclear Instruments and Methods* **114**.3 (1974), S. 509–512. ISSN: 0029-554X. DOI: [10.1016/0029-554X\(74\)90175-X](https://doi.org/10.1016/0029-554X(74)90175-X).
- [152] D. Brasse, P. E. Kinahan, C. Lartizien, C. Comtat u. a. "Correction methods for random coincidences in fully 3D whole-body PET: impact on data and image quality". *J. Nucl. Med.* **46**.5 (2005). PMID: 15872361, S. 859–867. ISSN: 0161-5505. URL: <https://pubmed.ncbi.nlm.nih.gov/15872361/>.
- [153] K. Parodi, P. Crespo, H. Eickhoff, T. Haberer u. a. "Random coincidences during in-beam PET measurements at microbunched therapeutic ion beams". *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **545**.1 (2005), S. 446–458. ISSN: 0168-9002. DOI: [10.1016/j.nima.2005.02.002](https://doi.org/10.1016/j.nima.2005.02.002).
- [154] Heimann, Becker, Kerkhoff, Langer u. a. "Helium and neon photoelectron satellites at threshold". *Phys. Rev. A* **34**.5 (1986), S. 3782–3791. ISSN: 0556-2791. DOI: [10.1103/PhysRevA.34.3782](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.34.3782).
- [155] J. M. Bizau und F. J. Wuilleumier. "Redetermination of absolute partial photoionization cross sections of He and Ne atoms between 20 and 300 eV photon energy". *J. Electron Spectros. Relat. Phenom.* **71**.3 (1995), S. 205–224. ISSN: 03682048. DOI: [10.1016/0368-2048\(94\)02268-2](https://doi.org/10.1016/0368-2048(94)02268-2).
- [156] A. Kikas, S. J. Osborne, A. Ausmees, S. Svensson u. a. "High-resolution study of the correlation satellites in photoelectron spectra of the rare gases". *J. Electron Spectros. Relat. Phenom.* **77**.3 (1996), S. 241–266. ISSN: 03682048. DOI: [10.1016/0368-2048\(95\)02552-9](https://doi.org/10.1016/0368-2048(95)02552-9).
- [157] J. R. Harries, J. P. Sullivan, S. Obara, P. Hammond u. a. "Doubly excited states of helium observed in  $N-$  and  $l-$  specific partial photoionization cross-sections using lifetime-resolved fluorescence spectroscopy". *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **36**.19 (2003), S. L319–L326. ISSN: 0953-4075. DOI: [10.1088/0953-4075/36/19/L03](https://doi.org/10.1088/0953-4075/36/19/L03).
- [158] W. L. Wiese und J. R. Fuhr. "Accurate Atomic Transition Probabilities for Hydrogen, Helium, and Lithium". *J. Phys. Chem. Ref. Daten* **38**.3 (2009), S. 565–720. ISSN: 0047-2689. DOI: [10.1063/1.3077727](https://doi.org/10.1063/1.3077727).
- [159] A. I. Mikhailov und A. V. Nefiodov. "Photoionization of heliumlike ions with excitation of  $nl$  states". *Phys. Rev. A* **86**.1 (2012), S. 013413. ISSN: 1050-2947. DOI: [10.1103/PhysRevA.86.013413](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.86.013413).
- [160] T. Kachel und Helmholtz-Zentrum Berlin für Materialien und Energie. "The plane grating monochromator beamline U49-2 PGM-1 at BESSY II". *Journal of large-scale research facilities JLSRF* **2** (2016), A72. DOI: [10.17815/jlsrf-2-75](https://doi.org/10.17815/jlsrf-2-75).
- [161] A. Kramida, Y.Ralchenko, J. Reader und NIST ASD Team. NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.7.1), [Online]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD. 2019. URL: <https://physics.nist.gov/asd> (besucht am 20.08.2020).
- [162] G. Hass und W. Hunter. "Preparation and measurement of reflecting coatings for the vacuum ultraviolet". *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **2**.4 (1962), S. 637–646. ISSN: 0022-4073. DOI: [10.1016/0022-4073\(62\)90050-X](https://doi.org/10.1016/0022-4073(62)90050-X).

- [163] J. Edmends, C. Maldé und S. Corrigan. "Measurements of the far ultraviolet reflectivity of evaporated aluminum films under exposure to O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, CO and CO<sub>2</sub>". *Vacuum* **40**.5 (1990), S. 471–475. ISSN: 0042-207X. DOI: [10.1016/0042-207X\(90\)90248-W](https://doi.org/10.1016/0042-207X(90)90248-W).
- [164] M. Fernández-Perea, J. Aznárez, J. Calvo-Angós, J. Larruquert u. a. "Far ultraviolet reflectance variation of MgF<sub>2</sub>-protected aluminum films under controlled exposure to the main components of the atmosphere". *Thin Solid Films* **497**.1 (2006), S. 249–253. ISSN: 0040-6090. DOI: [10.1016/j.tsf.2005.10.074](https://doi.org/10.1016/j.tsf.2005.10.074).
- [165] K. Balasubramanian, J. Hennessy, N. Raouf, S. Nikzad u. a. "Coatings for UVOIR telescope mirrors". *UV/Optical/IR Space Telescopes and Instruments: Innovative Technologies and Concepts VII*. Hrsg. von H. A. MacEwen und J. B. Breckinridge. Bd. 9602. SPIE, 2015, S. 195–203. DOI: [10.1117/12.2188981](https://doi.org/10.1117/12.2188981).
- [166] D. D. Allred, Y. Wug-Jerez, R. S. Turley, J. G. Richardson u. a. "A study of ultrathin fluoride and removable barrier films on aluminum for space-observatories with far UV observations. (Conference Presentation)". *Space Telescopes and Instrumentation 2018: Ultraviolet to Gamma Ray*. Hrsg. von J.-W. A. den Herder, S. Nikzad und K. Nakazawa. Bd. 10699. International Society for Optics und Photonics. SPIE, 2018. DOI: [10.1117/12.2314382](https://doi.org/10.1117/12.2314382).
- [167] L. O. Werme, T. Bergmark und K. Siegbahn. "The L<sub>2,3</sub>MM Auger Spectrum of Argon". *Phys. Scr.* **8**.4 (1973), S. 149–153. ISSN: 0031-8949. DOI: [10.1088/0031-8949/8/4/004](https://doi.org/10.1088/0031-8949/8/4/004).
- [168] E. J. McGuire. "Auger spectrum of the noble gases. II. Argon". *Phys. Rev. A* **11**.6 (1975), S. 1880–1888. ISSN: 0556-2791. DOI: [10.1103/PhysRevA.11.1880](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.11.1880).
- [169] M. Agentoft, T. Andersen, J. E. Hansen, W. Persson u. a. "A Study of the ns<sup>0</sup>np<sup>6</sup>1S States in the Rare Gas Ions". *Phys. Scr.* **29**.1 (1984), S. 57–60. ISSN: 0031-8949. DOI: [10.1088/0031-8949/29/1/009](https://doi.org/10.1088/0031-8949/29/1/009).
- [170] J. E. Hansen und W. Persson. "A revised analysis of the spectrum of Ar III". *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **20**.4 (1987), S. 693–706. ISSN: 0022-3700. DOI: [10.1088/0022-3700/20/4/010](https://doi.org/10.1088/0022-3700/20/4/010).
- [171] P. Glans, R. E. LaVilla, M. Ohno, S. Svensson u. a. "Determination of the lifetime width of the argon L<sub>1</sub>-hole state". *Phys. Rev. A* **47** (2 1993), S. 1539–1542. DOI: [10.1103/PhysRevA.47.1539](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.47.1539).
- [172] H. Pulkkinen, S. Aksela, O.-P. Sairanen, A. Hiltunen u. a. "Correlation effects in the L<sub>2,3</sub> – MM Auger transitions of Ar". *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **29**.14 (1996), S. 3033–3050. ISSN: 0953-4075. DOI: [10.1088/0953-4075/29/14/016](https://doi.org/10.1088/0953-4075/29/14/016).
- [173] J. Viefhaus, S. Cvejanović, B. Langer, T. Lischke u. a. "Energy and Angular Distributions of Electrons Emitted by Direct Double Auger Decay". *Phys. Rev. Lett.* **92**.8 (2004), S. 083001. DOI: [10.1103/PhysRevLett.92.083001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.92.083001).
- [174] P. Lablanquie, L. Andric, J. Palaudoux, U. Becker u. a. "Multielectron spectroscopy: Auger decays of the argon 2p hole". *J. Electron Spectros. Relat. Phenom.* **156-158** (2007), S. 51–57. ISSN: 03682048. DOI: [10.1016/j.elspec.2006.11.062](https://doi.org/10.1016/j.elspec.2006.11.062).
- [175] M. Nakano, Y. Hikosaka, P. Lablanquie, F. Penent u. a. "Auger decay of Ar 2p satellite states studied with a multielectron coincidence method". *Phys. Rev. A* **85**.4 (2012). ISSN: 1050-2947. DOI: [10.1103/PhysRevA.85.043405](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.85.043405).
- [176] W. Persson. "The Spectrum of Singly Ionized Neon, Ne II". *Phys. Scr.* **3**.3-4 (1971), S. 133–155. ISSN: 0031-8949. DOI: [10.1088/0031-8949/3/3-4/008](https://doi.org/10.1088/0031-8949/3/3-4/008).

- [177] T. W. Gorczyca, Z. Felfli, H.-L. Zhou und S. T. Manson. "Spin-orbit effects in the photoionization excitation of neon". *Phys. Rev. A* **58**.5 (1998), S. 3661–3672. ISSN: 1050-2947. DOI: [10.1103/PhysRevA.58.3661](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.58.3661).
- [178] A. Hans, C. Ozga, P. Schmidt, G. Hartmann u. a. "Setup for multicoincidence experiments of photons in the extreme ultraviolet to visible spectral range and charged particles-The solid angle maximization approach". *Rev. Sci. Instrum.* **90**.9 (2019), S. 093104. DOI: [10.1063/1.5109104](https://doi.org/10.1063/1.5109104).
- [179] S. Brünken, C. Gerth, B. Kanngießer, T. Luhmann u. a. "Decay of the Ar $2s^{-1}$  and 2p $^{-1}$  and Kr $3p^{-1}$  and 3d $^{-1}$  hole states studied by photoelectron-ion coincidence spectroscopy". *Phys. Rev. A* **65**.4 (2002), S. 042708. ISSN: 1050-2947. DOI: [10.1103/PhysRevA.65.042708](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.65.042708).
- [180] S. M. Riad. "The deconvolution problem: An overview". *Proceedings of the IEEE* **74**.1 (1986), S. 82–85. ISSN: 0018-9219. DOI: [10.1109/PROC.1986.13407](https://doi.org/10.1109/PROC.1986.13407).
- [181] E. W. Schlag, R. Frey, B. Gotchev, W. B. Peatman u. a. "Radiative lifetimes of ions from electron-photon coincidence measurements". *Chem. Phys. Lett.* **51**.3 (1977), S. 406–408. ISSN: 00092614. DOI: [10.1016/0009-2614\(77\)85387-6](https://doi.org/10.1016/0009-2614(77)85387-6).
- [182] O. Kugeler, S. Marburger und U. Hergenhahn. "Calculation and measurement of the time-of-flight spread in a hemispherical electron energy analyzer". *Rev. Sci. Instrum.* **74**.9 (2003), S. 3955–3961. ISSN: 0034-6748. DOI: [10.1063/1.1599060](https://doi.org/10.1063/1.1599060).
- [183] T. Gießel, D. Bröcker, P. Schmidt und W. Widdra. "Time-resolving and energy-dispersive photo-electron detector for combined laser and synchrotron radiation experiments". *Rev. Sci. Instrum.* **74**.11 (2003), S. 4620–4624. ISSN: 0034-6748. DOI: [10.1063/1.1614880](https://doi.org/10.1063/1.1614880).
- [184] D. E. Knuth. "Two Notes on Notation". *The American Mathematical Monthly* **99**.5 (1992), S. 403. ISSN: 00029890. DOI: [10.2307/2325085](https://doi.org/10.2307/2325085).
- [185] G. Reichardt, J. Bahrdt, J.-S. Schmidt, W. Gudat u. a. "A 10m-normal incidence monochromator at the quasi-periodic undulator U125-2 at BESSY II". *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **467**-**468** (2001), S. 462–465. ISSN: 01689002. DOI: [10.1016/S0168-9002\(01\)00359-X](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(01)00359-X).
- [186] P. Baumgärtel, I. Packe und Helmholtz-Zentrum Berlin für Materialien und Energie. "The U125-2 NIM beamline at BESSY II". *Journal of large-scale research facilities JLSRF* **2** (2016), A53. DOI: [10.17815/jlsrf-2-76](https://doi.org/10.17815/jlsrf-2-76).
- [187] J. M. Ajello. "Emission Cross Sections of CO<sub>2</sub> by Electron Impact in the Interval 1260 Å – 4500 Å . II". *J. Chem. Phys.* **55**.7 (1971), S. 3169–3177. DOI: [10.1063/1.1676564](https://doi.org/10.1063/1.1676564).
- [188] L. C. Lee und D. L. Judge. "Cross Sections for the Production of CO<sub>2</sub><sup>+</sup>[A<sup>2</sup> $\Pi_u$ , B<sup>2</sup> $\Sigma_u^+$  → X<sup>2</sup> $\Pi_g$ ] Fluorescence by Vacuum Ultraviolet Radiation". *J. Chem. Phys.* **57**.10 (1972), S. 4443–4445. DOI: [10.1063/1.1678087](https://doi.org/10.1063/1.1678087).
- [189] M. Endoh, M. Tsuji und Y. Nishimura. "CO<sub>2</sub><sup>+</sup>( $\tilde{A}$  –  $\tilde{X}$  and  $\tilde{B}$  –  $\tilde{X}$  emissions resulting from the He(<sup>3</sup>S) + CO<sub>2</sub> Penning ionization". *J. Chem. Phys.* **77**.8 (1982), S. 4027–4031. DOI: [10.1063/1.444312](https://doi.org/10.1063/1.444312).
- [190] W. Sroka und R. Zietz. "The formation of excited CO<sub>2</sub><sup>+</sup> ions by vacuum ultraviolet radiation". *Physics Letters A* **43**.6 (1973), S. 493–494. ISSN: 03759601. DOI: [10.1016/0375-9601\(73\)90008-X](https://doi.org/10.1016/0375-9601(73)90008-X).

- [191] J. S. Miller, E. D. Poliakoff, T. F. Miller, A. P. P. Natalense u. a. "Excitation of the symmetry forbidden bending mode in molecular photoionization". *J. Chem. Phys.* **114**.10 (2001), S. 4496. ISSN: 00219606. DOI: [10.1063/1.1349090](https://doi.org/10.1063/1.1349090).
- [192] M. A. Johnson, R. N. Zare, J. Rostas und S. Leach. "Resolution of the  $\tilde{A}/\tilde{B}$  photoionization branching ratio paradox for the  $^{12}\text{CO}_2^+$   $\tilde{B}(000)$  state". *J. Chem. Phys.* **80**.6 (1984), S. 2407–2428. DOI: [10.1063/1.446991](https://doi.org/10.1063/1.446991).
- [193] R. Polák, M. Hochlaf, M. Levinas, G. Chambaud u. a. "On the potential energy functions of the electronic states of  $\text{CO}_2^+$ ". *Spectrochim. Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy* **55**.3 (1999), S. 447–456. ISSN: 13861425. DOI: [10.1016/S1386-1425\(98\)00253-4](https://doi.org/10.1016/S1386-1425(98)00253-4).
- [194] C. Herran, F. Arqueros und J. Campos. "Lifetime of electronic states of  $\text{CO}_2^+$ ". *J. Mol. Spectrosc.* **97**.2 (1983), S. 244–247. ISSN: 00222852. DOI: [10.1016/0022-2852\(83\)90264-3](https://doi.org/10.1016/0022-2852(83)90264-3).
- [195] J. P. Maier und F. Thommen. "Fluorescence quantum yields and cascade-free lifetimes of state selected  $\text{CO}_2^+$ ,  $\text{COS}^+$ ,  $\text{CS}_2^+$  and  $\text{N}_2\text{O}^+$  determined by photoelectron-photon coincidence spectroscopy". *Chemical Physics* **51**.3 (1980), S. 319–327. ISSN: 03010104. DOI: [10.1016/0301-0104\(80\)80106-6](https://doi.org/10.1016/0301-0104(80)80106-6).
- [196] Q. Tian, J. Yang, Y. Shi, X. Shan u. a. "Outer- and inner-valence satellites of carbon dioxide: electron momentum spectroscopy compared with symmetry-adapted-cluster configuration interaction general-R calculations". *J. Chem. Phys.* **136**.9 (2012), S. 094306. DOI: [10.1063/1.3691103](https://doi.org/10.1063/1.3691103).



## (CO-) VERÖFFENTLICHUNGEN DES AUTORS

### Veröffentlichungen, welche Teile dieser Arbeit beinhalten

C. Ozga, C. Honisch, Ph. Schmidt, X. Holzapfel, C. Zindel, C. Küstner-Wetekam, C. Richter, U. Hergenhahn, A. Ehresmann, A. Knie und A. Hans „Photon–electron coincidence experiments at synchrotron radiation facilities with arbitrary bunch modes“, *Rev. Sci. Instrum.* **92** (2021), S. 045110.

DOI: [10.1063/5.0040179](https://doi.org/10.1063/5.0040179)

A. Hans, C. Ozga, Ph. Schmidt, G. Hartmann, A. Nehls, Ph. Wenzel, C. Richter, C. Lant, X. Holzapfel, J. H. Viehmann, U. Hergenhahn, A. Ehresmann and A. Knie „Setup for multicoincidence experiments of photons in the extreme ultraviolet to visible spectral range and charged particles - The solid angle maximization approach“, *Rev. Sci. Instrum.* **90** (2019), S. 093104.

DOI: [10.1063/1.5109104](https://doi.org/10.1063/1.5109104)

### Artikel in wissenschaftlichen Journalen

X. Holzapfel, A. Schrodt, G. Hartmann, L. Marder, Ph. Schmidt, C. Ozga, Ph. Reiß, F. Wiegandt, A. Ehresmann, A. Hans und A. Knie „Determination of Mean Cluster Sizes by Fluorescence Detection upon Site-Specific Photoexcitation“, *J. Phys. Chem. A* **124** (2020), S. 5352-5358.

DOI: [10.1021/acs.jpca.0c02726](https://doi.org/10.1021/acs.jpca.0c02726)

A. Hans, C. Küstner-Wetekam, Ph. Schmidt, C. Ozga, X. Holzapfel, H. Otto, C. Zindel, C. Richter, L.S. Cederbaum, A. Ehresmann, U. Hergenhahn, N.V. Kryzhevoi and A. Knie „Core-level interatomic coulombic decay in van der Waals clusters“, *Phys. Rev. Research* **2** (2020), S. 012022(R).

DOI: [10.1103/PhysRevResearch.2.012022](https://doi.org/10.1103/PhysRevResearch.2.012022)

A. Hans, T. Miteva, X. Holzapfel, C. Ozga, Ph. Schmidt, H. Otto, G. Hartmann, C. Richter, N. Sisourat, A. Ehresmann, K. Gokhberg, U. Hergenhahn and A. Knie „Electronic Decay of Singly Charged Ground-State Ions by Charge Transfer via van der Waals Bonds“, *Phys. Rev. Lett.* **123** (2019), S. 213001.

DOI: [10.1103/PhysRevLett.123.213001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.123.213001)

A. Hans, C. Ozga, Ph. Schmidt, G. Hartmann, A. Nehls, Ph. Wenzel, C. Richter, C. Lant, X. Holzapfel, J. H. Viehmann, U. Hergenhahn, A. Ehresmann and A. Knie „Setup for multicoincidence experiments of photons in the extreme ultraviolet to visible spectral range and charged particles - The solid angle maximization approach“, *Rev. Sci. Instrum.* **90** (2019), S. 093104.

DOI: [10.1063/1.5109104](https://doi.org/10.1063/1.5109104)

G. Hartmann, M. Ilchen, Ph. Schmidt, C. Küstner-Wetekam, C. Ozga, F. Scholz, J. Buck, F. Trinter, J. Viefhaus, A. Ehresmann, M. S. Schöffler, A. Knie und Ph. V. Demekhin „Recovery of High-Energy Photoelectron Circular Dichroism through Fano Interference“, *Phys. Rev. Lett.* **123** (2019), S. 043202.

DOI: [10.1103/PhysRevLett.123.043202](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.123.043202)

T. Kojima, H. Aihara, Y. Kodashima, H. Makishima, S. Nakiri, S. Takada, H. Shimada, M. Ukai, **C. Ozga**, X. Holzapfel, Ph. Schmidt, C. Küstner-Wetekam, H. Otto, D. Bloß, A. Knie, A. Ehresmann, A. Yokoya, K. Fujii, Y. Fukuda und Y. Saitoh „Novel analytical study for reaction intermediates in the primary radiation interaction of DNA using a synchrotron radiation-induced luminescence spectroscopy“, *Radiation Protection Dosimetry* **183** (2019), S. 32-35.

DOI: [10.1093/rpd/ncy239](https://doi.org/10.1093/rpd/ncy239)

M. Pitzer, **C. Ozga**, C. Küstner-Wetekam, Ph. Reiß, A. Knie, A. Ehresmann, T. Jahnke, A. Giuliani and Laurent Nahon „State-Dependent Fragmentation of Protonated Uracil and Uridine“, *J. Phys. Chem. A* **123** (2019), S. 3551-3557.

DOI: [10.1021/acs.jpca.9b01822](https://doi.org/10.1021/acs.jpca.9b01822)

A. Hans, Ph. Schmidt, **C. Ozga**, C. Richter, H. Otto, X. Holzapfel, G. Hartmann, A. Ehresmann, U. Hergenhahn und A. Knie „Efficient Fluorescence Quenching by Distant Production of a Free Electron“, *J. Phys. Chem. Lett.* **10** (2018), S. 1078-1082.

DOI: [10.1021/acs.jpclett.9b00124](https://doi.org/10.1021/acs.jpclett.9b00124)

A. Hans, Ph. Schmidt, **C. Ozga**, G. Hartmann, X. Holzapfel, A. Ehresmann und A. Knie „Erratum: Hans, A.; Schmidt, P.; Ozga, C.; Hartmann, G.; Holzapfel, X.; Ehresmann, A.; Knie, A. Extreme Ultraviolet to Visible Dispersed Single Photon Detection for Highly Sensitive Sensing of Fundamental Processes in Diverse Samples. Materials 2018, 11, 869“, *Materials* **12** (2019), S. 66.

DOI: [10.3390/ma12010066](https://doi.org/10.3390/ma12010066)

A. Hans, Ph. Schmidt, **C. Ozga**, G. Hartmann, X. Holzapfel, A. Ehresmann und A. Knie „Extreme Ultraviolet to Visible Dispersed Single Photon Detection for Highly Sensitive Sensing of Fundamental Processes in Diverse Samples“, *Materials* **11** (2018), S. 869.

DOI: [10.3390/ma11060869](https://doi.org/10.3390/ma11060869)

M. Pitzer, Ph. Schmidt, **C. Ozga**, A. Hans, Ph. Reiß, I. D. Petrov, A. N. Artemyev, A. Ehresmann, A. Knie und Ph. V. Demekhin „Circular Dichroism in Fluorescence Emission Following the C 1s → π\* Excitation and Resonant Auger Decay of Carbon Monoxide“, *Molecules* **23** (2018), S. 1534.

DOI: [10.3390/molecules23071534](https://doi.org/10.3390/molecules23071534)

**C. Ozga**, K. Jänkälä, Ph. Schmidt, A. Hans, Ph. Reiß, A. Ehresmann und A. Knie „Corrigendum to „X-ray absorption spectroscopy of the chiral molecules fenchone, α-pinene, limonene and carvone in the C1s excitation region“ [J. Electron Spectros. Relat. Phenom. **207** (2016), S. 34-37]“, *J. Electron Spectros. Relat. Phenom.* **223** (2018), S.89-91.

DOI: [10.1016/j.elspec.2018.02.001](https://doi.org/10.1016/j.elspec.2018.02.001)

A. Hans, V. Stumpf, X. Holzapfel, F. Wiegandt, Ph. Schmidt, **C. Ozga**, Ph. Reiß, L. Ben Ltaief, C. Küstner-Wetekam, T. Jahnke, A. Ehresmann, Ph. V. Demekhin, K. Gokhberg und A. Knie „Direct evidence for radiative charge transfer after inner-shell excitation and ionization of large clusters“, *New. J. Phys.* **20** (2018), S. 012001.

DOI: [10.1088/1367-2630/aaa4af](https://doi.org/10.1088/1367-2630/aaa4af)

A. Hans, **C. Ozga**, R. Seidel, Ph. Schmidt, T. Ueltzhöffer, X. Holzapfel, Ph. Wenzel, Ph. Reiß, M. N. Pohl, I. Unger, E. F. Aziz, A. Ehresmann, P. Slaviček, B. Winter und A. Knie „Optical Fluorescence Detected from X-ray Irradiated Liquid Water“, *J. Phys. Chem. B* **121** (2017), S. 2326-2330.

DOI: [10.1021/acs.jpcb.7b00096](https://doi.org/10.1021/acs.jpcb.7b00096)

A. Hans, L. Ben Ltaief, M. Förstel, Ph. Schmidt, **C. Ozga**, Ph. Reiß, X. Holzapfel, C. Küstner-Wetekam, F. Wiegandt, F. Trinter, U. Hergenhahn, T. Jahnke, R. Dörner, A. Ehresmann Ph. V. Demekhin und A. Knie „Fluorescence cascades evoked by resonant interatomic coulombic decay of inner-valence excited neon clusters“, *Chem. Phys.* **482** (2017), S. 165-168.

DOI: [10.1016/j.chemphys.2016.06.016](https://doi.org/10.1016/j.chemphys.2016.06.016)

**C. Ozga**, K. Jänkälä, Ph. Schmidt, A. Hans, Ph. Reiß, A. Ehresmann und A. Knie „X-ray absorption spectroscopy of the chiral molecules fenchone,  $\alpha$ -pinene, limonene and carvone in the C1s excitation region“, *J. Electron. Spectros. Relat. Phenomena* **207** (2016), S.34-37.

DOI: [10.1016/j.elspec.2015.12.006](https://doi.org/10.1016/j.elspec.2015.12.006)

A. Hans, A. Knie, M. Förstel, Ph. Schmidt, Ph. Reiß, **C. Ozga**, U. Hergenhahn und A. Ehresmann „Determination of absolute cross sections for cluster-specific decays“, *J. Phys. B: At. MoL Opt. Phys.* **49** (2016), S. 105101.

DOI: [10.1088/0953-4075/49/10/105101](https://doi.org/10.1088/0953-4075/49/10/105101)

Ph. Reiß, Ph. Schmidt, **C. Ozga**, A. Knie und A. Ehresmann „Dispersed fluorescence spectrometry from the VIS to VUV spectral range for experiments at heavy-ion storage facilities“, *Phys. Scr.* **2015** (2015), S. 014031.

DOI: [10.1088/0031-8949/2015/T166/014031](https://doi.org/10.1088/0031-8949/2015/T166/014031)

A. Hans, A. Knie, Ph. Schmidt, L. Ben Ltaief, **C. Ozga**, Ph. Reiß, H. Huckfeldt, M. Förstel, U. Hergenhahn und A. Ehresmann „Lyman-series emission after valence and core excitation of water vapor“, *Phys. Rev. A* **92** (2015), S. 032511.

DOI: [10.1103/PhysRevA.92.032511](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.92.032511)

A. Knie, A. Hans, M. Förstel, U. Hergenhahn, Ph. Schmidt, Ph. Reiß, **C. Ozga**, B. Kambs, F. Trinter, J. Voigtsberger, D. Metz, T. Jahnke, R. Dörner, A.I. Kuleff, L.S. Cederbaum, Ph. V. Demekhin und A. Ehresmann „Detecting ultrafast interatomic processes in media by fluorescence“, *New J. Phys.* **16** (2014), S. 102002.

DOI: [10.1088/1367-2630/16/10/102002](https://doi.org/10.1088/1367-2630/16/10/102002)

**C. Ozga**, Ph. Reiß, W. Kielich, S. Klumpp, A. Knie und A. Ehresmann „Fluorescence cascades after excitation of XeII 5p<sup>4</sup>6p satellite states by synchrotron radiation“, *J. Phys. B: At. MoL Opt. Phys.* **48** (2014), S. 015004.

DOI: [10.1088/0953-4075/48/1/015004](https://doi.org/10.1088/0953-4075/48/1/015004)

A. Knie, M. Ilchen, Ph. Schmidt, Ph. Reiß, **C. Ozga**, B. Kambs, A. Hans, N. Mügliche, S.A. Galitskiy, L. Glaser, P. Walter, J. Viehaus, A. Ehresmann und Ph. V. Demekhin „Angle-resolved study of resonant Auger decay and fluorescence emission processes after core excitations of the terminal and central nitrogen atoms in N<sub>2</sub>O“, *Phys. Rev. A* **90** (2014), S. 013416.

DOI: [10.1103/PhysRevA.90.013416](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.90.013416)

A. Knie, N. Burbank, Ph. Schmidt, **C. Ozga** und A. Ehresmann „Electron-impact induced fluorescence for EUV spectrometer-detector calibration“, *J. Electron. Spectros. Relat. Phenomena* **185** (2012), S. 492-497.

DOI: [10.1016/j.elspec.2012.09.005](https://doi.org/10.1016/j.elspec.2012.09.005)

## Konferenzbeiträge

C. Ozga, Ph. Schmidt, A. Nehls, G. Hartmann, X. Holzapfel, C. Richter, J. H. Viehmann, P. Wenzel, U. Hergenhahn, A. Ehresmann, A. Knie und A. Hans „Enabling efficient coincident measurements of electrons and photons in the wavelength regime of 120 nm to 300 nm“, Vortrag, DPG Frühjahrstagung der Sektion AMOP, Rostock (2019)

C. Ozga, G. Hartmann, Ph. Schmidt, C. Richter, A. Hans, U. Hergenhahn, A. Ehresmann und A. Knie „An UV/VIS-photon coincidence set-up using a magnetic-bottle and a position sensitive photon detector“, Posterbeitrag, DPG Frühjahrstagung der Sektion AMOP, Erlangen (2018)

A. Hans, C. Ozga (Vortragender), Ph. Schmidt, T. Ueltzhöffer, X. Holzapfel, P. Wenzel, Ph. Reiß, M. N. Pohl, I. Unger, E. F. Aziz, A. Ehresmann, P. Slaviček, B. Winter und A. Knie „Optical Luminescence from liquid water after excitation with synchrotron radiation“, Vortrag IWP/RIXS, Aussois (2017)

A. Hans, C. Ozga (Präsentierender), R. Seidel, Ph. Schmidt, X. Holzapfel, M. N. Pohl, P. Slaviček, B. Winter, A. Ehresmann und A. Knie „Experimental set-up for dispersed photon emission spectroscopy on liquid microjets“, Posterbeitrag, DPG Frühjahrstagung der Sektion AMOP, Mainz (2017)

A. Hans, A. Knie, C. Ozga (Vortragender), R. Seidel, Ph. Schmidt, X. Holzapfel, M. N. Pohl, P. Slaviček, B. Winter und A. Ehresmann „Fluorescence measurements from X-ray irradiated liquid water“, Vortrag, DPG Frühjahrstagung der Sektion AMOP, Hannover (2016)

A. Hans, C. Ozga (Präsentierender), R. Seidel, Ph. Schmidt, X. Holzapfel, M. Pohl, B. Winter, A. Ehresmann und A. Knie „UV emission spectrum of liquid water after excitation with photons with exciting-photon energies of 530 eV to 600 eV“, Posterbeitrag, ECAMP 15, Frankfurt (2016)

A. Knie, M. Ilchen, Ph. Schmidt, Ph. Reiß, C. Ozga (Präsentierender), A. Hans, N. D. Mügliche, L. Glaser, P. Walter, J. Viefhaus, A. Ehresmann und Ph. V. Demekhin „Angle-resolved study of resonant Auger decay and fluorescence emission processes after core excitations of the terminal and central nitrogen atoms in N<sub>2</sub>O“, Posterbeitrag, DPG Frühjahrstagung der Sektion AMOP, Heidelberg (2015)

C. Ozga, B. Kambs, J. Jänkälä, Ph. Schmidt, A. Hans, Ph. Reiß, A. Knie und A. Ehresmann „Ionization yield in the resonant C1s electron excitation range of chiral terpene molecules“, Posterbeitrag, DPG Frühjahrstagung der Sektion AMOP, Berlin (2014)

C. Ozga, W. Kielich, Ph. Reiß, S. Klumpp, A. Knie und A. Ehresmann „Deexcitation cascade effects in XeII observed by fluorescence spectroscopy after excitation with synchrotron radiation“, Vortrag, DPG Frühjahrstagung der Sektion AMOP, Hannover (2013)

## DANKSAGUNG

Am Ende dieser Arbeit möchte ich die letzten Seiten nutzen, um mich bei einer Vielzahl von Menschen zu bedanken, ohne deren Unterstützung ein erfolgreiches Gelingen nicht möglich gewesen wäre.

Zunächst möchte ich *Prof. Dr. Arno Ehresmann* danken, dass er mir die Möglichkeit und Mittel zur Verfügung gestellt hat, diese Arbeit in einem spannenden Feld anfertigen zu dürfen. Doch auch darüber hinaus möchte ich ihm für die wissenschaftlichen Diskussionen auf Augenhöhe danken, bei denen er den wissenschaftlichen Diskurs immer vor die Rollenverteilung gestellt hat. Aber vor allem bin ich ihm für die gegebenen Chancen und das Vertrauen dankbar, mich in seiner Arbeitsgruppe aufzunehmen, wo unser erstes Treffen in 2009 doch nicht so erfolgreich verlief.

*Dr. Uwe Hergenhahn* danke ich zum einen dafür, dass er uns in den letzten Jahren mit seinem Expertenwissen, insbesondere im Bereich der Elektronenspektroskopie und Koinzidenzspektroskopie, unterstützt und auf den richtigen Weg gebracht hat. Zum anderen möchte ich ihm dafür danken, dass er sich bereit erklärt hat, als Zweitgutachter für diese Arbeit zu dienen. Zusätzlich durften wir seine Aufbauten als Basis für die in dieser Arbeit diskutierten Experimente nutzen. Auch dafür möchte ich ihm herzlichst danken!

Ich bedanke mich herzlichst bei den tatkräftigen Mitarbeitern von BESSY II (HZB, Berlin), DESY und SOLEIL, an welchen ich in den letzten Jahren arbeiten durfte, sei es im technischen oder administrativen Bereich. Ohne ihre Arbeit würden diese riesigen Anlagen niemals so gut funktionieren, sodass Arbeiten wie diese hier überhaupt entstehen könnten.

Ein großer Dank gilt auch allen (ehemaligen) Mitgliedern der *Arbeitsgruppe Ehresmann*, mit denen ich in den letzten Jahren arbeiten und auch auf allerlei Feiern und Ausflügen viel Spaß haben durfte. Leider kann ich nicht jedem von Ihnen an dieser Stelle in der Ausführlichkeit danken, wie sie es verdienen würden, aber zumindest bei einigen von ihnen möchte ich in besonderer Weise danken.

*Andrea Wecker* danke ich für all die fantastische Arbeit, die sie im Hintergrund im administrativen Bereich leistet, und so verhindert, dass der Rest der Gruppe im Chaos versinkt. Dennoch findet sie trotz der massiv gewachsenen Mitgliedszahl auch immer noch die Zeit, auch kurzfristige Hilfsgesuche noch mitzuberücksichtigen.

*Andreas Nehls* bin ich auf verschiedene Weisen dankbar. Zum einen natürlich für seine Fachkompetenz, seinen Erfahrungsschatz und seinen Eifer, mit denen er den Großteil der Experimente überhaupt erst realisierbar machte. Dabei hat er unsere (manchmal doch zweifelhaften) ersten Ideen in einen funktionierenden Aufbau mit uns zusammen übersetzt und uns währenddessen etwas von seinem Wissen übermittelt, auch wenn die Diskussionen mitunter etwas anders geführt wurden, als es mancher ge-

wohnt war. Zum anderen aber auch für seine ausgeprägte soziale Ader, mit der er durchaus auch als die „Mutter der Kompanie“ (Zitat Andreas Nehls) durchgehen kann. Diese ist allerdings manchmal hinter seiner kernigen Art und seinem Temperament sehr gut versteckt. Dennoch möchte ich die vielen Gespräche und Diskussionen bei dem (morgendlichen) Kaffee nicht missen, bei der er auch immer mit der ein oder anderen (mehr oder weniger kurzen) Anekdote aufwarten konnte.

*Dr. André Knie* danke ich für viele schöne Jahre, in denen er mich nicht nur im wissenschaftlichen Bereich angeleitet und unterstützt hat, sich aber auch nie zu schade dafür war herhaft mit mir zu lachen und einfach ein guter Freund zu sein. Ohne wäre diese Arbeit wahrscheinlich nie entstanden oder verschriftlicht worden, auch wenn ich es ihm manchmal unnötig schwer gemacht habe. Manchmal versteht man erst mit einigen zusätzlichen Erfahrungen und Abstand, was der andere mit seinen Mitteln und Aussagen bezwecken wollte. Ich hoffe daher, dass er mir diese Reibereien nachsehen kann.

Dem *Team Spektroskopie* unter der damaligen Leitung von Dr. Andre Knie bin ich dankbar für die tolle Zusammenarbeit und die schöne Zeit, nicht nur im Büro oder Labor, sondern auch auf den vielen Strahlzeiten. Mit ihnen waren nicht nur (fast) alle unsere Aufgaben lösbar, sondern es hat auch immer Spaß gemacht. Besonderer Dank gilt hier *Dr. Philipp Schmidt* und *Dr. Andreas Hans*, mit denen ich zusammen ihre Diplom- und meine Bachelor- bzw. Masterzeit sowie unsere gemeinsame Promotionszeit verbringen durfte, auch wenn sie mir immer einen (kleinen) Schritt voraus waren. Ich möchte mich hier nun nicht nur für einzelne Eigenschaften oder Taten von Ihnen bedanken, sondern für unsere Zusammenarbeit und gemeinsame Zeit, ohne die neben dieser Arbeit vieles andere auch nicht möglich gewesen wäre. Zwar hatte unser gemeinsamer Weg viele Höhen und Tiefen, aber dennoch waren sie mir immer wichtige, hochgeschätzte und vor allem treue Weggefährten und gute Freunde, auch wenn ich das nicht immer in der Art gezeigt habe, wie ich es hätte tun sollen.

Als zweiter Teilgruppe der Arbeitsgruppe Ehresmann danke ich ebenso dem *Team Magnetismus* unter der langjährigen Leitung von *Dr. Dennis Holzinger*, meinem guten Freund aus Sandkastenzeiten, für das schöne Arbeitsklima und die ein oder andere Diskussion über die jeweiligen Teilgebiete der Physik. Hierdurch war es nicht nur möglich, mal über den eigenen Tellerrand blicken zu können, sondern auch einen frischen Blick auf die eigenen Frage- und Problemstellungen zu bekommen.

Ein großer Dank gilt meinen *Freunden* und meiner *Familie*, die mich immer nach allen Kräften unterstützt haben, mir aber auch klar ihre Meinung gesagt haben. Dies gilt ganz besonders meiner Mutter *Roswitha Ozga* und meinem Vater *Klaus-Peter Ozga*. Beide haben mich immer ermutigt und nach allen Kräften und manchmal sehr großer Mühe unterstützt. Umso trauriger stimmt es mich, dass mein Vater das Ergebnis durch seinen viel zu frühen Tod nicht mehr miterleben kann.

Schließlich möchte ich mich genauso bei *Familie Schaf* bedanken, die mich herzlich empfangen hat als *Rebecca* und ich zusammen kamen und mich seitdem als Teil ihres Schafstalls akzeptiert hat.

Meiner Verlobten *Rebecca Schaf* gilt dabei wahrscheinlich mein größter Dank. Ohne Sie wäre vieles nicht so gut und schön verlaufen wie es ist und ich bin ihr für jeden neuen Tag dankbar, den ich mit ihr verbringen darf.

*Rebecca, vielen Dank, dass du mich so liebst wie ich bin und mich auch in schwierigen Situationen immer unterstützt und hältst. Ich liebe dich!*



## ERKLÄRUNG

„Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Dissertation selbständig, ohne unerlaubte Hilfe Dritter angefertigt und andere als die in der Dissertation angegebenen Hilfsmittel nicht benutzt habe. Alle Stellen, die wörtlich oder sinngemäß aus veröffentlichten oder unveröffentlichten Schriften entnommen sind, habe ich als solche kenntlich gemacht. Dritte waren an der inhaltlichen Erstellung der Dissertation nicht beteiligt; insbesondere habe ich nicht die Hilfe eines kommerziellen Promotionsberaters in Anspruch genommen. Kein Teil dieser Arbeit ist in einem anderen Promotions- oder Habilitationsverfahren durch mich verwendet worden.“

---

(Ort, Datum)

---

(Christian Ozga)