
Inner-Schalen Photoionisation negativer atomarer Ionen

Inner-shell photoionization of negatively charged atomic ions

Inaugural-Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades der Naturwissenschaften

vorgelegt beim Fachbereich 07

(Mathematik und Informatik, Physik, Geographie)

der Justus-Liebig-Universität Gießen

vorgelegt von

Alexander Perry-Sassmannshausen



Fachbereich 07: Physik, Mathematik und Informatik, Geographie

I. Physikalisches Institut der Justus-Liebig-Universität Gießen

AG Atom- und Molekülphysik

Teile dieser Arbeit wurden bereits veröffentlicht.

Die Experimente mit Flouranionen sind als *Phys. Rev. Lett.* **120**, 133202 (2018) (DE-SY Highlight 2018) und die Experimente mit Kohlenstoffanionen als *Phys. Rev. Lett.* **124**, 083203 (2020) (*Editors' Suggestion*) publiziert. Weiterhin werden diese Ergebnisse in einem *Special-Issue*-Artikel und einem *Topical Review*-Artikel aufgegriffen: *X-Ray Spectrom.* **49**, 11-20 (2020) sowie *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **53**, 192001 (2020). Die Ergebnisse zu den Siliziumanionen sind als *Phys. Rev. A* **104**, 053107 (2021) publiziert.

Dekan:	Prof. Dr. Stefan Hennemann
Erstgutachter:	Prof. Dr. Stefan Schippers
Zweitgutachter:	Prof. Dr. Michael Dürr

Zusammenfassung

Diese Arbeit beschäftigt sich mit der Inner-Schalen-Photoionisation der Anionen von Fluor, Kohlenstoff und Silizium. Die Messungen wurden am Photon-Ion-Spektrometer an PETRA III durchgeführt. Die Experimente beginnen jeweils unterhalb der Schwelle für die K -Ionisation des Ions und decken Energiebereiche zwischen 70 und 720 eV dahinter ab. Dies sind deutlich größere Energiebereiche als in bisherigen Experimenten mit Anionen. Alle Ergebnisse dieser Arbeit wurden bereits veröffentlicht.

Für Fluoranionen wurden die Doppel- und Dreifachionisation nach K -Ionisation bei Photonenenergien zwischen 680 und 1000 eV untersucht. Alle Querschnitte zeigten keine Resonanzen. In der Dreifachionisation wurde deutlich, dass nicht die Einfachionisation mit nachfolgenden Augerzerfällen zum Füllen des $1s$ -Lochs dominant ist. Stattdessen trägt die direkte $1s + 2p$ -Doppelphotoionisation maßgeblich zum Wirkungsquerschnitt bei. Die direkte Doppelionisation wurde in diesem Experiment über einen deutlich größeren Energiebereich als bisher untersucht. Ein Modell zur direkten Doppelphotoionisation unterstützt die experimentellen Befunde.

In Kohlenstoffanionen wurde die m -fache Photoionisation ($m = 2 - 5$) für Energien zwischen 280 und 1000 eV untersucht. Bereits publizierte Studien im Energiebereich 280 – 285 eV zur Doppelionisation konnten reproduziert werden. In allen Ionisationskanälen wurde mindestens eine weitere, breitere Resonanz neben der bekannten $1s^{-1} 2p^4$ -Resonanz gefunden und der $1s \rightarrow 3p$ -Anregung zugeordnet. In der Dreifachionisation wurden zusätzlich elf neue Resonanzen und mehrere Schwellen für weitere Prozesse gefunden. Ab ca. 295 eV trägt auch hier die $1s + 2p$ -Doppelphotoionisation signifikant zum Wirkungsquerschnitt bei. Bei etwa 317.3 eV konnte eine besonders ausgeprägte Fano-Resonanz beobachtet werden. Diese ist auch in der Vierfachionisation erkennbar. In der Fünffachionisation konnte die doppelte K -Ionisation über einen großen Energiebereich gemessen werden.

Die Untersuchungen an Siliziumanionen erbrachten Wirkungsquerschnitte zur m -fachen Photoionisation ($m = 3 - 6$) bei Photonenenergien zwischen 1830 und 1900 eV. Hierbei wurde erstmals die K -Ionisation eines Anions mit Elektronen in der M -Schale untersucht. In allen Ionisationskanälen konnten zwei Resonanzen an der K -Schwelle beobachtet werden. Für Vergleiche mit theoretischen Rechnungen wurden aus den Wirkungsquerschnitten die Produktladungsverteilung und der mittlere Ladungszustand ermittelt. In Energiebereichen ohne Resonanzen stimmen Theorie und Experiment gut überein. Die gemessenen Resonanzen konnten von der Theorie nicht in allen Details reproduziert werden.

Abstract

This thesis is about inner-shell photoionization of fluorine, carbon and silicon anions. The experiments were carried out employing the photon-ion merged-beams technique at the photon-ion spectrometer at PETRA III. The cross sections start just below the threshold for K -shell ionization and reach up energies between 70 and 720 eV beyond the respective threshold. The experiments cover much wider energy ranges and more ionization channels than previous studies. All results have already been published.

Double and triple ionization after K -shell ionization was examined in fluorine anions. The photon energies ranged between 680 and 1000 eV. In all cross sections no resonances could be observed. The triple ionization cross section showed that direct $1s + 2p$ double ionization contributes more strongly as compared to $1s$ -ionization and subsequent Auger decays filling the $1s$ vacancy. In this experiment, direct double photoionization of an atomic system has been examined over a much wider energy range than in any previous experiment. A model for direct double photoionization supports the findings.

For carbon anions m -fold photoionization ($m = 2 - 5$) with photon energies between 280 and 1000 eV was examined. Previous studies covering only double ionization over a small energy range could be verified. Additionally, higher ionization channels up to fivefold ionization could be observed. All ionization channels showed a second, hitherto unknown resonance. This resonance could be assigned to $1s \rightarrow 3p$ excitation. The triple ionization channel showed a wealth of eleven more new resonances and several ionization thresholds. Starting at 295 eV, also direct $1s + 2p$ ionization is a dominant process in this and higher ionization channels. At approx. 317.3 eV, a pronounced Fano-resonance could be observed. This resonance was also visible in the fourfold ionization cross section. In fivefold ionization of carbon anions direct double K -shell ionization was observed over a wide energy range.

Silicon anions were examined with photon energies between 1830 and 1900 eV. Here, cross sections for triple to sixfold ionization were measured. This study is the first covering K -shell ionization of an anion with electrons in the M -shell. In all ionization channels two resonances just below and on top of the threshold for direct K -ionization were observed. For comparison with theory, product charge state distributions and the mean charge state for the ionization process were calculated. For photon energies with the absence of resonances a good agreement between theory and experiment could be achieved. The experimental resonance structures could not be reproduced in all details.

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	XI
Tabellenverzeichnis	XIII
1 Einleitung	1
2 Wissenschaftlicher Hintergrund	5
3 Experimenteller Aufbau	11
4 Photoionisation von Fluoranionen	35
5 Photoionisation von Kohlenstoffanionen	45
6 Photoionisation von Siliziumanionen	55
7 Zusammenfassung der Ergebnisse	65
Literaturverzeichnis	67
A Anhang	91
Danksagung	93
Selbstständigkeitserklärung	95

Abbildungsverzeichnis

2.1	Hintergrund: Elektronenaffinitäten der Elemente	6
2.2	Hintergrund: Alte Daten zu K -Schalenionisation von C^-	9
3.1	Ionenquellen: Zeichnung ECRIS	12
3.2	Ionenquellen: Zeichnung MISS	14
3.3	Energiekalibration: Beispiel Absorptionsmessung für C^-	21
3.4	Energiekalibration: Beispiel Kalibrationskurve	21
3.5	PIPE: Merged-Beams Methode	23
3.6	PIPE: Demergerscan Beispiel	24
3.7	PIPE: Skizze PIPE-Aufbau	26
3.8	PIPE: Detaillierte Zeichnung PIPE-Aufbau	27
3.9	PIPE: Strahlprofile	29
3.10	PIPE: Formfaktor	30
3.11	PIPE: Panoramafoto Arbeitsplatz	31
4.1	F^- : Primärmassenspektrum	36
4.2	F^- : Doppelionisation	37
4.3	F^- : Dreifachionisation an der K -Schwelle	38
4.4	F^- : Dreifachionisation auf erweitertem Energiebereich	40
4.5	F^- : Direkte Doppelionisation in der Dreifachionisation	41
5.1	C^- : Primärmassenspektrum	45
5.2	C^- : Wirkungsquerschnitte $\sigma_m, m = 2 - 4$ bei $279 - 322$ eV	47
5.3	C^- : Resonanzen in der Dreifachionisation	49
5.4	C^- : Vergleich Summenquerschnitt mit Absorptionsquerschnitt	51
5.5	C^- : Doppel- K -Schalen-Photoionisation	53
6.1	Si^- : Primärmassenspektrum	55
6.2	Si^- : Überblick über die gemessenen Wirkungsquerschnitte	56
6.3	Si^- : Hochaufgelöste Wirkungsquerschnitte	59
6.4	Si^- : Vergleich hochaufgelöster Wirkungsquerschnitte und Theorie	60
6.5	Si^- : Experimentelle und theoretische Produktladungsverteilungen	62

Tabellenverzeichnis

1.1	Einleitung: Interessante Ionensorten für PIPE	2
3.1	Energiekalibration: Gase und Referenzenergien	20
3.2	Dopplerkorrektur: Dopplerfaktoren	33
4.1	F^- : Schwellenenergien für Einfach- und Doppelionisation	38
5.1	C^- : Schwellenenergien für Mehrfachionisation	48
5.2	C^- : Resonanzparameter aus Fit für Dreifachionisation.	50

1 Einleitung

Negative Ionen sind sehr häufig in Niedertemperaturplasmen wie der oberen Atmosphäre [1] oder dem interstellaren Medium [2] vorhanden. Auch in technischen Anwendungen wie der Kühlung von Antiprotonen [3,4], für die Neutralstrahlkühlung in Fusionsreaktoren [5, 6] oder beim Plasmaätzen von Wafern in der Halbleiterindustrie [7–9] werden sie genutzt. Anionen unterscheiden sich fundamental von positiven Ionen, da das zusätzliche Elektron nicht durch die Coulomb-Wechselwirkung, sondern durch eine attraktive Kraft aufgrund der Polarisierung des Atomrumpfs gebunden sind. Dies bedingt, dass negative Ionen, wenn überhaupt, nur wenige angeregte Niveaus aufweisen. Diese Niveaus wurden für die meisten Anionen bereits ausführlich mittels Laserspektroskopie untersucht, bspw. in [10–14]. Auch vonseiten der Theorie [15, 16] sind sie immer noch ein aktuelles Thema.

Ein sehr sensitives Instrument zur Untersuchung der Struktur und Dynamiken (negativer) Ionen ist die Inner-Schalen-Photoionisation. Hierbei werden die Wechselwirkungen zwischen Valenz- und Kernelektronen untersucht. Durch das bei der Ionisation entstehende Loch in der inneren Schale kommt es zu sehr starken Relaxationseffekten der Valenzelektronen [17]. Der anschließende Augerzerfall des Lochs emittiert eines oder mehrere Elektronen aus dem Ion. Möglicherweise kommt es danach zu Wechselwirkungen zwischen dem primären Photoelektron, den Augerelektronen und dem Ion. Hierbei kann es auch zum Wiedereinfang von Elektronen kommen, was die finale Ladungszustandsverteilung beeinflusst. Als physikalische Größe werden in Photoionisationsexperimenten die Wirkungsquerschnitte für die Mehrfachionisation gemessen und aus diesen die Ladungsverteilung und weitere Größen ermittelt.

Es gibt bisher nur wenige experimentelle Arbeiten zur Inner-Schalen-Photoionisation von Anionen. Sehr ausführlich wurden He^- [18–22] und Li^- [23, 24] untersucht. He^- ist ein Anion, das nur metastabil im $1s\ 2s\ 2p\ ^4P$ Zustand existiert [25]. Erst schwerere Anionen liegen im Grundzustand vor. Experimentelle Herausforderungen bei Experimenten mit Anionen sind neben der Erzeugung die allgemein niedrigen Querschnitte für die Ionisation.

Solche Experimente werden in der Arbeitsgruppe *Atom- und Molekülphysik* der *Justus-Liebig-Universität Gießen* bereits seit längerer Zeit durchgeführt. Im Rahmen der Ver-

bundforschung wurde das Photon-Ion-Spektrometer an PETRA III (PIPE) bei DESY, Hamburg, aufgebaut. Das Spektrometer steht seit 2013 für Experimente zur Verfügung [31] und ist bisher sehr erfolgreich [32]. Dies zeigt sich auch in bisher über 20 veröffentlichten Publikationen, davon drei als *Phys. Rev. Lett.*

Bei PIPE wurden hervorragende experimentelle Bedingungen realisiert. Durch lange Wege im Ultrahochvakuum (UHV) und viele ionenoptische Elemente, bis die Ionen zur Wechselwirkungszone gelangen, wird Untergrund von der Primärstrahlseite minimiert. Ebenso hilfreich sind Blenden, die den Ionenstrahl auf die Größe des Photonenstrahls begrenzen können. Zwar liegt so der Verlust des Primärionenstrahls bei mehr als 80%, im Gegenzug kann aber Mehrfachionisation praktisch untergrundfrei gemessen werden. Hierfür ist auch ein sehr sensitiver und gleichzeitig robuster Einzelteilchendetektor verantwortlich.

Ein weiterer Aspekt, der der hohen Messempfindlichkeit von PIPE zugute kommt, ist der sehr hohe Photonenfluss des Strahlrohrs P04. Durch den großen Energiebereich der Photonen an P04 wurde es erstmals möglich K -Ionisation im Bereich oberhalb von 1000 eV zu untersuchen. Durch das Zusammenspiel all dieser Komponenten zeichnen sich die Studien

Tabelle 1.1 – Einige wichtige Eigenschaften und experimentelle Parameter von interessanten Ionensorten für Experimente an PIPE: ihre Elektronenkonfiguration, Elektronenaffinität E_A der neutralen Atome, Schwellenenergie E_{thres} für K -Schalen-Ionisation, K -Schalen-Ionisationswirkungsquerschnitt σ_{thres} an der Schwelle, Photonenfluss ϕ_{ph} von PETRA III am Strahlrohr P04 bei der Photonenenergie E_{thres} , Ionenstrom I_{ion} erzeugt von einer Ionenquelle für negative Ionen.

Ion	Grundzustand*	E_a^* (eV)	E_{thres} (eV)	σ_{thres} (Mb)	ϕ_{ph}^\dagger (10^{13} s^{-1})	I_{ion}^\ddagger (μA)
C^-	$1s^2 2s^2 2p^3 \ ^4S$	1.26	282 ^a	35.0 ^a	1.7	95
O^-	$1s^2 2s^2 2p^5 \ ^2P$	1.46	530 ^b	0.43 ^b	3.0	100
F^-	$1s^2 2s^2 2p^6 \ ^1S$	3.40	688 ^c	0.38 ^c	3.7	150
Na^-	$[\text{Ne}] 3s^2 \ ^1S$	0.55	1064 ^c	0.23 ^c	4.0	1
Al^-	$[\text{Ne}] 3s^2 3p^2 \ ^3P$	0.43	1550 ^c	0.17 ^c	2.4	6
Si^-	$[\text{Ne}] 3s^2 3p^3 \ ^4S$	1.39	1828 ^c	0.14 ^c	1.8 (2.2)	100
P^-	$[\text{Ne}] 3s^2 3p^4 \ ^3P$	0.75	2130 ^c	0.12 ^c	0.3 (2.0)	35
S^-	$[\text{Ne}] 3s^2 3p^5 \ ^2P$	2.08	2456 ^c	0.10 ^c	– (1.6)	150
Cl^-	$[\text{Ne}] 3s^2 3p^6 \ ^1S$	3.61	2805 ^c	0.08 ^c	– (1.3)	160

*aus [26].

†Bei einem Auflösungsvermögen von $E/\Delta E \approx 1000$, Zahlen in Klammern werden nur nach einer Aufrüstung von P04 erreicht.

‡aus [27], die Werte sind als grundsätzlicher Indikator für die erreichbaren Intensitäten gedacht.

^aaus [28], großer Wirkungsquerschnitt aufgrund einer Resonanzform an der Schwelle.

^baus [29].

^cWerte für neutrale Atome aus [30], theoretische Wirkungsquerschnitte für direkte K -Schalen-Ionisation.

an PIPE durch eine signifikant höhere Qualität aus im Vergleich zu ähnlichen Experimenten an anderen Synchrotronstrahlungsquellen. Neben der erstmaligen Beobachtung eines Vier-Elektronen-Augerprozesses [33] konnten bei PIPE sogar Wirkungsquerschnitte mit einer Größe von wenigen Barn bei der direkten L -Doppelionisation von Ar^+ [34] gemessen werden. Weiterhin erlaubt die Geometrie des Experimentes, die dissoziative Ionisation von Molekülionen unter Betrachtung der freiwerdenden kinetischen Energie (KER) zu untersuchen [35].

Bei ersten Experimenten mit Sauerstoffanionen [29] an PIPE entstand in der Analyse und mit theoretischer Unterstützung von Stephan Fritzsche (Friedrich-Schiller-Universität Jena, Helmholtz-Institut Jena) ein besonderes Interesse an weiteren Experimenten mit Anionen. Hier wurde noch eine nicht für negative Ionen optimierte Ionenquelle eingesetzt. In diesen Experimenten kam heraus, dass bei der K -Schalenionisation von O^- Einfach- und Doppelshakeup-Prozesse die Augerprozesse, die die K -Löcher füllen, stark beeinflussen. Diese sind auch in der theoretischen Behandlung fordernd und weitere Daten würden der Weiterentwicklung der Modelle helfen. In dem expliziten Beispiel mussten neben Shakeup-Prozessen von $2s$ und $2p$ Elektronen in die $3s$ und $3p$ -Schale auch Doppelshakeup-Prozesse von zwei $2p$ oder $2s$ Elektronen in die $3s$ -, $3d$ - und $3p$ -Schale betrachtet werden.

Für Experimente am PIPE-Experiment am Strahlrohr P04 kommen aufgrund der Photonenenergien von 250 bis 2700 eV nur wenige Ionen für die Untersuchung der K -Ionisation in Frage. Diese sind in Tabelle 1.1 aufgelistet mit ihren Grundzustandselektronenkonfigurationen, der Elektronenaffinität sowie der Schwellenenergie für K -Ionisation und dem Wirkungsquerschnitt für neutrale Atome. Ebenfalls gezeigt sind der Photonenfluss bei den Schwellenenergien und erreichte Ionenströme mit einer Ionenquelle für negative Ionen [27]. In Vorbereitung für dieses Projekt wurde bereits eine ähnliche Ionenquelle zur Erzeugung von intensiven negativen Ionenstrahlen aufgebaut [36]. Mit dieser Cs-Sputterionenquelle wurden allerdings in Hamburg und auch bei Tests in Gießen nicht die Intensitäten aus der Tabelle erreicht, daher sind diese nur als Richtwerte zu sehen.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden mehrere Experimente mit Anionen zur K -Schalenionisation durchgeführt. Es wurden über große Energiebereiche die Anionen von Flour (Kap. 4), Kohlenstoff (Kap. 5) und Silizium (Kap. 6) untersucht. Die Ergebnisse wurden bereits veröffentlicht [37–39]. Ermöglicht wurden diese Experimente durch eine Förderung der Deutschen Forschungsgemeinschaft unter der Projektnr. **Schi378/12**, wofür an dieser Stelle bereits herzlich gedankt wird.

Die Ziele des Projekts waren die Untersuchung von

1. Dreifachionisation durch K -Schalen-Ionisation in Kohlenstoffanionen,
2. Edelgas-ähnlichen Anionen wie Fluor oder Chlor,
3. Ionisation durch doppelte K -Ionisation und
4. Resonanzen und Produktladungsverteilungen von Anionen mit Elektronen in der M -Schale wie Si^- und Cl^- .

Ein weiteres Ziel des Projekts war die Untersuchung von höher angeregten Resonanzen in Sauerstoffanionen. Dieser Punkt konnte aufgrund der COVID-19 Pandemie im Rahmen dieser Arbeit nicht behandelt werden. Ein geplantes Experimente für 2020 wurde in das Jahr 2021 verschoben. Messungen hierzu fanden im Juli 2021 statt, und die Ergebnisse werden aktuell analysiert.

In Kapitel 2 folgt eine Einführung in Photoionisationsexperimente mit Anionen. Kapitel 3 stellt die verwendeten experimentellen Instrumente vor. In den Kapiteln 4 – 6 werden die Ergebnisse der Experimente vorgestellt und in Kapitel 7 werden die Ergebnisse bezogen auf die Projektziele zusammengefasst.

2 Wissenschaftlicher Hintergrund

Von über 80% der natürlichen Elemente existieren stabile negative atomare Ionen [26]. In verschiedenen Bereichen der Physik und Chemie spielen sie wichtige Rollen, besonders in schwach ionisierten Gasen oder Plasmen [2] oder auch industriell beim Plasmaätzen [7]. Andere Anwendungsfälle sind das Heizen von Fusionsplasmen mit Neutralstrahlen, wofür negative Ionenstrahlen leichter Atome neutralisiert werden [6]. Weiterhin werden sie zur Erzeugung von hochenergetischen positiven Ionenstrahlen durch einen Tandembeschleuniger [5] genutzt. In diesen Beschleunigern werden die negativen Ionen durch Abstreifen von mindestens zwei Elektronen positiv umgeladen und weiter beschleunigt. Dies wird in der Beschleuniger-Massenspektrometrie, beispielsweise bei der Datierung von Proben anhand der Konzentration von ^{14}C darin, angewandt [40, 41]. In der Natur sind negative Ionen im interstellaren Medium recht häufig zu finden [2]. Anionen wie O^- oder O_2^- beeinflussen die Funk-Kommunikation an der Grenze zum All [42]. Ein neueres Thema, bei dem Anionen interessant werden, ist das sympathetische Kühlen von Antiprotonen durch lasergekühlte Anionen. Mit diesen kalten Antiprotonen könnten fundamentale Symmetrien zwischen Materie und Antimaterie untersucht werden [3, 16, 43]. Weiterhin wird die Nutzung negativer Ionen auch im medizinischen Bereich bei der Radionuklidtherapie diskutiert [44].

In Abb. 2.1 ist ein modifiziertes Periodensystem der Elemente gezeigt. Die Höhe des Elements entspricht der Bindungsenergie des zusätzlichen Elektrons. Diese Bindungsenergie wird Elektronenaffinität genannt. Die Elektronenaffinität kann mit modernen Programmen, die Konfigurationswechselwirkungen betrachten, sogar für schwere Ionen wie Yb^- ($Z = 70$) mit geringen Ungenauigkeiten von etwa 0.02 eV berechnet werden [47]. Dort wird also die Wechselwirkung von 71 Elektronen untereinander berücksichtigt. Das zusätzliche Elektron des Anions wird durch ein Polarisationspotential des Atomrumpfes gebunden. Dieses ist proportional zu r^{-4} und formt stabile Anionen mit Bindungsenergien bis 3.6 eV. Dieses Polarisationspotential entsteht durch die Wechselwirkung der Elektronen miteinander. Diese Elektron-Elektron-Wechselwirkung wird Korrelation genannt.

Korrelationseffekte treten auch in Kationen auf. Dort sind sie aber deutlich weniger stark ausgeprägt. Anionen stellen somit ideale Testsysteme zur Untersuchung von Korrelation auf atomare Prozesse dar. Experimente mit Anionen werden dadurch erschwert, dass

E. P. Wigner [48] leitete bereits 1948 ein Gesetz für den Photoionisationsquerschnitt negativer Ionen her. Dieses lautet

$$\sigma = B(E - E_t)^{l+0.5} \quad (2.1)$$

und wird heutzutage als Wigner-Gesetz bezeichnet. Dieses Gesetz beschreibt die Ionisation eines Anions an der Schwelle. Dabei ist E_t die Schwellenenergie und l die Drehimpulsquantenzahl des ionisierten Elektrons im Kontinuum. Das ionisierte Elektron muss vor dem Verlassen des Atoms durch eine Potentialbarriere tunneln. Diese Barriere entsteht durch die Kombination eines abstoßenden Zentrifugalpotentials für alle Drehimpulse mit $l > 0$ und des Polarisationspotentials. Wie weit das Gesetz oberhalb der Schwelle gültig ist, ist nicht bekannt. Bilodeau *et al.* [20] fanden allerdings in Experimenten mit He^- und S^- heraus, dass auch Innerschalen-Prozesse wie $1s$ - und $2p$ -Ionisation mit diesem Gesetz beschrieben werden können.

Neben der direkten Ionisation können bei der Photoionisation auch Resonanzen beobachtet werden. Diese entstehen meist, wenn neue Ionisationskanäle zugänglich werden. Bei Resonanzen wird mindestens ein Elektron in einen höheren Zustand angeregt. Dieser liegt energetisch im Kontinuum. Daher zerfallen diese Zustände sehr schnell durch Autoionisation. Die theoretische Beschreibung dieser angeregten Zustände ist nicht trivial und stellt eine große Herausforderung auch für moderne Berechnungen dar. Dies hängt auch damit zusammen, dass geeignete Näherungen getroffen werden müssen, da der Rechenaufwand für solche Viel-Körper-Probleme sehr schnell steigt. Für Resonanzen in der Valenzionisation von Anionen wurde kürzlich eine sehr ausführliche Studie von Safronova *et al.* [16] vorgestellt. In dieser wurden Resonanzen in der Valenzionisation von $\text{La}^- (Z = 57)$ vorhergesagt. Die Abweichungen der theoretischen von den experimentellen Ergebnissen lag zwischen 0.03% und 3%. Dies ist in Anbetracht der Energien im meV-Bereich sehr gut. Für Innerschalen-Prozesse steigen die Abweichungen je nach Fall um bis zu eine Größenordnung.

Sollen Experimente zur Innerschalen-Photoionisation durchgeführt werden, so ist bereits für leichte Anionen die Nutzung von Synchrotronstrahlung notwendig. H^- ist das einzige Anion, das bei Photonenenergien von ca. 9 – 14.5 eV mit einem Laser untersucht wurde. Die verwendete Laserwellenlänge lag sowohl im Bereich des sichtbaren Lichts als auch im Ultravioletten. Durch den Doppler-Effekt wurde die Frequenz des Lichts aber um etwa den Faktor 3.4 erhöht. Hierfür wurde ein 800 MeV H^- -Strahl der Los Alamos Mesonenfabrik bereitgestellt. Die Energievariation wurde darüber erreicht, dass der Winkel zwischen Photonen- und Ionenstrahl verändert wurde [49]. In diesen Untersuchungen wurden Resonanzen in der Photoionisation von H^- bei etwa 11 eV untersucht. Da die ersten Synchrotronstrahlungsquellen nur geringe Photonenflüsse lieferten, wurden solche

Experimente erst mit dem Aufkommen von Synchrotronstrahlungsquellen der dritten Generation (in annehmbarer Zeit) möglich.

Erste Experimente an Synchrotronstrahlungsquellen fanden Mitte der 1980er Jahre statt [50]. Der Durchbruch für Innerschalen-Photoionisationsexperimente mit Anionen erfolgte Ende der 1990er Jahre mit den Experimenten von H. Kjeldsen [51–53] an ASTRID. Für Kationen existiert bereits für eine Vielzahl von Studien [54]. Diese reichen von leichten Ionen wie He^+ [55] bis zu schweren Ionen wie W^{5+} [56]. Die Anzahl der Studien zu Anionen mit Synchrotronstrahlung ist deutlich geringer. Vor Beginn dieser Arbeit gab es Publikationen zu He^- [18–22], Li^- [23, 24], B^- [17, 57–59], C^- [28, 60], O^- [29, 61, 62], F^- [63], Na^- [64–66], S^- [67], Cl^- [68, 69] sowie weiterer schwerer Anionen [70–76]. Hier sollte allerdings erwähnt werden, dass für alle Ionen, die schwerer als Sauerstoff sind, keine Innerschalen-, sondern nur Valenzschalenionisation untersucht wurde.

Helumanionen liegen nicht in der $1s^2 2s$ -Konfiguration vor, sondern im $1s 2s 2p \ ^4P$ Zustand. Dies ist der erste angeregte und metastabile Zustand von Helumanionen [18]. In den Studien wurden verschiedene Resonanzen durch ein- oder mehrfache Anregung und nachfolgende Autoionisation sowie direkte Ionisation untersucht. Weitere Studien beschäftigten sich noch weitergehender mit der Doppelionisation, da die theoretischen Vorhersagen in der ersten Studie teilweise um einen Faktor 2 vom Experiment abwichen. In einer weiteren Studie [21] wurde dann berichtet, dass durch *postcollision interaction* (PCI, Wechselwirkung des Photoelektrons nach der Ionisation mit dem Atom/Ion) die Doppelionisation unterdrückt wird. Dies war auch ein Ergebnis der Experimente mit Lithumanionen [17, 24]. In [24] wurden keine absoluten Wirkungsquerschnitte gemessen, sondern die experimentellen Daten auf die Theorie normiert. Somit ist es nicht möglich festzustellen, ob Theorie und Experimente auch in der Höhe des Wirkungsquerschnitts übereinstimmen. Die Energien von Resonanzen konnten in den Experimenten mit Helium und Lithium mit einer Genauigkeit von etwa 200 meV durch Rechnungen vorhergesagt werden. In den Rechnungen wurden allerdings auch weitere Resonanzen vorhergesagt, die im Experiment nicht gefunden wurden. Dies könnte auf die Energiebandbreite des Photonenstrahls oder auf geringe Resonanzstärken zurückzuführen sein. Bei geringen Resonanzstärken könnten Resonanzen leicht von Untergrund verdeckt werden. Dieser war nach Aussage der Studien ein großes Problem und konnte auch nicht durch Choppen des Photonenstrahls und Verwenden des Absolutmodus (siehe Kap. 3.3) kompensiert werden.

Bei Experimenten mit B^- [57] wurden Resonanzen kurz vor der K -Kante untersucht. Da absolute Wirkungsquerschnitte gemessen wurden, konnte ein Vergleich mit zwei Rechnungen angestellt werden. Diese stimmen für eine Rechnung sehr gut mit den experimentellen Daten überein. Bei den Resonanzen stimmt die Rechnung besser mit dem Experiment

überein, die Konfigurationswechselwirkungen direkt beinhaltet. Hierfür wurden für alle Zustände separate Wellenfunktionen ermittelt. In der zweiten Rechnung mussten die Konfigurationswechselwirkungen manuell berücksichtigt werden. Es wurden drei Resonanzen an der K -Schwelle gefunden. PCI ist bei B^- nicht zu vernachlässigen, beeinflusst aber nicht die Doppelionisation. Dies ist darauf zurückzuführen, dass ein eingefangenes Elektron das Atom in einen doppelt angeregten Zustand führt. Dieser zerfällt anschließend durch Autoionisation. Ebenso ausführlich wie Boranionen wurden auch Kohlenstoffanionen [28, 60] untersucht. Für C^- wurde eine einzelne Resonanz im Bereich der K -Schwelle untersucht. Die experimentellen Daten zeigen hier eine große Resonanz in der Doppelionisation. Die theoretischen Vorhersagen [17, 60, 77] zur K -Schwelle sowie zur Energie der Resonanz variierten um bis 1 eV. Der Wirkungsquerschnitt hingegen sollte nach den Rechnungen zwischen 16 und 39 Mb groß sein. Im Experiment zeigten dann die Rechnungen von Gorczyca [17] sowie Kashenock und Ivanov [77] die beste Übereinstimmung.

Den Studien zu He^- , Li^- , B^- und C^- ist gemein, dass sie nur kleine Energiebereiche untersuchen und auf Doppelionisation beschränkt sind. Alle Resonanzen dieser Studien wurden den Shape-Resonanzen zugeordnet. Shape-Resonanzen entstehen dadurch, dass ein Elektron in einem Anion in einen autoionisierenden Zustand angeregt wird. Dieser Zustand liegt energetisch oberhalb eines Zustand des neutralen Atoms. Damit das Elektron allerdings das Anion verlassen kann, muss es durch eine Zentrifugalbarriere tunneln.

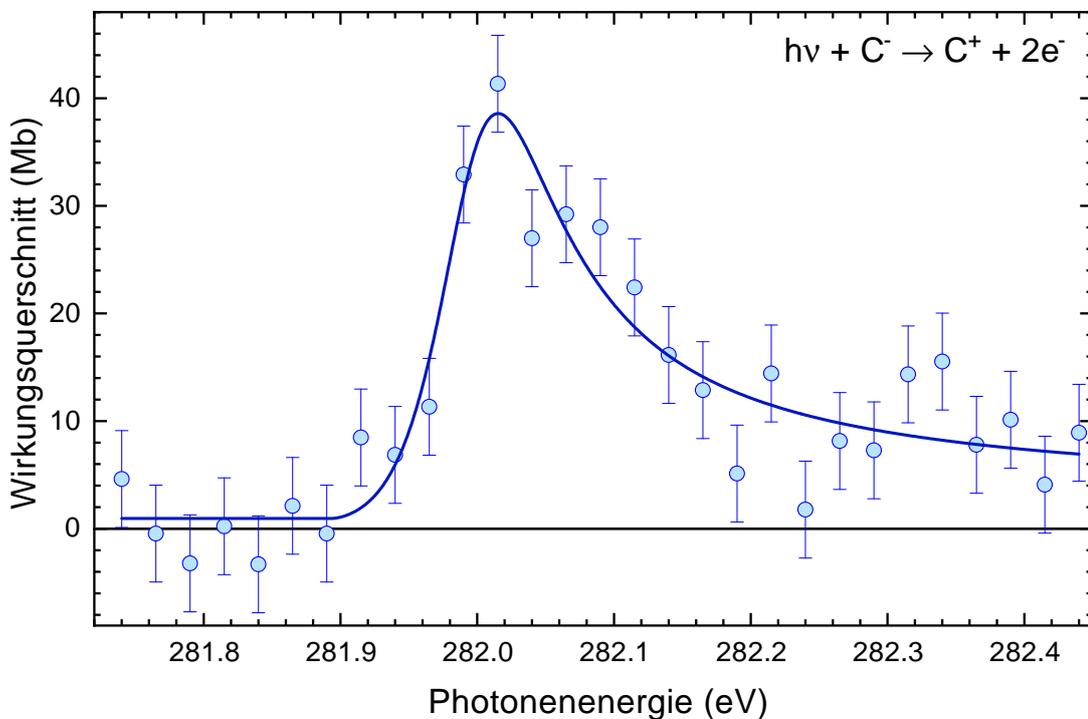


Abbildung 2.2 – Experimentelle Daten zur K -Schalenionisation von C^- , Daten aus [28]. Die Resonanz wurde der $1s \rightarrow 2p$ -Anregung zugeordnet. Die Daten wurden in insgesamt zwei Wochen Experimentierzeit an der Advanced Light Source in Berkeley, CA, USA aufgenommen. Die Linie ist ein Fit durch die Datenpunkte.

Diese entsteht durch die Kombination des kurz-reichweitigen bindenden Potentials und eines repulsiven Zentrifugalpotentials. Dies gibt es nur für Elektronen mit $l > 0$ [78].

Die Studie zu Sauerstoffanionen [29] zeigt die Dreifachionisation von Anionen. Hier wurde ein deutlich größerer Energiebereich als bisher von etwa 19 eV untersucht. Dieses Experiment wurde von theoretischer Seite durch Stephan Fritzsche unterstützt. Auch O^- zeigt im Bereich der K -Schwelle eine Resonanz durch $1s \rightarrow 2p$ -Anregung. Diese ist ebenfalls in der Dreifachionisation sichtbar. Die unterschiedlichen Ionisationsschwellen für den Grundzustand von Sauerstoffanionen ist in der Dreifachionisation sogar besser erkennbar als in der Doppelionisation. Für die Resonanz wurden Rechnungen angefertigt. Die Breite der Resonanz und das Verhältnis der Doppel- zur Dreifachionisation wurden am besten von dem Modell beschrieben, dass auch verschiedene Doppelshakeup-Prozesse beinhaltet. In diesem Modell wurden $2s \rightarrow 3s$ und $2p \rightarrow 3p$ Shakeup-Prozesse berücksichtigt. Für Doppelanregungen wurden Doppelshakeup-Prozesse von zwei $2s$ und $2p$ Elektronen bis in die $3d$ -Schale betrachtet. Für O^- wurden absolute Wirkungsquerschnitte gemessen. Die Summe der Wirkungsquerschnitte beider Kanäle stimmt für direkte K -Ionisation mit dem Absorptionsquerschnitt für neutralen Sauerstoff überein [30]. Dies ist hilfreich, um in Zukunft Kontrollmöglichkeiten oder eine zusätzliche Normierung zu nutzen.

Die qualitativen Unterschiede zwischen den Experimenten mit Spektrometern an ASTRID oder ALS mit den Experimenten an PETRA III sind deutlich zu erkennen. Dies ist neben dem hohen Photonenfluss von PETRA III auch auf das Design von PIPE zurückzuführen. Eine genaue Erläuterung zu PIPE folgt in Kap. 3.3. In Abb.2.2 sind als Beispiel die Ergebnisse von Gibson [60] und Walter [28] zur K -Schalen Photoionisation von Kohlenstoffanionen gezeigt. In beiden Studien wurde eine Resonanz durch $1s \rightarrow 2p$ -Anregung in C^- untersucht. Es wurde Doppelionisation im Energiebereich von ca. 281.7 – 282.5 eV untersucht. Die Daten wurden über einen Zeitraum von zwei Wochen in zwei unterschiedlichen Messkampagnen aufgenommen. Im Experiment an PIPE wurde eine analoge Messung innerhalb von ca. 10 min mit deutlich kleineren statistischen Fehlern durchgeführt. Weiteres dazu ist in Kap. 5 ausgeführt.

3 Experimenteller Aufbau

In diesem Kapitel wird der experimentelle Aufbau erklärt. Zu Anfang werden in Kap. 3.1 die beiden verwendeten Ionenquellen kurz vorgestellt und ihre Vor- und Nachteile diskutiert. Anschließend geht es in Kap. 3.2 mit der Erzeugung von Synchrotronstrahlung und der Lichtquelle PETRA III an DESY, Hamburg weiter. Das Kapitel wird mit dem verwendeten Photon-Ion-Spektrometer in Kap. 3.3 beendet.

3.1 Erzeugung von negativen Ionenstrahlen

In den folgenden Unterkapiteln werden die beiden verwendeten Ionenquellen für die diskutierten Experimente vorgestellt. Es gibt an PIPE eine Elektron-Zyklotron-Resonanz-Ionenquelle, die hauptsächlich zur Erzeugung von ein- und mehrfach geladenen Kationen genutzt wird. Seit Ende 2017 ist eine Cäsium-Sputterionenquelle zur Erzeugung von intensiven negativen Ionenstrahlen an PIPE verfügbar [36].

3.1.1 10 GHz-Elektron-Zyklotron-Resonanz-Ionenquelle

Bei den Experimenten mit Flouranionen wurde zur Erzeugung der Ionen und des Ionenstrahls eine 10 GHz-Elektron-Zyklotron-Resonanz-Ionenquelle (ECRIS) [79, 80] genutzt. In dieser Art von Ionenquelle wird ein Plasma in einem Magnetfeld gezündet, das mittels einer Mikrowelle mit einer maximalen Leistung von 100 W und Frequenzen zwischen 9.0 – 10.5 GHz geheizt wird. Durch einen mit der Plasmakammer verbundenen Resonatorwürfel kann ein Verdampferofen oder eine Antenne in die Quelle gefahren werden.

Die Plasmakammer wird von zwei Ringmagneten am Anfang und Ende der Kammer und einem Hexapolmagneten um den zentralen Bereich des Plasmas herum eingeschlossen. Dies sorgt dafür, dass sich die im Plasma befindlichen Ionen und Elektronen auf Kreis- bzw. Spiralbahnen bewegen und so die Ionisationseffizienz sehr hoch ist. Alle hier verbauten Magnete sind Permanentmagnete. Das Plasma wird abschließend durch eine Tassenelektrode begrenzt. Durch diese geschieht die Extraktion des Ionenstrahls. Eine Skizze zu dieser Ionenquelle ist in Abb. 3.1 gezeigt.

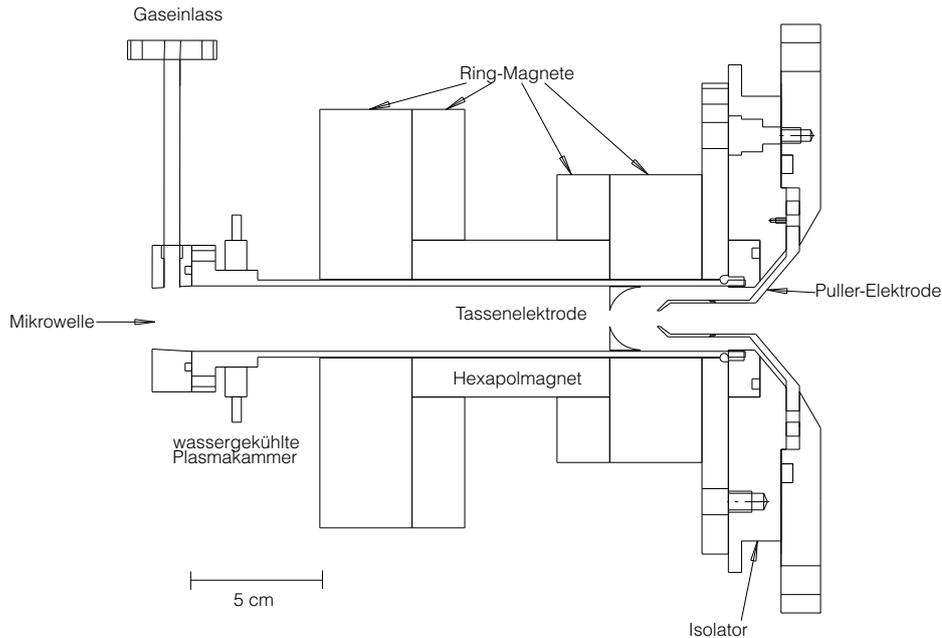


Abbildung 3.1 – Skizze der verwendeten ECRIS, nicht eingezeichnet sind Antenne bzw. Ofen und Stempel. Die Antenne wird aus Richtung der Mikrowelle in die Plasmakammer eingeführt.

Das Haupteinsatzgebiet von ECRIS ist die Erzeugung von mehrfach- bis hoch-geladener Ionen. Die hohe Ionisationseffizienz wird u.a. dadurch erreicht, dass das Plasma sehr heiß ist. Die thermische Energie $k_B T$ von Ionen und Elektronen liegt im Bereich mehrerer Kiloelektronenvolt. Bei der Erzeugung positivgeladener Ionen liegen diese zu einem signifikanten Anteil in angeregten Zuständen vor, besonders wenn diese langlebig sind.

Negative Ionen können in solchen Quellen auch erzeugt werden. Allerdings ist die Ausbeute eher gering verglichen mit spezialisierteren Quellentypen. Dies liegt daran, dass in einem Anion das zusätzliche Elektron sehr locker und nicht über die Coulomb-Wechselwirkung gebunden ist. Durch die nur schwache Bindung und die, durch die Magnetfelder und ihre Struktur erhöhte, Teilchendichte im Plasma sinkt die Effizienz der Quelle in der Anionenproduktion. Dies liegt daran, dass durch Stöße mit neutralen Teilchen, Ionen oder Elektronen das zusätzliche Elektron schnell wieder abgestreift werden kann. Obwohl Fluor die zweithöchste Elektronenaffinität (also Bindungsenergie) mit 3.4 eV [26] besitzt, betrug der Ionenstrom im Experiment lediglich ca. 20 nA. Eine zur Produktion von Anionen spezialisierte Quelle (siehe Kap. 3.1.2) kann hiervon bis zu 150 μ A [27] erzeugen.

Diese spezialisierteren Ionenquellen sind hingegen nicht zur Erzeugung von empfindlichen Molekülanionen wie z.B. (endohedralen) Fullerenen geeignet. Solche Ionen, bei denen auch die Proben schnell sehr kostspielig werden, können dafür gut in einer ECRIS als Kation oder Anionen produziert werden, wie beispielsweise in [81–83] gezeigt wird. Ein weiterer Vorteil der ECRIS liegt in ihrem geringen Wartungsbedarf. Werden nur Gase genutzt, so ist diese nahezu wartungsfrei. Bei Festkörperproben, die verdampft werden müssen, steigt

der Wartungsaufwand je mehr Material verdampft wurde. Das Material muss nachgefüllt werden, wenn es verbraucht ist.

Eine gewisse Grundschwierigkeit im Betrieb der Quelle liegt in der Anzahl der einzustellen- den Parametern. Bei der verwendeten ECRIS sind dies neben der Mikrowellen-Frequenz und -Leistung der Druck in der Kammer und die Position zweier Manipulatoren, die die Ofenposition (ohne Verdampferofen ist hier eine Antenne verbaut) und die Position des Stempels variieren. Der Ofen ist in horizontaler Richtung verfahrbar und der Stempel in vertikaler Richtung. Beide Bauteile beeinflussen die Einkopplung der Mikrowelle in das Plasma.

3.1.2 Cs-Sputterionenquelle

Nach ersten erfolgreichen Experimenten an PIPE mit Kationen sollten dort auch Anionen untersucht werden. Nach einer ersten Studie mit Sauerstoffanionen [29] wurde im Rahmen eines BMBF-Projekts vom Autor dieser Arbeit eine spezialisiertere Ionenquelle zur Erzeugung negativer Ionen aufgebaut [36]. In dieser sogenannten *multi-purpose ion sputter source* (MISS, deutsch: Vielzweckionensputterquelle) werden mittels Zerstäuben eines Targetmaterials durch Cäsiumionen und Bedampfen des Targets mit Cs-Dampf intensive negative Ionenstrahlen erzeugt. Das Design der Ionenquelle stammt vom Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg [84,85]. Die Quelle basiert in der Grundidee auf einer sehr erfolgreichen Ionenquelle von R. Middleton [27,86,87].

Der Haupteinsatzzweck solcher Ionenquellen besteht darin, einen sehr intensiven Ionenstrahl mit Anionen für einen Tandembeschleuniger bereitzustellen. In diesen wurden dann mindestens zwei Elektronen abgestreift und die nun positiven Ionen in weitere Beschleunigerstrukturen oder direkt zu Experimenten transportiert. Diese, für PIPE neue, Ionenquelle produziert hervorragend atomare Anionen, aber auch Molekül- oder Clusteranionen. Allerdings werden die von Middleton [27] angegebenen maximalen Intensitäten nicht erreicht. In Heidelberg wurde in Idealfällen maximal ein Drittel dieser Werte erreicht [88].

Die Ionenausbeute hängt von dem Targetmaterial ab. In die Quelle wird das Targetmaterial in einem Kupfer- oder Edeltstahlöpfchen gebracht. Das Target ist an einem wassergekühlten Targethalter montiert. Dieser ist elektrisch von der restlichen Ionenquelle isoliert, da das Target auf einem anderen Potential U_{sp} als das restliche Quellengehäuse liegt. Dies ist notwendig, damit das Targetmaterial gesputtert wird. Zu diesem Zweck wird Cäsium in der Quelle verdampft. Hierfür wird es auf Temperaturen zwischen 110 °C und 180 °C erwärmt. Um dies zu ermöglichen, befindet sich das Cäsium in einem Reservoir. Dieses kann durch eine Heizung und Kühlung auf diese Temperaturen erwärmt werden.

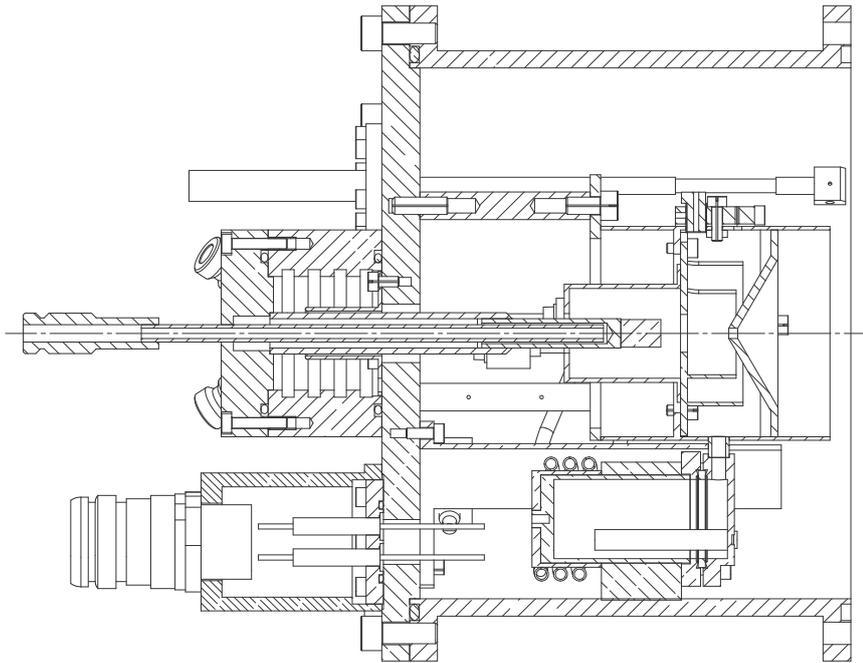


Abbildung 3.2 – Querschnittszeichnung der Cs-Sputterquelle, nicht eingezeichnet sind die Thermoelemente und der Ionisierer. In der Mitte ist der Targethalter, der isoliert vom Rest der Quelle montiert ist. In diesen wird das Sputtertarget eingeschraubt. © Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg. (2017)

Der Verbrauch an Cäsium, dessen Schmelzpunkt bei etwa 28 °C liegt, ist dabei moderat, 1 g Cs erlaubt maximal eine Woche Quellenbetrieb. Diese Betriebszeit wurde bisher aber nur selten erreicht und ist abhängig von den Betriebsparametern der Ionenquelle.

Innerhalb der Quelle im Bereich vor dem Target befindet sich eine Heizwendel, der Ionisierer, aus Wolfram-Rhenium-Draht mit 1.0 mm Durchmesser, das auftreffende Cs-Atome ionisiert. Der Ionisierer wird durch einen Heizstrom geheizt. Dieser Heizstrom liegt typischerweise zwischen 20 und 30 A und erzeugt Temperaturen bis ca. 1700 °C . Die nun positiv geladenen Cs^+ -Ionen werden durch das Sputterpotential U_{sp} mit einer kinetischen Energie von $1e \cdot U_{\text{sp}}$ auf das Target beschleunigt. Das Sputterpotential sollte im Betrieb zwischen 1500 und 3000 V liegen. Die Höhe des Potentials wird hauptsächlich durch die Härte des Targetmaterials bestimmt. Bei weichen Targets, bspw. Pulvern, ist ein Potential von ca. 1500 V optimal. Ist das Material ein harter Feststoff, bspw. ein Metall, ist ein höheres Potential von 2500 V besser. Teile des Cs-Dampfes setzen sich auf dem gekühlten Target ab und bedecken die Oberfläche des Targets. Ziel ist hier eine Schichtdicke von etwa 0.6 Monolagen Cs. Bei dieser Schichtdicke wird ein Minimum in der Austrittsarbeit der bedeckten Fläche erzeugt [89, 90]. Wo genau die optimalen Bedingungen für das jeweilige Material liegen, muss allerdings experimentell durch Variieren der Parameter ermittelt werden. Dies erfolgt durch systematisches Variieren des Sputterpotentials, Heizstroms und der Heizspannung für das Cäsium.

Ein weiterer kritischer Parameter ist der Druck im Quellenbereich. Dieser sollte im Betrieb stets kleiner als 10^{-5} mbar sein. Dadurch werden Beschädigungen des Ionsierers und ein vermindertes Sputtern verhindert. Der tatsächliche Druck im Bereich des Targets kann allerdings nicht gemessen werden, daher kann hier nur der Druck in der gesamten Kammer als Annäherung gesehen werden. Gerade beim Heizen des Cs mit der Cs-Heizung am Reservoir entstehen bei Erhöhung der Heizspannung meist neues Gas bzw. Gasstöße. Es muss also vorsichtig geheizt werden. Der Wartungsaufwand dieser Ionenquelle ist signifikant höher als bei der ECRIS. Durch das Sputtern werden die Bauteile innerhalb der Quelle beschichtet. Daher kommt es irgendwann zu einem Kurzschluss am Target durch die Verschmutzung.

Die Reinigung erfolgt durch Sand- oder Glasperlenstrahlen. Daher ist sie sehr zeitaufwendig und erfordert einen Austausch der Quelle. Aus diesem Grund stehen für Strahlzeiten bis zu drei Cs-Sputterquellen zur Verfügung. Ein Quellenaustausch dauert von Abschalten inklusive Abkühlen der Quelle bis zu einem neuen Strahl zwischen vier und sechs Stunden. Während einer Strahlzeit ist hier also ein geeigneter Zeitpunkt, um z. B. Messungen zur Energiekalibration (siehe dazu Kap. 3.2.4) durchzuführen.

Untersuchungen von M. Scheer *et al.* [91] haben gezeigt, dass solche Cs-Sputterionenquellen C^- und Si^- hauptsächlich in ihren Grundzuständen erzeugen. Eine Besonderheit dieser beiden Ionen ist, dass diese ein bzw. zwei metastabile Niveaus aufweisen. Für C^- ist der Grundzustand $[He] 2s^2 2p^3 \ ^4S_{3/2}$ und für Si^- ist es $[Ne] 3s^2 3p^3 \ ^4S_{3/2}$. Der metastabile Zustand von C^- ist ein 2D Zustand. Für Si^- gibt es zwei Zustände, einen $^2D_{3/2}$ - sowie einen $^2P_{1/2}$ -Zustand. Die Bindungsenergien der angeregten Zustände betragen 0.033(1) eV für C^- und 0.527234(25) eV bzw. 0.029(5) eV für Si^- . Der 2D Zustand hat eine Lebensdauer von ca. 5.7 h und der 2P Zustand von 22.2(25) s [92]. Fluoranionen haben keine metastabilen Niveaus. Sie existieren ausschließlich in ihrem $[He] 2s^2 2p^6 \ ^1S_0$ Grundzustand mit einer Bindungsenergie von 3.4011887(32) eV [93].

3.2 Synchrotronstrahlungsquelle

Da für die Experimente dieser Arbeit Synchrotronstrahlung eine Notwendigkeit ist, soll im Folgenden etwas detaillierter darauf eingegangen werden. Nach einer kurzen grundsätzlichen Einführung zur Entdeckung, Erzeugung und Nutzung von Synchrotronstrahlung wird anschließend das für diese Arbeit relevante und genutzte Synchrotron PETRA III und das dortige Strahlrohr P04 vorgestellt.

3.2.1 Erzeugung von Synchrotronstrahlung

Synchrotronstrahlung wurde erstmals zufällig von Elder *et al.* [94] im Jahr 1947 entdeckt. Das Interesse an den Photonen war eher gering. Stattdessen war die Forschung der Hochenergiephysik mit Elektronenstrahlen vorrangig. Dennoch wurde an vielerlei Stellen die *erste Generation* von Synchrotronstrahlungsquellen auch zur Forschung mit diesen Photonen genutzt. Dies war beispielsweise für das Synchrotron DORIS bei DESY in Hamburg der Fall [95].

Nachdem diese Speicherringe nicht mehr für die Hochenergiephysik genutzt wurden, erhielten sie ein zweites Leben als dedizierte Synchrotronstrahlungslichtquelle und die Forschung mit den Photonen stellte die primäre Aufgabe der Speicherringe dar. Ein Beispiel hierfür wäre der Speicherring TANTALUS in Stoughton, WI, USA [96]. Auch bei dieser *zweiten Generation* wurde nur die als Nebenprodukt erzeugte Synchrotronstrahlung zur Forschung genutzt.

Die nachfolgende *dritte Generation*, zu der auch PETRA III gehört, nutzt hingegen zur Erzeugung der Strahlung spezielle *Insertion Devices*. Hierunter werden Wiggler und Undulatoren verstanden. Dies sind spezielle Ablenker, welche den relativistischen Elektronenstrahl gezielt auf einer kurzen Strecke ablenken und dabei elektromagnetische Strahlung erzeugen. Diese Ablenker bestehen aus speziell angeordneten Magneten. Wiggler und Undulator unterscheiden sich im Spektrum der emittierten Strahlung. Während Wiggler ein breites Spektrum an Strahlung aufweisen, zeigen Undulatoren im Vergleich Linienspektren der Energie [97].

Die *vierte Generation* von Synchrotronstrahlungsquellen wird in zwei Kategorien unterteilt. Einerseits gibt es die sogenannten Freie-Elektronen-Laser (FEL) und andererseits Speicherring-basierte Synchrotronstrahlungsquellen. Bei letzteren wird die Elektronenoptik im Ring von wenigen starken magnetischen Ablenkern zu vielen kleinen Magnetstrukturen verändert. Hierdurch wird die Ablenkung pro Optikelement minimiert. Dadurch sinkt die Emittanz des Elektronenstrahls. Dies bedeutet, dass sowohl die räumliche Ausdehnung als auch die Impulsverteilung innerhalb des Strahls minimiert werden. Hierdurch

steigt die Kohärenz des Photonenstrahls bei gleichzeitigem Schrumpfen des Strahldurchmessers. Einige Synchrotronstrahlungsquellen der dritten Generation befinden sich gerade in der Umrüstphase auf diese neue Technologie. Ein aktuelles Beispiel hierfür wäre MAX IV in Lund, Schweden [98].

Bei FELs wird statt eines Ringbeschleunigers ein Linearbeschleuniger für Elektronen genutzt. Zur Erzeugung der Röntgenstrahlung werden dort ebenfalls Undulatoren verwendet. Diese nutzen aber das SASE-Prinzip. Bei SASE (engl. *self-amplified spontaneous emission*) wechselwirkt der Elektronenstrahl mit den erzeugten Photonen innerhalb des Undulators und verstärkt die Photonenemission. Ein Nachteil ist hier, dass dadurch kein monochromatisches Licht erzeugt wird, sondern Licht mit einer kontinuierlichen Energieverteilung. Durch die Bauweise wird ein FEL nur gepulst betrieben. Ein Synchrotron verwendet die Elektronenpakete mehrfach. Als grobe Richtgröße sollte festgehalten werden, dass pro Puls bei einem FEL so viele Photonen wie der Fluss einer Synchrotronstrahlungsquelle pro Sekunde enthält. An einem FEL können daher sehr gut Multi-Photonenprozesse wie 2-Photonenionisation oder andere untersucht werden. Einer der ersten FEL ist FLASH [99, 100] bei DESY. Eines der neuesten Instrumente in diesem Bereich ist der European XFEL [101] in Hamburg und Schenefeld.

Weitergehende Informationen zu der geschichtlichen Entwicklung von Synchrotronstrahlung werden von V. Schmidt [102] diskutiert. Jaescheke *et al.* diskutieren in einem Handbuch [103] den aktuellen Stand der Technik.

3.2.2 Synchrotronstrahlungsquelle PETRA III

Nach Jahren als Vorbeschleuniger für HERA wurde 2006 bekannt gegeben, dass als Nachfolger für die Synchrotronstrahlungsquelle DORIS III am Deutschen Elektronensynchrotron (DESY) in Hamburg die Positron-Elektron-Tandem-Ring-Anlage (PETRA) in Form der Synchrotronstrahlungsquelle PETRA III mit einer sehr geringen Emittanz und hohen Brillanz neu aufgebaut werden soll [104, 105].

In PETRA III können sowohl Positronen- als auch Elektronenstrahlen bei einer kinetischen Energie von etwa 6 GeV in dem 2304 m langen Ring gespeichert werden, wobei der Strahlstrom im Ring 100 bis 120 mA (seit 2020) beträgt. Je nach Füllmuster laufen die Elektronen entweder in 960, 480 oder 40 Paketen im Ring. Die Lebensdauern des Elektronenstrahls liegen zwischen 13 h und 1 h, und jedes Elektronenpaket passiert alle $7.685 \mu\text{s}$ wieder denselben Punkt. Durch den Top-Up-Betrieb werden Strahlverluste schnell ausgeglichen, wobei die maximale Abweichung vom Sollstrom typisch weniger als 1 mA beträgt.

Bei Errichtung war PETRA III die größte und brillianteste Synchrotronlichtquelle auf der Welt. Aktuell gibt es 25 Strahlrohre mit über 45 Instrumenten in drei Experimentierhallen. Jedes Strahlrohr wird mit einem eigenen Undulator versorgt. Der Großteil der Strahlrohre stellt harte Röntgenstrahlung bereit und nicht jedes kann auf beliebige Energien gestellt werden. Die Photonenenergien reichen an PETRA III von 250 eV bis 200 keV je nach Undulator-Strahlrohr. Am Strahlrohr P66 stehen für Lumineszenz-Spektroskopie Photonen mit 3.7 bis 40 eV aus einem Ablenkmagneten zur Verfügung. Die Photonenflüsse betragen bis zu mehr als 10^{15} s^{-1} [106].

Seit 2019 wird über ein Upgrade von PETRA III zu PETRA IV diskutiert. Hierbei würde der gesamte Ring komplett neu aufgebaut werden. PETRA IV würde danach nahezu vollständig kohärentes Licht mit einer noch niedrigeren Emittanz liefern [107]. Ebenfalls wird dabei über den Betrieb mit 200 mA Elektronenstrom nachgedacht. Dies wäre dann der Schritt von der sogenannten dritten Generation von Speicherring-basierten Synchrotronstrahlungsquellen zur vierten Generation [107,108].

Da alle Experimente hier am Strahlrohr P04 durchgeführt wurden, soll dies im Folgenden noch etwas ausführlicher vorgestellt werden.

3.2.3 Strahlrohr P04

Das Strahlrohr P04 [109] ist auf mehreren Arten eine Besonderheit bei PETRA III. Hauptsächlich, weil es das einzige Strahlrohr mit XUV-Strahlung ist. Zusätzlich ist es das einzige Strahlrohr mit Ultrahochvakuum von der Photonenquelle bis zur Probe und ein sogenanntes Open-Port-Strahlrohr. An allen anderen Strahlrohren endet das Strahlrohr in Experimentierhütten mit einem Austrittsfenster für den Photonenstrahl. Die Proben liegen an der Luft oder es gibt ein weiteres Fenster, durch das die Photonen müssen, um zur Probe zu kommen. Open-Port heißt hier, dass Nutzer ihre Experimente aus dem „heimischen“ Labor (soweit transportabel) einpacken und zu P04 bringen können. Dort müssen diese lediglich auf die Experimentiergranite passen und eine Anschlussmöglichkeit an das Vakuumrohr von P04 in passender Höhe haben.

Die Photonen von P04 werden mit einem 4.9 m langen APPLE-2 Undulator erzeugt. Dieser Undulator besteht aus vier Magnetreihen, wobei bei die Richtung des Magnetfeldes mit jedem Magneten wie in einem Halbach-Array [110] gedreht wird. Alle vier Achsen sind gegeneinander verfahrbar und über den Abstand der Achsen zueinander wird die Stärke der Auslenkung des passierenden Elektronenstrahls und damit auch die Photonenenergie definiert. Die gesamte Beamline ist auf die Nutzung der ersten Harmonischen ausgelegt. Versuche, Photonen mit höheren Harmonischen (=höhere Energie) oder niedrigerer Energie zu produzieren und durch das Strahlrohr zu leiten, waren erfolglos [111].

Der Undulator wurde von BESSY zu DESY geliefert und kann prinzipiell Photonenstrahlen jeder beliebigen Polarisation erzeugen. Die Energien liegen dabei zwischen 250 eV und 3000 eV. Leider stand für die bisher und auch in dieser Arbeit durchgeführten Experimente nur zirkular polarisiertes Licht bis zu ca. 2600 eV zur Verfügung. Dies liegt daran, dass der erste Spiegel bei linearer Polarisation oder Photonenenergien höher als 2600 eV nicht mehr ausreichend gekühlt werden kann und dann Schäden entstehen würden. Ein neues Design des Spiegels ist laut Beamline-Team in Arbeit.

Für die Experimente stehen mehrere Gitter zur Verfügung, hier hat der Nutzer die Wahl zwischen 400 und 1200 Linien/mm. Das 400er Gitter ist allerdings lediglich bei bis zu 1500 eV sinnvoll nutzbar und liefert dort mehr Photonenfluss als das 1200er Gitter, welches dafür eine höhere Auflösung $E/\Delta E$ von mehr als 35 000 bereitstellen kann. Der an P04 erreichbare Photonenfluss liegt bei mehr als 10^{15} Photonen pro Sekunde bei einer Photonenenergie von 1 keV und die Größe des Photonenstrahls bei PIPE liegt typischerweise bei $2\text{ mm} \times 1\text{ mm}$ mit einem Austrittspalt von $1000\ \mu\text{m}$.

Es gibt an P04 zwei Zweige, Branch 1 und Branch 2. Branch 2 ist der ältere Abzweig. An diesem befindet sich auch PIPE. Jeder Zweig nutzt einen eigenen Monochromator. Die Photonen werden über den ersten Spiegel zu dem jeweiligen Zweig transportiert. An Branch 2 ist auch ein Elektronenspektrometer mit Gasjet verbaut. Dies wurde in dieser Arbeit zur Energiekalibration genutzt. Die Energie ist über die Experimentierzeit gut innerhalb der Ungenauigkeit der aktuellen Energiekalibrationen reproduzierbar. Eine Experimentierzeit geht typischerweise von Mittwochabend/Donnerstagmorgen bis zum darauffolgenden Mittwoch gegen 7 Uhr am Morgen.

3.2.4 Energiekalibration

Zur Energiekalibration werden Gase mit geeigneten Absorptionsfeatures im genutzten Energiebereich über ein Nadelventil als Gasjet in ein Elektronenspektrometer eingelassen. Die Photonen ionisieren das Referenzgas und die ionisierten Elektronen werden im Elektronenspektrometer detektiert. Zur Kalibration wird nun die Anzahl der detektierten Elektronen als Funktion der Photonenenergie aufgenommen.

Exemplarisch sind in Abb. 3.3 die Signale der Kohlenstoff $1s \rightarrow 1\pi_u$ -Anregung in Kohlenstoffdioxid bei etwa $290.77(3)\text{ eV}$ [112] in Teil a) und die Resonanzen der $1s \rightarrow \pi^*$ -Anregung im Stickstoffmolekül bei ca. 401 eV [113] gezeigt. Diese Messungen wurden während der Untersuchung von Kohlenstoffanionen aufgenommen.

Die Energiekalibration ist in Abb. 3.4 gezeigt. Für die Kalibration wurde von der Stickstoff-Resonanzgruppe nur der erste Peak zum Vibrationszustand $\nu = 0$ betrachtet. Dies ist die

Tabelle 3.1 – Genutzte Kalibrationen und Referenzgase für alle Experimente. In der ersten Spalte wird das untersuchte Ion angegeben. Die zweite Spalte enthält das Kalibrationsgas und die dritte Spalte das genutzte Absorptionsfeature. In der vierten und fünften Spalte sind die Referenz- und Fit-Energien der Features mit Fehlern gezeigt. In der vorletzten Spalte ist die Kalibrationskurve gezeigt. Die letzte Spalte enthält ΔE , die gesamte Ungenauigkeit der Kalibration.

Ion	Gas	Prozess	E_{Ref} (eV)	E_{Fit} (eV)	Kalibration	ΔE (eV)
F ⁻	O ₂	O $1s \rightarrow \pi^*$	530.9(1) ^a	530.41(79)	$1.00167E_{\text{nom}} - 0.38445$	± 0.3
	Ne	$1s \rightarrow 3p$	867.29(5) ^b	866.230(2)		
C ⁻	CO ₂	C $2\sigma_g \rightarrow \pi_u$	290.77(3) ^c	290.814(1)	$0.99962E_{\text{nom}} + 0.06638$	± 0.2
	N ₂	N $1s \rightarrow \pi^*$	400.88(2) ^d	400.966(1)		
Si ⁻	Kr	$2p_{1/2}$ Ioni.	1729.5(1) ^e	1732.95(1)	$E_{\text{nom}} - 3.45$	± 1.0

^a [113]

^b [114]

^c [112]

^d [113] In der Kalibration wurde nur der Zustand mit $\nu = 0$ betrachtet.

^e [115]

gängige Methodik, damit die Energien bei 400 eV nicht zu stark zur Kalibration beitragen. Alle Kalibrationen und Kalibrationsgase sind in Tabelle 3.1 aufgelistet. Als Kalibrationskurve für die C⁻-Daten ergibt sich $E_{\text{cal}} = 0.99962 \cdot E_{\text{nom}} + 0.06638$ eV mit der nominellen Photonenenergie E_{nom} . Die Ungenauigkeit der Energiekalibration liegt bei ± 0.2 eV.

Für Fluoranionen wurde die Resonanz von $1s \rightarrow \pi^*$ -Anregung eines Sauerstoffatoms im O₂-Molekül bei 530.9(1) eV [113] sowie die $1s \rightarrow 3p$ -Anregung von Neon [114] bei 867.29(5) eV genutzt. Für die Siliziumdaten wurde die Energie anhand der Flanke der $2p_{1/2}$ -Ionisation von Krypton bei 1729.5(1) eV [115] verwendet.

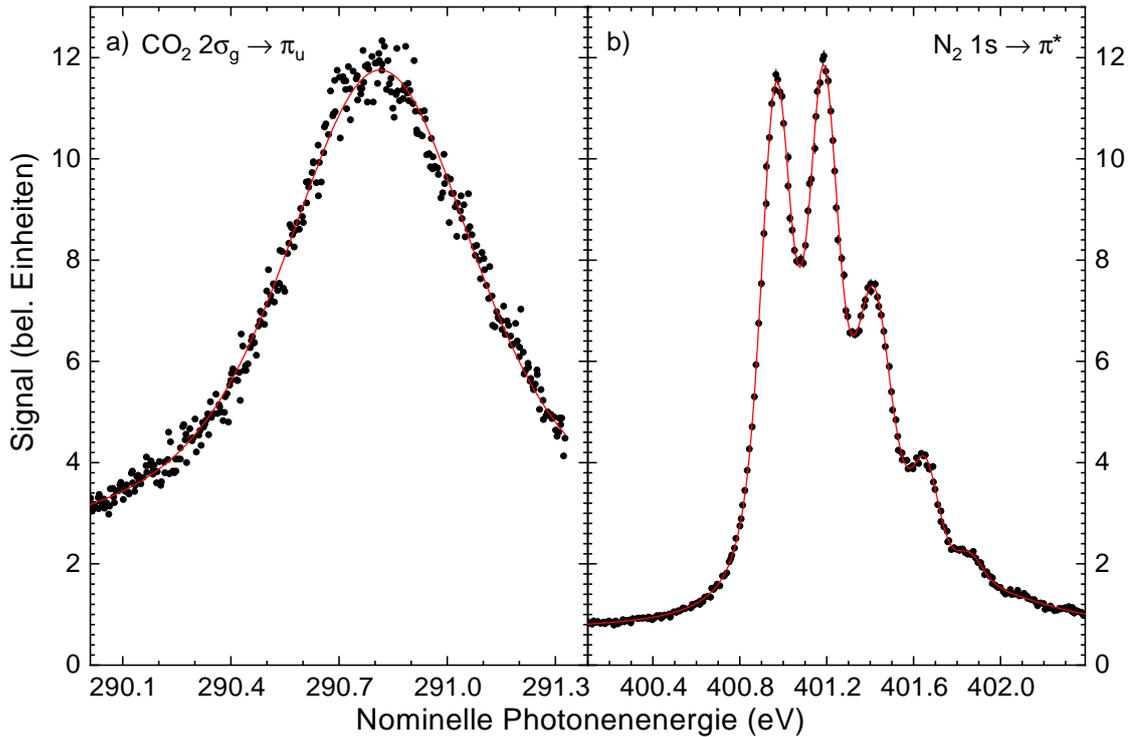


Abbildung 3.3 – Beispielhaft sind hier zwei Absorptionsmessungen in Gasen zur Energiekalibration dargestellt. In a) ist eine Resonanz durch $2\sigma \rightarrow 1\pi_u$ -Anregung von C in CO₂ dargestellt. Die rote Linie ist ein Fit an die Daten. In b) werden die Resonanzen durch $1s \rightarrow \pi^*$ -Anregung in N₂ gezeigt. Auch hier ist die rote Linie ein Fit.

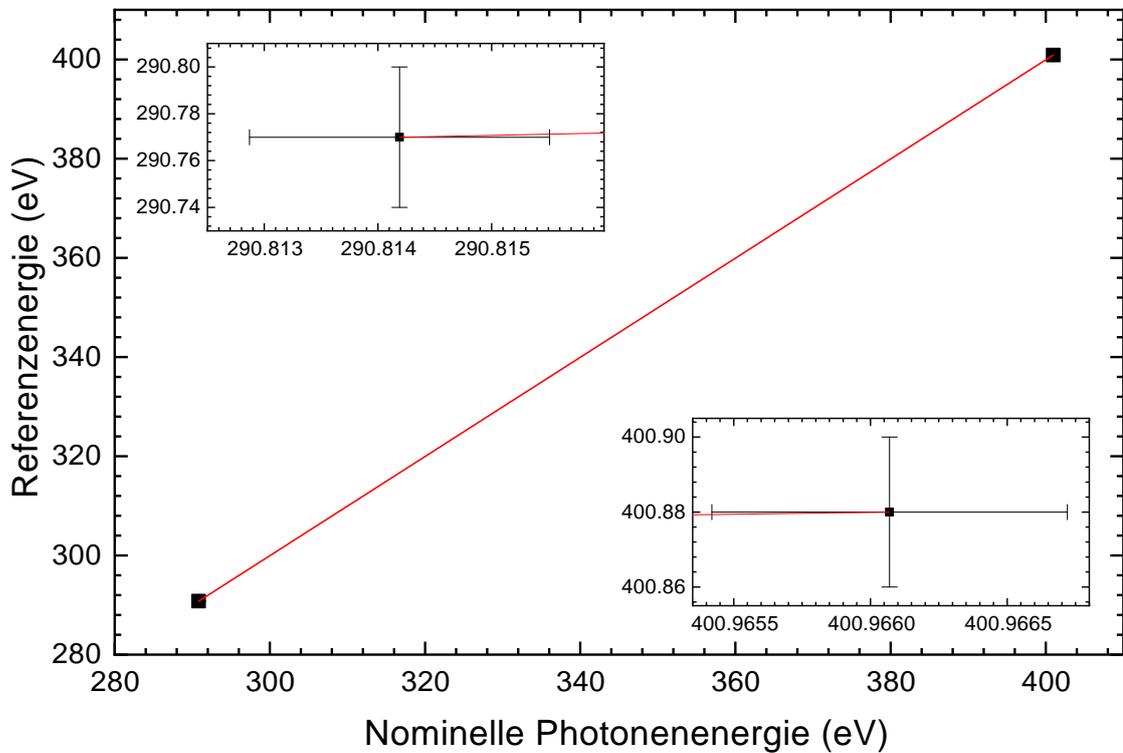


Abbildung 3.4 – Energiekalibration der Kohlenstoffdaten. Die beiden eingesetzten Plots sind ein Zoom an die beiden Datenpunkte. Hier werden die x - und y -Fehler sichtbar. Im eigentlichen Plot ist als rote Linie die Kalibrationskurve abgebildet.

3.3 Photon-Ion-Spektrometer an PETRA III

Die Experimente dieser Arbeit wurden am Photon-Ion-Spektrometer an PETRA III (PIPE) an DESY, Hamburg, durchgeführt. Dieses Spektrometer basiert darauf, dass Photonen- und Ionenstrahlen überlagert werden und Produktteilchen detektiert werden. Diese Methode wird in Kap. 3.3.1 vorgestellt. Der genaue Aufbau von PIPE wird in Kap. 3.3.2 vorgestellt. Kap. 3.3.3 zeigt, wie die Primärionen ausgewählt werden, und in Kap. 3.3.4 wird die notwendige Dopplerkorrektur erklärt.

3.3.1 Die Photon-Ion-Merged-Beams-Methode

Alle in dieser Arbeit vorgestellten Experimente wurde am Photon-Ion-Spektrometer an PETRA III (PIPE) durchgeführt. Dem Experiment zugrunde liegt die sogenannte *Photon-Ion-Merged-Beams-Methode*. Diese wurde erstmals von Lyon *et al.* [50] vorgestellt. Sie ermöglicht es *absolute* Wirkungsquerschnitte zur Photoionisation von Ionen zu messen. Aufgrund der niedrigen erreichbaren Flüsse an den damaligen Synchrotronstrahlungsquellen wurde diese Methode erst mit dem Aufkommen der dritten Generation von Synchrotronstrahlungsquellen für verschiedene Gruppen attraktiv. Eine der ersten Experimentaufbauten dieser Art an diesen Lichtquellen wurde Ende der 1990er Jahre von H. Kjeldsen am Synchrotron ASTRID in Aarhus [51–53] errichtet.

Nachfolgend entstanden ähnliche Installationen an den Synchrotronen SOLEIL, nahe Paris, Frankreich und der Advanced Light Source (ALS) in Berkely, CA, USA. An SOLEIL wurde u.a. das Experiment *MAIA* [116] am Strahlrohr *PLEIADES* [117] und an der ALS die sogenannte Ion-Photon-Beamline (IPB) [118–120] am Strahlrohr 10.0.1 [121]. Auch am Synchrotron SPring-8 in Japan wurde eine Apparatur aufgebaut [122]. Nach Bekanntmachung des Umbaus von PETRA III wurde im Rahmen der Verbundforschung von den Universitäten Gießen, Hamburg, Frankfurt, Kassel und Berlin am XUV-Strahlrohr P04 [109] das Photon-Ion-Spektrometer an PETRA III [31] aufgebaut.

Nach diesem kurzen geschichtlichen Exkurs sollen im Folgenden die Methode und das Spektrometer selbst erklärt werden. Die Merged-Beams-Methode wird in Abb. 3.5 illustriert. Wie der Name schon vermuten lässt, basiert sie darauf, dass ein Photonenstrahl mit einem Ionenstrahl überlagert wird. Für die absolute Messung von Wirkungsquerschnitten ist es notwendig, den Photonenfluss zu kennen, da auf diesen normiert wird. Hierfür wird der Photonenstrahl nach der Überlagerung in einer kalibrierten Photodiode gestoppt. Mit dem Diodenstrom sowie der bekannten Energie lässt sich aus der Kalibrationskurve der Photonenfluss bestimmen. Wichtig ist hierbei, dass die Photonen mittig auf die Diode

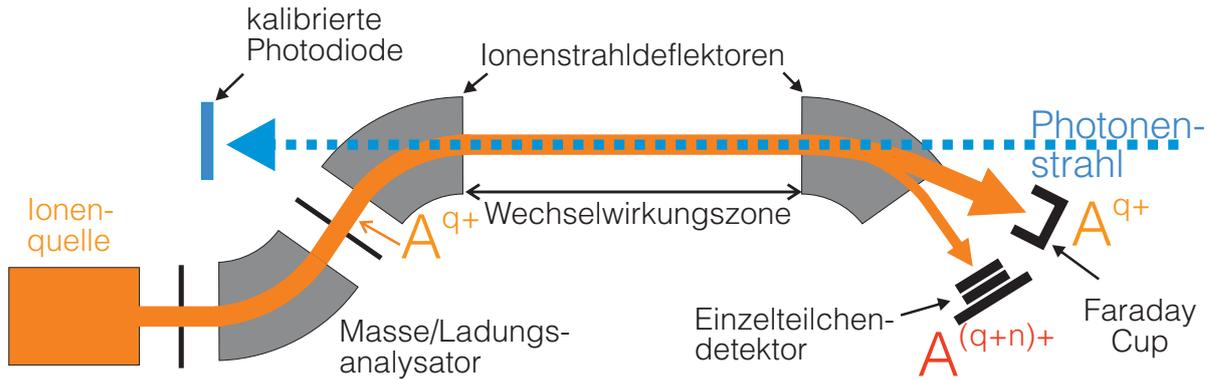


Abbildung 3.5 – Schemazeichnung zur Photon-Ion Merged-Beams Methode, entnommen aus [123]. Der Photonenstrahl kommt in der Skizze als blau-gestrichelte Linie von rechts und trifft auf der linken Seite auf eine kalibrierte Photodiode, welchen den Photonenfluss ausgibt. Der Ionenstrahl wird im Bild links in der Ionenquelle erzeugt. Nach dem er einen Masse-zu-Ladungsanalysator durchlaufen hat, werden die gewählten q -fach geladenen Ionen A^{q+} durch einen Ionenstrahldeflektor mit dem Photonenstrahl in der Wechselwirkungszone überlagert. In dieser findet die untersuchte Wechselwirkung der Photonen mit den Ionen statt und diese ist typischerweise zwischen 30 cm und mehreren Metern lang. Hinter dieser Wechselwirkungszone werden die Strahlen wieder getrennt. Die nun n -fach höher geladenen Ionen $A^{(q+n)+}$ werden in einem Einzelteilchendetektor detektiert. Der primäre Ionenstrom wird in einem Faraday Cup gemessen. © Taylor & Francis (2016). Reproduced with permission. All rights reserved.

treffen, damit keine Randeffekte der Diode den Strom und damit die Messung des Flusses verfälschen.

Zur Erzeugung von Ionenstrahlen ist eine Ionenquelle notwendig. Die Ionenquelle ist für gewöhnlich elektrisch-isoliert vom Rest des Experiments. Dies ist notwendig, da diese auf einem Beschleunigungspotential U_{acc} für die Ionen liegt, welches im Bereich mehrerer Kilovolt liegt. Nachdem der Ionenstrahl die Quelle und die Hochspannungsregion verlassen hat, fliegt er durch einen Masse-zu-Ladungsanalysator, um ein Ion ${}^m A^{q+}$ mit dem gewünschten Ladungszustand q sowie der passenden Masse m zu selektieren. Im einfachsten Fall, und so ist es bei PIPE, ist dies ein Magnet. Alternativ kann auch ein Wien-Filter oder ein mit Radiofrequenz betriebener Multipol verwendet werden.

Im Anschluss der Selektion durch den Magneten sind im verbliebenen Ionenstrahl idealerweise nur noch ${}^m A^{q+}$ -Ionen. Diese werden dann mit geeigneten Deflektoren entlang einer Achse mit dem Photonenstrahl überlagert. In dieser Überlagerungsregion, auch Wechselwirkungszone genannt, findet dann der Ionisationsprozess statt. Um absolute Querschnitte zu messen, muss hier die exakte Länge bekannt sein. Zur Vereinfachung wird die Wechselwirkungszone häufig, so auch bei PIPE, durch ein Driftrohr definiert. An das Driftrohr kann eine Spannung angelegt werden. Für absolute Wirkungsquerschnitte muss der Überlapp der beiden Strahlen innerhalb der Wechselwirkungszone gemessen werden, da auf diesen normiert wird.

Hierfür können verschiedene Methoden genutzt werden. Eine wäre die Strahlprofile mittels eines rotierenden Drahtes zu messen. Eine weitere besteht darin, dass Schlitze mit einer sehr geringen Breite durch beide Strahlen in x - und y -Richtung fahren (die Ionen bewegen sich entlang der z -Achse in diesem gedanklichen Bild). Damit die Profile in zufriedenstellender Qualität aufgenommen werden können, müssen die Amperemeter für den Ionenstrahl und die Photodiode auch sehr geringe Ströme messen können. Je nach Schlitzgröße und Qualität des Ionenstrahls liegen die verbleibenden Ströme im Bereich von Femto- bis Picoampere.

Haben die Ionen die Wechselwirkungszone verlassen, werden beide Strahlen getrennt. Dies kann mittels eines ähnlichen Deflektors wie zum ersten Überlagern oder aber auch mittels eines Magneten geschehen. Wichtig ist, dass danach der Primärstrahl von den Produktionen auch getrennt werden muss. Der Primärstrahl wird danach in einem Faraday Cup gestoppt und der Strom gemessen.

Die Produktionen werden nach der Trennung vom Primärionenstrahl in einem Einzelteilchendetektor gestoppt und gezählt, der sich zur weiteren Untergrundunterdrückung hinter einem elektrostatischen Deflektor (im Folgenden als SIG bezeichnet) befindet. Wichtig ist hierbei sicherzustellen, dass auch wirklich alle Produktionen im Detektor ankommen. Bei PIPE können hierfür Scans des Demerger-Magnetfelds und des SIGs um den relevanten Bereich durchgeführt werden. Hier sollten idealerweise Rechteckprofile herauskommen,

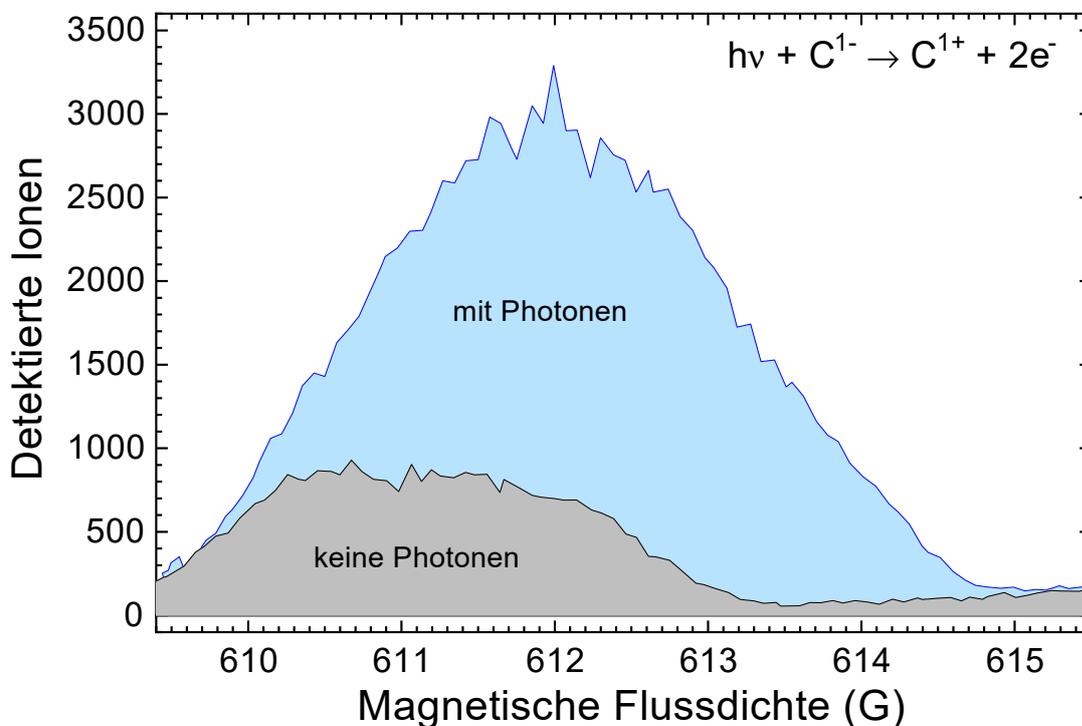


Abbildung 3.6 – Demerger-Scan der C^- Doppelsonisation mit (blau) und ohne (grau) Photonen. Im Experiment wurde bei etwa 613 G gemessen. Hier trifft nahezu kein Untergrund auf den Detektor, sondern fast nur photoionisierte Ionen.

im Experiment ist es meistens eine Mischung aus Gauß- und Rechteckprofil. In Abb. 3.6 ist das Ergebnis eines Demergerscans gezeigt. Hier wird die Zählrate bzw. die Zahl der detektierten Ionen in gleichen Zeiten als Funktion des Demerger-Magnetfelds aufgenommen. Der SIG wurde automatisch mitskaliert. Grau eingefärbt ist ein Scan ohne Photonenstrahl. Dies ist der Untergrund für diesen Kanal, der aus Stößen mit Restgasatomen in der Wechselwirkungszone entsteht. Da dabei ein Energieverlust auftritt, ist der Untergrund gegenüber dem Photoionisationssignal zu kleineren Magnetfeldern verschoben. Blau eingefärbt ist ein Scan mit Photonen. Hier ist zu erkennen, dass nicht immer das Maximum der Zählrate die beste Messposition ist, sondern ein Teil der Flanke. Im Beispiel ist das Maximum bei etwa 612 G. Bei ca. 613 G. ist das Verhältnis von Signal zu Untergrund optimal. Diese Messungen sind je nach Zählraten und untersuchtem Bereich sehr zeitaufwendig, minimieren aber die Messzeit für die Wirkungsquerschnitte.

3.3.2 Experimenteller Aufbau

In Abb. 3.7 ist eine Skizze des realisierten Aufbaus von PIPE gezeigt. PIPE ist eine festinstallierte Endstation an P04 und an Abzweig 2 des Strahlrohrs zu finden. Im Rahmen der Verbundforschung wurde PIPE aufgebaut. Erste Experimente fanden 2013 statt [31]. Seitdem ist eine Vielzahl von Experimenten durchgeführt und veröffentlicht worden. Die Ergebnisse der ersten fünf Jahre wurden von S. Schippers *et al.* kürzlich [32] zusammengefasst. Besonders erwähnenswert ist die erste Messung eines Vier-Elektronen-Augerzerfalls [33]. Hier konnte ein sehr kleiner Prozess, nur aufgrund der Sensitivität des PIPE-Setups, gemessen werden. Die bisher kleinsten Wirkungsquerschnitte wurden bei Experimenten mit einfach-geladenen Argonionen gemessen [34].

Eine detaillierte Skizze des PIPE-Aufbaus ist in Abb. 3.8 gezeigt. Die wichtigsten Komponenten des Experiments sind hier rot eingefärbt und durch Nummern markiert. Ionenstrahlen werden in einer elektrisch-isolierten Ionenquelle produziert (1). Im gezeigten Fall ist dies eine ECRIS. Nach Austritt aus der Ionenquelle folgt ein Extraktionssystem (2) sowie ein Paar von elektrostatischen Plattendeflektoren (3) für horizontale und vertikale Strahlanpassungen. Diesen folgt eine zylindrische elektrostatische Linse (4) und die ersten Kollimationsschlitze (5) bevor der erste Faraday Cup (6) erreicht ist. Im Anschluss daran folgen der Analysiermagnet (7) sowie ein weiteres Paar Plattendeflektoren (8).

Direkt dahinter ist der erste sphärische 40°-Deflektor (9) um den Strahl in die Crossed-Beams Region zu transportieren. Kurz vor dem zweiten Faraday Cup (11) sind weitere Schlitze (10) zum Kollimieren des Ionenstrahls. Diese bestehen immer aus vier Blenden, die von links, rechts, oben und unten an bzw. in den Strahl gefahren werden können. Anschließend fliegen die Ionen durch ein elektrostatisches Quadrupoltriplett (12) und

könnten danach final durch Schlitze (13) kollimiert werden, bevor die letzten Plattendeflektoren (14) passiert werden. Danach folgt ein elektrostatischer 50°-Ablenker (15) mit Öffnungen in Durchlassrichtung der Photonen und für die Ionen bei einer Spannung von 0 V um den verbauten FC zu treffen.

Zur Strahldiagnostik ist direkt dahinter in Photonenrichtung ein Strahlprofilmonitor mit einem gebogenen rotierenden Draht (16) der Firma NEC verbaut. Im Anschluss folgt die Wechselwirkungszone, an der sechs dünne und fahrbare Schlitze (17, im Folgenden Scanning Slits) zur Messungen der x - und y -Profile beider Strahlen an drei verschiedenen Positionen verbaut sind. Die Wechselwirkungszone kann auf ein Potential U_{int} gelegt werden und ist als Driftrohr ausgeführt. Nicht eingezeichnet sind die Kollimationsschlitze zu Beginn und Ende der Wechselwirkungszone. Diese werden an die Photonen herangefahren und definieren so die Achse, entlang derer sich die Ionen bewegen müssen.

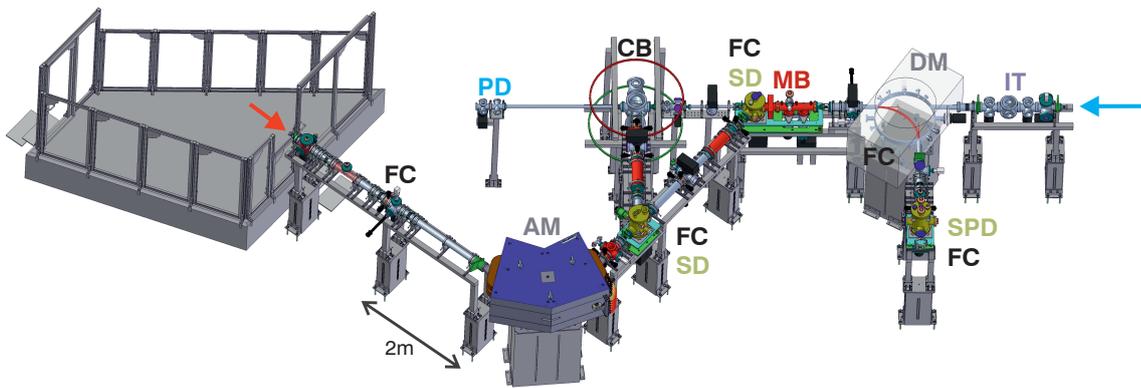


Abbildung 3.7 – Skizze des PIPE-Experiments in Hamburg, entnommen aus [31]. Links ist die Ionenquellenplattform gezeigt, welche auf Beschleunigungspotential liegt und die Ionenquelle beherbergt. Der Ionenstrahl bewegt sich in Richtung des roten Pfeils durch eine Einzellinse und weitere ionenoptische Elemente am ersten Faraday Cup (FC) vorbei in den Analysiermagneten (AM). Hier wird mittels des Masse-zu-Ladungsverhältnisses durch Variieren des Magnetfelds die gewünschte Ionensorte ausgewählt. Diese verlässt den Magneten dann in Richtung des zweiten FCs, vor dem ein sphärischer Deflektor (SD) verbaut ist. Mit diesem kann der Ionenstrahl in die Crossed-Beams (CB) Region von PIPE transportiert werden. Hier ist aktuell ein COLTRIMS der Goethe-Universität Frankfurt installiert und auf dieses wird nicht weiter eingegangen. Nach Passieren des zweiten FCs geht der Ionenstrahl durch weitere Ionenoptik in den zweiten SD und wird mit dem Photonenstrahl in der Merging-Beams (MB) Region überlappt. Für Diagnosezwecke ist in der SD-Kammer und direkt nach der MB jeweils ein FC verbaut bzw. einfahrbar. Nach der MB fliegen die Ionen in den Demerger-Magneten (DM), der beide Strahlen, Photonen und Ionen, trennt und den Primärstrahl in einem sehr großen FC aufnimmt. Die höher-geladenen Produktionen fliegen weiter zum Einzelteilchendetektor (SPD), wobei sie auf dem Weg dorthin noch einen 180°-Ablenker durchlaufen, um zurückgestreute Sekundär-Elektronen zu unterdrücken. Aus Diagnosezwecken ist auch hier noch ein FC verbaut. Die Photonen durchlaufen das Experiment von rechts nach links, wobei sie erst durch eine Ionenfalle (IT) der Universität Hamburg laufen müssen und final in einer kalibrierten Photodiode (PD) gestoppt werden. © IOP Publishing (2014). Reproduced with permission. All rights reserved.

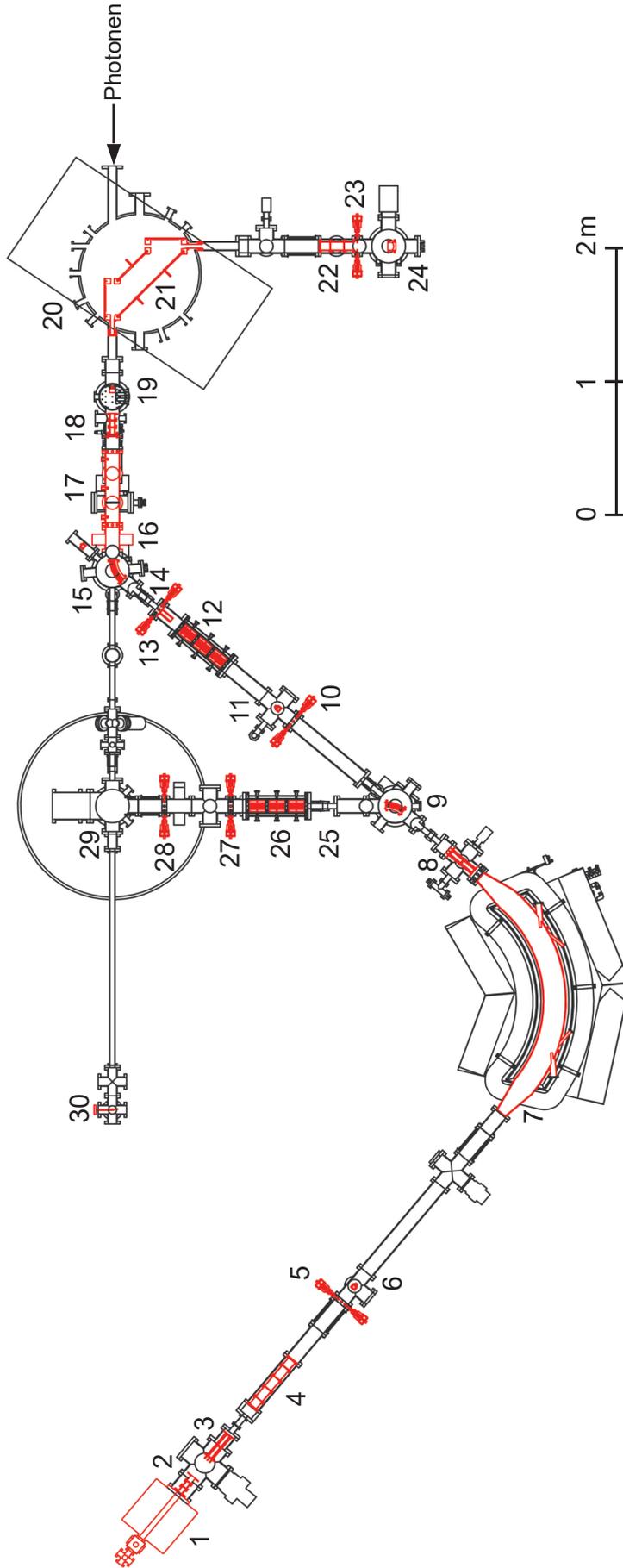


Abbildung 3.8 – Detailliertere Zeichnung des PIPE-Experiments, entnommen aus [114]. Rot markiert und mit Zahlen bezeichnet sind 1: Ionenquelle; 2: Extraktionssystem mit Einzellinse; 3: elektrostatische Plattendefektoren für Verschiebung in x - und y -Richtung; 4: zylindrische elektrostatische Linse; 5: Kollimationsschlitze; 6: Faraday Cup; 7: Analysiermagnet; 8: Plattendefektoren; 9: sphärischer 40° -Deflektor; 10: Kollimationsschlitze; 11: Faraday Cup; 12: elektrostatisches Quadrupoltripllett; 13: Kollimationsschlitze; 14: Plattendefektoren; 15: sphärischer 50° -Deflektor; 16: Strahlprofilmonitor; 17: Wechselwirkungszone mit sechs dünnen und fahrbaren Schlitzen (Scannings Slits) zur Messungen der x - und y -Profile beider Strahlen an drei verschiedenen Positionen; 18: Einzellinse (aktuell nicht verbaut); 19: Fluoreszenzkammer mit einfahrbarem Faraday Cup; 20: Demerger-Magnet; 21: großer Faraday Cup in dem Demerger-Magnet; 22: Einzellinse (aktuell nicht genutzt); 23: Kollimationsschlitze; 24: Detektorraum mit positionsempfindlichem Channel-Plate-Detektor (nicht genutzt) und Einzelteilchendetektor mit 180° -Ablenker zur Unterdrückung von Untergrund und rückgestreuten Teilchen; 25: Plattendefektoren; 26: Quadrupoltripllett; 27 & 28: Kollimationsschlitze; 29: COLTRIMS der Goethe-Universität Frankfurt; 30: kalibrierte Photodiode. © AAS (2017). Reproduced with permission.

An Position (18) besteht die Möglichkeit, eine Einzellinse zu verbauen (während dieser Experimente war dies nicht der Fall), gefolgt von einer Fluoreszenzkammer mit einem fahrbahren Faraday Cup (19). Diese wird zukünftig gegen eine Kammer mit einem Fragmentdetektor sowie einem Energieanalysator ausgetauscht. Innerhalb des Demerger-Magneten (20) ist ein großer elektrisch-isolierter Faraday Cup (21) montiert, in dem der primäre Ionenstrahl gemessen wird. Die Produktionen passieren eine Einzellinse (22, während dieser Experimente nicht genutzt) sowie die letzten Schlitze (23) und werden mit einem elektrostatischen 180°-Ablenker (der sogenannte SIG) in einen Einzelteilchendetektor (24) geschossen. Alternativ ist in der Detektorkammer noch ein positionsempfindlicher Mikrokanalplatten-Detektor verbaut.

Für Experimente mit dem COLTRIMS gibt es ebenfalls ein paar elektrostatische Plattendeflektoren (25), ein Quadrupoltriplett (26) sowie zwei Paare Kollimationsschlitze (27,28) bevor sie in das Reaktionsmikroskop (29) mit Gas-Jet und Multi-Hit-Koinzidenz-Detektoren fliegen. Die Photonen fliegen von rechts durch den gesamten Aufbau, bis sie in der kalibrierten Photodiode (30) gestoppt werden. Dies ist die einzige kalibrierte Photodiode am gesamten Abschnitt des Strahlrohrs. In Abb. 3.11 ist ein Foto des Arbeitsplatzes der Experimentatoren während der Messungen gezeigt.

Essentiell für die Messung von kleinen Querschnitten und zur Minimierung von Untergrund ist ein sehr gutes Vakuum im Bereich der Wechselwirkungszone. Hierfür wurde vor verschiedenen Strahlzeiten der gesamte Merged-Beams-Bereich inkl. der Vakuumkammer des Demerger-Magnets ausgeheizt. Das Vakuum ohne Ionenstrahl betrug vor den Experimenten wenige 10^{-10} mbar, mit Ionenstrahl stieg der Druck auf hohe 10^{-10} mbar bis maximal mittlere 10^{-9} mbar.

Der Detektor weist hervorragende Detektionsfähigkeiten für die untersuchten Ionen mit einer kinetischen Energie von mehreren keV auf. Mit ihm können auch niedrige Zählraten zuverlässig aufgenommen werden, wie in den Experimenten von A. Müller *et al.* [34] gezeigt wurde. Die Detektionseffizienz solcher Ionen liegt bei $\eta = 97(3)\%$ [124]. Bei diesem Detektor treffen die Ionen auf eine Konverterplatte. Beim Aufschlag werden aus dieser Sekundärelektronen emittiert und durch ein elektrisches Feld zu einem Kanalelektronenvervielfacher (engl. *channel electron multiplier*, CEM) beschleunigt. Totzeiteffekte sind bei den hier untersuchten Experimenten nicht relevant, da diese erst bei Zählraten von mehreren Hundert kHz auftreten. Die Zählraten bei allen durchgeführten Experimenten lagen bei weniger als 8 kHz. Diese hohen Zählraten traten in der Doppelionisation bei hohem Untergrund auf. Teilweise werden, um diesen bestmöglich zu minimieren, auch die relativen Querschnitte mit Spannung an der Wechselwirkungszone gemessen. Dies wird ebenfalls angewandt, wenn Wirkungsquerschnitte absolut gemessen werden.

Für relative Messungen muss die Wechselwirkungszone nicht zwingend auf ein anderes

Potential gelegt werden. In diesem Fall geschieht die Wechselwirkung der Photonen und Ionen auf der gesamten Strecke nach Austritt aus dem 50° -Deflektor bis zum Eintritt in das Magnetfeld des Demerger-Magneten. Dies entspricht dann etwa 1.7 m Länge. Wird die eine Spannung angelegt, so wird die Länge auf die Länge des Driftrohrs eingeschränkt. Dieses ist 49.5 cm lang. Experimentell wird der Wirkungsquerschnitt σ ermittelt, indem die im Detektor gemessene Zählrate R auf den Photonenfluss ϕ_{ph} , die Anzahl der Ionen in der Wechselwirkungszone sowie dem Strahlüberlapp und der Detektionseffizienz η normiert wird, also

$$\sigma = \frac{R q e v_{\text{ion}}}{\eta I_{\text{ion}} \phi_{\text{ph}} \mathcal{F}_L}. \quad (3.1)$$

Hier ist I_{ion} der Ionenstrom und \mathcal{F}_L der Überlappfaktor (im Folgenden Formfaktor) für die Länge L der Strahlüberlappregion. Dessen Definition lautet

$$\mathcal{F}_L = \int_{-L/2}^{+L/2} F(z) dz. \quad (3.2)$$

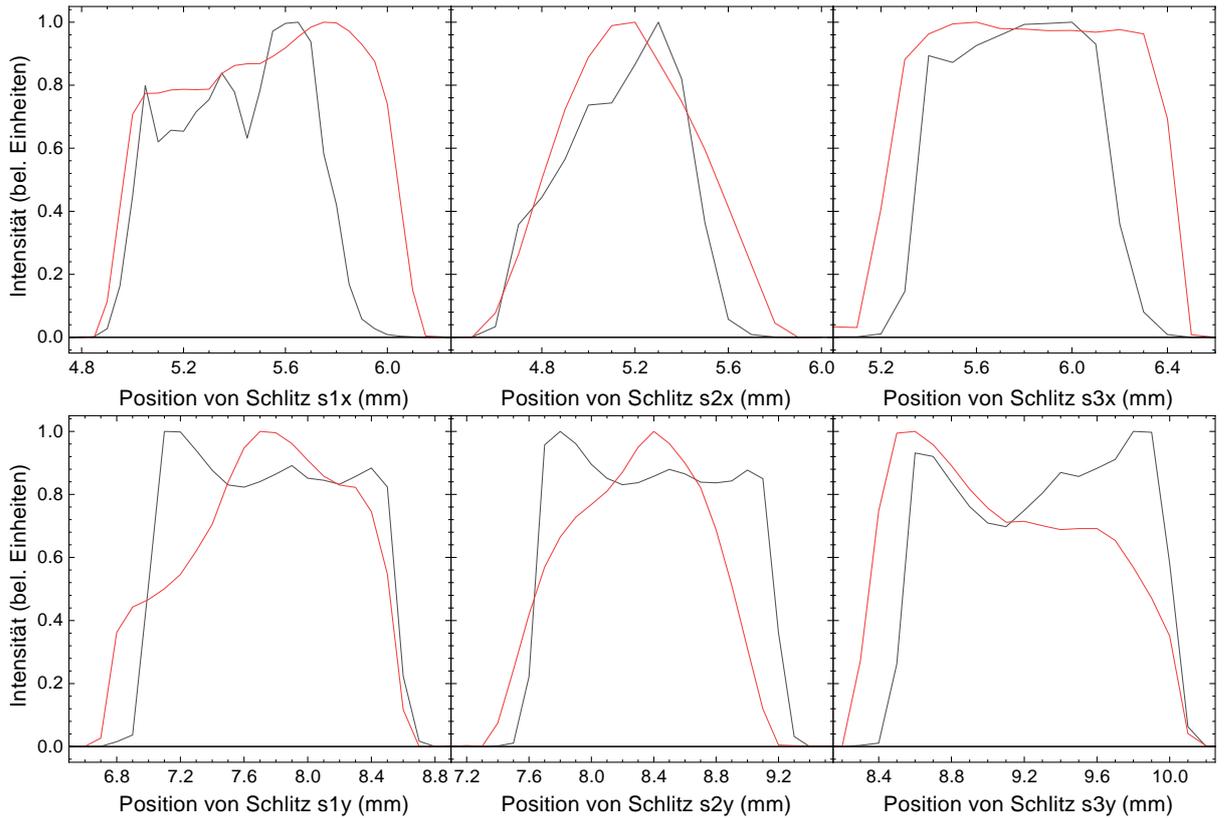


Abbildung 3.9 – Beispiel zu den Strahlprofilen. Zur besseren Übersicht wurden die Intensitäten beider Strahlen auf 1.0 normiert. Der Ionenstrom ist als rote Linie dargestellt, der Photonenstrahl als schwarze Linie. Auf der x -Achse ist die Position des jeweiligen Schlitzes aufgetragen. Der Ionenstrahl bestand aus C^- Ionen. Der gesamte Ionenstrom betrug ca. 30 nA. Die Photonenenergie war 1100 eV, der Austrittsspalt hatte eine Größe von $1000 \mu\text{m}$ und der Photonenfluss betrug ca. $4 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}$.

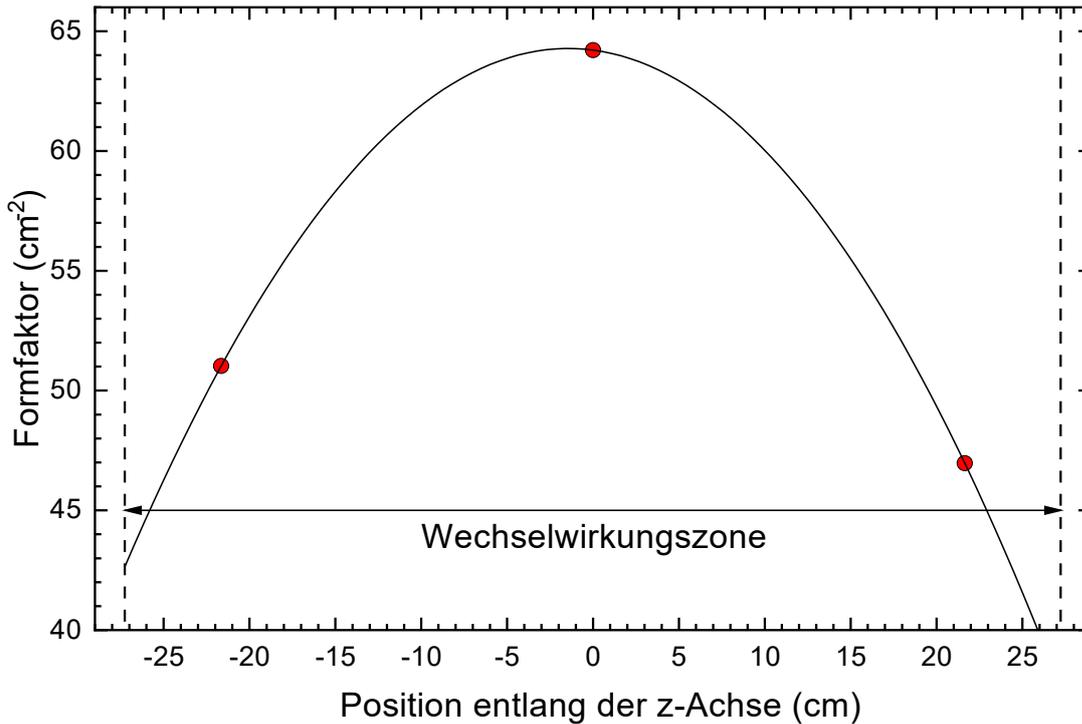


Abbildung 3.10 – Verlauf des Formfaktors entlang der Wechselwirkungszone. Die roten Punkte sind die gemessenen Überlappfaktoren und die durchgehende Linie ein Fit durch diese.

Die transversalen Strahlüberlappfaktoren können bei PIPE an drei verschiedenen Positionen z_i ($i = 1, 2, 3$) mit den Scannings Slits gemessen werden. Diese sind als Beispiel in Abb. 3.9 dargestellt. Hierfür werden diese in feinen Schritten mittels Motoren durch die beiden Strahlen gefahren und die Ströme der Photodiode und im Faraday Cup gemessen. Mittels

$$F(z) = \frac{\iint i_{\text{ion}}(x, y) i_{\text{ph}}(x, y) dx dy}{\iint i_{\text{ion}}(x, y) dx dy \iint i_{\text{ph}}(x, y) dx dy} \quad (3.3)$$

können für jeden dieser Punkte die Strahlüberlappfaktoren mittels des Ionen- i_{ion} und Photonenstroms i_{ph} berechnet werden. Das Integral aus Formel 3.3 wird angenähert als Summe ausgewertet. Die verbleibende Integration in Strahlrichtung z aus Formel 3.2 wird durch Interpolation der drei gemessenen Überlappfaktoren $F(z_i)$ mittels eines Polynoms zweiten Grades ausgeführt. Dies ist in Abb. 3.10 dargestellt.

Durch den genauen Aufbau von PIPE mit den Schlitten an Ein- und Ausgang der Wechselwirkungszone sollte sich der Formfaktor theoretisch nicht mit der Photonenenergie ändern. Dies muss aber vor jeder Messung kontrolliert werden. In der Regel wird hierfür bei mehreren Energien der Formfaktor mittels jeweils sechs Slitscans gemessen und ein Mittelwert im Messprogramm hinterlegt. Die Anzahl der Scans ist darauf zurückzuführen, dass für jede der drei Positionen die Strahlprofile in x - und y -Richtung gemessen werden. Danach werden die Wirkungsquerschnitte auf absoluter Skala gemessen. Für viele Messun-



Abbildung 3.11 – Panoramafoto des Arbeitsplatzes an PIPE. Links im Bild ist der Analysiermagnet, in der Mitte oben ist die Wechselwirkungszone, direkt rechts davon der Demerger-Magnet und die Detektorkammer.

gen ist es ausreichend, eine Mindestzahl an Absolutpunkten bei verschiedenen Energien zu messen und nachträglich die Normierung auf die absolute Skala durchzuführen.

Hierfür können relative Wirkungsquerschnitte gemessen werden. Bei diesen ist der Überlapp jeweils derselbe, der Zahlenwert ist aber nicht bekannt. Die Schlitze an der Wechselwirkungszone können Abstand zum Photonenstrahl haben. Häufig sind sie sogar zumindest am Ausgang komplett geöffnet und am Eingang um mindestens eine Umdrehung geöffnet. Dies erhöht den Ionenstrom und damit auch die Zählrate, allerdings ebenfalls einen möglicherweise vorhandenen Untergrund.

Die systematische Ungenauigkeit der absoluten Wirkungsquerschnitte bei PIPE beträgt 15% bei einem Konfidenzniveau von 90% [31]. Der am stärksten dazu beitragende Faktor sind eine 14%ige Ungenauigkeit des Strahlüberlapps [125]. Weitere Faktoren sind die Detektoreffizienz (3%), die Einfangeffizienz der Primärionen (2%), die Ungenauigkeit der Strommessung des Primärstrahls (2%) und der Photostrommessung (2%) und der Fehler der Photodiodenkalibration (1.5%).

3.3.3 Strahlpräparation

Nach Erzeugung der Ionen in der Ionenquelle muss der Ionenstrahl den Analysiermagneten durchlaufen und dort die benötigte Ionensorte ausgewählt werden. Dies funktioniert folgendermaßen: Die q -fach geladenen Ionen der Masse m_A werden in der Ionenquelle erzeugt und mit einer Beschleunigungsspannung U_{acc} von der Quelle weg beschleunigt. Damit folgt für die kinetische Energie der Ionen:

$$E_{kin} = q \cdot e \cdot U_{acc} \quad (3.4)$$

Da die Energie der Ionen sehr klein im Vergleich zu ihrer Ruhemasse ist, kann nicht-relativistisch gerechnet werden. Damit folgt für die Geschwindigkeit v der Ionen:

$$\frac{1}{2}m_A v^2 = qeU_{acc} \quad (3.5)$$

$$\Rightarrow v = \sqrt{\frac{2qeU_{acc}}{m_A}} \quad (3.6)$$

Durchlaufen diese Ionen nun ein (transversales) Magnetfeld wirken Lorenz- und Zentripetalkraft:

$$\frac{m_A v^2}{r} = qevB \quad (3.7)$$

Für das Magnetfeld folgt:

$$B = \sqrt{\frac{2U_{acc} m_A}{r^2 qe}} \quad (3.8)$$

Es ist offensichtlich, dass Ionen mit unterschiedlichen Masse-zu-Ladungsverhältnissen unterschiedlich stark abgelenkt werden. Mit der atomaren Massenkostante u und $m_A = A \cdot u$:

$$B = \sqrt{\frac{2U_{acc} u}{r^2 e} \times \frac{A}{q}} \quad (3.9)$$

Die Werte für die Elementarladung e und u sind bei CODATA [126, 127] zu finden und lauten:

$$u = 1.6653906660(50) \cdot 10^{-27} \text{ kg} \quad (3.10)$$

$$e = 1.602176634 \cdot 10^{-19} \text{ C} \quad (3.11)$$

Die Werte in Klammern entsprechen hierbei der Unsicherheit in den letzten Stellen. Einsetzen aller Werte, einschließlich des Wertes für den Krümmungsradius, d.h. von $r = 1.0 \text{ m}$, liefert folgenden Ausdruck für das Magnetfeld bei einem Beschleunigungspotential von 6 kV, wie im Rahmen dieser Arbeit angewendet:

$$B \left(\frac{\text{A}}{\text{q}} \right) = \left(0.01095 \sqrt{\frac{\text{A}}{\text{q}}} \right) \text{ T} = \left(109.5 \sqrt{\frac{\text{A}}{\text{q}}} \right) \text{ G} \quad (3.12)$$

In der Praxis wird die magnetische Flussdichte in Gauss (G) angegeben, da die Masse der Ionen und ihre kinetische Energie so gering sind, dass Flussdichten in der Größenordnung von einem Tesla (T) nicht erreicht werden. Die Umrechnung von T in G ist: $1 \text{ G} = 10^{-4} \text{ T}$.

3.3.4 Doppler-Korrektur

Die Ionen bewegen sich mit einer kinetischen Energie E_{kin} von $q \times eU_{acc}$ bzw. einer Geschwindigkeit $\beta = v/c$ im Laborsystem. Da die kinetische Energie sehr klein verglichen mit den Ruhemassen der Ionen ist, ist es ausreichend β nicht-relativistisch zu berechnen. Hierzu wird Gl. 3.13 verwendet. Die Photonen bewegen sich in Gegenrichtung zu den Ionen mit Lichtgeschwindigkeit. Daher muss neben der Energiekalibration der Doppler-Effekt berücksichtigt werden. Hierbei werden die Ionen als Beobachter betrachtet, da diese mit den Photonen wechselwirken.

$$\beta = \sqrt{\frac{2E_{kin}}{m_u c^2}} \quad (3.13)$$

$$E_{Doppler} = E_\gamma \cdot \sqrt{\frac{1+\beta}{1-\beta}} = E_\gamma \cdot \mathcal{D} \quad (3.14)$$

In Tabelle 3.2 sind die Werte für β und die Dopplerkorrektur \mathcal{D} der in dieser Arbeit diskutierten Anionen aufgelistet.

Um die Frequenzverschiebung der Photonenenergie zu berücksichtigen, wird die Photonenenergie E_γ mit einem Faktor \mathcal{D} nach Gl. 3.14 multipliziert. Dies muss für jedes Ion separat gemacht werden. Hier muss darauf geachtet werden, dass die jeweils korrekte Masse der Ionen berücksichtigt wird, falls ein bestimmtes Isotop verwendet wird. Für Silizium wurde nur ^{28}Si untersucht. Anzumerken ist hier, dass bei den Experimenten mit der MISS die kinetischen Energien der Ionen dem Beschleunigungspotential bzw. der Summe von Beschleunigungs- und Sputterpotential entsprechen.

Diese Spannungen werden von den verwendeten Netzgeräten der Firma FuG mit einer Genauigkeit von $2 \cdot 10^{-4}$ der Nennspannung bereitgestellt. Dies bedeutet, dass die Genauigkeit der Netzgeräte bei ± 2.5 eV liegt. Im schlechtesten Fall liegt die Energie also 5 eV unterhalb des Soll-Werts. Bei der ECRIS ist die Betrachtung etwas schwieriger. Hier brennt ein Plasma, das auf dem Beschleunigungspotential liegt. Zur genauen Energiebestimmung müsste nun noch das Plasmapotential bekannt sein. Dies kann bei der verwendeten ECRIS leider nicht gemessen werden.

Tabelle 3.2 – Parameter zur Dopplerkorrektur. Zu jedem untersuchten Ion ist die Masse, die Geschwindigkeit β und der Dopplerfaktor \mathcal{D} aufgelistet. Zur Korrektur des Doppler-Effekts wird die Photonenenergie mit diesem Faktor multipliziert.

Ion	Masse (u)	β	\mathcal{D}
C ⁻	12.0000	0.0010361	1.0010366
F ⁻	18.9984	0.0008234	1.0008237
Si ⁻	27.9769	0.0006785	1.0006788

In der Literatur wird von Plasmapotentialen in ECRIS zwischen 20 eV und 65 eV berichtet [128–130]. Dies bedeutet, dass in diesem Fall eine deutlich größere Ungenauigkeit vorliegt. Die Fehler der Dopplerkorrektur liegen bei weniger als 1% und sind für die hier vorgestellten Messungen vernachlässigbar.

4 Photoionisation von Fluoranionen

Die Experimente zur Inner-Schalen Photoionisation von Fluoranionen wurden vom 30. Mai bis 14. Juni 2017 durchgeführt. Hier war der Autor dieser Arbeit als Teilnehmer während des Masterstudiums anwesend. Die Daten wurden 2018 im Journal *Phys. Rev. Lett.* **120**, 133202 (2018) [37] publiziert und auch von DESY als Highlight hervorgehoben [131].

Die Untersuchung von Fluoranionen (F^-) war nicht das eigentliche Ziel dieser Strahlzeit. Stattdessen lag der Fokus auf dem endohedralen Fullerenanion $Sc_3N@C_{80}^-$ [83]. Da während der Vorbereitung dieser Strahlzeit zusätzliche Messzeit mit Photonen nutzbar war, wurde kurzerhand ein Strahl von Fluoranionen erzeugt. Für diese Messungen wurde eine 10 GHz-ECRIS mit Permanentmagneten nach Gießener Bauart (siehe Kap. 3.1.1) genutzt. Die Cs-Sputterionenquelle stand zu diesem Zeitpunkt noch nicht für Experimente zur Verfügung. Zur Erzeugung der Fluoranionen wurde Difluormethan (CH_2F_2) in die Ionenquelle mittels eines thermisch regulierten Nadelventils eingelassen. In Abbildung 4.1 ist ein Primärmassenspektrum zu den Messungen gezeigt. Dieses wurde in Faraday Cup 2 von PIPE gemessen und hat eine Auflösung $B/\Delta B$ von etwa 350. Zusätzlich zu F^- mit einem Ionenstrom von ca. 20 nA sind im Umfeld von F^- noch die Ionen C^- , O^- , OH^- und $C_2H_2^-$.

Der Photonenfluss ϕ_{ph} betrug während der Messungen ca. $3 \cdot 10^{13} s^{-1}$ bis $4 \cdot 10^{13} s^{-1}$ bei einer Bandbreite der Photonenenergie ΔE von 1.0 – 1.5 eV. Der auf den Photonstrahl kollimierte Ionenstrahl hatte eine Intensität von bis zu 10 nA bei gleichzeitig geringen Untergrundzählraten im Einzelteilchendetektor. Die Photonenenergie wurde durch Absorptionsmessungen an Neon (Ne) [114] und Sauerstoff (O_2) [113] und im Vergleich mit den Referenzenergien kalibriert. Die Genauigkeit der Kalibration wird auf ± 0.3 eV abgeschätzt. Näheres zur Energiekalibration ist in Kap. 3.2.4 gezeigt. Die Fluorionen werden mit einer kinetischen Energie von ca. 6 keV beschleunigt. Das heißt, sie bewegen sich mit einer Geschwindigkeit von ca. $246900 \frac{m}{s}$ bzw. einer relativistischen Geschwindigkeit $\beta = 8.234 \cdot 10^{-4}$. Dadurch wird die Photonenenergie im Ruhesystem der Ionen durch den Doppler-Effekt verschoben und muss entsprechend korrigiert werden. Die Energie wurde daher entsprechend Kapitel 3.3.4 mit dem Faktor 1.0008237 multipliziert.

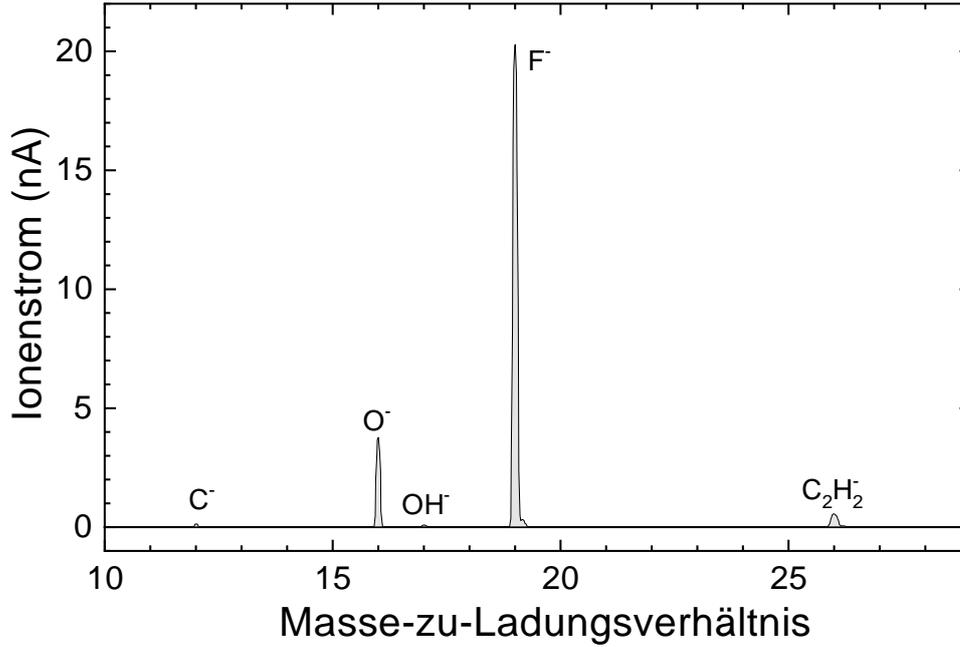


Abbildung 4.1 – Primärmassenspektrum aufgenommen in Faraday Cup 2. Der Ionenstrahl wurde mit der 10 GHz ECRIS erzeugt. Hierfür wurde Difluormethan ($C_2H_2F_2$) in die Quelle eingelassen. Sichtbar sind fünf Ionensorten im gezeigten Massenbereich. Diese sind neben Fluoranionen bei A/q von ca. 19 die folgenden: Bei ca. 12 Kohlenstoffanionen (C^-), bei ca. 16 atomaren Sauerstoff (O^-), Hydroxidationen (OH^-) bei ca. 17 und bei ca. 26 $C_2H_2^-$.

Im Experiment mit F^- wurden Wirkungsquerschnitte σ_m für zwei Produktkanäle gemessen werden, und zwar



mit $m = 2, 3$ bei Photonenenergien unterhalb der K -Kante bis zu etwa 1000 eV.

In Abbildung 4.2 werden gemessene Wirkungsquerschnitte σ_2 zur Doppelionisation von Fluoranionen dargestellt. Hierbei entstehen aus dem einfach negativ-geladenen Primärionen F^- einfach-positiv geladene Produktionen F^+ . Es werden also zwei Elektronen aus dem Primäriion entfernt. Die Schwelle für direkte K -Schalen Photoionisation ist bei etwa 681 eV. Dies ist in der Abbildung sehr gut erkennbar. Wie zu erwarten, ist der Wirkungsquerschnitt vor der Schwelle nicht allzu groß. Bei Energien höher als die Schwelle steigt der Wirkungsquerschnitt auf ein Maximum von ca. 0.4 Mb und beginnt dann abzunehmen.

Dies passt mit dem erwarteten Verhalten überein. Die Erwartung bei der Messung ist, dass überhalb der Fluor- K -Kante ein dominierender Beitrag zum Querschnitt durch direkte K -Schalen Photoionisation mit anschließendem einfachen Augerzerfall liegt. Das Maximum ist nahe an dem von Yeh und Lindau [132] berechnetem Wert für neutrales Fluor. Unterhalb der K -Schwelle wären Resonanzen möglich. Bei diesen wird ein $1s$ Elektron in eine höhere Schale angeregt und anschließende Zerfallsprozesse sind möglich. Für Fluor

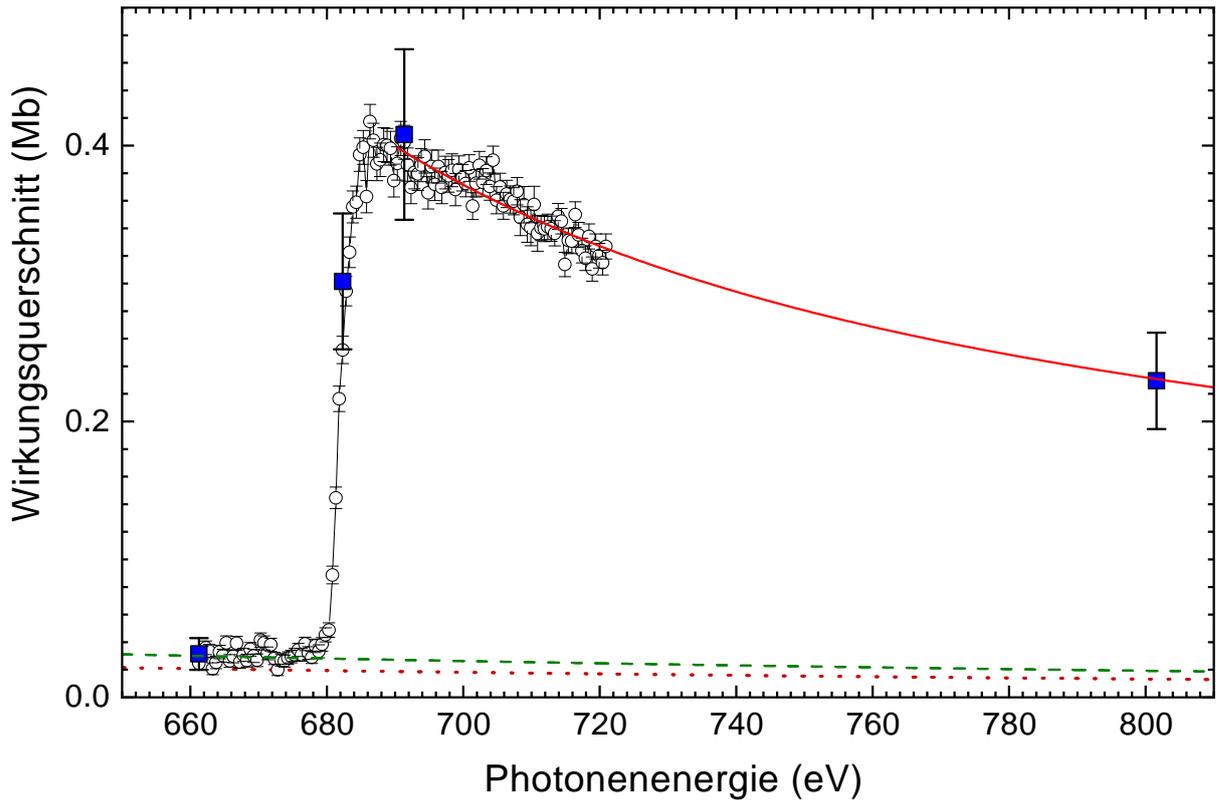


Abbildung 4.2 – Absolute Wirkungsquerschnitte σ_2 zur Doppelionisation von Fluoranionen. Die offenen Kreise zeigen Scanmessungen mit statistischen Fehlerbalken. Die blauen Quadrate sind Absolutmessungen mit absolutem Fehlerbalken. Die rote Linie ist ein Fit zwischen den beiden Absolutquerschnitten zwischen 690 und 800 eV und den Scanpunkten. Die rote gepunktete Linie zeigt die berechneten Querschnitte σ_{2s} von Yeh und Lindau [132] zur direkten 2s Photoionisation von neutralem Fluor. Die olive gestrichelte Linie ist $1.4 \times \sigma_{2s}$ und wird genutzt um den Beitrag der Valenzschalen zur Doppelionisation von Fluoranionen zu simulieren [37]. © American Physical Society (2018)

konnten innerhalb der statistischen Unsicherheiten keine Resonanzen beobachtet werden. Das zeigt, dass neutrales Fluor mit einem $1s$ -Loch ($1s 2s^2 2p^6$) keine quasigebundenen Zustände für ein weiteres äußeres Elektron zulässt.

Durch die Abwesenheit von Resonanzen unterhalb der K -Kante kann die Doppelionisation dort nur durch Prozesse unter Beteiligung der Valenzschale stattfinden. Direkte Photodoppelionisation bei dem zwei L -Schalen Elektronen von F^- frei werden ist bei Photonenergien um ca. 50 eV dominant [63]. Der berechnete Wirkungsquerschnitt σ_{2s} für 2s-Photoionisation von neutralem Fluor (dunkelrot gepunktete Linie in Abb. 4.2) beschreibt den grundsätzlichen Verlauf der Valenzschalenionisation mit steigender Photonenergie sehr gut. Hierfür wurde er mit einem Faktor 1.4 multipliziert.

Dies zeigt möglicherweise einen dominanteren Beitrag von Ionisation der L -Schale bei solch hohen Energien. Der Beitrag der gemessenen Wirkungsquerschnitte oberhalb der K -Kante wird durch den Fit (rote durchgehende Linie), der die Lücke zwischen den Absolut-

Tabelle 4.1 – Gemessene Energieschwellen für direkte Einfachionisation (SI) und Doppelionisation (DI) des F^- ($1s^2 2s^2 2p^6 \ ^4S$) Grundzustand.

Prozess	Endkonfiguration	Schwellenenergie (eV)
$1s$ SI	$1s 2s^2 2p^6$	679.8
$1s + 2p$ DI	$1s 2s^2 2p^5$	698.7

querschnitte zwischen 690 und 800 eV und die Scanmessungen (bis ca. 720 eV) verbindet, dargestellt. Die Kurve entspricht in Form und Höhe dem $1s$ -Absorptionsquerschnitt von neutralem Fluor [133]. Dies passt zur Erwartung, das der Einfluss des schwach-gebundenen zusätzlichen Elektrons bei möglichen Resonanzen groß ist, bei der direkten K -Ionisation aber keine signifikante Erhöhung des Wirkungsquerschnitts erzeugt.

In Abbildung 4.3 werden die Ergebnisse zu den Messungen von Dreifachionisation an

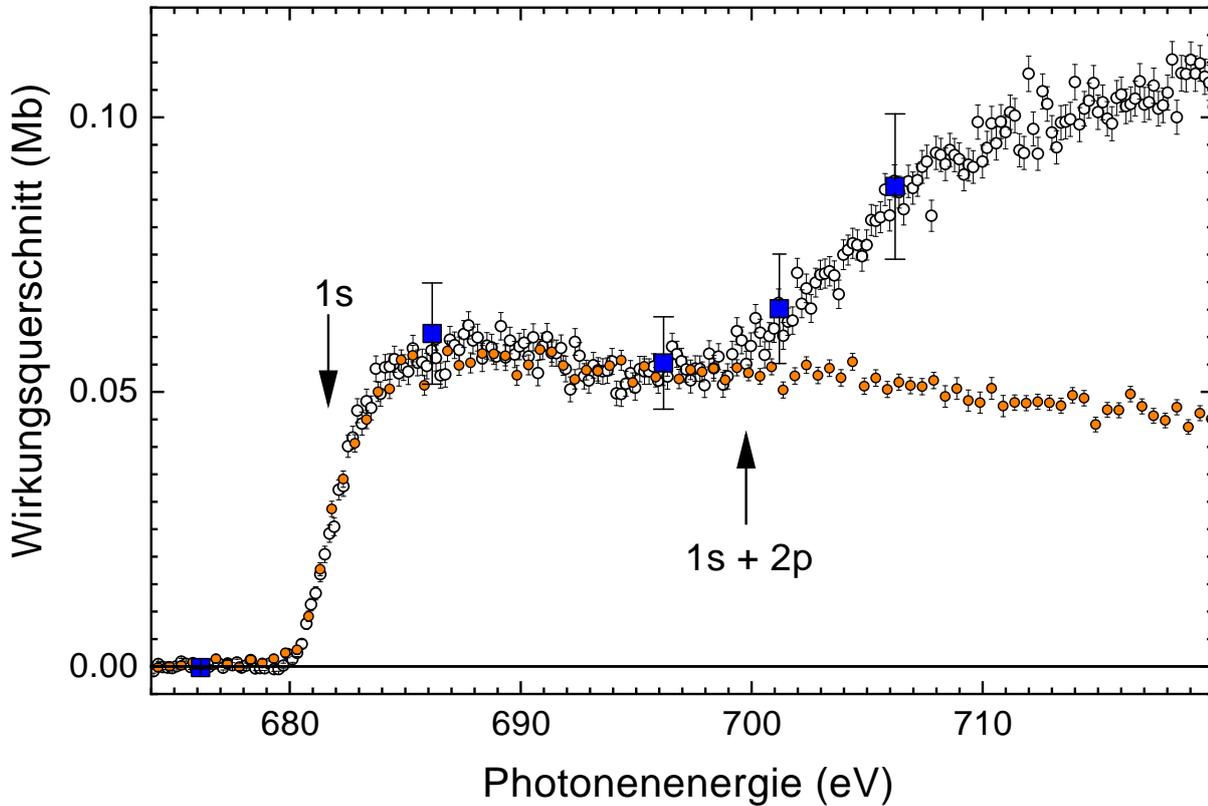


Abbildung 4.3 – Absolute Wirkungsquerschnitte σ_3 zur Dreifachphotoionisation. Die blauen Quadrate sind separat gemessene Absolutpunkte mit totalem Fehlerbalken und die offenen Kreise Scanmessungen mit statistischem Fehlerbalken. Die kleineren orangenen Punkte eine Darstellung für die direkte $1s$ -Ionisation. Hierfür wurde bei σ_2 (in Abb. 4.2) der Beitrag der Valenzschalen abgezogen und die Differenz mit einem empirischen Skalierungsfaktor von 0.153 multipliziert. Dieser Faktor bringt den Verlauf von σ_2 auf die gleichen Werte im Bereich der K -Schwelle wie bei der Dreifachionisation. So wird direkte K -Photoionisation mit anschließender Emission zweier weiterer Elektronen dargestellt. Die Pfeile bei ca. 680 eV und 700 eV markieren grob die Schwellen für $1s$ -Ionisation sowie der simultanen Ejektion eines $1s$ und eines $2p$ Elektrons von F^- [37]. © American Physical Society (2018)

Fluoranionen im Bereich der K -Kante dargestellt. Die gemessenen absoluten Wirkungsquerschnitte σ_3 (blaue Quadrate) und normierte relative Wirkungsquerschnitte (offene Kreise) werden mit einem Modell für den Beitrag der direkten $1s$ -Ionisation aus Abb. 4.2 verglichen. Die orangen Kreise sind hierbei dieser Beitrag. Um diese zu erhalten wurden dafür von σ_2 der Beitrag der Valenzschalen abgezogen und das Ergebnis mit einem empirischen Faktor von 0.153 multipliziert.

Die zugrunde liegende Idee ist, dass diese den Querschnitt für direkte einfach K -Schalenionisation mit nachfolgender Emission zweier Elektronen darstellen, unter der Annahme eines Verhältnis von Doppel- zu Einfach-Augerzerfällen von 0.153. Dieser Modellquerschnitt passt hervorragend zu den gemessenen Wirkungsquerschnitten für die Dreifachionisation σ_3 bis zu einer Energie von ca. 700 eV.

Oberhalb dieser Energie tritt ein weiterer Prozess ein, der einen nicht zu vernachlässigenden Beitrag zum Wirkungsquerschnitt liefert. Die kontinuierliche Form dieses neuen Prozesses und die markante Schwelle lassen praktisch nur die Beobachtung von direkter Photodoppelionisation zu. Hierbei werden zwei Elektronen, eines aus einer inneren und eines aus einer äußeren Schale, ionisiert.

Die Schwellenenergien für die Ionisation der $1s$ -Schale aus den gezeigten experimentellen Daten und für die Ionisation eines $1s$ und $2p$ Elektrons aus Fluoranionen ist in Abb. 4.3 durch vertikale Pfeile mit entsprechender Beschriftung gezeigt. Letztere Schwelle ist die Summe der Bindungsenergien des zusätzlichen Elektrons in $F^- (1s^2 2s^2 2p^6 {}^1S_0)$ bzw. der Elektronenaffinität von Fluor, 3.4011895(25) eV [134] sowie der Energie der K -Kante von neutralem Fluor ($1s^2 2s^2 2p^5 {}^2P_{3/2}$). Diese liegt bei 696.8 eV [135].

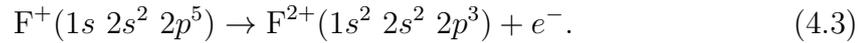
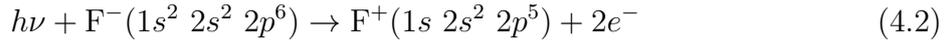
Da es für atomares Fluor leider keine Messung für die exakte Energie der K -Kante gibt, ist eine konservative Abschätzung für die Ungenauigkeit dieser Energie ± 2 eV. Oberhalb der Schwelle von 700.2 eV steigt der Wirkungsquerschnitt, wie für die Photodoppelionisation erwartet, langsam an. Im Gegensatz dazu steht die Schwelle, die wie eine Stufe bei ca. 681.7 eV in der $1s$ -Photoabsorption einsetzt.

Um diesen zusätzlichen Prozess, der zu σ_3 beiträgt, weiter zu untersuchen wurde die Photonenenergie auf 1000 eV ausgedehnt. In Abbildung 4.4 werden die Ergebnisse einer zusätzlichen Scan-Messung im Energiebereich von 660 bis 1000 eV in Schritten von 5 eV gezeigt. Ebenfalls gezeigt werden die absoluten Wirkungsquerschnitte. Auf diese wurden die relativen Querschnitte normiert.

Die Ergebnisse für σ_3 aus Abb. 4.3 sind zur besseren Übersicht eingefügt. Dort ist eine durchgehende rote Linie gezeigt, die eine modellierte Darstellung für den Beitrag von direkter $1s$ -Ionisation mit nachfolgendem Doppel-Augerzerfall darstellt. Diese Linie ergibt sich durch Abziehen der Beiträge von Valenzionisation zu σ_2 von der durchgehenden

Linie in Abb. 4.2. Dies stellt σ_2 für Photonenenergien oberhalb von 690 eV dar, wenn sie abschließend mit dem Faktor 0.153 multipliziert wird. Dadurch steht eine Extrapolation des Wirkungsquerschnitts aus Abb. 4.3 für die weitere Analyse der gemessenen Daten bereit.

Damit ist möglich, den partiellen Beitrag der Photodoppelionisation zur Dreifachphotoionisation von F^- durch Emission eines $1s$ und $2p$ Elektronenpaars nach Gleichung 4.2 und eines anschließenden Einfach-Augerzerfalls nach Gl. 4.3 zu isolieren.



Die Wahrscheinlichkeit für einen Einfach-Augerzerfall von $F^+(1s 2s^2 2p^5)$ ist ungefähr 0.95(5). Dies wurde bereits in separaten Experimenten mit F^+ -Ionen ermittelt [136]. Hierfür wurden die Resonanzstärken in der Einfach- und Doppelionisation von F^+ -Ionen verglichen. Daher macht die Differenz zwischen den gemessenen Wirkungsquerschnitten für

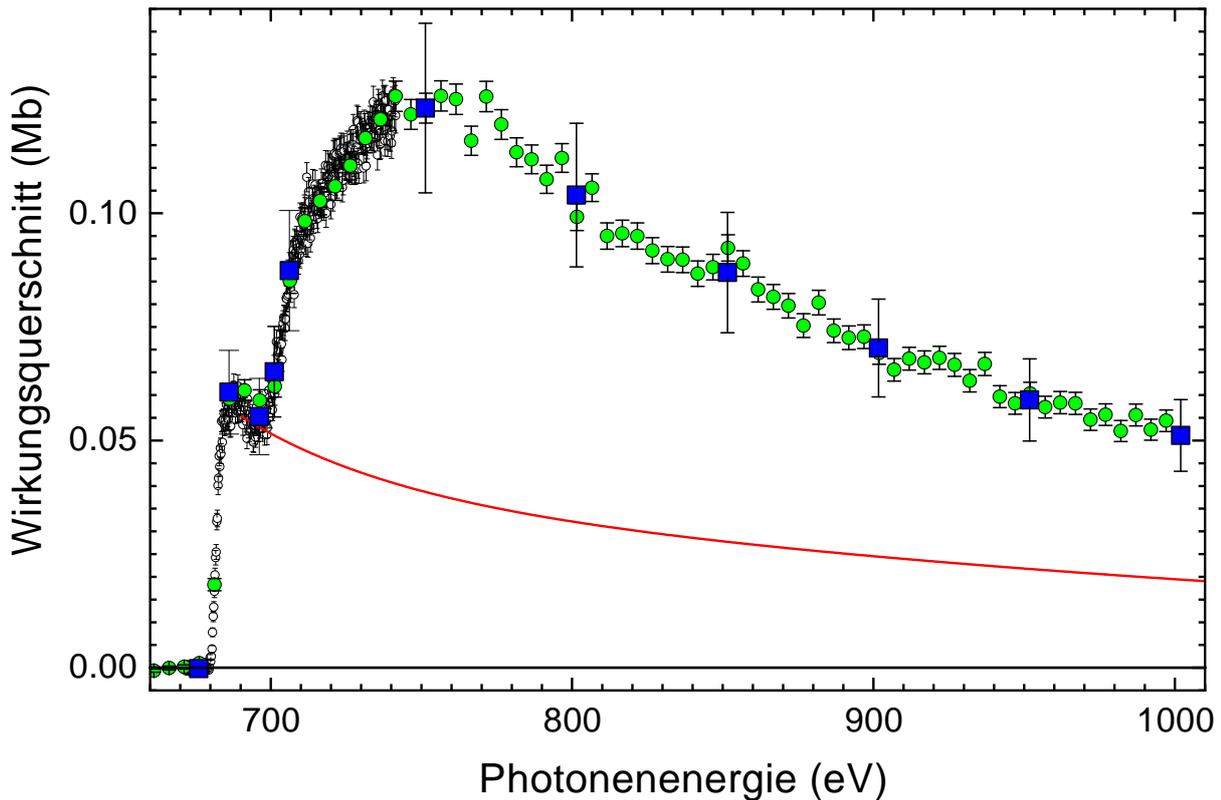


Abbildung 4.4 – Absolute Wirkungsquerschnitte zur Dreifachionisation von Fluoranionen über einen erweiterten Energiebereich. Die offenen Kreise sind Scanmessungen mit statistischen Fehlerbalken mit kleiner Schrittweite im Bereich der K -Schwelle. Die blauen Quadrate sind absolute Wirkungsquerschnitte mit totalem Fehlerbalken. Die grünen Kreise sind weitere Scanmessungen mit einer Schrittweite von 5 eV. Die rote Linie ist angelehnt an den Fit aus Abb. 4.2. Hierfür wurde der Valenzschalenbeitrag von σ_2 abgezogen und die Fit-Kurve mit dem Skalierungsfaktor 0.153 multipliziert [37]. © American Physical Society (2018)

Dreifachionisation σ_3 und dem angenommenen Beitrag der $1s$ -Ionisation mit nachfolgendem Doppel-Augerzerfall (durchgezogene Linie in Abb. 4.4) nahezu den gesamten Querschnitt für Photodoppelionisation eines Paares aus je einem $1s$ und $2p$ Elektronen von F^- aus.

Dieser Wirkungsquerschnitt ist in Abb. 4.5 gezeigt. Er wurde um das Verzweigungsverhältnis für den Einfach-Augerzerfall von 0.95 korrigiert. Der Wirkungsquerschnitt für Photodoppelionisation erreicht eine maximale Höhe von 95 kb. Die Kurve verhält sich wie für einen Mehrfachionisationsprozess erwartet. Eine genauere Untersuchung hierzu kann basierend auf den Gesetzmäßigkeiten nach dem Schwellengesetz von Wannier [137] und einer Skalierungsregel von T. Pattard [138] durchgeführt werden.

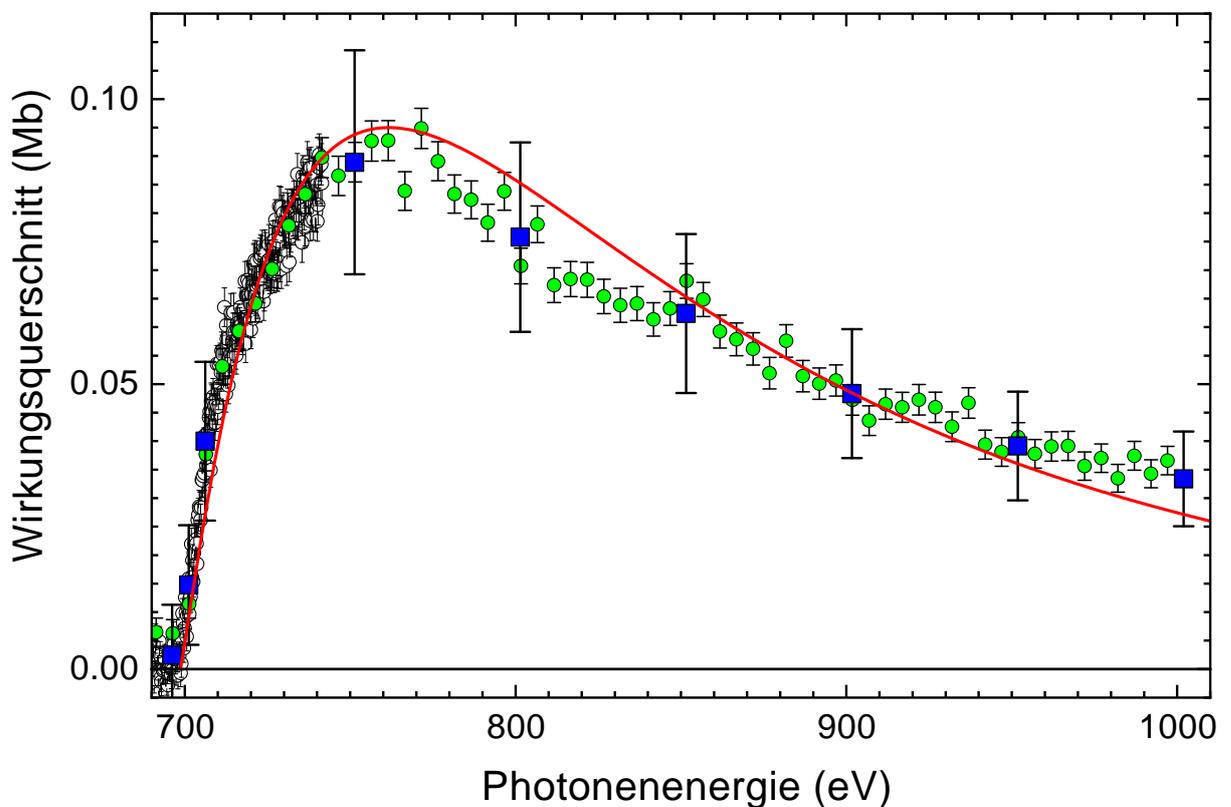


Abbildung 4.5 – Wirkungsquerschnitt für die direkte Doppelionisation. Die blauen Quadrate sind absolute Wirkungsquerschnitte mit totalem Fehlerbalken, die offenen Kreise Scanmessungen mit einer geringen Schrittweite im Bereich der K -Schwelle mit statistischem Fehlerbalken und die grünen Kreise Scanmessungen mit einer Schrittweite von 5 eV über einem erweiterten Energiebereich. Diese Querschnitte wurden erhalten, indem die Differenz der Querschnitte aus Abb. 4.4 mit der dort gezeigten roten Linie berechnet wurde. Die so erhaltenen Werte wurden durch 0.95 geteilt. Der Faktor 0.95 kommt von der Wahrscheinlichkeit für einen einfachen Auger-Zerfall von F^+ ($1s\ 2s^2\ 2p^5$). Die Wirkungsquerschnitte zeigen also direkte Doppelionisation bei der gleichzeitig ein Elektronenpaar von dem Primärion entfernt wird, je eines von der $1s$ und der $2p$ Unterschale mit anschließendem Augerzerfall bei dem ein drittes Elektron frei wird. Die durchgehende rote Linie modelliert den Querschnitt der direkten Photodoppelionisation basierend auf einem Skalierungsgesetz von T. Pattard [138]. Die innenliegende Skizze zeigt ein Schema des zugrundeliegenden Prozesses [37]. © American Physical Society (2018)

Die Schwellenregion des Wirkungsquerschnitts $\sigma(E)$ wird in Abb. 4.5 unter Nutzung des Wannier'schen Schwellengesetzes $\sigma(E) = \sigma_0(E - E_{th})^\alpha$ untersucht. Für Energien bis zu 707.6 eV kann $\sigma(E)$ mit einer Konstante σ_0 , $E_{th} = 698.7(1.5)$ eV und $\alpha = 1.1(3)$ gefittet werden. Dies passt zu dem erwarteten Wannier Exponenten α für Photodoppelionisation von F^- . Dieser ist $\alpha = 1.1269$ und die Schwellenenergie $E_{th} = 700.2$ eV. Das Skalierungsgesetz von T. Pattard für Photodoppelionisation lautet

$$\sigma(E) = \sigma_M x^\alpha \left(\frac{\alpha + 7/2}{\alpha x + 7/2} \right)^{(\alpha+7/2)}. \quad (4.4)$$

Hier sind E die Photonenenergie, σ_M der maximale Wirkungsquerschnitt bei der maximalen Photonenenergie E_M , $x = (E - E_{th})/(E_M - E_{th})$ und α der Wannier-Exponent [137]. In Abb. 4.5 zeigt die rote durchgehende Linie Pattards Skalierungsgesetz für die gefitteten Parameter $\sigma_M = 0.095$ Mb und $E_M = 763.1$ eV für die festen Werte $\alpha = 1.1269$ und $E_{th} = 698.7$ eV. Die Übereinstimmung des von Pattard vorgeschlagenen Wirkungsquerschnitts mit den experimentellen Wirkungsquerschnitten in Abb. 4.5 unter Berücksichtigung der Ungenauigkeiten der Messungen unterstützt den Schluss, dass tatsächlich Photodoppelionisation von F^- beobachtet wurde.

Zusammenfassung der Ergebnisse

Die Erwartung, dass direkte K -Schalen-Einfachionisation mit nachfolgenden Einfach- oder Doppel-Augerzerfällen der dominante Mechanismus für das Entfernen von zwei oder drei Elektronen von einem Atom oder Ion ist, wird hier nicht bestätigt. Stattdessen zeigen die Experimente mit F^- , dass Photodoppelionisation den hauptsächlichen Beitrag zum Wirkungsquerschnitt σ_3 für die Dreifachphotoionisation hat.

Ein Elektronenpaar mit je einem Elektron aus der $1s$ und der $2p$ Unterschale wird frei. Nachfolgend kommt es, mit einer Wahrscheinlichkeit von ungefähr 95%, zu einem Einfach-Augerzerfall, der den finalen Ladungszustand F^{2+} produziert. Die Dominanz der Photodoppelionisation wird auf die geringe Bindungsenergie des äußersten $2p$ Elektrons in F^- zurückgeführt. Die Möglichkeit des Experiments, zwischen unterschiedlichen produzierten Ladungszuständen zu unterscheiden, erleichterte die klare Beobachtung, die einen solchen kleinen Wirkungsquerschnitt aufweist, aber dominant zur Produktion von F^{2+} in der Dreifachionisation von F^- beiträgt.

Die gezeigten Messungen haben ein Fenster in eine zusätzliche Dimension in experimentellen Studien von direkter Mehrfachionisation durch ein einzelnes Photon geöffnet. Diese Dimension ist der Ladungszustand q eines Atoms oder Ions. Dieser kann verändert werden,

beispielsweise entlang isoelektronischer Reihen mit einer festen Anzahl von Elektronen $Z - q$, wobei Z die Kernladungszahl des untersuchten Elements ist.

Direkte Mehrfachionisation wurde experimentell bisher nur an leichten Atomen mit wenigen Elektronen untersucht. Direkte Photodoppelionisation findet praktisch nur durch Elektron-Elektron-Wechselwirkung statt. Das elementarste System für solche Untersuchungen stellt Helium dar. Dies wurde bereits ausführlich bei Photonenenergien von wenigen eV bis hin zu 12 keV untersucht [139, 140]. Die experimentellen Daten und theoretischen Modelle [141, 142] näherten sich im Laufe der Zeit immer näher an und zeigten sehr gute Übereinstimmungen. Weitere Experimente wurden mit Beryllium [143], Sauerstoff [144–146] und Magnesium [147] oder molekularen Systemen (siehe z.B. [148]) durchgeführt. Auch die theoretischen Modelle wurden von Helium-ähnlichen Ionen [149, 150] auf Systeme mit mehr als zwei Elektronen ausgedehnt [151–156]. Während alle diese und weitere Experimente auf neutrale Elemente wie das Heliumatom beschränkt waren, bietet die Erweiterung der Messungen mit Ionen die Möglichkeit der Manipulation der relativen Stärke der Elektron-Elektron- und Elektron-Kern-Wechselwirkungen. Dies erleichtert eine systematische Variation der Grundkräfte, die die Struktur von Atomen und Ionen bestimmt und ihre dynamische Antwort auf externe Störungen.

Experimente mit Ar^+ -Ionen [34] zeigen die Machbarkeit für Photodoppelionisation von L -Schalen Elektronen in einem positiven Ion. Für negative Ionen werden ähnliche Resultate wie in diesem Fall erwartet. Messungen von Wirkungsquerschnitten von isoelektronischen atomaren Reihen können helfen, die Balance zwischen Elektronenkorrelation und Elektron-Kern-Wechselwirkung in atomaren Strukturen und Wechselwirkungen zu verstehen.

5 Photoionisation von Kohlenstoffanionen

Die Experimente zur Inner-Schalen Photoionisation von Kohlenstoffanionen (C^-) wurden vom 05. bis 11. Juli 2018 durchgeführt. Ergebnisse dieser Experimente sind als *Phys. Rev. Lett.* **124**, 083203 (2020) publiziert [38] und wurden von DESY ebenfalls als Jahreshighlight hervorgehoben [157]. Kohlenstoffanionen wurden im Rahmen dieser Experimente erstmals mit der nun verfügbaren Cs-Sputterionenquelle [36, 84, 87] nach vorheriger Adaptierung an den Ionenquellenbereich von PIPE erzeugt. Die Wahl von Kohlenstoff als Target resultierte daraus, dass Kohlenstoffanionen gut zu erzeugen sind. Mit Cs-Sputterionenquellen können hiervon bis zu $95 \mu A$ erzeugt werden.

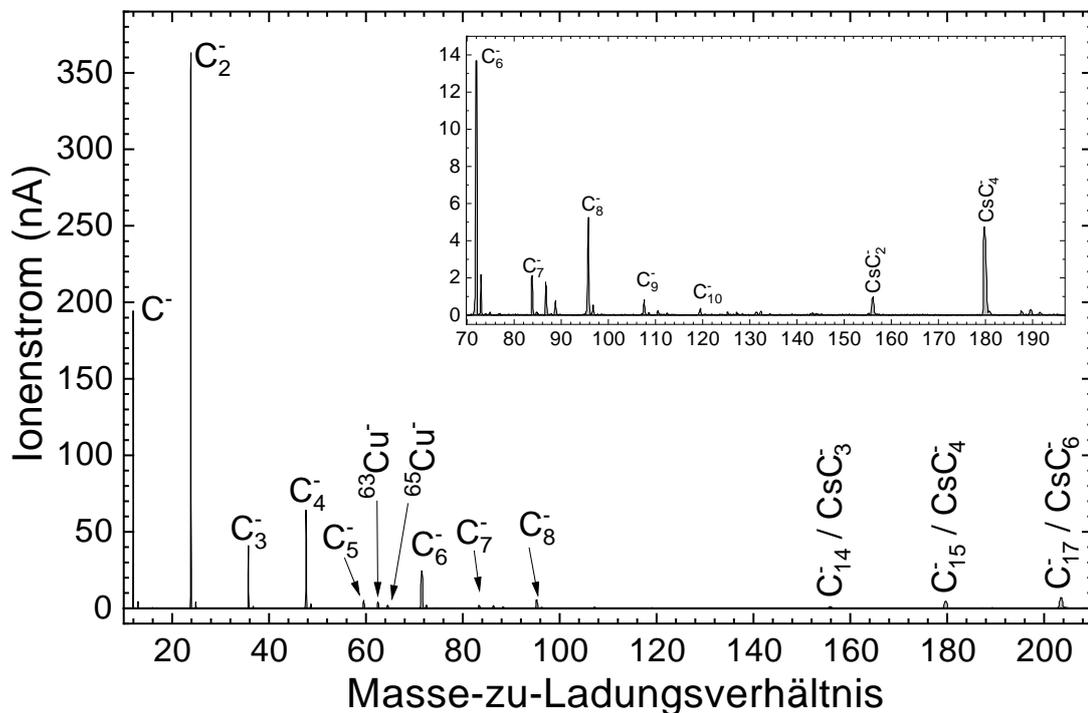
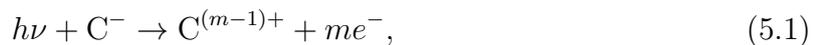


Abbildung 5.1 – Primärmassenspektrum mit Graphit als Sputtertarget, aufgenommen in Faraday Cup 4 mit einer Auflösung $m/\Delta m \approx 240$. Der innenliegende Plot zeigt eine weitere Messung mit höherer Genauigkeit bei den hohen Massen. Hier beträgt die Auflösung etwa 360. Der Ionenstrahl enthält neben atomaren Kohlenstoffanionen ebenfalls Moleküle bzw. Cluster C_n^- , $n < 11$. Es werden mehr Dimere als atomare Ionen erzeugt. Neben reinen Kohlenstoffclustern werden mit kleinen Intensitäten ebenfalls Cs-C-Molekülonen produziert.

Als Sputtertarget wurde Graphit genutzt. Kohlenstoffanionen haben zwei metastabile Zustände. Der Grundzustand ist $1s^2 2s^2 2p^3 \ ^4S_{3/2}$ mit einer Bindungsenergie von ca. 1.26 eV [158], angeregte Zustände sind $\ ^2D_{3/2}$ und $\ ^2D_{5/2}$ mit Bindungsenergien von ca. 33 meV und 50 meV [158, 159]. Untersuchungen von Scheer *et al.* [91] zeigen, dass mit einer Cs-Sputterionenquelle erzeugte Kohlenstoffanionen zu mehr als 99.9% im $\ ^4S_{3/2}$ Grundzustand vorliegen.

In Abb. 5.1 sind zwei Massenspektren des Primärionenstrahls gezeigt. Hier ist gut zu erkennen, dass in der Quelle sowohl atomare Kohlenstoffanionen als auch Clusteranionen erzeugt werden können. Auch Verbindungen von Kohlenstoffclustern mit Cs werden erzeugt. In 2020 wurde aus diesem Grund auch eine Experimentierzeit mit der Photofragmentation und Ionisation von solchen Clusteranionen durchgeführt. Eine Publikation dieser Ergebnisse steht noch aus. Die zwei Peaks, die Kupfer zugeordnet wurden, lassen sich damit erklären, dass das Target aus einem Kupferhalter besteht in den das Graphit eingepresst wurde. Hier wurde also ein Teil des eigentlichen Halters abgetragen.

Im Experiment mit C^- wurden Wirkungsquerschnitte σ_m für vier Produktkanäle gemessen werden, und zwar



mit $m = 2, 3, 4, 5$ bei Photonenenergien unterhalb der K -Kante bis zu etwa 1000 eV.

Bei ca. 282 eV wurden bereits Messungen an der IPB an der Advanced Light Source von N. D. Gibson *et al.* [60] und C. W. Walter *et al.* [28] durchgeführt, die eine einzelne Resonanz durch $1s \rightarrow 2p$ -Anregung im Doppelionisationskanal untersucht haben. Hier wurde im Vorfeld der Untersuchungen von Gibson und Walter von theoretischer Seite eine Shape-Resonanz vorhergesagt. Diese verdeckt die Schwelle für direkte $1s$ -Ionisation von Kohlenstoffanionen, da sie kurz oberhalb dieser Schwelle liegt. Shape-Resonanzen entstehen dadurch, dass ein Elektron in einem Anion in einen autoionisierenden Zustand angeregt wird. Dieser Zustand muss energetisch oberhalb eines Zustand des neutralen Atoms liegen. Damit das Elektron allerdings das Anion verlassen kann, muss es durch eine Zentrifugalbarriere tunneln. Diese entsteht durch die Kombination des kurz-reichweitigen bindenden Potentials und eines repulsiven Zentrifugalpotentials. Dies gibt es nur für Elektronen mit $l > 0$ [78].

Die nun durchgeführten Messungen an PIPE haben nicht nur diese Resonanz, sondern einige neue Resonanzen und ein klares Signal für die direkte Doppel- K -Ionisation ergeben. Die Messungen wurden durch eine instabile Operation der Ionenquelle erschwert, die kurzzeitig die Strahlüberlapps änderte. In den Daten zeigt sich dies in einer unstatistischen Streuung der Messpunkte. Es wurden zuerst relative Wirkungsquerschnitte gemes-

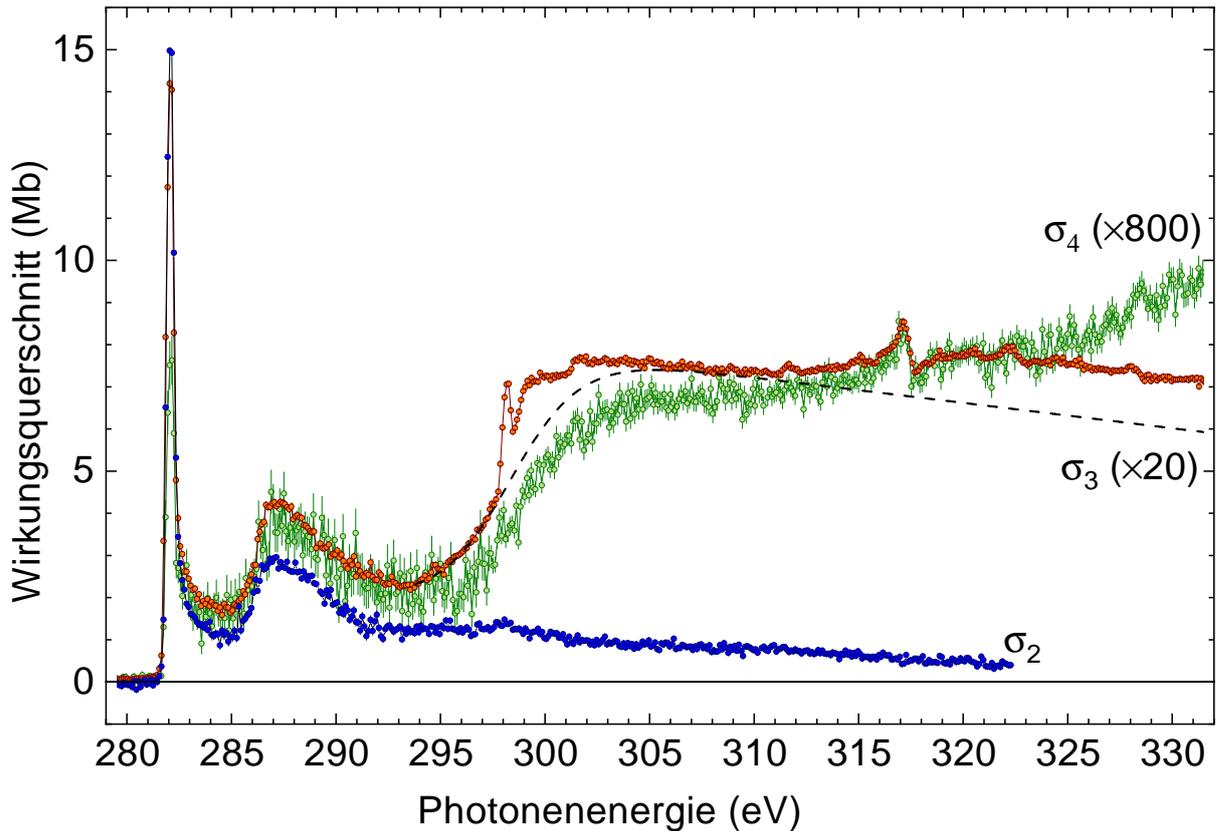


Abbildung 5.2 – Gemessene Wirkungsquerschnitte für Doppelionisation (σ_2 , blaue Kreise), Dreifachionisation (σ_3 , orangene Kreise, multipliziert mit einem Faktor 20) und Vierfachionisation (σ_4 , grüne Kreise, multipliziert mit einem Faktor 800) von Kohlenstoffanionen. Die gestrichelte Linie repräsentiert den Beitrag der Doppelionisation eines $1s$ und $2p$ Elektrons zu σ_3 [38]. © American Physical Society (2020)

sen. Diese wurden durch separat gemessene absolute Wirkungsquerschnitte normiert. Der Ionenstrom während der Messungen betrug bis zu 45 nA . Der Photonenfluss lag bei ca. $3 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}$ bei einer Energiebandbreite von ca. 0.5 eV .

In Abb. 5.2 werden die gemessenen Wirkungsquerschnitte für Doppel-, Dreifach- und Vierfachionisation von C^- im Energiebereich $279 - 332 \text{ eV}$ gezeigt. Die Schwelle für direkte K -Schalen Ionisation liegt in diesem Fall bei etwa 281.6 eV [28]. Das dominanteste Element in allen drei Spektren ist die $1s 2s^2 2p^4 \ ^4P$ Resonanz bei 282.085 eV . Diese wurde bereits, beschränkt auf Doppelionisation [28, 60], untersucht. Zu höheren Photonenergien hin erscheint eine breite asymmetrische Resonanz bei ca. 287 eV . Diese ist in allen Kanälen sichtbar. Die integrale Resonanzstärke dieser Resonanz beträgt im aktuellen Experiment $6.8(1.0) \text{ Mb eV}$. Walter *et al.* geben eine Resonanzstärke von $8.2(3.2) \text{ Mb eV}$ an. Damit stimmen die Resonanzstärken aus beiden Experimenten innerhalb der Fehlerbalken überein.

Rechnungen von S. Stock mit GRASP [160] und RATIP [161] sowie S. Fritzsche mit JAC [162] ordnen dieser Resonanz die $1s \rightarrow 3p$ -Anregung in $1s 2s^2 2p^3 3p \ ^4P_J$ Zustände zu. Das

Verhältnis der Resonanzstärken des Peaks bei 287 eV und der Resonanz durch die $2p^4 \ ^4P$ -Anregung steigt mit steigendem Produktladungszustand. Die schmale $2p^4 \ ^4P$ -Resonanz autoionisiert vornehmlich in den niedrigsten Zustand (5S) der $1s \ 2s^2 \ 2p^3$ Konfiguration [60]. Die deutlich größere Breite der $1s \ 2s^2 \ 2p^3 \ 3p \ ^4P$ -Resonanz kann durch das Öffnen zusätzlicher Augerzerfallskanäle wie den $1s \ 2s^2 \ 2p^3 \ ^3D$ und 3S Zuständen und möglicherweise (abhängig von der genauen Energie) sogar den $1s \ 2s^2 \ 2p^3 \ ^3P$ und 1D Zuständen von neutralem Kohlenstoff erklärt werden.

Bei höheren Energien unterscheiden sich die Verläufe der Wirkungsquerschnitte deutlich. Der Doppelionisations-Wirkungsquerschnitt bleibt nahezu konstant mit einem schwachen lokalen Maximum bei ca. 298 eV. Ab dort setzt ein nahezu linearer Rückgang ein. Der Wirkungsquerschnitt für Dreifach- und Vierfachionisation steigt im Gegensatz dazu zwischen 295 – 305 eV steil an. Die durchgeführten Rechnungen legen nahe, dass dieser Anstieg durch das Einsetzen von gleichzeitiger Ionisation eines $1s$ Elektrons und Shake-Up eines $2s$ Elektrons entsteht. Zusätzlich trägt die direkte Doppelionisation eines $1s$ und $2p$ Elektrons dazu bei. Dieser Ionisation folgen Augerzerfälle, bei denen bis zu drei weitere Elektronen frei werden. Die berechneten Schwellenenergien für solche Prozesse beginnen bei Photonenenergien zwischen 290 – 301 und 300 – 305 eV. Weitere Schwellen sind in Tabelle 5.1 gelistet.

Tabelle 5.1 – Berechnete Bereiche der Energieschwellen für direkte Einfachionisation (SI), Doppelionisation (DI), Dreifachionisation (TI) und Vierfachionisation (QI) des C^- ($1s^2 \ 2s^2 \ 2p^3 \ ^4S$) Grundzustand. Für SI, DI und TI sind ebenfalls Shake-Up (SU) und Doppel-Shake-Up (DSU)-Prozesse von $2s$ Elektronen zu berücksichtigen. Es sollte berücksichtigt werden, dass die gemessenen Endladungszustände $[(m-1)+$ in Gl. 5.1] das Ergebnis von Augerkaskaden sind, die nach den hier dargestellten Innerschalen-Prozessen stattfinden.

Prozess	Endkonfiguration	Schwellenenergie (eV)
$1s$ SI	$1s \ 2s^2 \ 2p^3$	282-288
$1s$ SI + $2s \rightarrow 2p$ SU	$1s \ 2s \ 2p^4$	290-301
$1s$ SI + $2s^2 \rightarrow 2p^2$ DSU	$1s \ 2p^5$	308-310
$1s + 2p$ DI	$1s \ 2s^2 \ 2p^2$	300-305
$1s + 2s$ DI	$1s \ 2s \ 2p^3$	302-317
$1s + 2s$ DI + $2s \rightarrow 2p$ SU	$1s \ 2p^4$	321-325
$1s + 2l^2$ TI	$1s \ 2l^3$	333-356
$1s + 2l^3$ QI	$1s \ 2l^2$	380-403
$1s^2$ DI	$2s^2 \ 2p^3$	657-662
$1s^2$ DI + $2s \rightarrow 2p$ SU	$2s \ 2p^4$	666-675
$1s^2$ DI + $2s^2 \rightarrow 2p^2$ DSU	$2p^5$	681
$1s^2 + 2p$ TI	$2s^2 \ 2p^2$	699-703
$1s^2 + 2s$ TI	$2s \ 2p^3$	701-714
$1s^2 + 2s$ TI + $1s \rightarrow 2p$ SU	$2p^4$	719-723

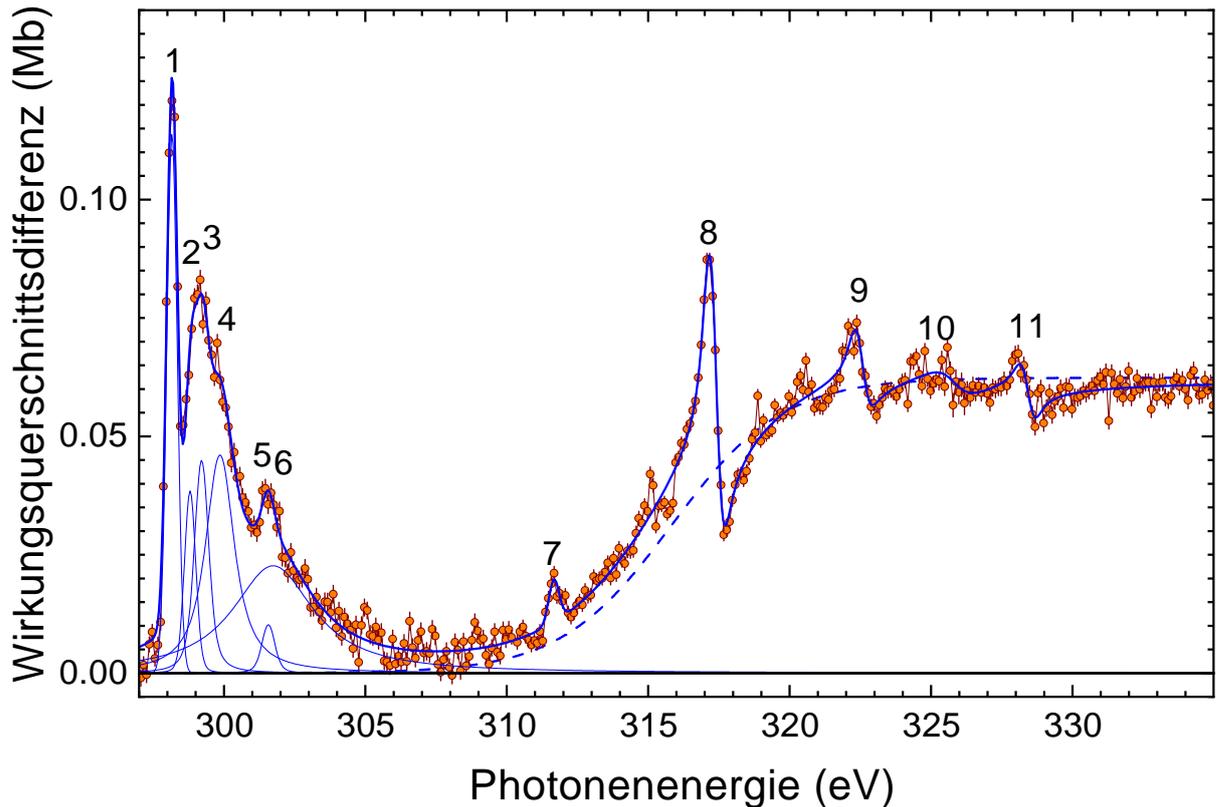


Abbildung 5.3 – Differenz der Wirkungsquerschnitte für Dreifachionisation σ_3 von Kohlenstoffanionen und der gestrichelten Linie in Abb. 5.2. Die durchgehende blaue Linie ist das Ergebnis eines Fits an die gemessenen Daten. In diesem Fit werden die nummerierten Resonanzen durch Lorentz- und Fano-Profile dargestellt. Diese werden zusätzlich mit einer normierten Gauss-Funktion gefaltet. Die Halbwertsbreite der Gauß-Funktion repräsentiert die Bandbreite der Photonenergie aus dem Experiment [163]. Zusätzlich ist der Anstieg des Querschnitts zwischen 310 und 320 eV durch eine glatte Kurve mit einem solchen Verlauf abgebildet. Die Resonanzen 1-6 sind jeweils als dünne Linien nochmals dargestellt. Die Resonanzparameter aus diesem Fit sind in Tabelle 5.2 gezeigt [38]. © American Physical Society (2020)

Direkte $1s + 2p$ Doppelionisation wurde bereits in der Dreifachionisation von F^- (siehe Kap. 4) beobachtet. Während bei F^- keine Resonanzen beobachtet werden konnten, lässt im Falle von C^- die offene $2p$ -Schale offensichtlich eine recht große Anzahl an Photoionisations-Resonanzen zu. Diese werden aber überlagert durch die ansteigende Steigung von σ_3 . Diese Resonanzen tragen nicht signifikant zu σ_4 bei. Weitere Resonanzen sind in σ_3 und σ_4 oberhalb von 310 eV sichtbar. Bei ca. 317.3 eV ist eine besonders ausgeprägte Fano-Resonanz sichtbar.

In Abbildung 5.3 wird eine Übersicht über den Beitrag dieser Resonanzen zu dem Wirkungsquerschnitt σ_3 gegeben. Hierfür wurde von den gemessenen Wirkungsquerschnitten σ_3 ein Modellquerschnitt, der den Anstieg von σ_3 im Bereich 295 – 305 eV und späteren Rückgang nachbildet, abgezogen. Hierzu wurde an σ_4 , der den gleichen Verlauf mit weniger Resonanzen zeigt, ein Arcustangens gefittet und eine lineare Funktion addiert. Am Ende wurde dieser dann auf die Höhe von σ_3 skaliert.

Tabelle 5.2 – Fit-Ergebnisse aus dem Fit in Abb. 5.3. Jede Resonanz ist bestimmt durch ihre Resonanzenergie E_{res} , ihre natürliche Breite Γ , den Asymmetrieparameter q ($q = \infty$ entspricht einem Lorentzprofil) und ihre Stärke S . Alle Resonanzen wurden mit einem normierten Gaussprofil mit einer Halbwertsbreite (FWHM) von 0.436(19) eV. Die Resonanzen sitzen auf einem glatten Querschnitt (gestrichelte Linie in Abb. 5.3). Dieser wurde gefittet als $0.03119(26) \text{ Mb} \times \{1 + \arctan[(E_{\text{ph}} - 315.488(90) \text{ eV})/3.89(13) \text{ eV}]\}$. Hier ist E_{ph} die Photonenenergie. Die Zahlen in Klammern sind die statistischen Ungenauigkeiten aus dem Resonanzfit. Die systematische Ungenauigkeit der Resonanzstärke liegt bei $\pm 15\%$.

Nr.	E_{res} (eV)	Γ (eV)	q	S (kb eV)
1	298.1631(89)	~ 0.0	∞	52.9(34)
2	298.80(13)	0.07(46)	∞	21(38)
3	299.21(16)	0.28(75)	∞	35(76)
4	299.86(21)	1.06(57)	∞	84(76)
5	301.571(64)	0.19(48)	∞	6.9(85)
6	301.74(48)	3.41(41)	∞	122(46)
7	311.666(41)	~ 0.0	∞	4.16(70)
8	317.335(14)	0.151(36)	-1.774(98)	17.2(16)
9	322.504(60)	0.25(12)	-1.77(38)	5.7(20)
10	325.79(38)	1.45(70)	-1.01(48)	0.12(57)
11	328.421(94)	0.18(20)	-0.99(33)	$\sim 0.0(20)$

Zusätzlich zu den mindestens elf Resonanzen (siehe Tabelle 5.2) zeigt Abb. 5.3 einen Beitrag, der bei ca. 310 eV einsetzt. Dieser ist auf $1s + 2s$ Doppelionisation sowie teilweisen Shake-Up zurückzuführen. Offenbar interferiert resonante Ionisation oberhalb dieser Schwelle mit der direkten $1s+2s$ Doppelionisation. Dies führt zu den stark asymmetrischen Fanoprofilen der Resonanzen 8–11 oberhalb von 316 eV. Dies impliziert, dass diese Resonanzen in einem $1s 2s 2p^3 \ell \ell'$ -Kontinuum eingefügt sind. Den Berechnungen zufolge ist die stärkste asymmetrische Resonanz bei 317.3 eV auf den $1s 2s(^3S) 2p^3(^4P) 3s(^3P) 3p \ ^4P$ Zustand zurückzuführen.

Zum Vergleich mit den Absorptionsquerschnitten von Henke *et al.* [133] wurde in Abb. 5.4 der Summenquerschnitte $\sigma_{\Sigma} = \sum_m \sigma_m$ verglichen. Hierfür wurden die Wirkungsquerschnitte von 280 eV bis 1000 eV addiert. Wurden alle relevanten Ionisationskanäle gemessen, so sollte der Summenwirkungsquerschnitt mit dem Absorptionsquerschnitt übereinstimmen. Da dies hier der Fall ist, heißt das, dass der Einfachionisationskanal vernachlässigbar ist ebenso wie höhere Ionisationskanäle mit $m \geq 7$. Dieses Ergebnis entspricht auch der Erwartung. Diese war, dass nach der $1s$ -Ionisation das Loch durch Augerzerfälle gefüllt wird. Hierbei wird mindestens ein weiteres Elektron frei. Auch deutet die Höhe des Wirkungsquerschnitts von σ_5 bereits daraufhin, dass Kanäle mit höherer Produktladung noch kleinere Wirkungsquerschnitte aufweisen. Daher sind diese für die Summe ebenfalls vernachlässigbar.

In Abbildung 5.5 werden die gemessenen Wirkungsquerschnitte über einen erweiterten Energiebereich bis etwa 1000 eV gezeigt. Die Wirkungsquerschnitte σ_2 , σ_3 und σ_4 wurden mit passenden Faktoren multipliziert, um sie etwa auf die gleiche Höhe wie σ_5 zu skalieren. Für $m \geq 3$ nehmen die Wirkungsquerschnitte σ_m grob mit einem Faktor 10 ab, wenn m um 1 erhöht wird. Für Energien größer als 400 eV zeigen σ_3 und σ_4 dieselbe Form, unterscheiden sich aber durch einen Faktor 10. Bei diesen Energien hat σ_2 grob die gleiche Höhe wie σ_3 , nimmt aber stetig mehr ab mit steigender Photonenenergie.

Abbildung 5.5 zeigt ebenfalls den Wirkungsquerschnitt σ_5 für Fünffachionisation. Dieser zeigt ein signifikant anderes Verhalten als σ_2 , σ_3 und σ_4 . Insbesondere ist ein weiterer Beitrag zum Querschnitt bei ca. 670 eV erkennbar. Durch diesen erreicht σ_5 einen Maximalwert von etwa 4 kb bei ca. 860 eV. Die Messung eines solch geringen Wirkungsquerschnitts war nur möglich durch den hohen Fluss des Strahlrohrs P04, die hervorragende Auflösung der Produktionen bei PIPE und der sehr geringen Dunkelzählrate des Produktionendetektors. Im Maximum betrug die Zählrate nur etwa 1 Hz. Folglich sind die statistischen Ungenauigkeiten der gemessenen Datenpunkte recht hoch. Nichtsdestotrotz erlauben sie eine Identifikation der unterschiedlichen Beiträge zu σ_5 .

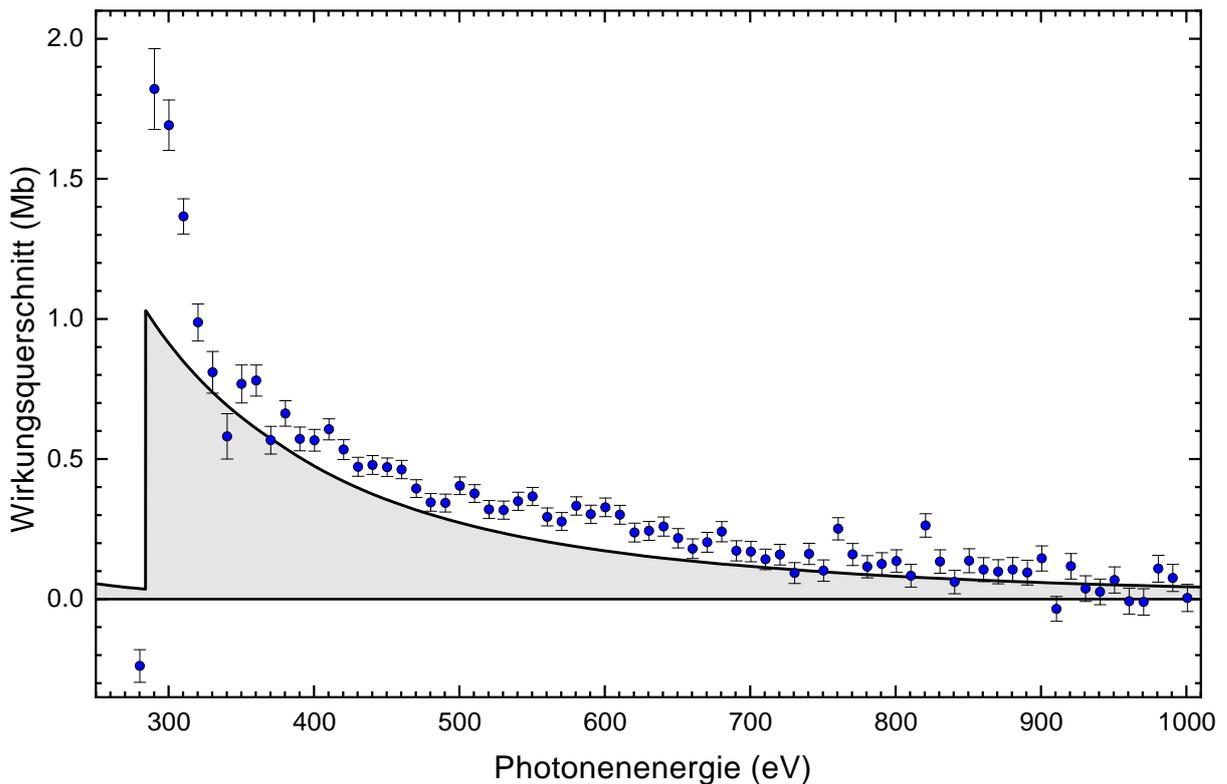


Abbildung 5.4 – Vergleich des Absorptionsquerschnitts von Henke *et al.* [133] (durchgezogene Linie) mit der Summe der einzelnen Wirkungsquerschnitte (blaue Kreise). Direkt an der K -Schwelle ist der Summenquerschnitt fast doppelt so hoch wie der berechnete Absorptionsquerschnitt. Dies ist auf die dominante Resonanz an der Schwelle zurückzuführen. Diese wird in dem Modell nicht betrachtet. Bei höheren Energien stimmen die Verläufe und Höhen der Wirkungsquerschnitte überein.

Die durchgehende Linie in Abb. 5.5 zeigt einen Modellwirkungsquerschnitt für $1s$ Einfachionisation, $1s+2s$ Doppelionisation und $1s+1s$ Doppelionisation. Innerhalb der experimentellen Ungenauigkeiten beschreibt der Modellquerschnitt das Verhalten von σ_5 erstaunlich gut. In dem Modell wurde der theoretische $1s$ Ionisationsquerschnitt (gepunkt-strichelte Linie) für neutralen Kohlenstoff von Verner *et al.* [30] für die Beiträge der Einfachionisation mit einem Skalierungsfaktor von 0.00034(7) verwendet. Dieser Faktor wurde so gewählt, dass der theoretische Querschnitt σ_5 bei Energien unterhalb 340 eV entspricht. Die Querschnitte für $1s+2s$ und $1s+1s$ Doppelionisation wurden durch Anwendung der Skalierungsregel von T. Pattard [138] analog zu F^- ermittelt.

In Abb. 5.5 wurden als Schwellenenergien für $1s+2s$ und $1s+1s$ Doppelionisation 336(4) und 668(4) eV genutzt. Diese wurden aus einem Fit (volle Linie) des Modellquerschnitts an σ_5 ermittelt. Nach dem Fit sind die entsprechenden Querschnittsenergien und -maxima 524(10) und 891(12) eV sowie 1.75(4) und 3.00(9) kb. Als Wannier-Exponent wurde in beiden Fällen 1.1269 genutzt. Dieser Wert entspricht einer Ladung +1 des doppelionisierten zwischenzeitigen C^+ Ions [137]. Die modellierten Schwellenenergien für $1s+2s$ und $1s+1s$ Doppelionisation sind leicht höher als die berechneten Schwellenenergien aus Tabelle 5.1 für solche Prozesse.

Dies ist darauf zurückzuführen, dass die plötzliche Änderung des atomaren Potentials nach der Doppelionisation mit hoher Wahrscheinlichkeit Shake-up-Prozesse für L -Schalen Elektronen nach sich ziehen. Dies wurde bereits explizit gezeigt, z.B. durch Auger- und Photoelektronenspektroskopie von Edelgasatomen mit doppelten Kernlochzuständen [164–166].

Aktuelle Atomstrukturrechnungen deuten an, dass Shake-up-Prozesse die Doppelionisationsschwelle von C^- um bis zu 20 eV zu höheren Energien verschieben. Prinzipiell ist auch $1s+1s+2s$ Dreifachionisation möglich. Berechnete Schwellenenergien hierfür liegen bei 699 – 714 eV. Dieser Prozess könnte dann auch zu σ_5 beitragen. Dieser Fall impliziert einen leicht geringeren Wannier-Exponenten von 1.0559 in dem genutzten Skalierungsgesetz. Unglücklicherweise erlauben die gemessenen limitierten statistischen Genauigkeiten keine Unterscheidung für solch kleine Variationen des Wannier-Exponenten.

Unabhängig von einer detaillierteren Zuordnung der Prozesse ist der klare Anstieg des Wirkungsquerschnitts σ_5 oberhalb von 670 eV eine eindeutige Signatur für die Erzeugung von Doppel- K -Löchern durch den Stoß mit einem einzelnen energiereichen Photon. Das Auftreten eines Doppel- K -Lochs-Signals in σ_5 erfordert, dass bei dem nachfolgenden Augerprozess mindestens drei weitere Elektronen frei werden. Prinzipiell ist sogar die Emission von vier Elektronen energetisch möglich, wobei ein C^{5+} ($1s$) zurückbleibt.

Versuche, den Wirkungsquerschnitt σ_6 für diesen Prozess zu messen, ergaben, dass kein Signal im Einzelteilchendetektor gefunden werden konnte. Hierfür wurden bei verschiedenen Photonenenergien Demergerscans durchgeführt. Die Zählrate bei den Bedingungen lag also deutlich unter 1 Hz. Es gibt daher keinen Nachweis für einen nennenswerten Beitrag der Doppel-*K*-Loch-Produktion zu weiteren experimentellen Wirkungsquerschnitten. Tatsächlich folgen σ_2 , σ_3 und σ_4 grob der Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts für direkte $1s + 2s$ Doppelionisation, auch oberhalb der Schwellen für die Entstehung von Doppel-*K*-Loch-Zuständen. Der leicht steilere Abfall von σ_2 kann dadurch erklärt werden, dass dieser Wirkungsquerschnitt durch Einfachionisation dominiert wird. Der Wirkungsquerschnitt für Einfachionisation nimmt mit steigender Photonenenergie schneller ab als der Wirkungsquerschnitt für Doppelionisation.

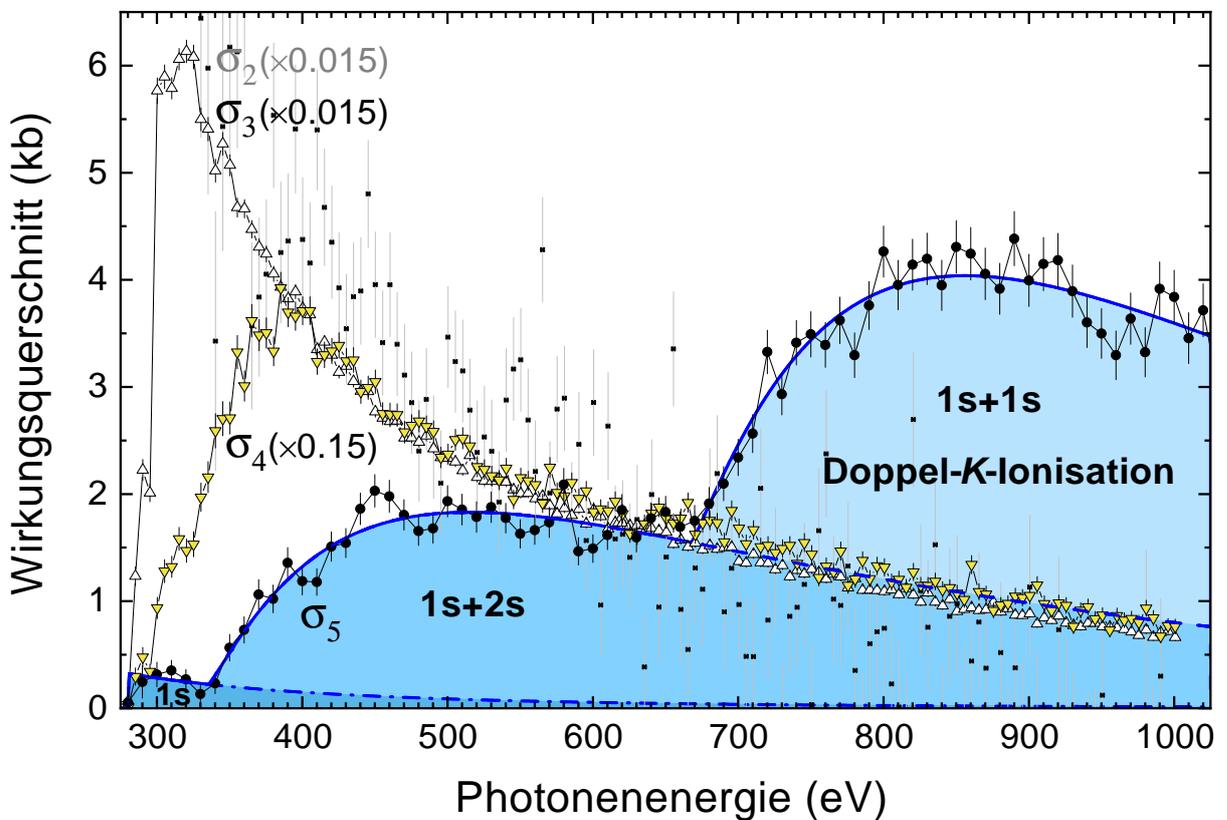


Abbildung 5.5 – Gemessene Wirkungsquerschnitte für Doppelionisation (σ_2 , kleine Quadrate, multipliziert mit einem Faktor 0.015), Dreifachionisation (σ_3 , nach oben gerichtete offene Dreiecke, multipliziert mit einem Faktor 0.015), Vierfachionisation (σ_4 , nach unten gerichtete Dreiecke, multipliziert mit einem Faktor 0.15) und für Fünffachionisation (σ_5 , gefüllte Kreise) von Kohlenstoffanionen. σ_2 konnte nur mit sehr großen statistischen Ungenauigkeiten durch ein starkes Untergrundsignal im C^+ -Kanal gemessen werden. Dieser Untergrund entsteht durch Kollisionen der primären C^- -Ionen mit Restgas. Die schattierten Kurven sind gefittete Modellquerschnitte (siehe Text), die direkte Einfach- und Doppelionisation zeigen. Die Linie aus Strichen und Punkten zeigt den Modellquerschnitt für $1s$ Einfachionisation. Die gestrichelte Linie ist die Summe für $1s$ und $1s+2s$ Ionisation. Die durchgehende Linie berücksichtigt zusätzlich $1s + 1s$ Doppel-*K*-Ionisation [38]. © American Physical Society (2020)

Zusammenfassung der Ergebnisse

In den Untersuchungen zur Mehrfachionisation von Kohlenstoffanionen konnten Ergebnisse erzielt werden, die weit über das hinausgehen, was bisher experimentell möglich war. Weiterhin geben sie einen unübertroffenen detaillierten Einblick in komplexe Dynamiken eines hochkorrelierten atomaren Systems, die nach der Erzeugung eines oder zweier K -Löcher einsetzen.

Begleitende theoretische Berechnungen erlauben die Identifikation eines Teils der beobachteten Schwellen und Resonanzen. Eine noch detailliertere Zuordnung von allen Besonderheiten in den gemessenen Wirkungsquerschnitten und eine quantitative Behandlung der Zerfallskaskaden der angeregten Zustände erfordert einen deutlich größeren Aufwand auf Seiten der Theorie, einschließlich einer weiteren Entwicklung von aktuell verfügbaren Werkzeugen.

Die quantitativen experimentellen Ergebnisse zur $1s+1s$ Doppelionisation ergänzen vorherige Untersuchungen von Doppel- K -Löchern in Atomen [165–168]. Diese sind hauptsächlich mittels Elektronenspektroskopie, aber auch durch Fluoreszenzspektroskopie, durchgeführt worden. Sie sind weiterhin wichtig um die intensitätsinduzierte Röntgenstrahlungstransparenz von gasförmiger Materie, wie bei Experimenten mit Freie-Elektronen-Lasern [169], sowie die Doppel- K -Vakanzen-Erzeugung in kohlenstoffhaltigen Molekülen zu untersuchen [170–174].

Weiterhin könnten die neu entdeckten Absorptionsschwellen und Resonanzen potentiell hilfreich bei der Identifikation von C^- durch Röntgenabsorption im interstellaren Medium sein. Dort wurden bisher Anionen ausschließlich von Kohlenstoffverbindungen nachgewiesen [175].

6 Photoionisation von Silizumanionen

Die Experimente zur Inner-Schalen-Photoionisation von Silizumanionen (Si^-) wurden vom 22. bis 28. August 2019 durchgeführt. Eine Publikation zu diesen Experimenten wurde als *Phys. Rev. A* **104**, 053107 (2021) veröffentlicht. Die Motivation, Silizium als weiteres Anion zu untersuchen, entstammt der Frage, ob mit dieser Kohlenstoff-ähnlichen Elektronenkonfiguration ebenfalls ähnlich viele Resonanzen messbar sind wie für Kohlenstoff.

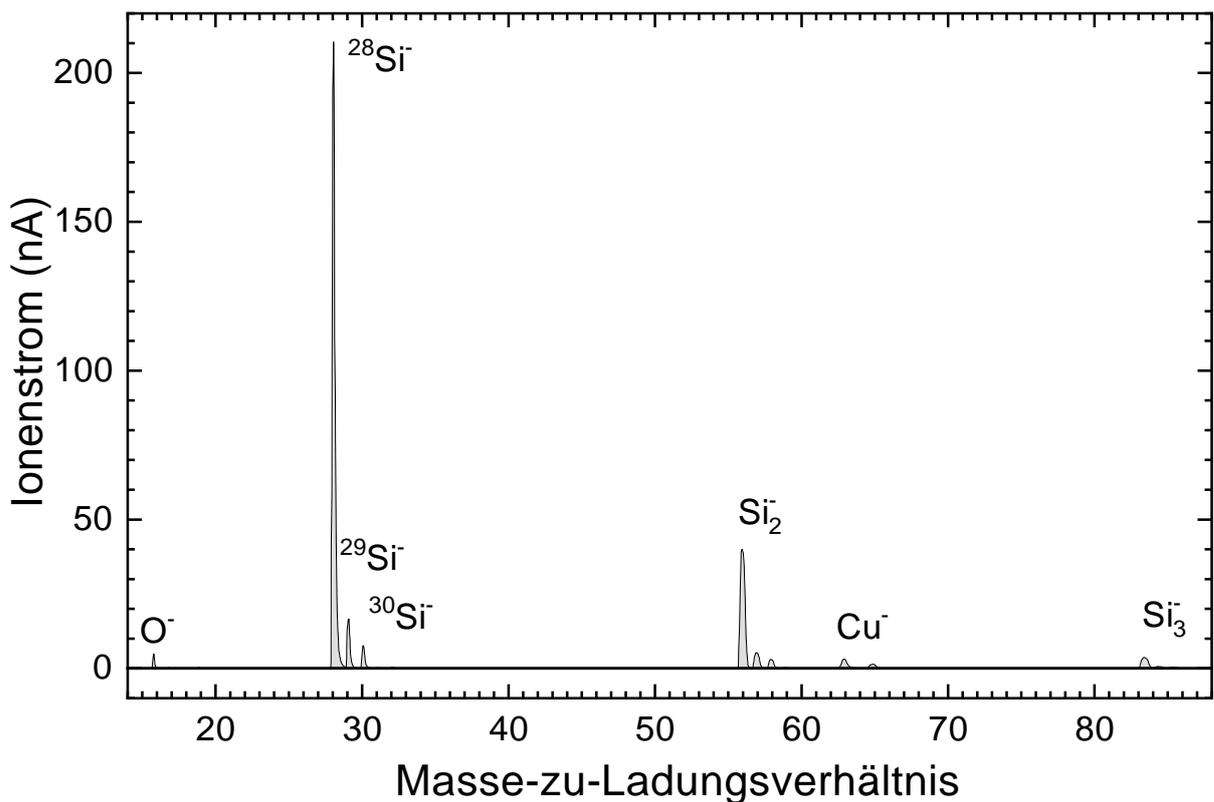
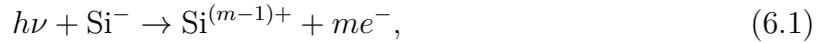


Abbildung 6.1 – Primärmasienspektrum der Si^- Strahlzeit. Als Sputtertarget wurde ein Siliziumeinkristall verwendet. Das Massenspektrum wurde in Faraday Cup 2 aufgenommen. Bei $A/q \approx 16$ ist ein kleiner Peak von Sauerstoff sichtbar. Bei $A/q = 28 - 30$ sind die drei Isotope von Silizium sehr gut zu erkennen. Ab ca. $A/q = 56$ erscheinen Peaks von Siliziumdimeren gefolgt von zwei Peaks von Kupferanionen (bei $A/q = 63, 65$). Bei $A/q = 84$ ist ein kleiner Peak von Siliziumtrimeren zu sehen, hier wurden die verschiedenen Peaks nicht mehr aufgelöst.

Im Experiment mit Si^- wurden Wirkungsquerschnitte σ_m für vier Produktkanäle gemessen werden, und zwar



mit $m = 3 - 6$ bei Photonenenergien unterhalb der K -Kante bis zu etwa 1900 eV. In diesem Experiment wurden Silizumanionen durch Sputtern eines Siliziumeinkristalls in der MISS erzeugt. Silizumanionen weisen zwei metastabile Zustände mit Anregungsenergien von 1.36 eV bzw. 0.86 eV und Lebensdauern von 22 s und 5.7 h [92] auf. In Cs-Sputterionenquellen werden aber zu mehr als 99% Anionen im $^4S_{3/2}$ Grundzustand erzeugt [91].

In Abb. 6.1 ist ein Primärmassenspektrum dargestellt. Hier ist die Isotopenverteilung von Silizium gut zu erkennen. Weiterhin können auch Di- und Trimere von Silizumanionen erzeugt werden. Im Experiment war der Ionenstrom bis zu 40 nA groß. Der Photonenfluss

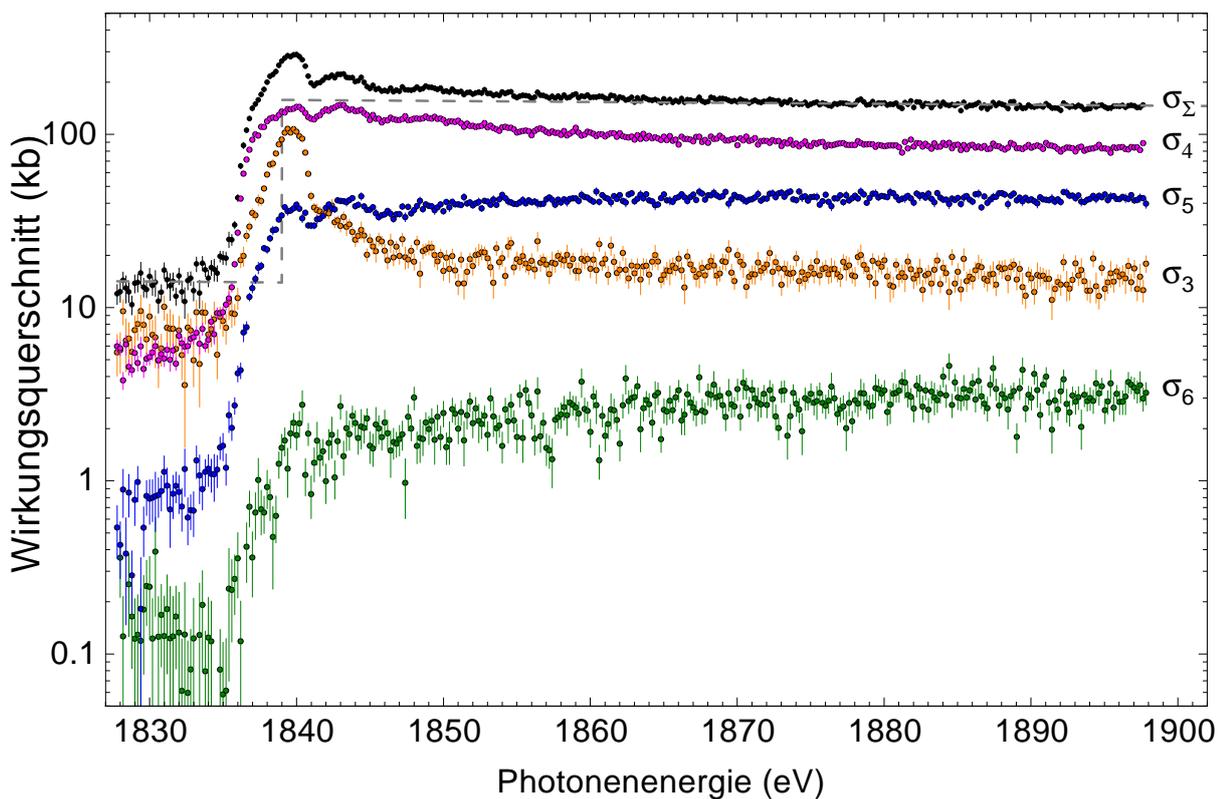


Abbildung 6.2 – Überblick über die gemessenen Wirkungsquerschnitte σ_m für die mehrfache (m -fache) Ionisation von Si^- Ionen [39]. Die unterschiedlich farbigen Datenpunkte zeigen σ_m für $m = 3$ (orange), $m = 4$ (magenta), $m = 5$ (blau) und $m = 6$ (grün). Die Fehlerbalken zeigen die statistischen Fehler. Die schwarzen Punkte stellen die Summe σ_Σ aller gemessenen Wirkungsquerschnitte σ_m dar. Die gestrichelte Kurve ist der Absorptionsquerschnitt von neutralem Silizium von Henke *et al.* [133]. Die Breite des Monochromator-Austrittsspalts bei den Messungen betrug $1000\mu\text{m}$. Die verzerrten Resonanzlinienformen kommen von einem nicht-gaußschen Beitrag der Photonenenergieverteilung. Dieser wird erst bei großen Werten für den Austrittsspalt bei Photonenenergien weit über 1000 eV bemerkbar. © American Physical Society (2021)

betrug bis zu $\sim 1.3 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}$ bei einer Photonenenergiebandbreite von 1.75 eV.

Die mit geringer Auflösung gemessenen Wirkungsquerschnitte für die Mehrfachionisation von Si^- sind in Abb. 6.2 dargestellt. Alle Wirkungsquerschnitte weisen einen Anstieg bei einer Photonenenergie von ca. 1835 eV auf. Dieser ist auf resonante Anregung eines $1s$ Elektrons in höhere Unterschalen zurückzuführen. Zwei breitere Resonanzen bei ca. 1840 und 1843 eV können in allen vier Querschnittskurven erkannt werden. Bei höheren Energien sind diese strukturlos. Dort werden die Wirkungsquerschnitte von der nicht-resonanten direkten Ionisation eines $1s$ -Elektrons dominiert. Die zugehörigen Schwellen werden von den Resonanzen unterhalb der Schwellen maskiert.

Das K -Loch entsteht entweder durch resonante Anregung oder nicht-resonante Ionisation. Es wird durch eine Kaskade von radiativen und Auger-Prozessen gefüllt. Diese resultieren in der beobachteten energieabhängigen Verteilung über die verschiedenen Produkt-Ladungszustände analog zu den Beobachtungen für C^- (siehe Kap. 5). Dort wurden $\text{C}^{(m-1)+}$ Produkt-Ladungszustände für $2 \leq m \leq 6$ detektiert. Im Vergleich mit den C^- Wirkungsquerschnitten sind die Querschnitte für Si^- eine Größenordnung kleiner. Dies folgt dem allgemeinen Trend von abnehmenden Photoionisationsquerschnitten bei zunehmender Kernladung. Ein weiterer signifikanter Unterschied zwischen C^- und Si^- betrifft den dominanten Ionisationskanal. Dieser ist σ_2 für C^- und σ_4 für Si^- . Dies ist auf die höhere Zahl von äußeren Elektronen im Si^- Ion zurückzuführen. Diese erlauben deutlich mehr Abregungspfade verglichen mit C^- . Insbesondere steigt die Anzahl der Möglichkeiten für Autoionisation von C^- zu Si^- .

Die gemessenen relativen Querschnitte wurden durch Anpassen des Summenquerschnitts

$$\sigma_{\Sigma} = \sum_{m=3}^6 \sigma_m \quad (6.2)$$

an den Absorptionsquerschnitt für neutrale Siliziumatome [133] auf die absolute Skala gebracht. Der Absorptionsquerschnitt ist ebenfalls in Abb. 6.2 gezeigt.

Offensichtlich gibt dieser Querschnitt die Energieabhängigkeit des experimentellen Wirkungsquerschnitts sehr gut wieder, mit Ausnahme der Energien, bei denen Resonanzen auftreten. Um σ_{Σ} zu skalieren, wurden alle Wirkungsquerschnitte σ_m mit einem passenden Faktor multipliziert. Dieses Verfahren wurde für C^- explizit gezeigt (siehe Kap. 5). Dort wurden unabhängige absolute Wirkungsquerschnitte gemessen und mit dem Absorptionsquerschnitt verglichen. Diese Prozedur ist valide, falls sicher angenommen werden kann, dass σ_{Σ} alle signifikanten Absorptionskanäle wiedergibt. Diese Annahme erscheint gerechtfertigt. Hierfür wird das Verhalten der Wirkungsquerschnitte σ_m darauf betrachtet. Deren Verlauf deutet darauf hin, dass der ungemessene Einfach- und Doppelionisationskanal sowie die Kanäle zu höheren Endladungszuständen mit $m > 6$ vernachlässigbar

klein sind. Der Einfachionisationskanal kann aufgrund des experimentellen Aufbaus nicht gemessen werden, da nur geladene Produktpartikel detektiert werden können. Weiterhin war der Doppelionisationskanal aufgrund eines sehr großen Untergrunds durch Kollisionen von Si^- mit Restgas nicht messbar. Aussagekräftige Ergebnisse wären in annehmbarer Zeit nicht zu messen gewesen. Messungen für die Mehrfachionisation mit $m > 6$ wurden aus Zeitgründen nicht versucht.

Die Wirkungsquerschnitte unterhalb von 1835 eV sind größer 0. Dies ist auf die direkte Ionisation eines L -Schalen Elektrons und nachfolgende (mehrfache) Autoionisation zurückzuführen. In diesem Energiebereich stimmt der Summenquerschnitt σ_Σ , wie bereits erwähnt, sehr gut mit dem Querschnitt für die Photoabsorption von neutralem Silizium überein. Dies ist ebenfalls der Fall für Energien oberhalb von 1855 eV, die über den Schwellen für direkte Ionisation eines K -Schalen Elektrons liegen.

Für neutrales Silizium wurde vorhergesagt, dass diese Schwelle bei 1838.9 eV [133] liegt (gestrichelte Linie in Abb. 6.2). Für Si^- wird der zugehörige stufenähnliche Wirkungsquerschnitt von den Resonanzen verdeckt, die direkt unterhalb dieser Schwellen liegen. Um detaillierte experimentelle Informationen über die Photoionisationsresonanzen zu erhalten, wurden zusätzliche Wirkungsquerschnittsmessungen mit höherer Auflösung als in Abb. 6.2 durchgeführt. Diese hochaufgelösten Messungen sind in Abb. 6.3 dargestellt. Die statistischen Ungenauigkeiten von σ_3 sind verhältnismäßig groß. Dies liegt an einem substantiellen Untergrund in diesem Kanal, der stark zu der gemessenen Zählrate in diesem Kanal beitrug. Solch ein Untergrund war in den anderen untersuchten Kanälen größtenteils abwesend.

In allen gemessenen Querschnitten ist das stärkste Merkmal eine vergleichsweise schmale Resonanz bei ~ 1838.4 eV mit einer experimentellen Breite von 0.55 eV. Eine zweite, breitere Resonanz bei ca. 1842.4 eV mit einer Breite von 2-3 eV ist in den Querschnitten für vierfache, fünffache und sechsfache Ionisation sichtbar. Die relative Stärke dieser Resonanz, verglichen mit der der schmaleren, nimmt mit zunehmendem Produktladungszustand zu.

Eine Doppelpeakstruktur wurde ebenfalls in der Mehrfachphotoionisation von C^- (Kap. 5) beobachtet. Dort wurde die erste Resonanz der $1s \rightarrow 2p$ Anregung in den $1s 2s^2 2p^4 {}^4P$ Zustand und die zweite, breitere Resonanz wurde weiteren Anregungen in höhere 4P Zustände, hauptsächlich von der $1s 2s^2 2p^3 3p$ Konfiguration, zugeordnet. Analog wäre die Zuordnung des $1s^{-1} 3p^4 {}^4P$ Zustands zu der ersten Resonanz von Si^- durch K -Schalen Anregung und einer Mischung verschiedener 4P Zustände durch $1s \rightarrow 4p$ Anregung zu der zweiten Resonanz. Rechnungen von Stephan Fritzsche bestätigen diese Zuordnung.

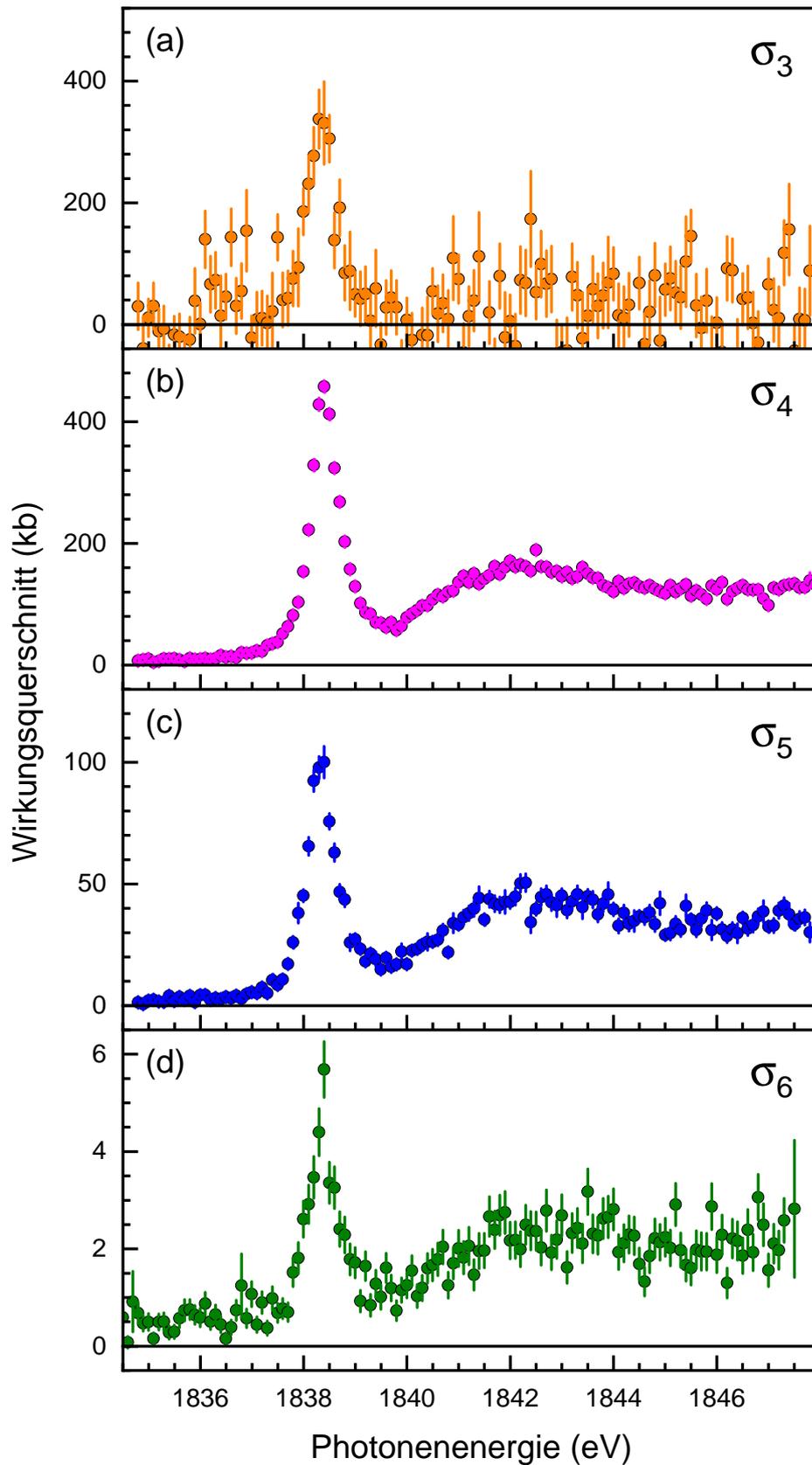


Abbildung 6.3 – Hochaufgelöste Wirkungsquerschnitte σ_m für m -fache ($m = 3 - 6$) Photoionisation von Si^- -Ionen in dem Energiebereich der Resonanzen nahe der K -Schwelle [39]. Die Breite des Monochromator-Austrittsspalts betrug $50 \mu\text{m}$. © American Physical Society (2021)

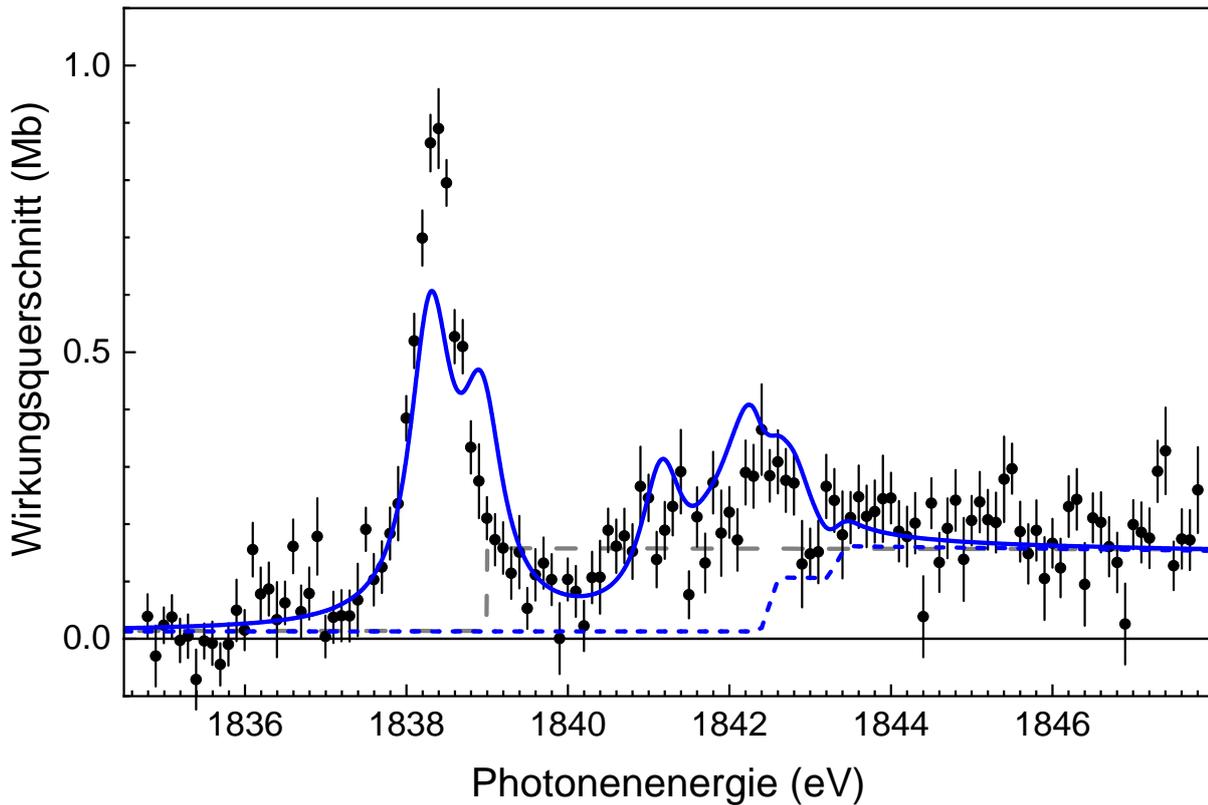


Abbildung 6.4 – Vergleich zwischen dem hochaufgelösten Summenwirkungsquerschnitt σ_{Σ} in Abb. 6.3 (Summe der gezeigten Wirkungsquerschnitte mit dem theoretischen Absorptionsquerschnitt (volle Linie) [39]. Die kurz-gestrichelte Linie repräsentiert den Beitrag von direkter Einfachionisation eines L - oder K -Schalen Elektrons zum Absorptionsquerschnitt. Wie in Abb. 6.2 ist die lang-gestrichelte Kurve der Querschnitt für Photoabsorption von neutralen Siliziumatomen [133]. © American Physical Society (2021)

In Abb. 6.4 wird der Vergleich zwischen der Summe der experimentellen Wirkungsquerschnitte aus Abb. 6.3 gezeigt. Die individuellen theoretischen Resonanzen werden durch Voigt-Linienprofile mit einer Gaußschen Breite von 0.05 eV dargestellt. Dies berücksichtigt die Breite der experimentellen Photonenenergieverteilung. Die berechnete Lorentzbreite von nahezu allen Resonanzen summiert sich zu 0.57 eV. Sie wird hauptsächlich durch KLL -Augerübergänge festgelegt, die das innere Loch auffüllen, und ist etwa 15% größer als die Breite des K -Niveaus von neutralem Silizium [176].

Die theoretischen Resonanzpositionen wurden um -1.3 eV verschoben, um diese mit den experimentellen Peakpositionen in Übereinstimmung zu bringen. Diese Verschiebung ist innerhalb der Ungenauigkeit der theoretischen Resonanzenergien. Um eine ähnliche Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment zu erreichen, wurde eine Verschiebung auf die berechneten Schwellenenergien von direkter K -Schalen-Ionisation angewandt. Die so erhaltenen Werte betragen 1842.5 und 1843.3 eV für die $1s^{-1} 3p^3 ({}^4S) {}^5S_2$ und $1s^{-1} 3p^3 ({}^4S) {}^3S_1$ Niveaus in neutralem Silizium.

Abgesehen von den offensichtlich nicht ganz korrekten relativen Linienstärken, ist die generelle Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie sehr zufriedenstellend angesichts der Komplexität des untersuchten Problems. Weiterhin ist zu erwähnen, dass für Energien über ~ 1846 eV die theoretischen Querschnitte für Photoabsorption von Si^- hervorragend mit dem Absorptionsquerschnitt von neutralem Silizium [133] übereinstimmen. Dies unterstützt die vorherige Annahme, dass die Anwesenheit des zusätzlichen Elektrons im Siliziumanion den Querschnitt für direkte Innerschalen-Ionisation nicht beeinflusst.

In Abb. 6.5a wird das Ergebnis der Kaskadenrechnungen, also der Verteilung von Produktladungszuständen $q = m - 1$ aus m -facher Photoionisation (Sterne in Abb. 6.5a) mit den zugehörigen experimentellen Werten

$$f_q = \frac{\sigma_{q+1}}{\sigma_\Sigma} \quad (6.3)$$

verglichen. Das Verhalten der Anteile der Produktladungszustände wird im Folgenden erklärt. Der Querschnitt unterhalb von ~ 1837 eV, also unter der ersten K -Schwelle, wird durch L -Schalen-Ionisation und nachfolgender Autoionisation zum Füllen der L -Schale dominiert. Über den kleinen dargestellten Energiebereich bleiben die Verzweungsverhältnisse in die unterschiedlichen Ladungszustände nahezu konstant. Daher weisen alle Wirkungsquerschnitte σ_{q+1} einen ähnlichen Verlauf als Funktion der Photonenenergie auf. Damit weisen auch die Anteile f_q diesen Verlauf auf.

Das ändert sich sobald K -Schalen-Löcher durch Anregung oder direkte Ionisation erzeugt werden. Der nachfolgende Augerprozess, der das K -Loch füllt, beeinflusst signifikant die Verzweungsverhältnisse und gibt höheren Ladungszuständen ein höheres Gewicht. Das ist offensichtlich für die $1s \rightarrow 3p$ -Resonanz bei etwa 1838 eV, wo der Anteil f_3 über f_2 steigt. Ein ähnliches Verhalten tritt ebenfalls (aber weniger stark) bei der K -Schalen-Ionisationsschwelle bei etwa ~ 1841 eV auf.

Bei Energien oberhalb von 1880 eV entsteht die Verteilung nahezu ausschließlich durch direkte Ionisation eines K -Schalen Elektrons und der nachfolgenden Auger-Kaskade. Diese erzeugt die unterschiedlichen Produktladungszustände. Die berechneten Anteile sind von korrekter Größenordnung. Für individuelle Ladungszustände weichen die theoretischen Werte von den zugehörigen experimentellen Werten um bis zu Faktor 2 ab. Diese Ungenauigkeiten mitteln sich heraus, wenn der mittlere Produktladungszustand betrachtet wird (Abb. 6.5b).

Die Abweichungen zwischen den experimentellen und theoretischen Werten von f_q sind auf die Approximationen zurückzuführen. Diese musste S. Fritzsche vornehmen, um die Kaskadenrechnungen und Verteilungen zu berechnen. Unterhalb der Schwelle für K -Schalen Ionisation hängt die Verteilung der Produktladungszustände von den unterschiedlichen

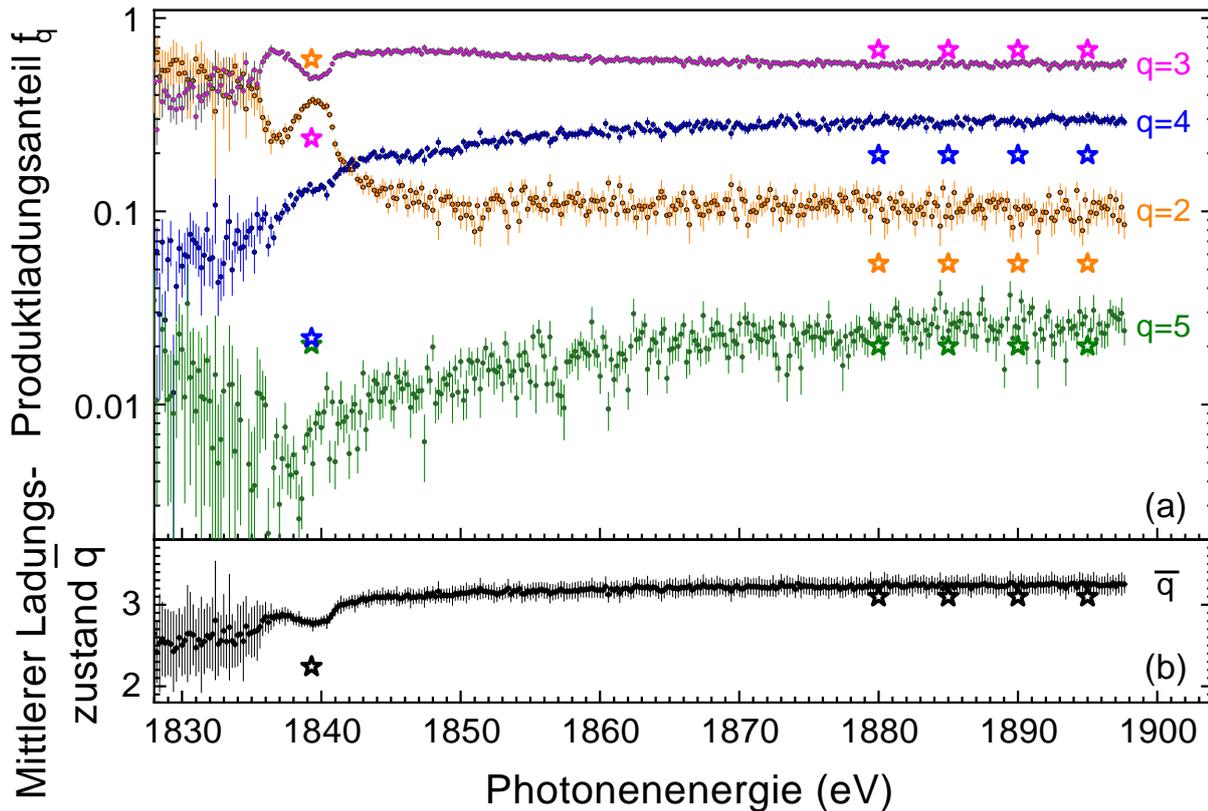


Abbildung 6.5 – Experimentelle (kleine schwarze Kreise mit Fehlerbalken) und theoretische (große Sterne) Si^{q+} Produktladungsanteile f_q (a) und mittlerer Ladungszustand $\bar{q} = \sum_q q f_q$ (b) [39]. © American Physical Society (2021)

K -Schalen angeregten Niveaus des Inner-Schalen-Lochs ab. Von theoretischer Seite ist dies noch anspruchsvoller als die Berechnung der Kaskaden, die der direkten K -Schalen-Ionisation folgen, da die angeregten Konfigurationen ein Elektron mehr als die ionisierten Konfigurationen enthalten.

Eine solche Berechnung wurde für die $1s^{-1} 3p^4$ Konfiguration durchgeführt. Die resultierenden Produktladungsanteile (Sterne bei ~ 1839 eV in Abb. 6.5) stimmen weniger gut mit den experimentellen Werten überein. Die Anteile für die Ladungszustände $q = 3$ und $q = 4$ werden um mehr als einen Faktor 2 unterschätzt und ergeben so einen signifikant zu kleinen mittleren Ladungszustand.

Zusammenfassung der Ergebnisse

Die hier vorgestellte Untersuchung zur mehrfachen Photoionisation von Siliziumanionen durch K -Schalen-Anregung und -Ionisation erweitert die bisherigen Arbeiten mit leichten Ionen (siehe [177] und Referenzen in dieser) um ein System mit einer teilweise besetzten

M-Schale. Diese zusätzliche Valenzschale fordert sowohl Experiment und Theorie in gleicher Weise heraus. Die experimentelle Herausforderung kommt von dem Fakt, dass der *K*-Schalen-Ionisationsquerschnitt mit zunehmender Kernladungszahl abnimmt. Der Querschnitt für die direkte Ionisation eines $1s$ -Elektrons ist für Siliziumanionen verglichen mit Kohlenstoffanionen eine Größenordnung kleiner.

Die Methode überlagerter Ionen- und Photonenstrahlen, wie bei der Synchrotronlichtquelle PETRA III implementiert, zeigte die Machbarkeit dieser Herausforderung mit dem hohen Photonenfluss von dem XUV-Strahlrohr P04 und der hohen Produkt-Selektivität des PIPE-Experiments als Schlüsselmerkmale [32]. Die gemessenen Wirkungsquerschnitte für drei- bis sechsfache Photoionisation zeigen eine Schwelle für direkte Photoionisation eines *K*-Schalen-Elektrons. Diese Schwelle wird verdeckt von Resonanzen durch $1s \rightarrow 3p$ und $1s \rightarrow 4p$ Anregungen, sofern nur Ein-Elektron-Anregungen betrachtet werden.

Die berechneten Resonanzpositionen stimmen innerhalb einer Ungenauigkeit von 2 eV mit hochaufgelösten Messungen überein. Die berechneten Resonanzstärken stimmen mit den Messungen ebenfalls überein, könnten aber verbessert werden. Gleiches gilt für die Ladungsverteilungen der Produktionen aus Kaskadenrechnungen. Abregungskaskaden, die direkte *K*-Schalen-Ionisation betrachten, stimmen mit den Ergebnissen gut überein. Die Kaskadenrechnungen, die $1s \rightarrow 3p$ -Anregung betrachten, stimmen nicht so gut überein. Die statistische Qualität der Daten von Si^- ist etwas geringer verglichen mit Daten von C^- (Kap. 5). Dies ist teilweise auf die bereits erwähnten kleineren Wirkungsquerschnitte als auch auf einen geringeren Photonenfluss zurückzuführen. Der Photonenfluss fällt bei Photonenenergien höher als 1000 eV stark ab.

Da C^- ($[\text{He}] 2s^2 2p^3$) und Si^- ($[\text{Ne}] 3s^2 3p^3$) analoge Konfigurationen mit offenen Schalen haben, war die Erwartung, Ähnlichkeiten im Verlauf des Ionisationsquerschnitts zu finden. Die naive Erwartung war, Resonanzen wie in der Dreifachionisation von C^- in Si^- zu finden. Hintergrund der Erwartung ist, dass beide Ionen eine ähnliche Elektronenkonfiguration aufweisen und die halb-gefüllte np -Schale diese vielen Resonanzen erlaubt. Tatsächlich ist die Doppel-Resonanzstruktur an der *K*-Schalen-Ionisationsschwelle bei beiden Ionen gleich. Zusätzliche kleinere Resonanzen bei höheren Energien, wie in der C^- -Dreifachionisation, konnten leider in keinem Photoionisationskanal von Si^- beobachtet werden.

Schlussendlich sollte festgehalten werden, dass die experimentellen und berechneten Querschnitte für die Photoabsorption von Si^- möglicherweise hilfreich zur Identifizierung von Siliziumanionen in kalten kosmischen Gaswolken durch ihre charakteristische Röntgenabsorptionskurven sein könnten [178].

7 Zusammenfassung der Ergebnisse

Die **Untersuchung von Edelgas-ähnlichen Anionen** wurde anhand von Fluoranianen bearbeitet. In der Doppel- und Dreifachionisation wurden keine Resonanzen entdeckt. Stattdessen ist direkte $1s + 2p$ -Doppelionisation sehr dominant in der Dreifachionisation. Dies ist in dem signifikanten Querschnittsanstieg ab ca. 700 eV erkennbar. Der Doppelionisationsquerschnitt liegt gut erkennbar auf dem darunterliegenden $1s$ -Ionisationsquerschnitt. Dieser nimmt monoton ab und konnte aus der Doppelionisation modelliert werden. Der Wirkungsquerschnitt für direkte Doppelphotoionisation kann durch einen Modellquerschnitt von Pattard sehr gut beschrieben werden. Der Doppelionisationsquerschnitt wurde weiterhin über einen erweiterten Energiebereich bis ca. 1000 eV gemessen. Bisherige Studien zur direkten Photoionisation von Anionen [179–181] waren auf Energiebereiche von wenigen Hundert meV nahe der Schwellenenergie beschränkt.

Das Projektziel **Dreifachionisation durch K -Schalen-Ionisation in Kohlenstoffanionen** wurde erfüllt. Neben der Dreifachionisation konnte auch die Vierfachionisation durch einfache K -Ionisation in Kohlenstoffanionen sowie die Fünffachionisation auf absoluter Skala untersucht werden. Die Experimente für C^- decken einen Energiebereich von ca. 280 eV bis 1000 eV ab und konnten mit geringen statistischen Fehlern gemessen werden. Die Daten zeigen eine Vielzahl bisher unbekannter Resonanzen und Ionisationsschwellen. Dies wird gerade im Vergleich mit den älteren Studien deutlich. Dort wurde nur eine Resonanz durch $1s \rightarrow 2p$ -Anregung in der Doppelionisation untersucht. In der Doppel-, Drei- und Vierfachionisation ist weiterhin eine breite Resonanz bei ca. 287 eV sichtbar. In der Drei- und Vierfachionisation ist ein weiterer Prozess erkennbar. Dieser setzt bei etwa 295 eV ein und wurde der $1s + 2p$ -Doppelionisation zugeordnet. Ab ca. 305 eV bleibt der Querschnitt dann nahezu konstant. In der Dreifachionisation wurden elf weitere Resonanzen bei Energien bis ca. 330 eV entdeckt. Besonders prägnant ist die Resonanz bei etwa 317.3 eV. Diese ist eine ausgeprägte Fano-Resonanz. Diese wird erst durch Doppelanregung des C^- -Grundzustands zugänglich. Weiterhin konnte experimentell gezeigt werden, dass der Summenwirkungsquerschnitt für Energien weit oberhalb der K -Kante mit dem Absorptionsquerschnitt von neutralem Kohlenstoff übereinstimmt.

In der Vier- und Fünffachionisation wurde das Projektziel **Ionisation durch K -Doppelionisation** untersucht. Diese Ladungszustände zeigen ab einer Photonenenergie von ca.

700 eV eine deutliche Abweichung voneinander. Die Vierfachionisation steigt bis ca. 450 eV an und fällt dann monoton. In der Fünffachionisation ist das Bild ein anderes. Die $1s$ -Ionisation ist als Kante erkennbar. Ab ca. 350 eV trägt $1s+2s$ -Doppelionisation maßgeblich zum Querschnitt bei. Der Querschnitt hat ein Maximum bei etwa 550 eV. Bei 670 eV setzt dann ein weiterer dominanter Prozess ein. Dieser wurde der $1s + 1s$ -Doppelionisation zugeordnet. Diese Schwellen passen mit den berechneten Werten überein. Diese Prozesse können in den anderen Ionisationskanälen nicht beobachtet werden. Dort werden sie von anderen Prozessen verdeckt. Wird das Modell von Pattard angewendet, ergibt sich, dass das Maximum der $1s$ -Doppelionisation bei etwa 891 eV mit einem Wirkungsquerschnitt 3.00 kb liegt. Über die Größe der Wirkungsquerschnitte konnte das Verhältnis von Doppel- zur Einfachionisation zu ca. 1% bestimmt werden. Dies passt zu Untersuchungen an Neon. Dort wurde dieses Verhältnis ebenfalls bestimmt und betrug 0.3%.

Mit dem Experiment an Siliziumanionen wurde auch das Projektziel **Resonanzen und Produktladungsverteilungen von Anionen mit Elektronen in der M -Schale** bearbeitet. Trotz des abnehmenden Wirkungsquerschnitts für K -Schalen-Ionisation und geringerer Photonenflüsse bei hohen Photonenergien konnte die m -fache Photoionisation ($m = 3 - 6$) von Siliziumanionen untersucht werden. Der summierte Wirkungsquerschnitt betrug im Maximum 0.25 Mb. Dies ist etwa ein Faktor 60 kleiner als für C^- . Die Photoionisation wurde für Siliziumanionen für Photonenergien von ca. 1830 eV bis 1900 eV gemessen. Nahe der K -Schwelle konnten bei Silizium zwei Resonanzen gemessen werden. Diese entstehen analog zu C^- durch Anregung eines $1s$ -Elektrons in höhere Unterschalen. Weitere Resonanzen wurden im untersuchten Energiebereich nicht gefunden. Die K -Löcher zerfallen hauptsächlich durch Augerkaskaden. Um theoretische Berechnungen dieser Kaskaden zu vergleichen, wurden aus den Wirkungsquerschnitten die Produktladungsverteilung und der mittlere Ladungszustand ermittelt. Für hohe Energien stimmen Theorie und Experiment nahezu überein. Bei Energien nahe der K -Schwelle, nahe der Resonanzen, weichen die theoretischen Ergebnisse aber signifikant von den experimentellen Daten ab.

Insgesamt konnten alle Projektziele erfolgreich bearbeitet werden. Die vorgestellten Ergebnisse erweitern die bisherigen Studien zu deutlich größeren Energiebereichen. Weiterhin wurde erstmals Vier- bis Sechsfachionisation mit geringen statistischen Unsicherheiten in Anionen untersucht. Die theoretischen Ergebnisse zeigen überzeugende Übereinstimmungen mit den Experimenten. Insbesondere unter der Berücksichtigung, dass die hier untersuchten Prozesse mit mindestens zwei Elektronen im Kontinuum nur näherungsweise und mit hohem Aufwand beschrieben werden können.

Literaturverzeichnis

- [1] BATES, D. R. ; MASSEY, H. S. W.: The negative ions of atomic and molecular oxygen. In: *Philos. Trans. R. Soc. London* **239** (1943), 269
- [2] ANDERSEN, T.: Atomic negative ions: structure, dynamics and collisions. In: *Phys. Reports* **394** (2004), 157–313. <http://dx.doi.org/10.1016/j.physrep.2004.01.001>. – DOI 10.1016/j.physrep.2004.01.001
- [3] KELLERBAUER, Alban ; WALZ, Jochen: A novel cooling scheme for antiprotons. In: *New J. Phys.* **8** (2006), 45
- [4] KELLERBAUER, A. ; FISCHER, A. ; WARRING, U.: Measurement of the zeeman effect in an atomic anion: prospects for laser cooling of Os⁻. In: *Phys. Rev. A* **89** (2014), 043430. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.89.043430>. – DOI 10.1103/PhysRevA.89.043430
- [5] DIAMOND, W. T. ; IMAHORI, Y. ; MCKAY, J. W. ; WILLS, J. S. C. ; SCHMEING, H.: Efficient negative-ion sources for tandem injection (invited). In: *Rev. Sci. Instrum.* **67** (1996), Nr. 3, 1404-1409. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1146648>. – DOI 10.1063/1.1146648
- [6] HEINEMANN, B. ; FANTZ, U. ; KRAUS, W. ; SCHIESKO, L. ; WIMMER, C. ; WÜNDERLICH, D. ; BONOMO, F. ; FRÖSCHLE, M. ; NOCENTINI, R. ; RIEDL, R.: Towards large and powerful radio frequency driven negative ion sources for fusion. In: *New J. Phys.* **19** (2017), jan, Nr. 1, 015001. <http://dx.doi.org/10.1088/1367-2630/aa520c>. – DOI 10.1088/1367-2630/aa520c
- [7] SAMUKAWA, S.: High-performance and damage-free neutral-beam etching processes using negative ions in pulse-time-modulated plasma. In: *Appl. Surf. Sci.* **253** (2007), Nr. 16, 6681-6689. <http://dx.doi.org/https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2007.02.003>. – DOI <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2007.02.003>. – ISSN 0169-4332

- [8] STAMATE, E. ; DRAGHICI, M.: High electronegativity multi-dipolar electron cyclotron resonance plasma source for etching by negative ions. In: *Journal of Applied Physics* **111** (2012), Nr. 8, 083303. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4704696>. – DOI 10.1063/1.4704696
- [9] RADOVANOV, S. ; SAMOLOV, A. ; DISTASO, D.: Extraction of positive and negative ion beams from large area plasma sources. **61** (2018), Nr. 1, 014031. <http://dx.doi.org/10.1088/1361-6587/aae8d0>. – DOI 10.1088/1361-6587/aae8d0
- [10] LINDAHL, A. O. ; ROHLÉN, J. ; HULTGREN, H. ; KIYAN, I. Y. ; PEGG, D. J. ; WALTER, C. W. ; HANSTORP, D.: Threshold photodetachment in a repulsive potential. In: *Phys. Rev. Lett.* **108** (2012), 033004. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.108.033004>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.108.033004
- [11] WALTER, C. W. ; GIBSON, N. D. ; MATYAS, D. J. ; CROCKER, C. ; DUNGAN, K. A. ; MATOLA, B. R. ; ROHLÉN, J.: Candidate for laser cooling of a negative ion: observations of bound-bound transitions in La^- . In: *Phys. Rev. Lett.* **113** (2014), 063001. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.113.063001>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.113.063001
- [12] BÄCKSTRÖM, E. ; HANSTORP, D. ; HOLE, O. M. ; KAMINSKA, M. ; NASCIMENTO, R. F. ; BLOM, M. ; BJÖRKHAGE, M. ; KÄLLBERG, A. ; LÖFGREN, P. ; REINHED, P. ; ROSÉN, S. ; SIMONSSON, A. ; THOMAS, R. D. ; MANNERVIK, S. ; SCHMIDT, H. T. ; CEDERQUIST, H.: Storing keV negative ions for an hour: the lifetime of the metastable $^2\text{P}_{1/2}^o$ level in $^{32}\text{S}^-$. In: *Phys. Rev. Lett.* **114** (2015), 143003. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.114.143003>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.114.143003
- [13] JORDAN, E. ; CERCHIARI, G. ; FRITZSCHE, S. ; KELLERBAUER, A.: High-resolution spectroscopy on the laser-cooling candidate La^- . In: *Phys. Rev. Lett.* **115** (2015), 113001. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.115.113001>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.115.113001
- [14] WINDELIUS, O. ; WELANDER, J. ; ALEMAN, A. ; PEGG, D. J. ; JAYAPRASAD, K. V. ; ALI, S. ; HANSTORP, D.: Photoelectron angular distributions in photodetachment from P^- . In: *Phys. Rev. A* **103** (2021), Mar, 033108. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.103.033108>. – DOI 10.1103/PhysRevA.103.033108
- [15] SI, R. ; ZHANG, C. Y. ; YAO, K. ; BRAGE, T. ; CHEN, C. Y. ; ZOU, Y. M.: Persistent discrepancy between experimental and theoretical lifetimes for Ni^- . In: *Phys. Rev. A* **95** (2017), 042504. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.95.042504>. – DOI 10.1103/PhysRevA.95.042504

-
- [16] SAFRONOVA, M. S. ; CHEUNG, C. ; KOZLOV, M. G. ; SPIELMAN, S. E. ; GIBSON, N. D. ; WALTER, C. W.: Predicting quasibound states of negative ions: La^- as a test case. In: *Phys. Rev. A* **103** (2021), 022819. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.103.022819>. – DOI 10.1103/PhysRevA.103.022819
- [17] GORCZYCA, T. W.: Inner-shell photodetachment dynamics. In: *Rad. Phys. Chem.* **70** (2004), 407–415. <http://dx.doi.org/10.1016/j.radphyschem.2003.12.023>. – DOI 10.1016/j.radphyschem.2003.12.023
- [18] BERRAH, N. ; BOZEK, J. D. ; TURRI, G. ; AKERMAN, G. ; RUDE, B. ; ZHOU, H.-L. ; MANSON, S. T.: K-shell photodetachment of He^- : Experiment and theory. In: *Phys. Rev. Lett.* **88** (2002), 093001. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.88.093001>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.88.093001
- [19] BILODEAU, R. C. ; BOZEK, J. D. ; AGUILAR, A. ; ACKERMAN, G. D. ; TURRI, G. ; BERRAH, N.: Photoexcitation of He^- hollow-ion resonances: Observation of the $2s\ 2p^2\ ^4P$ state. In: *Phys. Rev. Lett.* **93** (2004), 193001. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.93.193001>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.93.193001
- [20] BILODEAU, R. C. ; BOZEK, J. D. ; GIBSON, N. D. ; WALTER, C. W. ; ACKERMAN, G. D. ; DUMITRIU, I. ; BERRAH, N.: Inner-shell photodetachment thresholds: unexpected long-range validity of the wigner law. In: *Phys. Rev. Lett.* **95** (2005), 083001. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.95.083001>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.95.083001
- [21] BILODEAU, R. C. ; BOZEK, J. D. ; ACKERMAN, G. D. ; AGUILAR, A. ; BERRAH, N.: Photodetachment of He^- near the 1s threshold: Absolute cross-section measurements and postcollision interactions. In: *Phys. Rev. A* **73** (2006), 034701. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.73.034701>. – DOI 10.1103/PhysRevA.73.034701
- [22] BILODEAU, R. C. ; GIBSON, N. D. ; WALTER, C. W. ; AGUILAR, A. ; BERRAH, N.: Inner-shell photodetachment: shape and Feshbach resonances of anions. In: *J. Elec. Spectrosc. Rel. Phenom.* **185** (2012), 219–225. <http://dx.doi.org/10.1016/j.elspec.2012.06.015>. – DOI 10.1016/j.elspec.2012.06.015
- [23] KJELDSSEN, H. ; ANDERSEN, P. ; FOLKMANN, F. ; KRISTENSEN, B. ; ANDERSEN, T.: Inner-shell photodetachment of Li^- . In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **34** (2001), L353–L357. <http://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/34/10/107>. – DOI 10.1088/0953-4075/34/10/107
- [24] BERRAH, N. ; BOZEK, J. D. ; WILLS, A. A. ; TURRI, G. ; ZHOU, H.-L. ; MANSON, S. T. ; AKERMAN, G. ; RUDE, B. ; GIBSON, N. D. ; WALTER, C. W. ; VoKY, L. ; HIBBERT, A. ; FERGUSON, S. M.: K-shell photodetachment of Li^- : Experiment

- and theory. In: *Phys. Rev. Lett.* **87** (2001), 253002. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.87.253002>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.87.253002
- [25] BRAGE, T.: Atomic negative ions. In: *AIP Conf. Proc.* **260** (1992), 94-108. <http://dx.doi.org/10.1063/1.42625>. – DOI 10.1063/1.42625
- [26] ANDERSEN, T. ; HAUGEN, H. K. ; HOTOP, H.: Binding energies in atomic negative ions: III. In: *J. Phys. Chem. Ref. Data* **28** (1999), 1511–1533. <http://dx.doi.org/10.1063/1.556047>. – DOI 10.1063/1.556047
- [27] MIDDLETON, R.: A negative ion cookbook / Department of Physics, University of Pennsylvania. Philadelphia, USA, 1990. – Forschungsbericht
- [28] WALTER, C. W. ; GIBSON, N. D. ; BILODEAU, R. C. ; BERRAH, N. ; BOZEK, J. D. ; ACKERMAN, G. D. ; AGUILAR, A.: Shape resonance in K-shell photodetachment from C^- . In: *Phys. Rev. A* **73** (2006), 062702. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.73.062702>. – DOI 10.1103/PhysRevA.73.062702
- [29] SCHIPPERS, S. ; BEERWERTH, R. ; ABROK, L. ; BARI, S. ; BUHR, T. ; MARTINS, M. ; RICZ, S. ; VIEFHAUS, J. ; FRITZSCHE, S. ; MÜLLER, A.: Prominent role of multielectron processes in K-shell double and triple photodetachment of oxygen anions. In: *Phys. Rev. A* **94** (2016), 041401. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.94.041401>. – DOI 10.1103/PhysRevA.94.041401
- [30] VERNER, D. A. ; YAKOVLEV, D. G. ; BAND, I. M. ; TRZHASKOVSKAYA., M. B.: Subshell photoionization cross sections and ionization energies of atoms and ions from He to Zn. In: *At. Data Nucl. Data Tables* **55** (1993), 233–280. <http://dx.doi.org/10.1006/adnd.1993.1022>. – DOI 10.1006/adnd.1993.1022
- [31] SCHIPPERS, S. ; RICZ, S. ; BUHR, T. ; BOROVIK, A. Jr. ; HELLHUND, J. ; HOLSTE, K. ; HUBER, K. ; SCHÄFER, H.-J. ; SCHURY, D. ; KLUMPP, S. ; MERTENS, K. ; MARTINS, M. ; FLESCH, R. ; ULRICH, G. ; RÜHL, E. ; JAHNKE, T. ; LOWER, J. ; METZ, D. ; SCHMIDT, L. P. H. ; SCHÖFFLER, M. ; WILLIAMS, J. B. ; GLASER, L. ; SCHOLZ, F. ; SELTMANN, J. ; VIEFHAUS, J. ; DORN, A. ; WOLF, A. ; ULLRICH, J. ; MÜLLER, A.: Absolute cross sections for photoionization of Xe^{q+} ions ($1 \leq q \leq 5$) at the 3d ionization threshold. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **47** (2014), 115602. <http://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/47/11/115602>. – DOI 10.1088/0953-4075/47/11/115602
- [32] SCHIPPERS, S. ; BUHR, T. ; BOROVIK, A. Jr. ; HOLSTE, K. ; PERRY-SASSMANNSHAUSEN, A. ; MERTENS, K. ; REINWARDT, S. ; MARTINS, M. ; KLUMPP, S. ; SCHUBERT, K. ; BARI, S. ; BEERWERTH, R. ; FRITZSCHE, S. ; RICZ, S.

- ; HELMHUND, J. ; MÜLLER, A.: The photon-ion merged-beams experiment PIPE at PETRA III - The first five years. In: *X-Ray Spectrom.* **49** (2020), 11. <http://dx.doi.org/10.1002/xrs.3035>. – DOI 10.1002/xrs.3035
- [33] MÜLLER, A. ; BOROVNIK, A. Jr. ; BUHR, T. ; HELMHUND, J. ; HOLSTE, K. ; KILCOYNE, A. L. D. ; KLUMPP, S. ; MARTINS, M. ; RICZ, S. ; VIEFHAUS, J. ; SCHIPPERS, S.: Observation of a four-electron Auger process in near-K-edge photoionization of singly charged carbon ions. In: *Phys. Rev. Lett.* **114** (2015), 013002. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.114.013002>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.114.013002. – (editors suggestion) DESY press release: http://www.desy.de/news/news_search/index_eng.html?openDirectAnchor=710
- [34] MÜLLER, A. ; MARTINS, M. ; BOROVNIK, A. ; BUHR, T. ; PERRY-SASSMANNSHAUSEN, A. ; REINWARDT, S. ; TRINTER, F. ; SCHIPPERS, S. ; FRITZSCHE, S. ; KHEIFETS, A. S.: Role of *L*-shell single and double core-hole production and decay in *m*-fold ($1 \leq m \leq 6$) photoionization of the Ar^+ ion. In: *Phys. Rev. A* **104** (2021), 033105. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.104.033105>. – DOI 10.1103/PhysRevA.104.033105
- [35] MARTINS, M. ; REINWARDT, S. ; SCHUNCK, J. O. ; SCHWARZ, J. ; BAEV, K. ; MÜLLER, A. ; BUHR, T. ; PERRY-SASSMANNSHAUSEN, A. ; KLUMPP, S. ; SCHIPPERS, S.: Disentangling the Photodissociation Dynamics of the HF^+ Molecular Radical via Kinetic-Energy-Release-Resolved F 1s Core Excitation and Ionization. In: *J. Phys. Chem. Lett.* **12** (2021), Nr. 5, 1390-1395. <http://dx.doi.org/10.1021/acs.jpcllett.0c03356>. – DOI 10.1021/acs.jpcllett.0c03356. – PMID: 33508188
- [36] PERRY-SASSMANNSHAUSEN, A.: *Aufbau und Charakterisierung einer Cs-Sputter-Ionenquelle zur Erzeugung intensiver Strahlen negativer atomarer Ionen*, Justus-Liebig-Universität Gießen, Diplomarbeit, 2017
- [37] MÜLLER, A. ; BOROVNIK JR., A. ; BARI, S. ; BUHR, T. ; HOLSTE, K. ; MARTINS, M. ; PERRY-SASSMANNSHAUSEN, A. ; PHANEUF, R. A. ; REINWARDT, S. ; RICZ, S. ; SCHUBERT, K. ; SCHIPPERS, S.: Near-K-edge double and triple detachment of the F^- negative ion: observation of direct two-electron ejection by a single photon. In: *Phys. Rev. Lett.* **120** (2018), 133202. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.133202>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.120.133202
- [38] PERRY-SASSMANNSHAUSEN, A. ; BUHR, T. ; BOROVNIK, A. ; MARTINS, M. ; REINWARDT, S. ; RICZ, S. ; STOCK, S. O. ; TRINTER, F. ; MÜLLER, A. ; FRITZSCHE, S. ; SCHIPPERS, S.: Multiple Photodetachment of Carbon Anions via Single and Double Core-Hole Creation. In: *Phys. Rev. Lett.* **124** (2020), 083203.

- <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.124.083203>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.124.083203
- [39] PERRY-SASSMANNSHAUSEN, A. ; BUHR, T. ; MARTINS, M. ; REINWARDT, S. ; TRINTER, F. ; MÜLLER, A. ; FRITZSCHE, S. ; SCHIPPERS, S.: Multiple photo-detachment of silicon anions via *K*-shell excitation and ionization. In: *Phys. Rev. A* **104** (2021), Nov, 053107. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.104.053107>. – DOI 10.1103/PhysRevA.104.053107
- [40] HELLBORG, R. ; SKOG, G.: Accelerator mass spectrometry. In: *Mass. Spectrom. Rev.* **27** (2008), Nr. 5, 398-427. <http://dx.doi.org/10.1002/mas.20172>. – DOI 10.1002/mas.20172
- [41] LITHERLAND, A. E. ; ZHAO, X.-L. ; KIESER, W. E.: Mass spectrometry with accelerators. In: *Mass. Spectrom. Rev.* **30** (2011), Nr. 6, 1037-1072. <http://dx.doi.org/10.1002/mas.20311>. – DOI 10.1002/mas.20311
- [42] PEGG, David J.: Structure and dynamics of negative ions. In: *Rep. Prog. Phys.* **67** (2004), 857–905
- [43] CERCHIARI, G. ; KELLERBAUER, A. ; SAFRONOVA, M. S. ; SAFRONOVA, U. I. ; YZOMBARD, P.: Ultracold Anions for High-Precision Antihydrogen Experiments. In: *Phys. Rev. Lett.* **120** (2018), Mar, 133205. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.133205>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.120.133205
- [44] LEIMBACH, D. ; KARLS, J. ; GUO, Y. ; AHMED, R. ; BALLOF, J. ; BENGTS-SON, L. ; BOIX PAMIES, F. ; BORSCHESKY, A. ; CHRYSALIDIS, K. ; ELIAV, E. ; FEDOROV, D. ; FEDOSSEEV, V. ; FORSTNER, O. ; GALLAND, N. ; GAR- CIA RUIZ, R. F. ; GRANADOS, C. ; HEINKE, R. ; JOHNSTON, K. ; KOSZORUS, A. ; KÖSTER, U. ; KRISTIANS-SON, M. K. ; LIU, Y. ; MARSH, B. ; MOLKA-NOV, P. ; PAŠTEKA, L. F. ; RAMOS, J. P. ; RENAULT, E. ; REPONEN, M. ; RINGVALL-MOBERG, A. ; ROSSEL, R. E. ; STUDER, D. ; VERNON, A. ; WAR- BINEK, J. ; WELANDER, J. ; WENDT, K. ; WILKINS, S. ; HANSTORP, D. ; ROTHE, S.: The electron affinity of astatine. In: *Nat. Commun.* **11** (2020), Nr. 1, 3824. <http://dx.doi.org/10.1038/s41467-020-17599-2>. – DOI 10.1038/s41467-020-17599-2. ISBN 2041–1723
- [45] TANG, R. ; SI, R. ; FEI, Z. ; FU, X. ; LU, Y. ; BRAGE, T. ; LIU, H. ; CHEN, C. ; NING, C.: Candidate for Laser Cooling of a Negative Ion: High-Resolution Photoelectron Imaging of Th^- . In: *Phys. Rev. Lett.* **123** (2019), 203002. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.123.203002>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.123.203002

- [46] FU, X. ; LU, Y. ; TANG, R. ; NING, C.: Electron affinity measurements of lanthanide atoms: Pr, Nd, and Tb. In: *Phys. Rev. A* **101** (2020), 022502. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.101.022502>. – DOI 10.1103/PhysRevA.101.022502
- [47] AVGOUSTOGLOU, E. N. ; BECK, D. R.: All-order relativistic many-body calculations for the electron affinities of Ca^- , Sr^- , Ba^- , and Yb^- negative ions. In: *Phys. Rev. A* **55** (1997), 4143–4149. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.55.4143>. – DOI 10.1103/PhysRevA.55.4143
- [48] WIGNER, E. P.: On the Behavior of Cross Sections Near Thresholds. In: *Phys. Rev.* **73** (1948), 1002–1009. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.73.1002>. – DOI 10.1103/PhysRev.73.1002
- [49] BRYANT, H. C. ; DIETERLE, B. D. ; DONAHUE, J. ; SHARIFIAN, H. ; TOOTOONCHI, H. ; WOLFE, D. M. ; GRAM, P. A. M. ; YATES-WILLIAMS, M. A.: Observation of Resonances near 11 eV in the Photodetachment Cross Section of the H^- Ion. In: *Phys. Rev. Lett.* **38** (1977), 228–230. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.38.228>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.38.228
- [50] LYON, I. C. ; PEART, B. ; WEST, J. B. ; DOLDER, K.: Measurements of absolute cross sections for the photoionisation of Ba^+ ions. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **19** (1986), 4137–4147
- [51] KJELDEN, H. ; FOLKMANN, F. ; KNUDSEN, H. ; RASMUSSEN, M. S. ; WEST, J. B. ; ANDERSEN, T.: Measurement of the absolute photoionization cross section of C^+ near threshold. In: *Astrophys. J.* **524** (1999), L143–L146
- [52] KJELDEN, H. ; FOLKMANN, F. ; KNUDSEN, H. ; RASMUSSEN, M. S. ; WEST, J. B. ; ANDERSEN, T.: Absolute photoionization cross section of K^+ ions from the $3p$ to the $3s$ threshold. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **32** (1999), 4457–4465. <http://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/32/18/306>. – DOI 10.1088/0953-4075/32/18/306
- [53] KJELDEN, H.: *Cross sections for photoionisation of positive atomic ions: Absolute measurements using synchrotron radiation*, University of Århus, Diss., 1999
- [54] SCHIPPERS, S. ; MÜLLER, A.: Photoionization of Astrophysically Relevant Atomic Ions at PIPE. In: *Atoms* **8** (2020), Nr. 3. <http://dx.doi.org/10.3390/atoms8030045>. – DOI 10.3390/atoms8030045. – ISSN 2218–2004
- [55] ANDERSEN, P. ; ANDERSEN, T. ; FOLKMANN, F. ; IVANOV, V. K. ; KJELDEN, H. ; WEST, J. B.: Absolute cross sections for the photoionization of $4d$ electrons in Xe^+ and Xe^{2+} ions. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **34** (2001), 2009–2019

- [56] MÜLLER, A. ; SCHIPPERS, S. ; HELLHUND, J. ; KILCOYNE, A. L. D. ; PHANEUF, R. A. ; MCCLAUGHLIN, B. M.: Photoionization of tungsten ions: experiment and theory for W5+. **52** (2019), sep, Nr. 19, 195005. <http://dx.doi.org/10.1088/1361-6455/ab39c8>. – DOI 10.1088/1361-6455/ab39c8
- [57] BERRAH, N. ; BILODEAU, R. C. ; DUMITRIU, I. ; BOZEK, J. D. ; GIBSON, N. D. ; WALTER, C. W. ; ACKERMAN, G. D. ; ZATSARINNY, O. ; GORCZYCA, T. W.: Shape resonances in the absolute K-shell photodetachment of B⁻. In: *Phys. Rev. A* **76** (2007), 032713. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.76.032713>. – DOI 10.1103/PhysRevA.76.032713
- [58] WANG, Kedong ; ZATSARINNY, Oleg ; BARTSCHAT, Klaus: Low-energy outer-shell photodetachment of the negative ion of boron. In: *Eur. Phys. J. D* **70** (2016), 1–7. <http://dx.doi.org/10.1140/epjd/e2016-70017-9>. – DOI 10.1140/epjd/e2016-70017-9
- [59] DUMITRIU, I. ; BILODEAU, R. C. ; WALTER, C.W. ; GIBSON, N.D. ; GORCZYCA, T. W. ; ZATSARINNY, O. ; BERRAH, N.: Inner-shell photodetachment of boron negative ion. In: *Rev. Mex. de Fis.* (2010). <https://www.redalyc.org/articulo.oa?id=57030352015>. – ISSN 0035-001X
- [60] GIBSON, N. D. ; WALTER, C. W. ; ZATSARINNY, O. ; GORCZYCA, T. W. ; ACKERMAN, G. D. ; BOZEK, J. D. ; MARTINS, M. ; MCCLAUGHLIN, B. M. ; BERRAH, N.: K-shell photodetachment from C⁻: Experiment and theory. In: *Phys. Rev. A* **67** (2003), 030703(R). <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.67.030703>. – DOI 10.1103/PhysRevA.67.030703
- [61] HARBO, L. S. ; BECKER, A. ; DZIARZHYTSKI, S. ; DOMESLE, C. ; GUERASSIMOVA, N. ; WOLF, A. ; PEDERSEN, H. B.: Single and double electron photodetachment from the oxygen anion at 41.7 nm. In: *Phys. Rev. A* **86** (2012), 023409. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.86.023409>. – DOI 10.1103/PhysRevA.86.023409
- [62] GIBSON, N. D. ; BILODEAU, R. C. ; WALTER, C. W. ; HANSTORP, D. ; AGUILAR, A. ; BERRAH, N. ; MATYAS, D. J. ; LI, Y.-G. ; ALTON, R. M. ; LOU, S. E.: K-shell photodetachment from O⁻. In: *J. Phys.: Conf. Ser.* **388** (2012), 022102. <http://dx.doi.org/10.1088/1742-6596/388/2/022102>. – DOI 10.1088/1742-6596/388/2/022102
- [63] DAVIS, V. T. ; AGUILAR, A. ; COVINGTON, A. M. ; THOMPSON, J. S. ; CALABRESE, D. ; CISNEROS, C. ; GULLEY, M. S. ; HALKA, M. ; HANSTORP, D. ; SANDSTRÖM, J. ; MCCLAUGHLIN, B. M. ; GRIBAKIN, G. F. ; PEGG, D. J.: Photo-double detachment from the F⁻ ion. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **38** (2005), 2579

-
- [64] COVINGTON, A. M. ; AGUILAR, A. ; DAVIS, V. T. ; ALVAREZ, I. ; BRYANT, H. C. ; CISNEROS, C. ; HALKA, M. ; HANSTORP, D. ; HINOJOSA, G. ; SCHLACHTER, A. S. ; THOMPSON, J. S. ; PEGG, D. J.: Correlated processes in inner-shell photodetachment of the Na^- ion. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **34** (2001), L735–L740
- [65] EILES, Matthew T. ; GREENE, Chris H.: Extreme correlation and repulsive interactions in highly excited atomic alkali anions. In: *Phys. Rev. Lett.* **121** (2018), 133401. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.121.133401>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.121.133401
- [66] GORCZYCA, T. W. ; ZHOU, H.-L. ; HIBBERT, A. ; HASOGLU, M. F. ; MANSOON, S. T.: Inner-Shell Photodetachment of Na^- Using R-Matrix Methods. In: *Atoms* **8** (2020), Nr. 3. <http://dx.doi.org/10.3390/atoms8030060>. – DOI 10.3390/atoms8030060. – ISSN 2218–2004
- [67] BILODEAU, R. C. ; GIBSON, N. D. ; BOZEK, J. D. ; WALTER, C. W. ; ACKERMAN, G. D. ; ANDERSSON, P. ; HEREDIA, J. G. ; PERRI, M. ; BERRAH, N.: High-charge-state formation following inner-shell photodetachment from S^- . In: *Phys. Rev. A* **72** (2005), 050701
- [68] AGUILAR, A. ; THOMPSON, J. S. ; CALABRESE, D. ; COVINGTON, A. M. ; CISNEROS, C. ; DAVIS, V. T. ; GULLEY, M. S. ; HALKA, M. ; HANSTORP, D. ; SANDSTROM, J. ; MCLAUGHLIN, B. M. ; PEGG, D. J.: Double photodetachment from the Cl^- ion. In: *Phys. Rev. A* **69** (2004), 022711. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.69.022711>. – DOI 10.1103/PhysRevA.69.022711
- [69] SANDSTRÖM, J. ; ALVAREZ, I. ; CALABRESE, D. ; CISNEROS, C. ; COVINGTON, A. M. ; DAVIS, V. T. ; GULLEY, M. S. ; HALKA, M. ; HANSTORP, D. ; SCHLACHTER, F. S. ; THOMPSON, J. S. ; PEGG, D. J.: Triple photodetachment from the Cl^- ion. In: *Phys. Rev. A* **72** (2005), 034702. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.72.034702>. – DOI 10.1103/PhysRevA.72.034702
- [70] DUMITRIU, I. ; BILODEAU, R. C. ; GORCZYCA, T. W. ; WALTER, C. W. ; GIBSON, N. D. ; AGUILAR, A. ; PEŚĆ, Z. D. ; ROLLES, D. ; BERRAH, N.: Inner-shell photodetachment from Fe^- . In: *Phys. Rev. A* (2010), 053404. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.81.053404>. – DOI 10.1103/PhysRevA.81.053404
- [71] GIBSON, N. D. ; WALTER, C. W. ; R L FIELD, I. I. I. ; CARMAN, D. J. ; SHAPIRO, J. Z. ; BILODEAU, R. C. ; DUMITRIU, I. ; BERRAH, N. ; AGUILAR, A.: Inner-shell photodetachment from Se^- negative ions at the ALS. In: *J. Phys.: Conf. Ser.* **194** (2009), 022087
-

- [72] DUMITRIU, I. ; BILODEAU, R. C. ; GORCZYCA, T. W. ; WALTER, C. W. ; GIBSON, N. D. ; PEŚĆ, Z. D. ; ROLLES, D. ; BERRAH, N.: Inner-shell photodetachment from Ru⁻. In: *Phys. Rev. A* **82** (2010), 043434. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.82.043434>. – DOI 10.1103/PhysRevA.82.043434
- [73] KJELDSSEN, H. ; ANDERSEN, P. ; FOLKMANN, F. ; HANSEN, J. E. ; KITAJIMA, M. ; ANDERSEN, T.: Experimental study of 4f wavefunction contraction: 4d-photoionization of low-charged ions of I, Xe, Cs and Ba. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **35** (2002), 2845–2860
- [74] BILODEAU, R. C. ; DUMITRIU, I. ; GIBSON, N. D. ; WALTER, C. W. ; BERRAH, N.: Promoting a core electron to fill a *d* shell: a threshold law and shape and feshbach resonances. In: *Phys. Rev. A* **80** (2009), 031403. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.80.031403>. – DOI 10.1103/PhysRevA.80.031403
- [75] DUMITRIU, I. ; BILODEAU, R. C. ; GORCZYCA, T. W. ; WALTER, C. W. ; GIBSON, N. D. ; ROLLES, D. ; PEŚĆ, Z. D. ; AGUILAR, A. ; BERRAH, N.: Inner-shell photodetachment from Ni⁻: a giant Feshbach resonance. In: *Phys. Rev. A* **96** (2017), 023405. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.96.023405>. – DOI 10.1103/PhysRevA.96.023405
- [76] WALTER, C. W. ; GIBSON, N. D. ; LYMAN, N. B. ; WANG, J.: Photodetachment spectroscopy of quasibound states of the negative ion of lanthanum. In: *Phys. Rev. A* **102** (2020), 042812. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.102.042812>. – DOI 10.1103/PhysRevA.102.042812
- [77] KASHENOCK, G. Y. ; IVANOV, V. K.: Inner-shell resonant photodetachment of C⁻: the dramatic role of dynamical relaxation in collective response. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **39** (2006), 1379. <http://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/39/6/010>. – DOI 10.1088/0953-4075/39/6/010
- [78] IVANOV, V. K.: Theoretical studies of photodetachment. In: *Rad. Phys. Chem.* **70** (2004), 345–370. <http://dx.doi.org/10.1016/j.radphyschem.2003.12.020>. – DOI 10.1016/j.radphyschem.2003.12.020
- [79] TRASSL, R. ; THOMPSON, W. R. ; BROETZ, F. ; PAWLOWSKY, M. ; McCULLOUGH, R. W. ; SALZBORN, E.: Development of a 10 GHz "multi-mode" ECR ion source for the production of multiply charged ions from metallic elements. In: *Phys. Scr.* **T80** (1999), 504–506. <http://dx.doi.org/10.1238/Physica.Topical.080a00504>. – DOI 10.1238/Physica.Topical.080a00504

- [80] TRASSL, R.: *Entwicklung "vollpermanenter" EZR-Ionenquellen und Untersuchung des Ladungsaustauschs in Stößen zwischen 4-fach geladenen Wismut-ionen*, Justus-Liebig-Universität Gießen, Diss., 1999
- [81] BIRI, S. ; FEKETE, E. ; KITAGAWA, A. ; MURAMATSU, M. ; JANOSSY, A. ; PALLINKAS, J.: Fullerene in electron cyclotron resonance ion sources. In: *Rev. Sci. Instrum.* **77** (2006), 03A314
- [82] BILODEAU, R. C. ; GIBSON, N. D. ; WALTER, C. W. ; ESTEVES-MACALUSO, D. A. ; SCHIPPERS, S. ; MÜLLER, A. ; PHANEUF, R. A. ; AGUILAR, A. ; HOENER, M. ; ROST, J. M. ; BERRAH, N.: Single-photon multiple detachment in Fullerene negative ions: absolute ionization cross sections and the role of the extra electron. In: *Phys. Rev. Lett.* **111** (2013), 043003. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.043003>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.111.043003
- [83] MÜLLER, A. ; MARTINS, M. ; KILCOYNE, A. L. D. ; PHANEUF, R. A. ; HELMHUND, J. ; BOROVIK, A. ; HOLSTE, K. ; BARI, S. ; BUHR, T. ; KLUMPP, S. ; PERRY-SASSMANNSHAUSEN, A. ; REINWARDT, S. ; RICZ, S. ; SCHUBERT, K. ; SCHIPPERS, S.: Photoionization and photofragmentation of singly charged positive and negative $\text{Sc}_3\text{N}@C_{80}$ endohedral fullerene ions. In: *Phys. Rev. A* **99** (2019), 063401. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.99.063401>. – DOI 10.1103/PhysRevA.99.063401
- [84] MEIER, J.: *Matching of the beam from a negative-ion source for capture in a penning trap*, Universität Heidelberg, Diplomarbeit, 2007
- [85] HEILMANN, A.: *Production and characterization of a mass-separated lanthanum anion beam*. Bachelor-Thesis, 2012
- [86] MIDDLETON, R. ; ADAMS, Charles T.: A close to universal negative ion source. In: *Nucl. Instrum. Methods* **118** (1974), 329–336. [http://dx.doi.org/10.1016/0029-554X\(74\)90634-X](http://dx.doi.org/10.1016/0029-554X(74)90634-X). – DOI 10.1016/0029-554X(74)90634-X
- [87] MIDDLETON, R.: A versatile high intensity negative ion source. In: *Nucl. Instrum. Methods* **214** (1983), 139–150. [http://dx.doi.org/10.1016/0167-5087\(83\)90580-X](http://dx.doi.org/10.1016/0167-5087(83)90580-X). – DOI 10.1016/0167-5087(83)90580-X
- [88] KÖNIG, M.: *Informationen über Ionenströme und Betrieb der MISS*. 2017. – private Mitteilung
- [89] WOLF, B. (Hrsg.): *Handbook of ion sources*. CRC Press, 1995. – ISBN 0-8493-2502-1

- [90] LUKNER, C.: Mechanisms for the production of negative ions in sputtering sources. In: *Nucl. Instrum. Methods* **167** (1979), Nr. 2, 249-254. [http://dx.doi.org/https://doi.org/10.1016/0029-554X\(79\)90012-0](http://dx.doi.org/https://doi.org/10.1016/0029-554X(79)90012-0). – DOI [https://doi.org/10.1016/0029-554X\(79\)90012-0](https://doi.org/10.1016/0029-554X(79)90012-0). – ISSN 0029-554X
- [91] SCHEER, M. ; BILODEAU, R. C. ; BRODIE, C. A. ; HAUGEN, H. K.: Systematic study of the stable states of C^- , Si^- , Ge^- and Sn^- via infrared laser spectroscopy. In: *Phys. Rev. A* **58** (1998), 2844–2856. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.58.2844>. – DOI 10.1103/PhysRevA.58.2844
- [92] MÜLL, D. ; GRUSSIE, F. ; BLAUM, K. ; GEORGE, S. ; GÖCK, J. ; GRIESER, M. ; HAHN, R. von ; HARMAN, Z. ; KÁLOSI, Á. ; KEITEL, C. H. ; KRANTZ, C. ; LYU, C. ; NOVOTNÝ, O. ; NUESSEIN, F. ; PAUL, D. ; SCHMIDT, V. C. ; SINGH, S. ; SUNIL KUMAR, S. ; URBAIN, X. ; WOLF, A. ; KRECKEL, H.: Metastable states of Si^- observed in a cryogenic storage ring. In: *Phys. Rev. A* **104** (2021), 032811. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.104.032811>. – DOI 10.1103/PhysRevA.104.032811
- [93] BLONDEL, C. ; CACCIANI, P. ; DELSART, C. ; TRAINHAM, R.: High-resolution determination of the electron affinity of fluorine and bromine using crossed ion and laser beams. In: *Phys. Rev. A* **40** (1989), 3698–3701. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.40.3698>. – DOI 10.1103/PhysRevA.40.3698
- [94] ELDER, F. R. ; GUREWITSCH, A. M. ; LANGMUIR, R. V. ; POLLOCK, H. C.: Radiation from Electrons in a Synchrotron. In: *Phys. Rev.* **71** (1947), 829. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.71.829.5>. – DOI 10.1103/PhysRev.71.829.5
- [95] WINICK, H. ; BIENENSTOCK, A.: Synchrotron radiation research. In: *Ann. Rev. Nucl. Part. Sci.* **28** (1978), 33–113
- [96] LYNCH, D. W.: Tantalus, a 240MeV Dedicated Source of Synchrotron Radiation, 1968-1986. In: *J. Synchr. Radiat.* **4** (1997), Nr. 6, 334. <http://dx.doi.org/https://doi.org/10.1107/S0909049597011758>. – DOI <https://doi.org/10.1107/S0909049597011758>
- [97] WINICK, H. ; BROWN, G. ; HALBACH, K. ; HARRIS, J.: Wiggler and undulator magnets. In: *Phys. Today* **34** (1981), Nr. 5, 50. <http://dx.doi.org/10.1063/1.2914568>. – DOI 10.1063/1.2914568
- [98] TAVARES, P. F. ; LEEMANN, S. C. ; SJÖSTRÖM, M. ; ANDERSSON, Å.: The MAXIV storage ring project. In: *J. Synchr. Radiat.* **21** (2014), 862–877. <http://dx.doi.org/10.1107/S1600577514011503>. – DOI 10.1107/S1600577514011503

-
- [99] TIEDTKE, K. ; AZIMA, A. ; BARGEN, N. von ; BITTNER, L. ; BONFIGT, S. ; DÜSTERER, S. ; FAATZ, B. ; FRÜHLING, U. ; GENSCHE, M. ; GERTH, Ch ; GUERASSIMOVA, N. ; HAHN, U. ; HANS, T. ; HESSE, M. ; HONKAVAAR, K. ; JASTROW, U. ; JURANIC, P. ; KAPITZKI, S. ; KEITEL, B. ; KRACHT, T. ; KUHLMANN, M. ; LI, W. B. ; MARTINS, M. ; NÚÑEZ, T. ; PLONJES, E. ; REDLIN, H. ; SALDIN, E. L. ; SCHNEIDMILLER, E. A. ; SCHNEIDER, J. R. ; SCHREIBER, S. ; STOJANOVIC, N. ; TAVELLA, F. ; TOLEIKIS, S. ; TREUSCH, R. ; WEIGELT, H. ; WELLHÖFER, M. ; WABNITZ, H. ; YURKOV, M. V. ; FELDHAUS, J.: The soft x-ray free-electron laser FLASH at DESY: beamlines, diagnostics and end-stations. In: *New J. Phys.* **11** (2009), 023029
- [100] FAATZ, B. ; BRAUNE, M. ; HENSLER, O. ; HONKAVAARA, K. ; KAMMERING, R. ; KUHLMANN, M. ; PLOENJES, E. ; ROENSCH-SCHULENBURG, J. ; SCHNEIDMILLER, E. ; SCHREIBER, S. ; TIEDTKE, K. ; TISCHER, M. ; TREUSCH, R. ; VOGT, M. ; WURTH, W. ; YURKOV, M. ; ZEMELLA, J.: The FLASH Facility: Advanced Options for FLASH2 and Future Perspectives. In: *Appl. Sci.* **7** (2017), Nr. 11. <http://dx.doi.org/10.3390/app7111114>. – DOI 10.3390/app7111114. – ISSN 2076–3417
- [101] WEISE, H. ; DECKING, W. u. a.: Commissioning and first lasing of the European XFEL. In: *Proc. FEL'17* (2017), 9–13
- [102] SCHMIDT, V.: Photoionization of atoms using synchrotron radiation. In: *Rep. Prog. Phys.* **55** (1992), 1483–1659
- [103] JAESCHKE, E. J. (Hrsg.) ; KHAN, S. (Hrsg.) ; SCHNEIDER, J. R. (Hrsg.) ; HASTINGS, J. B. (Hrsg.): *Synchrotron light sources and free-electron lasers: Accelerator physics, instrumentation and science applications; Second edition*. Springer, 2020. <http://dx.doi.org/10.1007/978-3-030-23201-6>. <http://dx.doi.org/10.1007/978-3-030-23201-6>. – ISBN 9783030232016
- [104] BUNDESMINISTERIUM FÜR BILDUNG UND FORSCHUNG: *Pressemitteilung 029/2006: Bundeshaushalt 2006 mit klarem Schwerpunkt bei Bildung und Forschung*. Pressemitteilung. https://petra3-project.desy.de/e274/e276/e1475/e17/infoboxContent18/pm_20060222-029_eng.pdf. Version: 2006, Abruf: 20.09.2020. – 22. Februar 2006
- [105] FRANZ, H. ; LEUPOLD, O. ; RÖHLSBERGER, R. ; ROTH, S.V. ; SEECK, O.H. ; SPENGLER, J. ; STREMPFER, J. ; TISCHER, M. ; VIEFHAUS, J. ; WECKERT, E. ; WROBLEWSKI, T.: Technical Report: PETRA III: DESY's New High Brilliance Third Generation Synchrotron Radiation Source. In: *Synch. Radiat. News* **19** (2006), Nr. 6, 25. <http://dx.doi.org/10.1080/08940880601064984>. – DOI 10.1080/08940880601064984
-

- [106] DESY: *Übersicht über die Strahlrohre bei PETRA III*. https://photon-science.desy.de/facilities/petra_iii/beamlines/index_eng.html. Version: 2021, Abruf: 04.10.2021. – Uhrzeit: 15:50
- [107] SCHROER, C. G. ; DESY DT. ELEKTR.-SYNCHR., Hamburg ; ROEHLBERGER, R. (Hrsg.) ; WECKERT, E. (Hrsg.) ; WANZENBERG, R. (Hrsg.) ; AGAPOV, I. (Hrsg.) ; BRINKMANN, R. (Hrsg.) ; LEEMANS, W. (Hrsg.): *PETRA IV: upgrade of PETRA III to the Ultimate 3D X-ray microscope. Conceptual Design Report*. Hamburg : Deutsches Elektronen-Synchrotron DESY, 2019. <http://dx.doi.org/10.3204/PUBDB-2019-03613>. <http://dx.doi.org/10.3204/PUBDB-2019-03613>. – ISBN 9783945931264
- [108] BORLAND, M. ; DECKER, G. ; EMERY, L. ; SAJAEV, V. ; SUN, Y. ; XIAO, A.: Lattice design challenges for fourth-generation storage-ring light sources. In: *J. Synchr. Radiat.* **21** (2014), Nr. 5, 912–936. <http://dx.doi.org/10.1107/S1600577514015203>. – DOI 10.1107/S1600577514015203
- [109] VIEFHAUS, J. ; SCHOLZ, F. ; DEINERT, S. ; GLASER, L. ; ILCHEN, M. ; SELTMANN, J. ; WALTER, P. ; SIEWERT, F.: The variable polarization XUV beamline P04 at PETRA III: optics, mechanics and their performance. In: *Nucl. Instrum. Methods A* **710** (2013), 151–154. <http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2012.10.110>. – DOI 10.1016/j.nima.2012.10.110
- [110] HALBACH, K.: Design of permanent multipole magnets with oriented rare earth cobalt material. In: *Nucl. Instrum. Methods* **169** (1980), Nr. 1, 1. [http://dx.doi.org/https://doi.org/10.1016/0029-554X\(80\)90094-4](http://dx.doi.org/https://doi.org/10.1016/0029-554X(80)90094-4). – DOI [https://doi.org/10.1016/0029-554X\(80\)90094-4](https://doi.org/10.1016/0029-554X(80)90094-4). – ISSN 0029-554X
- [111] Private Mitteilung von F. Trinter und M. Hoesch während eines Experiments.
- [112] TRONC, M. ; KING, G. C. ; READ, F. H.: Carbon K-shell excitation in small molecules by high-resolution electron impact. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **12** (1979), 137–157
- [113] HITCHCOCK, A. P. ; BRION, C. E.: K-shell excitation spectra of CO, N₂ and O₂. In: *J. Elec. Spectrosc. Rel. Phenom.* **18** (1980), 1–21. [http://dx.doi.org/10.1016/0368-2048\(80\)80001-6](http://dx.doi.org/10.1016/0368-2048(80)80001-6). – DOI 10.1016/0368-2048(80)80001-6
- [114] MÜLLER, A. ; BERNHARDT, D. ; BOROVNIK, A. Jr. ; BUHR, T. ; HELFHUND, J. ; HOLSTE, K. ; KILCOYNE, A. L. D. ; KLUMPP, S. ; MARTINS, M. ; RICZ, S. ; SELTMANN, J. ; VIEFHAUS, J. ; SCHIPPERS, S.: Photoionization of Ne atoms and Ne⁺ ions near the K edge: precision spectroscopy and absolute cross sections. In:

- Astrophys. J.* **836** (2017), 166. <http://dx.doi.org/10.3847/1538-4357/836/2/166>. – DOI 10.3847/1538-4357/836/2/166
- [115] KATO, M. ; MORISHITA, Y. ; OURA, M. ; YAMAOKA, H. ; TAMENORI, Y. ; OKADA, K. ; MATSUDO, T. ; GEJO, T. ; SUZUKI, I. H. ; SAITO, N.: Absolute photoionization cross sections with ultra-high energy resolution for Ar, Kr, Xe and N₂ in inner-shell ionization regions. In: *J. Elec. Spectrosc. Rel. Phenom.* **160** (2007), 39 – 48. <http://dx.doi.org/https://doi.org/10.1016/j.elspec.2007.06.003>. – DOI <https://doi.org/10.1016/j.elspec.2007.06.003>
- [116] BIZAU, J.-M. ; ESTEVA, J.-M. ; CUBAYNES, D. ; WUILLEUMIER, F. J. ; BLANCARD, C. ; FONTAINE, A. Compant L. ; COUILLAUD, C. ; LACHKAR, J. ; MARMORET, R. ; RÉMOND, C. ; BRUNEAU, J. ; HITZ, D. ; LUDWIG, P. ; DELAUNAY, M.: Photoionization of highly charged ions using an ECR ion source and undulator radiation. In: *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000), 435–438
- [117] SOLEIL SYNCHROTRON: *Beamline Presentation PLEIADES*. <https://www.synchrotron-soleil.fr/en/beamlines/pleiades>. Version: 2021, Abruf: 05.10.2021. – Uhrzeit: 11:32
- [118] COVINGTON, A. M. ; AGUILAR, A. ; COVINGTON, I. R. ; GHARAIBEH, M. ; SHIRLEY, C. A. ; PHANEUF, R. A. ; ÁLVAREZ, I. ; CISNEROS, C. ; HINOJOSA, G. ; BOZEK, J. D. ; DOMINGUEZ, I. ; SANT'ANNA, M. M. ; SCHLACHTER, A. S. ; BERRAH, N. ; NAHAR, S. N. ; McLAUGHLIN, B. M.: Photoionization of metastable O⁺ ions: experiment and theory. In: *Phys. Rev. Lett.* **87** (2001), 243002
- [119] MÜLLER, A. ; SCHIPPERS, S. ; ESTEVES-MACALUSO, D. ; HABIBI, M. ; AGUILAR, A. ; KILCOYNE, A. L. D. ; PHANEUF, R. A. ; BALLANCE, C. P. ; McLAUGHLIN, B. M.: Valence-shell photoionization of Ag-like Xe⁷⁺ ions: experiment and theory. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **47** (2014), 215202
- [120] ALNA'WASHI, G. A. ; LU, M. ; HABIBI, M. ; PHANEUF, R. A. ; KILCOYNE, A. L. D. ; SCHLACHTER, A. S. ; CISNEROS, C. ; McLAUGHLIN, B. M.: Valence-shell photoionization of the chlorine-like Ca³⁺ ion. In: *Phys. Rev. A* **81** (2010), 053416
- [121] BOZEK, J. ; ROBINSON, A. ; KELLAR, S.: New ALS beamline for high-resolution electron spectroscopy below 340 eV. In: *Synch. Radiat. News* **12** (1999), Nr. 5, 37. <http://dx.doi.org/10.1080/08940889908261036>. – DOI 10.1080/08940889908261036
- [122] KAWATSURA, K. ; YAMAOKA, H. ; OURA, M. ; HAYAISHI, T. ; SEKIOKA, T. ; AGUI, A. ; YOSHIGOE, A. ; KOIKE, F.: The 1s–2p resonance photoionization measurement

- of O^+ ions in comparison with an isoelectronic species Ne^{3+} . In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **35** (2002), 4147–4153
- [123] SCHIPPERS, S. ; KILCOYNE, A. L. D. ; PHANEUF, R. A. ; MÜLLER, A.: Photoionization of ions with synchrotron radiation: from ions in space to atoms in cages. In: *Contemp. Phys.* **57** (2016), 215–229. <http://dx.doi.org/10.1080/00107514.2015.1109771>. – DOI 10.1080/00107514.2015.1109771
- [124] RINN, K. ; MÜLLER, A. ; EICHENAUER, H. ; SALZBORN, E.: Development of single-particle detectors for keV ions. In: *Rev. Sci. Instrum.* **53** (1982), 829–837. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1137055>. – DOI 10.1063/1.1137055
- [125] COVINGTON, A. M. ; AGUILAR, A. ; COVINGTON, I. R. ; GHARAIBEH, M. F. ; HINOJOSA, G. ; SHIRLEY, C. A. ; PHANEUF, R. A. ; ÁLVAREZ, I. ; CISNEROS, C. ; DOMINGUEZ-LOPEZ, I. ; SANT’ANNA, M. M. ; SCHLACHTER, A. S. ; MCCLAUGHLIN, B. M. ; DALGARNO, A.: Photoionization of Ne^+ using synchrotron radiation. In: *Phys. Rev. A* **66** (2002), 062710
- [126] TIESINGA, E. ; MOHR, P. J. ; NEWELL, D. B. ; TAYLOR, B. N.: CODATA recommended values of the fundamental physical constants: 2018. In: *Rev. Mod. Phys.* **93** (2021), Jun, 025010. <http://dx.doi.org/10.1103/RevModPhys.93.025010>. – DOI 10.1103/RevModPhys.93.025010
- [127] TIESINGA, E. ; MOHR, P. J. ; NEWELL, D. B. ; TAYLOR, B. N.: CODATA Recommended Values of the Fundamental Physical Constants: 2018. In: *J. Phys. Chem. Ref. Data* **50** (2021), Nr. 3, 033105. <http://dx.doi.org/10.1063/5.0064853>. – DOI 10.1063/5.0064853
- [128] MIRONOV, V. ; STIEBING, K. E. ; HOHN, O. ; SCHMIDT, L. ; SCHMIDT-BÖCKING, H. ; RUNKEL, S. ; SCHEMPP, A. ; SHIRKOV, G. ; BIRI, S. ; KENÉZ, L.: Influence of the biased electrode on the plasma potential in ECRIS. In: *Rev. Sci. Instrum.* **73** (2002), Nr. 2, 623-625. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1431700>. – DOI 10.1063/1.1431700
- [129] TARVAINEN, O. ; SUOMINEN, P. ; KOIVISTO, H.: A new plasma potential measurement instrument for plasma ion sources. In: *Rev. Sci. Instrum.* **75** (2004), 3138–3145. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1790559>. – DOI 10.1063/1.1790559
- [130] KRONHOLM, R. ; KALVAS, T. ; KOIVISTO, H. ; LAULAINEN, J. ; MARTTINEN, M. ; SAKILDIEN, M. ; TARVAINEN, O.: Spectroscopic study of ion temperature in minimum-B ECRIS plasma. In: *Plas. Sourc. Sci. Technol.* **28** (2019), Nr. 7, 075006. <http://dx.doi.org/10.1088/1361-6595/ab27a1>. – DOI 10.1088/1361-6595/ab27a1

- [131] A NEW WINDOW TO PROBE ELECTRON-ELECTRON INTERACTIONS: A new window to probe electron-electron interactions. Version: 2019. https://photon-science.desy.de/research/scientific_media/desy_photon_science_annual_reports/2018/index_eng.html. In: *DESY Photon Science 2018 — Highlights and Annual Report*. 2019, 72. – https://photon-science.desy.de/research/scientific_media/desy_photon_science_annual_reports/2019/index_eng.html
- [132] YEH, J. J. ; LINDAU, I.: Atomic subshell photoionization cross sections and asymmetry parameters: $1 \leq Z \leq 103$. In: *At. Data Nucl. Data Tables* **32** (1985), 1–155. [http://dx.doi.org/10.1016/0092-640X\(85\)90016-6](http://dx.doi.org/10.1016/0092-640X(85)90016-6). – DOI 10.1016/0092-640X(85)90016-6
- [133] HENKE, B. L. ; GULLIKSON, E. M. ; DAVIS, J. C.: X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at $e = 50 - 30,000$ eV, $z = 1 - 92$. In: *At. Data Nucl. Data Tables* **54** (1993), 181–342. <http://dx.doi.org/10.1006/adnd.1993.1013>. – DOI 10.1006/adnd.1993.1013
- [134] BLONDEL, C. ; DELSART, C. ; GOLDFARB, F.: Electron spectrometry at the μeV level and the electron affinities of Si and F. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **34** (2001), L281. <http://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/34/9/101>. – DOI 10.1088/0953-4075/34/9/101
- [135] CARROLL, T. X. ; SHAW, R. W. Jr. ; THOMAS, T. D. ; KINDLE, C. ; BARTLETT, N.: Electron distribution in the xenon fluorides and xenon oxide tetrafluoride by ESCA and evidence for “orbital independence” in the xenon-fluorine bonding. In: *J. Am. Chem. Soc.* **96** (1974), 1989
- [136] Private Mitteilung von A. Müller aus bisher unveröffentlichten Experimenten mit positiv-geladenen Fluorionen.
- [137] WANNIER, G. H.: The threshold law for single ionization of atoms or ions by electrons. In: *Phys. Rev.* **90** (1953), 817–825. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.90.817>. – DOI 10.1103/PhysRev.90.817
- [138] PATTARD, T.: A shape function for single-photon multiple ionization cross sections. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **35** (2002), L207. <http://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/35/10/103>. – DOI 10.1088/0953-4075/35/10/103
- [139] WEHLITZ, R. ; HEISER, F. ; HEMMERS, O. ; LANGER, B. ; MENZEL, A. ; BECKER, U.: Electron-energy and -angular distributions in the double photoionization of helium. In: *Phys. Rev. Lett.* **67** (1991), 3764–3767. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.67.3764>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.67.3764

- [140] MCGUIRE, J. H. ; BERRAH, N. ; BARTLETT, R. J. ; SAMSON, J. A. R. ; TANIS, J. A. ; COCKE, C. L. ; SCHLACHTER, A. S.: The ratio of cross sections for double to single ionization of helium by high energy photons and charged particles. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **28** (1995), 913–940
- [141] SCHNEIDER, Tobias ; CHOCIAN, Peter L. ; ROST, Jan-Michael: Separation and identification of dominant mechanisms in double photoionization. In: *Phys. Rev. Lett.* **89** (2002), 073002. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.89.073002>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.89.073002
- [142] MCINTYRE, M. W. ; KINNEN, A. J. ; SCOTT, M. P.: Photo-double-ionization of the He and Be isoelectronic sequences within an intermediate-energy *R*-matrix framework. In: *Phys. Rev. A* **88** (2013), 053413. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.88.053413>. – DOI 10.1103/PhysRevA.88.053413
- [143] WEHLITZ, R. ; LUKIĆ, D. ; BLUETT, J. B.: Single and double photoionization of beryllium below 40 eV. In: *Phys. Rev. A* **71** (2005), 012707
- [144] ANGEL, G. C. ; SAMSON, James A. R.: Total photoionization cross sections of atomic oxygen from threshold to 44.3 Å. In: *Phys. Rev. A* **38** (1988), 5578–5585. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.38.5578>. – DOI 10.1103/PhysRevA.38.5578
- [145] HE, Z. X. ; MOBERG, R. ; SAMSON, J. A. R.: Threshold behavior in single-photon double ionization of atomic oxygen. In: *Phys. Rev. A* **52** (1995), 4595–4598. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.52.4595>. – DOI 10.1103/PhysRevA.52.4595
- [146] GORCZYCA, T. W. ; BALLANCE, C. P. ; MANSON, S. T. ; KILCOYNE, D. ; STOLTE, W. C.: Double photoionization of atomic oxygen: Feshbach resonances in the two-electron continuum. In: *Phys. Scr.* **96** (2021), apr, Nr. 6, 064005. <http://dx.doi.org/10.1088/1402-4896/abf18b>. – DOI 10.1088/1402-4896/abf18b
- [147] SOKELL, E. ; BOLOGNESI, P. ; KHEIFETS, A. ; BRAY, I. ; SAFGREN, S. ; AVALDI, L.: Signature of Two-Electron Interference in Angular Resolved Double Photoionization of Mg. In: *Phys. Rev. Lett.* **110** (2013), 083001. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.110.083001>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.110.083001
- [148] LABLANQUIE, P. ; PENENT, F. ; HIKOSAKA, Y.: Multi-electron coincidence spectroscopy: double photoionization from molecular inner-shell orbitals. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **49** (2016), 182002. <http://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/49/18/182002>. – DOI 10.1088/0953-4075/49/18/182002

-
- [149] YEROKHIN, Vladimir A. ; SURZHYKOV, Andrey: Relativistic theory of the double photoionization of heliumlike atoms. In: *Phys. Rev. A* **84** (2011), 032703. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.84.032703>. – DOI 10.1103/PhysRevA.84.032703
- [150] PINDZOLA, M. S. ; ABDEL-NABY, Sh A. ; ROBICHEAUX, F. ; COLGAN, J.: Single and double photoionization of Ne^{8+} . In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **47** (2014), 085002. <http://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/47/8/085002>. – DOI 10.1088/0953-4075/47/8/085002
- [151] KHEIFETS, A. S. ; BRAY, I. ; COLGAN, J. ; PINDZOLA, M. S.: Interference effects in L-shell atomic double photoionization. In: *J. Phys. B* **44** (2010), Nr. 1, 011002. <http://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/44/1/011002>. – DOI 10.1088/0953-4075/44/1/011002
- [152] McLAUGHLIN, B. M.: An R-matrix with pseudo-state approach to the single photon double ionization and excitation of the He-like Li^+ ion. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **46** (2013), 075204. <http://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/46/7/075204>. – DOI 10.1088/0953-4075/46/7/075204
- [153] PINDZOLA, M. S. ; BALLANCE, C. P. ; ABDEL-NABY, Sh A. ; ROBICHEAUX, F. ; ARMSTRONG, G. S. J. ; COLGAN, J.: Single and double photoionization of be and mg. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **46** (2013), 035201
- [154] COLGAN, J. ; EMMANOULIDOU, A. ; PINDZOLA, M. S.: Evidence for a T-Shape Break-Up Pattern in the Triple Photoionization of Li. In: *Phys. Rev. Lett.* **110** (2013), 063001. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.110.063001>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.110.063001
- [155] YEROKHIN, V. A. ; SURZHYKOV, A. ; FRITZSCHE, S.: Relativistic configuration-interaction calculation of $K\alpha$ transition energies in berylliumlike iron. In: *Phys. Rev.* **90** (2014), 022509. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.90.022509>. – DOI 10.1103/PhysRevA.90.022509
- [156] YIP, F. L. ; RESCIGNO, T. N. ; McCURDY, C. W.: Fully differential single-photon double photoionization of atomic magnesium. In: *Phys. Rev. A* **94** (2016), 063414. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.94.063414>. – DOI 10.1103/PhysRevA.94.063414
- [157] DESY Research Highlight 2020: Study at PETRA III: Multiple ionisation of carbon anions, https://photon-science.desy.de/news__events/news__highlights/study_at_petra_iii_multiple_ionisation_of_carbon_anions/index_eng.html
-

- [158] FELDMANN, D.: Infrared photodetachment measurements near thresholds of C^- . In: *Chem. Phys. Lett.* **47** (1977), 338–340. [http://dx.doi.org/10.1016/0009-2614\(77\)80032-8](http://dx.doi.org/10.1016/0009-2614(77)80032-8). – DOI 10.1016/0009-2614(77)80032-8
- [159] OPARIN, V. A. ; ILL'IN, R. N. ; SERENKOV, I.T. ; SOLOV'EV, E. S.: Negative ion excited states and the determination of their binding energy by electron detachment by an electric field. In: *Sov. Phys. JETP* **39** (1974), 989
- [160] JÖNSSON, P. ; GAIGALAS, G. ; BIEROŃ, J. ; FROESE-FISCHER, C. ; GRANT, I. P.: New version: Grasp2K relativistic atomic structure package. In: *Comput. Phys. Commun.* **184** (2013), 2197–2203. <http://dx.doi.org/10.1016/j.cpc.2013.02.016>. – DOI 10.1016/j.cpc.2013.02.016
- [161] FRITZSCHE, S.: The Ratip program for relativistic calculations of atomic transition, ionization and recombination properties. In: *Comput. Phys. Commun.* **183** (2012), 1525–1559. <http://dx.doi.org/10.1016/j.cpc.2012.02.016>. – DOI 10.1016/j.cpc.2012.02.016
- [162] FRITZSCHE, S.: A fresh computational approach to atomic structures, processes and cascades. In: *Comput. Phys. Commun.* **240** (2019), 1. <http://dx.doi.org/10.1016/j.cpc.2019.01.012>. – DOI 10.1016/j.cpc.2019.01.012
- [163] SCHIPPERS, S.: Analytical expression for the convolution of a Fano line profile with a gaussian. In: *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **219** (2018), 33–36. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jqsrt.2018.08.003>. – DOI 10.1016/j.jqsrt.2018.08.003
- [164] PÜTTNER, R. ; GOLDSZTEJN, G. ; CÉOLIN, D. ; RUEFF, J.-P. ; MORENO, T. ; KUSHAWAHA, R. K. ; MARCHENKO, T. ; GUILLEMIN, R. ; JOURNEL, L. ; LINDLE, D. W. ; PIANCASTELLI, M. N. ; SIMON, M.: Direct Observation of Double-Core-Hole Shake-Up States in Photoemission. In: *Phys. Rev. Lett.* **114** (2015), 093001. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.114.093001>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.114.093001
- [165] SOUTHWORTH, S. H. ; KANTER, E. P. ; KRÄSSIG, B. ; YOUNG, L. ; ARMEN, G. B. ; LEVIN, J. C. ; EDERER, D. L. ; CHEN, M. H.: Double K-shell photoionization of neon. In: *Phys. Rev. A* **67** (2003), 062712. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.67.062712>. – DOI 10.1103/PhysRevA.67.062712
- [166] GOLDSZTEJN, G. ; MARCHENKO, T. ; PÜTTNER, R. ; JOURNEL, L. ; GUILLEMIN, R. ; CARNIATO, S. ; SELLES, P. ; TRAVNIKOVA, O. ; CÉOLIN, D. ; LAGO, A. F. ; FEIFEL, R. ; LABLANQUIE, P. ; PIANCASTELLI, M. N. ; PENENT, F. ; SIMON, M.: Double-core-hole states in neon: lifetime, post-collision interaction, and spectral

- assignment. In: *Phys. Rev. Lett.* **117** (2016), 133001. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.117.133001>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.117.133001
- [167] CRYAN, J. P. ; GLOWNIA, J. M. ; ANDREASSON, J. ; BELKACEM, A. ; BERRAH, N. ; BLAGA, C. I. ; BOSTEDT, C. ; BOZEK, J. ; BUTH, C. ; DiMAURO, L. F. ; FANG, L. ; GESSNER, O. ; GUEHR, M. ; HAJDU, J. ; HERTLEIN, M. P. ; HOENER, M. ; KORNILOV, O. ; MARANGOS, J. P. ; MARCH, A. M. ; MCFARLAND, B. K. ; MERDJI, H. ; PETROVIĆ, V. S. ; RAMAN, C. ; RAY, D. ; REIS, D. ; TARANTELLI, F. ; TRIGO, M. ; WHITE, J. L. ; WHITE, W. ; YOUNG, L. ; BUCKSBAUM, P. H. ; COFFEE, R. N.: Auger electron angular distribution of double core-hole states in the molecular reference frame. In: *Phys. Rev. Lett.* **105** (2010), 083004. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.105.083004>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.105.083004
- [168] TAMASAKU, K. ; NAGASONO, M. ; IWAYAMA, H. ; SHIGEMASA, E. ; INUBUSHI, Y. ; TANAKA, T. ; TONO, K. ; TOGASHI, T. ; SATO, T. ; KATAYAMA, T. ; KAMESHI-MA, T. ; HATSUI, T. ; YABASHI, M. ; ISHIKAWA, T.: Double core-hole creation by sequential attosecond photoionization. In: *Phys. Rev. Lett.* **111** (2013), 043001. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.043001>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.111.043001
- [169] YOUNG, L. ; KANTER, E. P. ; KRÄSSIG, B. ; LI, Y. ; MARCH, A. M. ; PRATT, S. T. ; SANTRA, R. ; SOUTHWORTH, S. H. ; ROHRINGER, N. ; DiMAURO, L. F. ; DOUMY, G. ; ROEDIG, C. A. ; BERRAH, N. ; FANG, L. ; HOENER, M. ; BUCKSBAUM, P. H. ; CRYAN, J. P. ; GHIMIRE, S. ; GLOWNIA, J. M. ; REIS, D. A. ; BOZEK, J. D. ; BOSTEDT, C. ; MESSERSCHMIDT, M.: Femtosecond electronic response of atoms to ultra-intense x-rays. In: *Nature* **466** (2010), 56. <http://dx.doi.org/10.1038/nature09177>. – DOI 10.1038/nature09177
- [170] ELAND, J. H. D. ; TASHIRO, M. ; LINUSSON, P. ; EHARA, M. ; UEDA, K. ; FEIFEL, R.: Double Core Hole Creation and Subsequent Auger Decay in NH₃ and CH₄ Molecules. In: *Phys. Rev. Lett.* **105** (2010), 213005. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.105.213005>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.105.213005
- [171] BERRAH, N. ; FANG, L. ; MURPHY, B. ; OSIPOV, T. ; UEDA, K. ; KUKK, E. ; FEIFEL, R. ; MEULEN, P. van d. ; SALEN, P. ; SCHMIDT, H. T. ; THOMAS, R. D. ; LARSSON, M. ; RICHTER, R. ; PRINCE, K. C. ; BOZEK, J. D. ; BOSTEDT, C. ; WADA, S. ; PIANCASTELLI, M. N. ; TASHIRO, M. ; EHARA, M.: Double-core-hole spectroscopy for chemical analysis with an intense x-ray femtosecond laser. In: *Proc. Natl. Acad. Sci.* **108** (2011), 16912–16915. <http://dx.doi.org/10.1073/pnas.1111380108>. – DOI 10.1073/pnas.1111380108

- [172] NAKANO, M. ; PENENT, F. ; TASHIRO, M. ; GROZDANOV, T. P. ; ZITNIK, M. ; CARNIATO, S. ; SELLES, P. ; ANDRIC, L. ; LABLANQUIE, P. ; PALAUDOUX, J. ; SHIGEMASA, E. ; IWAYAMA, H. ; HIKOSAKA, Y. ; SOEJIMA, K. ; SUZUKI, I. H. ; KOUCHI, N. ; ITO, K.: Single Photon K^{-2} and $K^{-1}K^{-1}$ Double Core Ionization in C_2H_{2n} ($n = 1-3$), CO, and N_2 as a Potential New Tool for Chemical Analysis. In: *Phys. Rev. Lett.* **110** (2013), 163001. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.110.163001>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.110.163001
- [173] MARCHENKO, T. ; GOLDSZTEJN, G. ; JÄNKÄLÄ, K. ; TRAVNIKOVA, O. ; JOURNAL, L. ; GUILLEMIN, R. ; SISOURAT, N. ; CÉOLIN, D. ; ŽITNIK, M. ; KAVČIČ, M. ; BUČAR, K. ; MIHELIČ, A. ; MIRANDA, B. C. ; ISMAIL, I. ; LAGO, A. F. ; GEL'MUKHANOV, F. ; PÜTTNER, R. ; PIANCASTELLI, M. N. ; SIMON, M.: Potential energy surface reconstruction and lifetime determination of molecular double-core-hole states in the hard x-ray regime. In: *Phys. Rev. Lett.* **119** (2017), 133001. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.119.133001>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.119.133001
- [174] FEIFEL, R. ; ELAND, J. H. D. ; CARNIATO, S. ; SELLES, P. ; PÜTTNER, R. ; KOULENTIANOS, D. ; MARCHENKO, T. ; JOURNAL, L. ; GUILLEMIN, R. ; GOLDSZTEJN, G. ; TRAVNIKOVA, O. ; ISMAIL, I. ; MIRANDA, B. Cunha d. ; LAGO, A. F. ; CÉOLIN, D. ; LABLANQUIE, P. ; PENENT, F. ; PIANCASTELLI, M. N. ; SIMON, M.: Cationic double K-hole pre-edge states of CS_2 and SF_6 . In: *Sci. Rep.* **7** (2017), 13317. <http://dx.doi.org/10.1038/s41598-017-13607-6>. – DOI 10.1038/s41598-017-13607-6
- [175] MILLAR, T. J. ; WALSH, C. ; FIELD, T. A.: Negative ions in space. In: *Chem. Rev.* **117** (2017), 1765–1795. <http://dx.doi.org/10.1021/acs.chemrev.6b00480>. – DOI 10.1021/acs.chemrev.6b00480
- [176] CAMPBELL, J.L. ; PAPP, T.: WIDTHS OF THE ATOMIC K-N7 LEVELS. In: *At. Data Nucl. Data Tables* **77** (2001), Nr. 1, 1-56. <http://dx.doi.org/https://doi.org/10.1006/adnd.2000.0848>. – DOI <https://doi.org/10.1006/adnd.2000.0848>. – ISSN 0092-640X
- [177] SCHIPPERS, S. ; PERRY-SASSMANNSHAUSEN, A. ; BUHR, T. ; MARTINS, M. ; FRITZSCHE, S. ; MÜLLER, A.: Multiple photodetachment of atomic anions via single and double core-hole creation. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **53** (2020), Nr. 19, 192001. <http://dx.doi.org/10.1088/1361-6455/aba719>. – DOI 10.1088/1361-6455/aba719
- [178] GATUZZ, E. ; GORCZYCA, T. W. ; HASOGLU, M. F. ; SCHULZ, N. S. ; CORRALES, L. ; MENDOZA, C.: Silicon ISM X-ray absorption: the gaseous component. In: *Mon.*

Not. R. Astron. Soc.: Lett. **498** (2020), L20-L24. <http://dx.doi.org/10.1093/mnrasl/slaa119>. – DOI 10.1093/mnrasl/slaa119. – ISSN 1745–3925

- [179] DONAHUE, J. B. ; GRAM, P. A. M. ; HYNES, M. V. ; HAMM, R. W. ; FROST, C. A. ; BRYANT, H. C. ; BUTTERFIELD, K. B. ; CLARK, David A. ; SMITH, W. W.: Observation of two-electron photoionization of the H^- ion near threshold. In: *Phys. Rev. Lett.* **48** (1982), 1538–1541. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.48.1538>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.48.1538
- [180] BAE, Y. K. ; COGGIOLA, M. J. ; PETERSON, J. R.: Absolute cross section for near-threshold two-electron photoionization of He^- . In: *Phys. Rev. A* **28** (1983), 3378–3381. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.28.3378>. – DOI 10.1103/PhysRevA.28.3378
- [181] BAE, Y. K. ; PETERSON, J. R.: Near-threshold measurements of K^- two-electron photoionization cross sections. In: *Phys. Rev. A* **37** (1988), 3254–3258. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.37.3254>. – DOI 10.1103/PhysRevA.37.3254

A Anhang

Der Autor hat an folgenden Experimenten bzw. Messkampagnen teilgenommen:

Termin	Target	Prozess	Bemerkungen
05/2017	F ⁻	K^{-1} -PI ^a	<i>Phys. Rev. Lett.</i> 120 , 133202 (2018)
	Sc ₃ N@C ₈₀ ⁻	K^{-1} – / L^{-1} -PI	<i>Phys. Rev. A</i> 99 , 063401 (2019)
06/2017	Fe ²⁺ , Fe ³⁺	L^{-1} -PI	Fe ³⁺ : <i>Astrophys. J.</i> 887 , 189 (2019) Fe ²⁺ : <i>Astrophys. J.</i> 908 , 52 (2021)
10/2017	Ne ^{q+}	K^{-1} -PI	$q = 2 - 4$
11/2017	Si ^{q+}	K^{-1} -PI	$q = 1 - 3$
	Ar ⁺	L^{-2} -PI	Testmessungen
04/2018	Fe ²⁺ , Fe ³⁺	L^{-1} -PI	Verfeinerungen der Daten aus 2017
07/2018	C ⁻	K^{-1} -/ K^{-2} -PI	<i>Phys. Rev. Lett.</i> 124 , 083203 (2020)
09/2018	NH _x ⁺ , OH _x ⁺	KER ^b -aufgel. PI	Kollaboration M. Martins (Uni HH)
12/2018	Ar ⁺	L^{-2} -PI	Verfeinerung der Daten
04/2019	H ₂ O ⁺ , D ₂ O ⁺	KER-aufgel. PI	Koll. M. Martins (Uni HH)
05/2019	[C ⁴⁺] [*] , Ne, N ₂	versch.	Neuer Energiekalibrationsstandard ^c
06/2019	C ₁₄ H ₁₀ ⁺	PI von PAH ^d	Koll. M. Schnell (DESY/CAU Kiel)
08/2019	Si ⁻	K^{-1} -PI	Perry-Sassmannshausen <i>et al.</i> (2021)
11/2019	Ar ⁺	L^{-2} -PI	weitere Verfeinerung der Daten
03/2020	C _n ⁻	K^{-1} -PI	$n = 2 - 8$
	Ar ⁺	L^{-2} -PI	finale Verfeinerung der Daten
08/2020	F ^{q+}	K^{-1} -PI	$q = 5 - 7$
	HF ⁺	KER-aufgel. PI	<i>J. Phys. Chem. Lett</i> 12 , 1390 (2021)
10/2020	C ₃ H _x ⁺ , C ₄ H _x ⁺	Aromatizität	Kollaboration M. Martins
06/2021	O ⁻	K^{-1} -/ K^{-2} -PI	Ausbau der Daten aus <i>Phys. Rev. A</i> 94 , 041401(R)
09/2021	B ⁻	K^{-2} -PI	

^aPI = Photoionisation

^bKER = engl.: *kinetic energy release*, freiwerdende kinetische Energie (bei der Dissoziation von Molekülonen durch Photonenstoß), durch Messen des relativen Wirkungsquerschnitts an verschiedenen Magnetfeldern des Demerger-Magnets von PIPE kann der Wirkungsquerschnitt KER-aufgelöst gemessen werden (siehe bspw.: *Phys. Rev. A* **97**, 033401 (2018), *Phys. Chem. Chem. Phys.* **21**, 16505 (2019), *Phys. Chem. Chem. Phys.* **21**, 25415 (2019))

^cPräzisere Festlegung der Kalibrationsenergien für Synchrotronstrahlung durch Resonanzlagen der Photoionisation von Helium-ähnlichen Ionen (Zwei-Elektronen-Systeme). Die Resonanzpositionen können hinreichend genau berechnet werden (siehe bspw.: *Phys. Rev. A* **98**, 033416 (2018), *Rev. Sci. Instrum.* **89**, 063109 (2018). Aktuell genutzte Referenzenergien sind auf etwa 0.2 eV bekannt (z.B. *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **18**, 1 (1980), *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **34**, 363 (1984)).

^dPAH = engl.: *Polycyclic Aromatic Hydrocarbons*, Polyzyklische Aromatische Kohlenwasserstoffe.

... zu guter Letzt: Danke

Ich möchte mich herzlich bei Prof. Dr. Stefan Schippers für die Aufnahme in die Arbeitsgruppe ATOM- UND MOLEKÜLPHYSIK bedanken, ebenso wie für die Vergabe des sehr interessanten Themas und die immer vorhandene Hilfsbereitschaft. Auch hätte ohne ihn diese Arbeit nicht angefertigt werden können, dank der organisierten Finanzierung bei der DFG und der Beantragungen von Strahlzeiten, der Hilfe bei Problemen mit Origin und grundsätzlichen Fragen zur dahinterliegenden Physik.

Weiterhin möchte ich mich bei Prof. Dr. Alfred Müller für die informativen Austausche auf Strahlzeiten und Konferenzen und die interessanten Experimente an PIPE bedanken.

Björn Michel Döhring möchte ich für die gemeinsame Zeit im Büro und Studium und die anregenden Diskussionen zu diversen Themen mit häufig ungleichen Meinungen danken. Deine Hilfe im Labor und mit L^AT_EXwaren immer hilfreich. Danke auch für die gute Zeit und Zusammenarbeit von Beginn des Bachelorstudiums bis zum Ende unserer Promotionsprojekte.

Ebenfalls bedanken möchte ich mich bei Dr. Ticia Buhr für die Nachtschichten in Hamburg und die Hilfe im Projekt und bei Wartungen an PIPE sowie Dr. Alexander Borovik Jr. für die grundsätzliche Hilfsbereitschaft und den immer informativen Austausch.

Sebastian Fuchs und Dr. Pascal Scholz danke ich für Eis, Gespräche im Kaffeebüro und Reinigungsaktionen der Kaffeemaschine oder Essensbestellungen.

Für die schnelle und kompetente Hilfe bei mechanischen Problemen möchte ich mich bei dem Team der Feinmechanischen Werkstatt des Strahlencentrums, Frau Yvonne Kluckert, Herrn Henrik Schäfer und Herrn Klaus Feldbusch, bedanken.

Bei Dr. Florian Trinter bedanke ich mich für die immer bestehende Hilfsbereitschaft und unerschöpfliche Motivation, die er immer verstreut hat. Die Gespräche vor Ort oder auch in San Francisco waren immer mindestens informativ.

PD Dr. Michael Martins und M.Sc. Simon Reinwardt danke ich für die Austausche vor Ort und auf Konferenzen, aber auch für interessante Strahlzeiten mit defekter Ionenfalle und spontane Merged-Beam-Messungen.

Prof. Dr. Stephan Fritzsche danke ich für die Unterstützung von theoretischer Seite und angenehme Austausche auf User Meetings und Konferenzen.

Beim Beamline-Team von P04 möchte ich mich für die gute Kooperation und Hilfe, zu manchmal auch schwierigen Uhrzeiten, bedanken.

Frau Davina Franke möchte ich für das Korrigieren der Rechtschreibfehler bei meinen Abschlussarbeiten danken. Jetzt kommt keine mehr, keine Sorge.

Zuletzt möchte ich mich bei meinen Eltern und Großeltern für die gesamte Unterstützung während meines Studiums, speziell im Zeitraum dieser Arbeit, bedanken.

Bei meiner Freundin Ann möchte ich mich für die immer wieder motivierenden Worte und ihren Glauben an mich bedanken.

Selbstständigkeitserklärung

Ich erkläre:

Ich habe die vorgelegte Dissertation selbstständig und ohne unerlaubte fremde Hilfe und nur mit den Hilfen angefertigt, die ich in der Dissertation angegeben habe. Alle Textstellen, die wörtlich oder sinngemäß aus veröffentlichten Schriften entnommen sind, und alle Angaben, die auf mündlichen Auskünften beruhen, sind als solche kenntlich gemacht. Ich stimme einer evtl. Überprüfung meiner Dissertation durch eine Antiplagiat-Software zu. Bei den von mir durchgeführten und in der Dissertation erwähnten Untersuchungen habe ich die Grundsätze guter wissenschaftlicher Praxis, wie sie in der SATZUNG DER JUSTUS-LIEBIG-UNIVERSITÄT GIESSEN ZUR SICHERUNG GUTER WISSENSCHAFTLICHER PRAXIS niedergelegt sind, eingehalten.

ORT, DATUM

ALEXANDER PERRY-SASSMANNSHAUSEN

