

Untersuchung von Symmetrieeffekten in der Photodoppelionisation von Helium mit zirkular polarisiertem Licht

Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften

vorgelegt beim Fachbereich Physik
der Johann Wolfgang Goethe-Universität
in Frankfurt am Main

von
Matthias Achler
aus Frankfurt

Frankfurt am Main 1999

vom Fachbereich Physik der

Johann Wolfgang Goethe-Universität als Dissertation angenommen.

Dekan:

1. Gutachter:

2. Gutachter:

Datum der Disputation:

*Alles ist immer da in ihr. Vergangenheit und Zukunft kennt sie nicht.
Gegenwart ist ihre Ewigkeit...*

Johann Wolfgang Goethe

Meinen Eltern

Zusammenfassung

Diese Arbeit stellt ein kinematisch vollständiges Experiment zur Photodoppelionisation von Helium mit zirkular polarisiertem Licht vor. Es wurden zwei Messungen bei 99 eV und 174 eV Photonenenergie bei jeweils rechts und links zirkularer Polarisation mit Hilfe der Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy (COLTRIMS) am Elektronenspeicherring der Photon Factory durchgeführt. Das hochenergetische Elektron wurde in Koinzidenz mit dem He^{2+} -Rückstoßion nachgewiesen, sodaß die Impulsverteilung im Dreiteilchen-Endzustandsraum eindeutig und kinematisch vollständig ermittelt werden konnte.

Damit war es erstmals möglich die Winkelverteilung des langsamen Elektrons im Bezug auf die Emissionsrichtung des schnellen Elektrons über den gesamten Raum und für verschiedene Energieaufteilungen von $E_1 \in [12 \text{ eV}; 20 \text{ eV}]$ bzw. $E_1 \in [65 \text{ eV}; 95 \text{ eV}]$ darzustellen. In dieser Form werden die Resultate theoretischen Rechnungen nach der Convergent-Close-Coupling (CCC) Methode von Kheifets und Bray [1, 2] und verschiedenen Ergebnissen aus 3C-Rechnungen von Berakdar [3, 4, 5] gegenübergestellt. Außerdem wird ein Vergleich der inkohärent addierten Wirkungsquerschnitte für links und rechts zirkular polarisiertes Licht $d^5\sigma_+^{2+} + d^5\sigma_-^{2+}$ mit der ebenfalls inkohärenten Summe aus zwei Wirkungsquerschnitten der Photodoppelionisation mit linear polarisiertem Licht $d^5\sigma_x^{2+} + d^5\sigma_y^{2+}$ nach einem Vorschlag von Berakdar [6] angestellt.

Der zirkulare Dichroismus (CD oder Δ) ist die normierte Differenz aus den fünffach differentiellen Wirkungsquerschnitten für links und rechts zirkulare Polarisation: $\Delta = \frac{d^5\sigma_+^{2+} - d^5\sigma_-^{2+}}{d^5\sigma_+^{2+} + d^5\sigma_-^{2+}}$. In Form dieser Größe werden die Ergebnisse zuletzt mit den bis dahin einzigen experimentellen Resultaten von Viefhaus *et al.* [7] unter drei festen Winkeln und verschiedenen Energieaufteilungen verglichen.

Die Photodoppelionisation mit zirkular polarisiertem Licht stellt sich als geeigneter Test theoretischer Modelle im Hinblick auf die Unterschung der dynamischen Elektron-Elektron-Wechselwirkung heraus. Insbesondere entfallen gegenüber der Ionisation mit linear polarisiertem Licht hier zwei von vier kinematischen Auswahlregeln, woraus eine geringere Einschränkung der Winkelverteilung und letztlich ein strengerer Test der dynamischen Reaktionsmechanismen resultiert.

Die Vergleiche zeigen eine qualitative Übereinstimmung des Experiments und der Theorien für den zirkularen Dichroismus. In der Winkelverteilung bei 99 eV ist jedoch eine Diskrepanz der Ergebnisse mit allen Theorien zu erkennen. Die gefundenen Winkelverteilungen zeigen eine deutliche stärkere Tendenz zu entgegengesetzt gerichteter Emission beider Elektronen. Die Absolutwerte der differentiellen Wirkungsquerschnitte stimmen im Mittel mit dem Ergebnis der CCC-Rechnung überein, differieren aber um einen Faktor 1,5 in Abhängigkeit von der Energieaufteilung. Die 3C-Theorie eignet sich hingegen nicht zum Vergleich des absoluten Wirkungsquerschnitts. Der Vergleich mit den experimentellen Daten aus der Messung mit linear polarisiertem Licht bestätigt den Befund stärker in entgegengesetzter Richtung emittierter Elektronen. Bei 174 eV Photonenenergie zeigt die Winkelverteilung eine bessere Übereinstimmung mit der 3C-Theorie von Berakdar.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	vii
1 Einleitung	1
2 Theoretische Betrachtung der Photoionisation	11
2.1 Grundlagen elektromagnetischer Strahlung	11
2.1.1 Die Beschreibung des elektromagnetischen Feldvektors	11
2.1.2 Definition zirkularer Polarisierung	13
2.1.3 Die Stokes-Parametrisierung	14
2.2 Quantenmechanische Näherungsverfahren	15
2.2.1 Die photoneninduzierte Störung	15
2.2.2 Die Einfach- und Doppelionisation im Sinne der MBPT	22
2.2.3 Lösungsansätze mit genäherten Wellenfunktionen	25
2.2.4 CCC-Rechnung nach Bray <i>et al.</i>	31
2.3 Semiklassische Methoden, Wannier-Theorie	33
2.4 Parametrisierung der Winkelverteilungen	34
2.4.1 Einfachionisation	36
2.4.2 Doppelionisation	38
2.5 Der zirkulare Dichroismus	42
2.6 Die Kinematik der Photoabsorption	45
3 Experimentelle Grundlagen	47
3.1 Synchrotronstrahlung	47
3.1.1 Erzeugung und Charakterisierung	47
3.1.2 Spezielle Synchrotron-Komponenten	54
3.2 Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy (COLTRIMS)	60
3.2.1 Targetpräparation	61
3.2.2 Die Rückstoßionenimpulsmessung	65
3.2.3 Elektronenimpulsmessung	69
3.2.4 Die Teilchendetektoren und die Signalauslese	71
3.2.5 Technologischer Ausblick	74
4 Die Messungen	75
4.1 Experimentelle Bedingungen	75
4.1.1 Die Beamline	75

4.1.2	Die COLTRIMS-Apparatur	80
4.1.3	Elektronik	83
4.2	Datenanalyse	87
4.2.1	Rohdaten	87
4.2.2	Impulseichung	88
4.2.3	Berechnung der nicht gemessenen Impulskomponenten	92
4.2.4	Auflösung	93
4.2.5	Fehlerbetrachtung	93
4.2.6	Analyse des Polarisationsgrads	97
4.2.7	Untergrundabzug	99
4.2.8	Normierung der fünffach differentiellen Wirkungsquerschnitte	100
5	Zusammenstellung und Diskussion der Ergebnisse	103
5.1	Bisherige Resultate	103
5.2	Energieverteilung 99 eV und 174 eV	105
5.3	Impulsverteilung 99 eV und 174 eV	109
5.4	Elektronenwinkelverteilung 99 eV	113
5.4.1	Abzug linearer Anteile	115
5.4.2	Eindimensionale Winkelspektren	116
5.5	Elektronenwinkelverteilung 174 eV	123
5.6	Interpretation und Schlußfolgerung	127
6	Ausblick	133
A	Fünffach differentielle Wirkungsquerschnitte	139
A.1	Zweidimensionale Elektronenimpulsverteilung für 99 eV	139
A.2	Winkelverteilung für 99 eV	143
A.3	Winkelverteilung für 174 eV	155
A.4	Vergleich $d^5\sigma_x^{2+} + d^5\sigma_y^{2+}$ und $d^5\sigma_+^{2+} + d^5\sigma_-^{2+}$	159
A.5	Einfluß des Ionenimpulsnullpunkts auf die Winkelverteilung	164
B	Ausgesuchte Winkelverteilungen linearer Polarisation	167
C	Parametrisierung	169
C.1	Parametrisierung nach Klar und Fehr	169
C.2	Parametrisierung nach Malegat <i>et al.</i>	172
D	Legende	175

Kapitel 1

Einleitung

Es ist im Laufe dieses Jahrhunderts gelungen, schrittweise stets tiefere Einblicke in den Aufbau, die Struktur der Materie zu gewinnen. Bei jeder Steigerung der aufgewendeten Energie entdeckte man erneut spektroskopische Merkmale, die auf tieferliegende elementare Strukturen, die „Elementarteilchen“ und deren Wechselwirkungen hindeuteten. Jedoch ist schon längst, nämlich bei Eintauchen in die Welt des Atoms, die Grenze unserer bildhaften Vorstellung erreicht. In Folge dessen werden empirische Gesetzmäßigkeiten zunehmend durch Modelle akademischer Natur abgelöst. Diesen liegt dann oftmals der hohe Anspruch zugrunde, die mathematischen Konzepte zur Beschreibung der Gesetzmäßigkeiten eines möglichst großen Gültigkeitsbereichs in prägnante und kurze Form zu fassen. In dieser Abstraktion liegt nicht zuletzt auch ein gewisser ästhetischer Reiz. Die moderne Physik der mikroskopischen Welt ist in diesem Kontext eng mit zwei Begriffen verknüpft: *Wahrscheinlichkeit* und *Symmetrie*.

- Die Wahrscheinlichkeit resultiert aus dem Welle-Teilchen-Dualismus und manifestiert sich in der Quantenmechanik zum Beispiel in der Unschärferelation. Beim Übergang zur makroskopischen Welt tritt dieses Phänomen aufgrund der Kleinheit des Planckschen Wirkungsquantums jedoch nicht in Erscheinung.
- Auf der Symmetrie, die als eigenständiges Ordnungsprinzip in die Naturbeschreibung eingeht, beruhen zum Beispiel die Klassifizierungen aller mikroskopischer Teilchen und deren Wechselwirkungen, siehe zum Beispiel [8]. Dieses Prinzip manifestiert sich in der klassischen Physik gleichermaßen wie in der Quantenmechanik in Form von Erhaltungssätzen.

Beide Prinzipien sind mathematische Formulierungsversuche einer Welt, die zumindest teilweise unsere Anschauungskraft übersteigt und die zum Teil sogar unseren täglichen Erfahrungen zu widersprechen scheint. Intuitiv drängt sich daher die Frage auf: Liegen diese Prinzipien wirklich der Natur zugrunde? Einstein brachte diese Problematik in folgendem Satz zum Ausdruck [9]:

Insofern sich die Sätze der Mathematik auf die Wirklichkeit beziehen, sind sie nicht sicher und insofern sie sicher sind, beziehen sie sich nicht auf die Wirklichkeit.

Experimentelle Versuche sind aus dieser Sicht immer darauf ausgelegt, Anhaltspunkte für die Einhaltung oder Nichteinhaltung der entsprechenden mathematischen Idealisierungen zu finden. Beispielsweise der Begriff der Wahrscheinlichkeit oder der Unschärfe führt auf zahlreiche Paradoxa, die man in ebenso zahlreichen Gedankenexperimenten zu ergründen versuchte. Konkrete Versuche mit sogenannten Materiewellen scheiterten jedoch bislang immer an der Kleinheit der zu messenden Effekte respektive an der Unerreichbarkeit der benötigten Auflösung der Apparaturen. Erste Überlegungen zur Durchführung eines Experiments der Elektronenbeugung am Doppelspalt, eine Art Einstein-Podolski-Rosen-Experiment im Impulsraum [10] mit Hilfe der Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy (COLTRIMS) zeigen, daß es in einiger Zukunft aber doch möglich sein könnte, ein solches Experiment durchzuführen, siehe hierzu [11].

Im Zusammenhang mit der Formulierung von Symmetrien gilt: Je stärker eine Wechselwirkung ist, desto mehr Symmetrien unterliegt sie. Der Gültigkeitsbereich einiger Symmetrien wird also vorwiegend durch schwache Kräfte eingeschränkt. Läßt man das Gebiet der Hochenergiephysik außer Acht, zeigt sich, daß in der Natur allein die Brechung der Zentralsymmetrie durch den β -Zerfall vorzufinden ist. Andererseits kann man im Zusammenhang mit alltäglichen biologischen, chemischen oder physikalischen Erfahrungen in der Natur die verblüffende Feststellung machen, daß das Leben auf der Erde keineswegs symmetrisch ist. Warum gibt es beispielsweise keine Quellen magnetischer Felder, während das elektrische Feld bekanntermaßen Ladungen kennt? Und warum gibt es folglich nur elektrische Monopolfelder, aber keine magnetischen? Ebenso findet man zahlreiche Hinweise für das Vorhandensein von Zusammenhängen zwischen molekularer Chiralität und lebendigen Organismen. Während zum Beispiel rechtsdrehende Zuckermoleküle in ihrer Häufigkeit überwiegen, kommen dagegen weitestgehend nur linksdrehende Aminosäuren vor [12]. Andere physikochemische Zusammenhänge können wir zum Beispiel unmittelbar mit unseren Geschmacksnerven erfahren. Nur, soll die schwache Wechselwirkung allein verantwortlich sein für die Asymmetrie, die wir überall um uns herum beobachten können? Diese Vorstellung scheint absurd. Was sonst ist die Ursache dafür, daß Anhaltspunkte nicht perfekter Symmetrie in der „lebendigen Natur“ so zahlreich zu finden sind? Ist es das Wahrscheinlichkeits- oder Zufallsprinzip? Liegt an dieser Stelle möglicherweise, entgegen aller theoretischer Modelle, nicht noch eine ganz andere fundamentale Brechung der Symmetrie zugrunde? Oder verbietet der Schritt vom Mikroskopischen zum Makroskopischen eine Übertragbarkeit des Symmetrieprinzips, ebenso, wie es im Zusammenhang mit dem Welle-Teilchen-Dualismus der Fall ist?

In der Quantenmechanik der Atomhülle ist die Kopplung durch Photonen, also die elektromagnetische Wechselwirkung, die allen Prozessen zugrundeliegende Kraft. In ihrem Gültigkeitsbereich ist keine Brechung der fundamentalen Symmetrien Homogenität der Zeit (Energieerhaltung), Homogenität des Raums (Impulserhaltung), Isotropie des Raums (Drehimpulserhaltung), Isotropie der Zeit (Zeitumkehrinvarianz), Zentralsymmetrie (Paritätserhaltung) oder Ladungserhaltung bisher bekannt. Diese Symmetrien sind daher vollständig in der Theorie impliziert. Hinweise auf eine Symmetriebrechung erhielt man demnach durch Abweichungen experimenteller Befunde von den Resultaten quantenmechanischer Rechnungen.

Einen experimentellen Zugang zu Fragen der Symmetrie liefert die Untersuchung des kollektiven und des individuellen Verhaltens gleichberechtigter Teilchen in Mehrteilchensystemen. Es liegt nahe, diese Untersuchung beim Zusammenwirken zweier Elektronen zu beginnen: Das Heliumatom ist das einfachste System, bei dem Wechselwirkungen zwischen Elektronen eine Rolle spielen. Daran werden sofort grundlegende Unterschiede zur klassischen Vorstellung sichtbar¹: Die Umlaufzeit der Elektronen beträgt im Mittel etwa 10^{-17} s. Sie bewegen sich dabei auf einem mittleren Radius von 10^{-10} m. Klassisch betrachtet, würde diese Situation innerhalb kurzer Zeit durch einen Stoß der Elektronen zu einer Zustandsänderung des Atoms und damit zum Beispiel zu einer Autoionisation führen. Welche Ursache gibt es dafür, daß die Elektronen im gebundenen Zustand aber scheinbar keinen Einfluß aufeinander ausüben? Gibt es möglicherweise eine „Korrelation“ in der Elektronenbewegung, die über die Coulomb-Wechselwirkung hinaus die räumliche Verteilung oder die Impulsverteilung der Elektronen bestimmt?

Die Quantenmechanik umgeht das Problem, indem sie fordert, daß es prinzipiell nicht möglich ist, einzelne unter gleichartigen Teilchen zu verfolgen. Diese Forderung läßt sich direkt aus den Symmetrieeigenschaften der quantenmechanischen Grundgleichung, der Schrödinger-Gleichung ableiten. Der Zustand zweier (gebundener) Elektronen wird in Form einer gemeinsamen Wellenfunktion beschrieben, die Teilchen verlieren ihren Identität. Das heißt auch, die Elektronen sind vertauschbar, ohne daß sich eine physikalische Observable dadurch ändert. Daraus läßt sich (für Fermionen) die Antisymmetrie der Wellenfunktion unter Vertauschung der Elektronen ableiten. Diese wiederum führt durch Kopplung äußerer Felder und bei Anwendung der Erhaltungssätze zu Auswahlregeln für Übergänge. Die aufgezeigte Kette von Schlußfolgerungen spiegelt die enorme Bedeutung der Symmetrieeigenschaften in der Naturbeschreibung wider.

Jedoch stößt man bereits bei der quantenmechanischen Formulierung des Heliumatoms auf prinzipielle Probleme:

- Die Zustandsfunktion zweier Elektronen kann nicht analytisch exakt bestimmt werden, obgleich das Wechselwirkungspotential der Elektronen, das klassische Coulomb-Potential bekannt ist². Man ist daher auf Näherungen zur Beschreibung gebundener Elektronenzustände angewiesen, die beispielsweise bis zu mehrere hundert freie Variationsparameter enthalten können.
- Ein zweites Problem ergibt sich dadurch, daß die inneren Freiheitsgrade der Elektronenbewegung — die uns schließlich interessieren — nicht unmittelbar experimentell zugänglich sind: Es ist nicht möglich „in das Atom zu schauen“ ohne dieses zu „stören“, das heißt eine Änderung des Zustands herbeizuführen. Also stellt sich die Frage: Welche Form der Störung wählt man und wie kann man diese quantenmechanisch beschreiben? Einen Lösungsansatz bietet die Störungstheorie, diese jedoch ist ihrerseits nur ein Näherungsverfahren.

¹Bereits in der Beschreibung des Wasserstoffatoms zeigt sich, daß die klassischen Gesetze auf atomarer Ebene ihre Gültigkeit verloren haben. Dieses Problem gilt im Rahmen der Quantenmechanik als vollständig gelöst. Es wird in dieser Diskussion jedoch ausgeklammert, da die Wechselwirkung zwischen den Elektronen hier keine Rolle spielt.

²Eine analytische Lösung ist allerdings auch für das klassische Dreikörperproblem nicht möglich.

- Die Beschreibung des Endzustands ist mit denselben prinzipiellen Schwierigkeiten verbunden, wie die des Anfangszustands. Diese werden insbesondere bei der Beschreibung eines Kontinuum-Endzustands umso größer, je mehr freie Teilchen zu berücksichtigen sind.

Die Beiträge der einzelnen Unsicherheiten verschmelzen bei der Berechnung der Übergangswahrscheinlichkeit und damit der physikalischen Observablen zu einem Gesamtfehler. Dadurch wird es äußerst schwierig die einzelnen Näherungen, in diesem Fall beispielsweise die Grundzustandswellenfunktion des Heliumatoms, isoliert zu überprüfen. Mit einer Vielzahl systematischer experimenteller Variationen werden dennoch die Einflüsse der einzelnen Näherungen zumindest indirekt getestet und somit Erkenntnisse über den Aufbau des Atoms gewonnen: Als Störungen oder „Projektile“ werden im Prinzip alle geladenen Teilchen wie Elektronen, Positronen, Ionen oder Antiprotonen, die über ihr Coulomb-Potential mit dem „Target“-Heliumatom wechselwirken, verwendet. Darüber hinaus bieten Photonen, deren Wechselwirkung durch das elektromagnetische Vektorpotential vermittelt wird, eine hervorragende Möglichkeit zur Untersuchung atomarer Zustände. Weitere Erkenntnisse gewinnt man durch die Präparation verschiedener Anfangszustände, also durch Verwendung verschiedener Targetatome, Ionen, oder Moleküle und durch zusätzliche Ausrichtung, sofern es sich nicht um sphärisch symmetrische Zustände handelt. Zuletzt werden unterschiedlichste Endzustände getestet. Beispielsweise werden Mechanismen, die in Reaktionskanälen gebundener, teilweise oder vollständig ionisierter Endzustände münden, erforscht. Darüber hinaus gibt es noch exotischere Mechanismen, wie die Transferionisation, bei der eines oder mehrere Elektronen von einem gebundenen Target- in einen gebundenen Projektilzustand übergeht.

Hierzu sei eine Reihe an Beispielen aufgeführt:

Als klassischer Fall des Übergangs von einem gebundenen Anfangs- in einen ebenfalls gebundenen Endzustand gilt beispielsweise die spektroskopische Vermessung atomarer Energieniveaus (bzw. deren Übergänge) durch photonische Anregung. In der quantenmechanischen Rechnung wird die Störung, das heißt die Photoabsorption in Form der Dipolnäherung implementiert. Man benutzt die Resultate, um beispielsweise durch Variation einen Anfangszustand zu finden, der eine möglichst exakte Beschreibung der Energieeigenwerte liefert. Hier liegen unzählige Befunde für die Anwendbarkeit der Theorie, die nicht allein auf Zwei-Elektronensysteme beschränkt bleibt, vor. Ist jedoch mit einem auf diese Weise gewonnenen Ergebnis der Anfangszustand auch in anderen physikalischen Eigenschaften richtig erfasst? Die Rechnungen lösen nur das Eigenwertproblem der stationären Schrödingergleichung. Anders gesagt, es wird der über einen langen Zeitraum gemittelte Energieeigenwert eines Zustands berechnet. Jedoch ist nicht sicher, ob man in der Lage ist, mit demselben Anfangszustand die dynamischen Vorgänge elektronischer Korrelation zu beschreiben.

Genau solche dynamischen Vorgänge sind aber möglicherweise verantwortlich für das Zusammenspiel und den „Austausch von Informationen“ innerhalb des atomaren Mikrokosmos. Zahlreiche Beispiele aus Biologie und Chemie oder Festkörperphysik legen diese Vermutung nahe. Ein Einblick in die Dynamik des gebundenen Zustands wird dadurch erhofft, daß man durch eine kontrollierte und kurzzeitige Störung die Elektronen aus dem gebundenen Zustand in das Kontinuum befördert: Denn erst in solchen Ionisationsexpe-

rimenten lassen sich dynamische Komponenten messen. Auch hier bietet sich ein breites Spektrum an Untersuchungsmöglichkeiten. Angefangen bei Messungen des Endzustandsraums, in denen über einige oder gar alle Freiheitsgrade der Bewegung integriert wird, bis hin zu vollständig differentiellen Messungen kann man beispielsweise die Verteilung der Reaktionspartner im Impulsraum oder schlicht das Verhältnisses der Einfach- zur Doppelionisationswahrscheinlichkeit untersuchen. Anhand des letzten Beispiels ist den Einfluß der Elektron-Elektron-Wechselwirkung leicht zu verdeutlichen. Die störungstheoretischen Beschreibung der Photoionisation durch Absorption wird in der Regel in erster Ordnung durchgeführt. Danach gibt es genau nur eine Wechselwirkung zwischen dem Photon und einem der Elektronen, das Photon ist anschließend vernichtet. Demnach bedarf es aber unbedingt der Wechselwirkung zwischen den Elektronen, um eine Doppelionisation herbeizuführen. Zwei völlig unabhängige Teilchen, wie sie durch eine Produktwellenfunktion zweier 1s-Zustände beschrieben werden, sind dazu außerstande³. Das Verhältnis der Doppel- zur Einfachionisation gibt hier Aufschluß über die Stärke der Korrelation. Diesen Versuchen kommt in der modernen Atomphysik daher eine ganz zentrale Bedeutung zu [13, 14, 15, 16].

Einen direkteren Zugriff auf die dynamische Größe Impuls liefert beispielsweise die Messung des Compton-Profiles. Die Impulsverteilung eines an einem gebundenen Elektron gestreuten Photons spiegelt hier die Impulsverteilung des gebundenen Elektrons wider [17, 13].

Die Reihe von Hinweisen auf eine nicht perfekte Symmetrie setzt sich auch in neueren Befunden aus der Atomphysik fort. Solche zeigen, daß theoretische, zum Teil hochdifferentielle Wirkungsquerschnitte, die aus der einfachen unkorrelierten Bewegung der Elektronen resultieren, die Natur nicht befriedigend beschreiben. Mergel *et al.* fanden zum Beispiel, daß der totale Wirkungsquerschnitt für den „Thomas-Prozeß“ [18], einen speziellen Transferionisationsmechanismus, asymptotisch wie $v_p^{-7,4 \pm 1,0}$ mit der Zunahme der Projektilgeschwindigkeit abnimmt [11, 19, 20]. Die quantenmechanischen Ergebnisse sagen hingegen eine v_p^{-11} -Asymptotik voraus und sind damit in guter Übereinstimmung mit dem klassischen Befund von Thomas. Möglicherweise wurde in der Überhöhung der Wahrscheinlichkeit für diesen speziellen Prozeß bei größerer Projektilgeschwindigkeit bereits ein Hinweis auf eine stärkere Korrelation der Elektronen gefunden. Weitere Untersuchungen dieser Art müssen daher folgen, um zu sehen, ob die Beschreibung unkorrelierter Teilchen vielleicht doch nicht ausreicht, alle Phänomene auf atomarem Niveau zu erklären.

Oftmals sind die Einflüsse der Wechselwirkung der freien Teilchen nach dem Stoß Bestandteil der Untersuchung. Diese bereiten bisweilen bei der Beschreibung des Kontinuum-Endzustands erhebliche Probleme. Ihr Einfluß ist umso größer, je langsamer die Reaktion abläuft und ihre Berechnung ist umso schwieriger, je mehr freie Teilchen im Endzustand zu berücksichtigen sind. In vielen systematischen Untersuchungen sogenannter „PCI-Effekte“ (Post-Collision-Interaction) werden beispielsweise die Projektilenergie oder die Projektilladung variiert, um den Einfluß der Wechselwirkungszeit bzw. des Störpotentials zu testen. Als Beispiel sei der Vergleich der Longitudinalimpulsverteilung des Targetions nach Stößen mit Antiprotonen im Vergleich zu Protonen aufgeführt [21, 22].

³Dies ändert sich bereits, wenn man hier eine Wechselwirkung, frei von jeglicher Dynamik, durch die Einführung eines zeitlich gemittelten effektiven Kernpotentials berücksichtigt.

Noch einen Schritt weiter gehen Ionisationsexperimente mit sehr großen Störungen, die in extrem kurzer Zeit ablaufen. Der Gedanke hierbei ist, daß ein Austausch von Information während der Reaktionsdauer ausgeschlossen werden kann. Das heißt im Klartext, die Störung muß kurz sein, gemessen an der Umlaufzeit der gebundenen Elektronen⁴. Dadurch erhofft man sich, den dynamischen Zustand unmittelbar vor dem Ionisationsprozeß zu konservieren und die Bewegung von diesem Zeitpunkt an kräftefrei ablaufen zulassen [23]. Hierzu sind sehr hohe Projektilenergien und Ladungen erforderlich, um einen Puls genügender Leistungsdichte zu erzeugen. Solche Versuche finden an dem Schwerionensynchrotron der GSI statt.

Differentielle Photoionisationsexperimente mit Absorption (im folgenden nur als Photoionisation bezeichnet), zu denen auch die Experimente in dieser Arbeit zählen, haben gegenüber Streuexperimenten mit geladenen Projektilen den Vorteil, daß der Endzustand ein Teilchen weniger enthält. Das erleichtert einerseits die quantenmechanische Beschreibung, andererseits aber auch die Messung, da der Impulsraum des Endzustands um drei Freiheitsgrade reduziert ist. Darüber hinaus bieten sich aufgrund räumlicher Symmetrieforderungen Möglichkeiten die Photoionisation mit Hilfe sogenannter „Parametrisierungen“ zu beschreiben.

In zahlreichen der angesprochenen Versuche wie auch in dieser Arbeit kam die Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy zum Einsatz:

- Ionisation in Stößen mit schweren Ionen bei hohen Energien; SIS/GSI
- Einfach- zu Doppelionisations-Verhältnis in der Photoionisation; ESRF, HASYLAB/DESY
- Differentielle Messungen zur Photodoppelionisation; HASYLAB/DESY, ALS/LBNL
- Photodoppelionisation in Verbindung mit zirkularer Polarisation (diese Arbeit); Photon Factory/KEK
- Transferionisation, Einfach- und Doppel-Elektroneneinfang und Ionisation in Stößen mit Protonen und anderen leichten Projektilen bei mittleren und hohen Energien; IKF, RIKEN, J.R.Mcdonald Lab.
- Longitudinalimpulsverteilung in Stößen mit Antiprotonen; LEAR/CERN
- Ionisation in Stößen mit langsamen Ionen, Sattelpunktselektronen; ECR/LBNL, EZR/IKF, J.R.Mcdonald Lab.
- Elektronenstoßexperimente (e,2e) und (e,3e); GSI, IKF
- Elektronenverteilung orientierter Moleküle in der Photoionisation und in Stößen mit Protonen oder He¹⁺-Ionen; ALS/LBNL, IKF

⁴Oder noch strenger: Gemessen an der Übertragungsdauer von Informationen mit Lichtgeschwindigkeit über die mittlere Distanz zweier gebundener Elektronen

Für die nahe Zukunft sind noch weitere Untersuchungen geplant. An dieser Stelle seien nur Multiphotonenprozesse durch starke Laserfelder oder Messungen mit Positronen als Komplementärexperiment zu den (e,2e) und (e,3e)-Versuchen genannt.

COLTRIMS zeichnet in besonderer Weise aus, daß sie unmittelbar mit der Messung des Impuls-Endzustandsraums verknüpft ist. Der Endzustand n freier Teilchen enthält wenigstens $(3n-4)$ Freiheitsgrade oder Impulskomponenten. Kinematisch vollständige Experimente zählen insofern zu der Stärke dieser Technologie, da durch sehr große Nachweisraumwinkel und simultane Erfassung aller Teilchenenergien auch sehr anspruchsvolle Experimente, das heißt Prozesse mit geringen Wirkungsquerschnitten, ohne langwierige schrittweise Abtastung des $(3n-4)$ -dimensionalen Raums durchgeführt werden können. Viele der angesprochenen Experimente waren daher erstmals durch die Entwicklung dieses modernen Meßverfahrens möglich.

Angefangen mit der Pioniermessung von Schwarzkopf *et al.* [168] wurden bis heute eine ganze Reihe vollständig differentieller Photoionisationsexperimenten an Helium mit linear polarisiertem Licht durchgeführt. Hierin reihen sich auch zahlreiche Messungen von der Doppelionisationskontinuumsgrenze bis 40 eV darüber ein, bei denen die Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy zum Einsatz kam [25, 26, 27]. Diesen Resultaten stehen verschiedene theoretische Modelle zum Vergleich gegenüber. Beginnend mit der semiklassischen „Wannier-Theorie“ [28, 29, 30, 31, 32, 33, 34] über störungstheoretische „2C“- und „3C“-Modelle mit Endzuständen ebener Wellen (mit und ohne Coulomb-Korrekturen) [35, 36, 37, 40], bis hin zu sogenannten „Close-Coupling“-Rechnungen „CCC“ [41, 42, 43] und „2SC“ [44, 45, 46] findet man in den differentiellen Elektronenwinkelverteilungen bisweilen gute Übereinstimmung. Allen theoretischen Rechnung liegt die Dipolnäherung zur Beschreibung der elektromagnetisch induzierten Störung zugrunde.

Wie man sich anhand von Symmetrieüberlegungen klar machen kann, werden die differentiellen Wirkungsquerschnitte jedoch maßgeblich von kinematischen Auswahlregeln dominiert. Desweiteren tritt bei geringen Überschußenergien die Elektron-Elektron-Wechselwirkung im auslaufenden Kanal sehr stark hervor. Der Einblick in dynamische Vorgänge, wie zum Beispiel Ionisationsmechanismen nach dem Bild der „Many Body Perturbation Theory“ (MBPT), wird dadurch verschleiert. Ursache für die Auswahlregeln sind Symmetrien bezüglich der Polarisationsachse, die insbesondere in Verbindung mit der Ununterscheidbarkeit der Elektronen, und damit vor allem bei gleicher Energieaufteilung, zu Nullstellen in den Wirkungsquerschnitten führen.

Im Rahmen dieser Arbeit gelang es, kinematisch vollständige Ergebnisse zur Photodoppelionisation an Helium mit zirkular polarisiertem Licht zu gewinnen, die einen der Reaktionspartner über den gesamten dreidimensionalen Raum erfassen [47]. Damit ist es erstmals möglich die Verteilung der Elektronen über alle Relativwinkel darzustellen. Die Messung wurde mit Hilfe der COLTRIMS-Technologie an der Photon Factory (KEK) durchgeführt. Sie stellt nach dem Experiment von Viefhaus *et al.* [7] die bisher zweite Messung des sogenannten „zirkularen Dichroismus“ (CD) an Helium dar⁵. Der CD ist die

⁵Viefhaus *et al.* gelang es, im Gegensatz zu den hier vorgestellten Resultaten, jedoch nur, die Energieverteilung der Elektronen für drei selektive Winkelverteilungen darzustellen.

normierte Differenz aus den fünffach differentiellen Wirkungsquerschnitten für links und rechts zirkulare Polarisierung:

$$\Delta = \frac{d^5\sigma_+^{2+} - d^5\sigma_-^{2+}}{d^5\sigma_+^{2+} + d^5\sigma_-^{2+}}.$$

Dieses Experiment unterscheidet von den Photodoppelionisationsmessungen mit linear polarisiertem Licht zum einen, daß aufgrund des Wegfalls der Polarisationsachse die Anzahl der Auswahlregeln reduziert ist und somit ein stringenterer Test der dynamischen Anteile der Reaktion erwartet wird. Zum zweiten wird durch die zirkulare Polarisierung zusätzlich die Kontrolle über den Spin des einlaufenden Photons erhalten. Damit ist dieses Experiment zumindest im Anfangszustand, im Gegensatz zu der oben gebrauchten Sprechweise, tatsächlich kinematisch vollständig determiniert.

In diesem Experiment liegt somit eine Händigkeit des Anfangszustands vor, die sich auch — Paritätserhaltung vorausgesetzt — in der Winkelverteilung der Elektronen im Endzustand widerspiegeln muß. Dieser Sachverhalt sowie zwei weitere Beispiele werden in Abb. 1.1 erläutert:

Eine Händigkeit oder Chiralität tritt unter anderem überall dort auf, wo eine Kombination aus einem axialen und einem polaren Vektor gegeben ist. Ein zirkular polarisiertes Photon hat daher für sich genommen eine Chiralität, da sowohl sein Drehimpuls als auch sein Impuls feststehen. Damit hat also jeder der dargestellten Prozesse einen chiralen Anfangszustand.

Ein dreidimensionales Gebilde besitzt dann eine Chiralität, wenn man es nicht mit seinem Spiegelbild zur Deckung bringen kann. Ein Molekül gilt daher als chiral, wenn es aus mindestens vier unterscheidbaren Atomen in nicht koplanarer Geometrie zusammengesetzt ist⁶. Der Dichroismus kann hier folglich schon ohne zusätzliche Orientierung im Endzustand auftreten⁷. Ein Beispiel hierfür ist die integrale Absorptionswahrscheinlichkeit eines zirkular polarisierten Photons. Kehrt man die Polarisationsrichtung um, ändert sich auch die Absorptionswahrscheinlichkeit.

Nach der Absorption eines zirkular polarisierten Photons durch ein ausgerichtetes zweiatomiges Molekül kann die Chiralität im Endzustand nur auftreten, wenn es eine ausgezeichnete Emissionsrichtung eines Photoelektrons bezüglich der Propagationsrichtung des Lichts und der Molekülachse gibt.

Die Händigkeit im Endzustand tritt im Fall der Photoabsorption durch ein Heliumatom nur in der Doppelionisation zu Tage. Dann erst gibt es drei ausgezeichnete Richtungen. Das setzt allerdings die Unterscheidbarkeit der Elektronen im Endzustand voraus, das heißt, sie müssen unterschiedliche Impulse davontragen.

Ein chiraler Zustand hat immer eine negative Parität, ist also unter Rauminversion nicht invariant. Eine Paritätsverletzung in einem der geschilderten Prozesse läge demnach vor, wenn im Endzustand keine Händigkeit und somit positive Parität vorgefunden

⁶Die Chiralität kommt bei solchen Molekülen durch deren optische Aktivität zum Ausdruck, das heißt, sie sind in der Lage beispielsweise die Polarisationsrichtung eingestrahnten linear polarisierten Lichts zu drehen.

⁷Der CD ist in diesem Fall nicht im Sinn obiger Definitionsgleichung zu verstehen

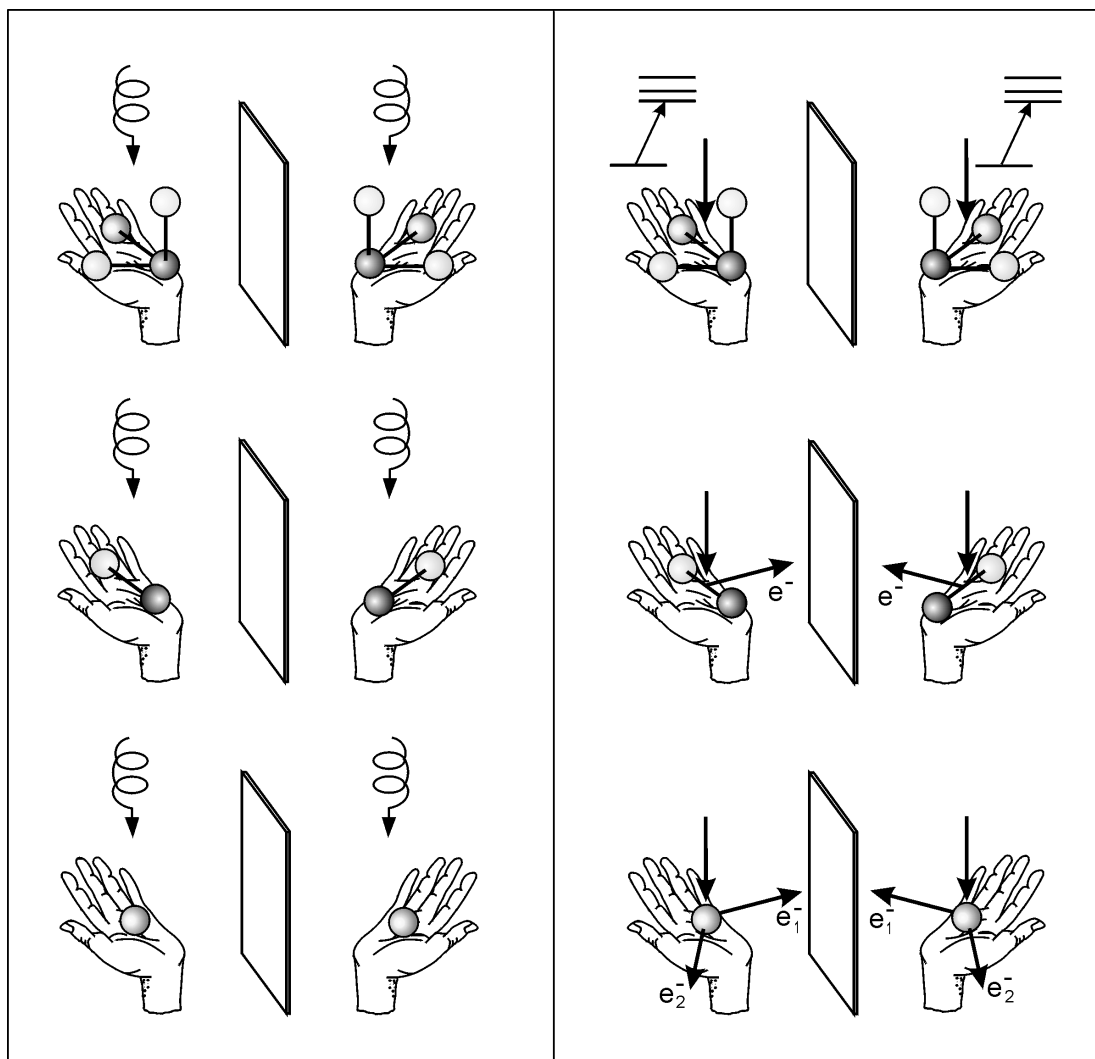


Abbildung 1.1: Händigkeit des Anfangszustands (links) und des Endzustands (rechts). Absorption eines chiralen Photons durch: Anregung eines chiralen Moleküls (oben); Einfachionisation eines ausgerichteten Atoms (mitte); Doppelionisation eines sphärisch symmetrischen Atoms (unten).

würde.

Daß in der Photodoppelionisation von Helium mit zirkular polarisiertem Licht eine Asymmetrie in der Winkelverteilung auftreten muß, ist demnach intuitiv klar. Nur, in welcher Richtung weist diese? Es ist sicher, daß die Richtung von der des Drehimpulses abhängen wird. Jedoch gibt es kein anschauliches Bild davon, wie der Drehimpuls eines Photons an der Bewegung der Elektronen ankoppelt. Weitere offene Fragen ergeben sich, wenn man die Betrachtung auf die Einfachionisation beschränkt. Da auch hier im Fall der Absorption eines zirkular polarisierten Photons ein chiraler Anfangszustand vorliegt, stellt sich die Frage, wodurch der scheinbar symmetrische Endzustand gerechtfertigt werden kann⁸. Gibt es eventuell auch in dem gebundenen Zustand des verbleibenden Elektrons eine Ori-

⁸Denn eine Händigkeit ist allein mithilfe der Emissionsrichtung eines Elektrons nicht zu erreichen.

entierung, die sich jedoch der Messung entzieht.

Gerade im Hinblick auf Fragen zur Chiralität ist die Photoionisation von Helium durch zirkular polarisiertes Licht, wie man sieht, in besonderer Weise mit dem Prinzip der Symmetrie und dem der quantenmechanischen Wahrscheinlichkeit gleichermaßen verknüpft. Darüber hinaus stellt sie zugleich den einfachsten Fall dar, an dem man solche Fragen untersuchen kann.

Es ist daher sicher anmaßend zu erwarten, daß mit Hilfe dieser Arbeit gelingen könnte, Einblicke in die Ursache chiraler Molekülstrukturen oder gar in die komplexe Natur der DNS und deren sagenhafte Mechanismen der Selbstreproduktion zu erhalten. Jedoch zeigt sich anhand der Beispiele, wie sehr Symmetrien in der Theorie verankert sind und daß bisweilen keine Anhaltspunkte für Abweichungen gefunden werden konnten. Und trotzdem scheinen weniger elementare Bausteine der Natur nicht die gleiche Neigung zur Symmetrie zu haben.

Die Quantenmechanik ist gewiß ein sehr nützliches Werkzeug um Einblicke in den Aufbau der Materie zu erhalten. Es steht daher außer Frage, sie generell anzuzweifeln. Es gilt vielmehr die Fragen zu beantworten: An welcher Stelle endet der Gültigkeitsbereich der Quantenmechanik? Endet er überhaupt? Und wenn, welche Gesetze gelten für den Übergang von der makroskopischen zur mikroskopischen Welt? Der Schritt vom einzelnen Heliumatom zum Molekül wird der nächste sein, der hilft diese Fragen zu präzisieren und der möglicherweise Hinweise auf Antworten geben kann.

Die Arbeit ist wie folgt gegliedert:

In Kapitel 2 wird ein Einblick in die quantenmechanische Beschreibung der Photoionisationsprozesses gegeben und dabei im Zusammenhang mit dem Aspekt der Korrelation sowie dem Begriff der Parametrisierung, der eng mit der Frage der Symmetrie verknüpft ist diskutiert.

Kapitel 3 befaßt sich mit den Grundlagen der technischen Komponenten, die bei der Durchführung des vorgestellten Experiments eingesetzt wurden. Dieses Kapitel ist vor allem für den Leser interessant, der nicht mit der Technik der Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy oder der Erzeugung von Synchrotronstrahlung vertraut ist.

Kapitel 4 stellt die experimentellen Besonderheiten dieser Arbeit, sowie die Systematik der Datenauswertung vor. Weiterhin wird anhand von Zwischenresultaten und durch eine Fehlerabschätzung die Qualität der Messung beleuchtet.

Kapitel 5 beinhaltet einige experimentelle Resultate sowie theoretische Vergleiche und eine ausführliche Diskussion der Ergebnisse.

Und das letzte Kapitel bietet schließlich einen Ausblick sowie eine Motivation für mögliche Photoionisationsexperimente, in einer Kombination zirkularer Polarisation und unterschiedlicher Targets.

Im Anhang zu dieser Arbeit befinden sich sämtliche Spektren zur Vervollständigung der in Kapitel fünf diskutierten Ergebnisse.

Kapitel 2

Theoretische Betrachtung der Photoionisation

2.1 Grundlagen elektromagnetischer Strahlung

2.1.1 Die Beschreibung des elektromagnetischen Feldvektors

Aus den Maxwellgleichungen

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (2.1)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} + \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} = 0 \quad (2.2)$$

lassen sich durch Integration ein Vektorpotential $\mathbf{A}$ mit

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} \quad (2.3)$$

und ein elektrisches Potential Φ mit

$$\mathbf{E} + \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} = -\nabla \Phi \quad (2.4)$$

ableiten [48]. Im folgenden verlangen wir zur Vereinfachung, daß es keine äußeren elektrostatischen Felder $\mathbf{E}$ gibt und setzen daher das elektrostatische Potential $\phi = 0$. Daraus folgt,

$$\mathbf{E} = -\nabla \phi = 0. \quad (2.5)$$

Durch Wahl der Eichtransformation $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$, der Coulombbeziehung, findet man, daß beide Potentiale und somit auch die Felder $\mathbf{B}$ und ϵ die homogene Wellengleichung

$$f(\mathbf{r}, t) = \Delta f - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2 f}{\partial t^2} = 0 \quad (2.6)$$

erfüllen, falls man davon ausgeht, daß es keine Quellfelder, also keine Ladungen oder Ströme gibt (siehe z.B.[48]). Die Lösung lautet dann zum Beispiel für das Vektorpotential

$$\mathbf{A} = \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \mathbf{A}_0 e^{i(\mathbf{k}_\gamma \cdot \mathbf{r} - \omega t + \zeta)} \quad (2.7)$$

oder entsprechend für den elektrischen Feldvektor

$$\boldsymbol{\epsilon} = \boldsymbol{\epsilon}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} = \frac{1}{2}\epsilon(\hat{\mathbf{P}}e^{i(\mathbf{k}_\gamma \cdot \mathbf{r} - \omega t + \zeta)}). \quad (2.8)$$

Hierin steht ϵ für die Amplitude des Feldes, $\hat{\mathbf{P}}$ für den Polarisations-Einheitsvektor und ζ für den Phasenwinkel.

Ebenfalls direkt aus den Maxwellgleichungen folgt, daß $\boldsymbol{\epsilon}$ nur transversale Komponenten aufweist, also immer senkrecht auf der Ausbreitungsrichtung z steht. Die Polarisation läßt sich dadurch in zweidimensionalen Koordinatensystemen vollständig beschreiben, eine dritte Raumdimension wird nur der Vollständigkeit halber angegeben.

Aufgrund der Linearität der Wellengleichung lassen sich ihre Lösungen superponieren. Stellt man $\boldsymbol{\epsilon}$ in einer kartesischen Basis $(\hat{\mathbf{e}}_x, \hat{\mathbf{e}}_y, \hat{\mathbf{e}}_z)$ dar,

$$\boldsymbol{\epsilon} = \sum_j \alpha_j \hat{\mathbf{e}}_j \quad \text{mit} \quad j = x, y, z, \quad (2.9)$$

kann man zum Beispiel durch Überlagerung zweier orthogonaler Wellen der gleichen Wellenlänge mit Hilfe der Phasenbeziehung unterschiedliche Polarisationsformen konstruieren:

Angenommen, der Phasenwinkel zweier überlagerter Funktionen $\boldsymbol{\epsilon}_1(\mathbf{r}, t)$ und $\boldsymbol{\epsilon}_2(\mathbf{r}, t)$ sei gleich, $\zeta_1 = \zeta_2 = \zeta$, und es gelte $\hat{\mathbf{P}}_1 = \hat{\mathbf{e}}_x$ und $\hat{\mathbf{P}}_2 = \hat{\mathbf{e}}_y$, also $\epsilon_1 = \alpha_x$ und $\epsilon_2 = \alpha_y$, dann erhält man durch Überlagerung eine Gesamtwellenfunktion

$$\boldsymbol{\epsilon} = \frac{1}{2}(\epsilon_1 \hat{\mathbf{e}}_x + \epsilon_2 \hat{\mathbf{e}}_y)e^{i(\mathbf{k}_\gamma \cdot \mathbf{r} - \omega t + \zeta)}. \quad (2.10)$$

Hierbei handelt es sich um eine linear polarisierte Welle mit einem Kippwinkel $\varphi_\epsilon = \arctan \frac{\alpha_y}{\alpha_x}$ gegenüber der x-Achse.

Gilt für die Phasenwinkel beider Funktionen

$$\zeta_2 - \zeta_1 = \pm\pi/2, \quad (2.11)$$

sei weiterhin $\hat{\mathbf{P}}_1 = \hat{\mathbf{e}}_x$ und $\hat{\mathbf{P}}_2 = \hat{\mathbf{e}}_y$ und haben außerdem die Wellen gleiche Amplituden, $\epsilon_1 = \epsilon_2 = \epsilon$, dann ergibt sich

$$\boldsymbol{\epsilon} = \frac{1}{2}\epsilon e^{i\zeta_1}(\hat{\mathbf{e}}_x \pm i\hat{\mathbf{e}}_y)e^{i(\mathbf{k}_\gamma \cdot \mathbf{r} - \omega t)}. \quad (2.12)$$

Hierbei handelt es sich um den Spezialfall einer zirkular polarisierten Welle mit dem Realteil

$$\boldsymbol{\epsilon} = \epsilon(\hat{\mathbf{e}}_x \cos(\mathbf{k}_\gamma \cdot \mathbf{r} - \omega t + \zeta_1) \pm \hat{\mathbf{e}}_y \sin(\mathbf{k}_\gamma \cdot \mathbf{r} - \omega t + \zeta_1)). \quad (2.13)$$

$\boldsymbol{\epsilon}$ führt demnach eine Rotation im Ort und in der Zeit aus. Hierin manifestiert sich das Vorzeichen der Phasenbeziehung offenbar in der Richtungsabhängigkeit der Rotation.

Nun kann man diese Funktion auch gleich in der Basis $(\hat{\mathbf{e}}_+, \hat{\mathbf{e}}_-, \hat{\mathbf{e}}_0)$ oder $(\hat{\mathbf{e}}_l, \hat{\mathbf{e}}_r, \hat{\mathbf{e}}_0)$ mit

$$\hat{\mathbf{e}}_+ = \hat{\mathbf{e}}_l = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{\mathbf{e}}_x + i\hat{\mathbf{e}}_y), \quad \hat{\mathbf{e}}_- = \hat{\mathbf{e}}_r = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{\mathbf{e}}_x - i\hat{\mathbf{e}}_y), \quad \hat{\mathbf{e}}_0 = \hat{\mathbf{e}}_z \quad (2.14)$$

entwickeln. Darin gilt für die Koeffizienten $\alpha_j(\mathbf{r}, t)$

$$\alpha_+ = \frac{1}{\sqrt{2}}(\alpha_x + i\alpha_y), \quad \alpha_- = \frac{1}{\sqrt{2}}(\alpha_x - i\alpha_y) \quad \text{und} \quad \alpha_0 = \alpha_z, \quad (2.15)$$

und ganz analog zu (2.9),

$$\boldsymbol{\epsilon} = \sum_j \alpha_j \hat{\mathbf{e}}_j \quad \text{mit} \quad j = +, -, 0. \quad (2.16)$$

Die verschiedenen Indizes des kovarianten sphärischen Basissystems (2.14) sind historischer Natur und zurückzuführen auf zwei Definitionen, die aus optischer $(\hat{\mathbf{e}}_l, \hat{\mathbf{e}}_r, \hat{\mathbf{e}}_0)$ bzw. quantenmechanischer $(\hat{\mathbf{e}}_+, \hat{\mathbf{e}}_-, \hat{\mathbf{e}}_0)$ Formulierung entspringen. Der Index in der quantenmechanischen Darstellung entspricht dabei dem Vorzeichen der Phasendifferenz aus (2.11). Sprachliche Konventionen und Notationen, sowie die beiden Definitionen zirkularer Polarisation werden im folgenden Abschnitt zur Übersicht zusammengefaßt.

2.1.2 Definition zirkularer Polarisation

Man unterscheidet

- die optische Definition zirkularer Polarisation:

Als *rechts zirkular polarisiertes Licht* wird das Licht bezeichnet, dessen Polarisationsvektor aus Sicht eines Beobachters in Richtung auf die Quelle blickend *im Uhrzeigersinn* rotiert [49].

Und

- die quantenmechanische Definition:

Für Licht *negativer Helizität* gilt, daß die Projektion des Spins auf die Quantisierungsachse (die Ausbreitungsrichtung) *negatives Vorzeichen* hat [50].

Beide Definitionen beschreiben denselben Polarisationszustand. Für links zirkular polarisiertes Licht (LCP) = positive Helizität gilt entsprechend umgekehrter Drehsinn bzw. das positive Vorzeichen.

Zusammenfassend sind unten alle äquivalenten Bezeichnungen und Symbole beider Polarisationszustände aufgeführt:

- | | |
|---|---|
| • links zirkulare Polarisation | • rechts zirkulare Polarisation |
| • LCP | • RCP |
| • rechtshändige Helizität | • linkshändige Helizität |
| • positive Helizität | • negative Helizität |
| • σ_+ | • σ_- |
| •  | •  |

2.1.3 Die Stokes-Parametrisierung

Die Information der Phase zweier kohärent addierter elektromagnetischer Wellen ist einer Messung nicht direkt zugänglich¹. Man kann jedoch die Intensitäten² unterschiedlicher Polarisation messen.

Abgesehen von der Energie erfordert nach Stokes eine Parametrisierung elektromagnetischer Strahlung die Information der totalen Intensität

$$I_{\text{tot}} = I_x + I_y = I_1 + I_2 = I_r + I_l, \quad (2.17)$$

sowie des Polarisationsgrads [51]. Dieser kann nur durch die Messung der Intensitäten I_j entlang sechs unterschiedlicher Polarisationsrichtungen in drei verschiedenen Basissystemen vollständig bestimmt werden. Für diese Darstellung wird der Stokes-Vektor eingeführt:

$$\mathbf{S}_{\text{Stokes}} = I_{\text{tot}} \begin{pmatrix} 1 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{pmatrix}. \quad (2.18)$$

Der Stokes-Vektor, setzt sich zusammen aus vier Komponenten, der totalen Intensität und den sogenannten Stokes-Parametern S_i . Letztere werden aus den normierten Differenzen der Komponenten in den verschiedenen Koordinatensystemen gebildet:

$$S_1 = \frac{I_x - I_y}{I_{\text{tot}}}, \quad (2.19)$$

$$S_2 = \frac{I_1 - I_2}{I_{\text{tot}}} \quad (2.20)$$

und

$$S_3 = \frac{I_r - I_l}{I_{\text{tot}}}. \quad (2.21)$$

¹An dieser Stelle wird betont, daß in der folgenden Darstellung kohärent addierte Wellen, also reine Polarisationszustände, gemeint sind. Solche liegen in der Praxis normalerweise nicht vor. Man muß daher zur Beschreibung gemischter Polarisationszustände auch die inkohärente Überlagerung einbeziehen, vgl. Abschnitt 5.4.1.

²Die Intensität ist proportional zu dem Quadrat der in (2.8) definierten Amplitude des Feldvektors ϵ .

Die Wahl der Koordinatensysteme ist dabei folgendermaßen getroffen: S_1 wird in kartesischen Koordinaten nach (2.9) dargestellt. S_2 ist ein Parameter, der einer Drehung der Polarisationssebene Rechnung trägt, er wird gebildet durch ein um $+45^\circ$ gedrehtes kartesisches Koordinatensystem:

$$\hat{\mathbf{e}}_1 = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{\mathbf{e}}_x + \hat{\mathbf{e}}_y) \quad \text{und} \quad \hat{\mathbf{e}}_2 = -\frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{\mathbf{e}}_x - \hat{\mathbf{e}}_y). \quad (2.22)$$

S_3 gibt den normierten zirkularen Anteil der Strahlung in der Darstellung aus (2.14) wieder. Alle Parameter variieren zwischen $+1$ für vollständige Polarisation entlang der Richtungen $\hat{\mathbf{e}}_x$, $\hat{\mathbf{e}}_1$ bzw. $\hat{\mathbf{e}}_r$ und -1 für vollständige Polarisation entlang der jeweils orthogonalen Richtung³.

In den meisten Fällen wird anstelle von S_1 und S_2 die Parametrisierung

$$\tilde{S}_1 = \sqrt{S_1^2 + S_2^2} \quad \text{und} \quad \varphi_\epsilon = \frac{1}{2} \arctan\left(\frac{S_2}{S_1}\right) \quad (2.23)$$

bevorzugt. Diese Darstellung ist so gewählt, daß im allgemeinen Fall elliptischer Polarisation die Hauptachse immer mit der x-Achse des Koordinatensystems zusammenfällt. φ_ϵ repräsentiert dann den Winkel der Verkipfung. Theoretisch kann diese Winkelinformation jedoch ohne Beschränkung der Allgemeinheit außer acht gelassen werden.

Der Polarisationsgrad läßt sich aus den Stokes-Parametern berechnen

$$P = \sqrt{\tilde{S}_1^2 + S_3^2}. \quad (2.24)$$

Somit kann P Werte zwischen 0 und 1 annehmen, wobei 0 für unpolarisiertes Licht und 1 für vollständig polarisiertes Licht steht. Unter unpolarisiertem Licht versteht man allgemein die inkohärente Überlagerung verschiedener Polarisationsanteile.

2.2 Quantenmechanische Näherungsverfahren

2.2.1 Die photoneninduzierte Störung

2.2.1.1 Allgemeine Bemerkungen zur Störungstheorie

Zustand ist der zentrale Begriff der quantenmechanischen Formulierung. Ein solcher Zustand Ψ entwickelt sich nach einem dynamischen Prozeß. $\Psi(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_n, \sigma_1, \dots, \sigma_n, t)$ beschreibt im allgemeinen ein Ensemble von n Teilchen und wird beispielsweise durch deren Ortsvektor $\mathbf{r}_i$, deren Spin σ_i und die Zeit t vollständig parametrisiert. Die prozeßdefinierende Gleichung der Quantenmechanik ist die Schrödingergleichung

$$\mathcal{H}\Psi = -\frac{\hbar}{i} \frac{\partial \Psi}{\partial t}, \quad (2.25)$$

³An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, daß das Vorzeichen des Stokesparameters entgegengesetzt dem aus der quantenmechanischen Definition ist.

mit dem Hamiltonoperator $\mathcal{H}$. Der Hamiltonoperator eines in einem Potential V gebundenen Elektrons

$$\mathcal{H}_0 = -\frac{\hbar^2}{2m_e}\nabla^2 + V(\mathbf{r}, t) \quad (2.26)$$

setzt sich aus dem Operator der kinetischen Energie $\mathcal{T} = -\hbar^2/2m_e\nabla^2$ und dem Potential V zusammen. Dieser Einteilchen-Hamiltonoperator, eingesetzt in (2.25), ergibt eine analytisch exakt lösbare Differentialgleichung. Im Gegensatz dazu kann die Lösung für ein System mit mehr als einem Elektron ($i \geq 2$) schon nicht mehr analytisch exakt angegeben werden. Der Hamiltonoperator enthält dann neben der Summe identischer Einteilchen-Hamiltonians $\mathcal{H}_0$ auch noch den Anteil der Elektron-Elektron-Wechselwirkung $\mathcal{H}_{ee}$, also den Einfluß eines jeden Elektronenpotentials auf das jeweils andere Elektron:

$$\mathcal{H} = \sum_i \underbrace{\left(-\frac{\hbar^2}{2m_e}\nabla_i^2 - \frac{e_0^2 Z}{4\pi\epsilon_0|\mathbf{r}_i|} \right)}_{\mathcal{H}_0} + \underbrace{\frac{e_0^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_{j < i} \frac{1}{|\mathbf{r}_{ij}|}}_{\mathcal{H}_{ee}}, \quad (2.27)$$

mit dem Abstandsvektor $\mathbf{r}_{ij}$ zwischen dem i -ten und dem j -ten Elektron. Das Potential V ist in diesem Fall ein Coulombpotential mit der Kernladungszahl Z .

Bisher war ausdrücklich nur die Rede von der Bewegung eines bzw. mehrerer Elektronen in einem Zentralpotential. Hierfür sind die angegebenen Ausdrücke noch exakt. Zur Beschreibung eines Atoms muß die vollständige Differentialgleichung neben der Bewegung der Elektronen jedoch auch die des Kerns erfassen⁴. Im folgenden wird zunächst der Fall eines Einelektronenatoms — diese Problematik ist aus der klassischen Mechanik als Zweikörper-Zentralkraftproblem bekannt — im Koordinatensystem des Schwerpunkts behandelt. Betrachtet man das Atom als ein abgeschlossenes System, bleibt der Impuls des Schwerpunkts erhalten und kann separiert und in diesem Fall sogar vernachlässigt werden. Dadurch wird die Anzahl der Freiheitsgrade von 6 auf 3 reduziert, das heißt anstelle der Ortsvektoren des Elektrons $\mathbf{r}_e$ und des Kerns $\mathbf{r}_k$ tritt der Relativvektor $\mathbf{r} = \mathbf{r}_e - \mathbf{r}_k$. Somit erhält man die kinetische Energie der Relativbewegung in der Form

$$\mathcal{T}_{\text{rel}} = -\hbar^2/2\mu\nabla_r^2 \quad \text{mit} \quad \mu = \frac{m_e m_k}{m_e + m_k}, \quad (2.28)$$

worin ∇_r sich auf den Relativvektor bezieht⁵. μ wird die reduzierte Masse genannt. Mit $m_k \gg m_e$ wird $1/\mu \approx 1/m_e$ und $\mathbf{r} \approx \mathbf{r}_e$. Das entspricht der Annahme, daß der Schwerpunkt des Systems im Zentrum des Kerns liegt. Es wird daher, die hier abgeleitete Erkenntnis ignorierend, im folgenden zur Beschreibung des Heliumatoms der Hamiltonian aus (2.27) verwendet und mit $\mathcal{H}_{\text{atom}}$ bezeichnet. Für die konkrete Berechnung physikalischer Größen wäre an entsprechender Stelle eine Substitution der Variablen erforderlich.

⁴Bei der Behandlung des Heliumatoms handelt es sich also streng genommen um ein Dreikörperproblem. Jedoch ist bereits im Rahmen der klassischen Mechanik eine Lösung der Bewegungsgleichung dreier Körper, die durch konservative Kräfte in Wechselwirkung treten, nicht mehr analytisch möglich.

⁵Sowohl in der quantenmechanischen als auch der klassischen Differentialgleichung wird durch Einführung von Kugelkoordinaten der Drehimpuls separierbar, so daß auf diesem Lösungsweg das Problem auf eine einzige Koordinate, den Abstand r , reduzierbar ist, siehe z.B. [52].

Die experimentelle Untersuchung dynamischer Prozesse auf atomarem Niveau, bedarf einer Störung des atomaren Systems. Die Berechnung von quantenmechanischen Zuständen und der dazugehörigen Energieeigenwerte ist in diesem Fall nicht ausreichend, um einen quantitativen Vergleich anzustellen. Daher sind an dieser Stelle zunächst einige Bemerkungen zur Störungstheorie sinnvoll:

Sei $\mathcal{H}_{\text{atom}}$ der Hamiltonoperator des Atoms nach (2.27) und man nehme eine äußere Störung an, die durch einen Wechselwirkungsoperator $\mathcal{H}_{ww}$ vermittelt wird, dann wird das gestörte System durch den Gesamthamiltonian $\mathcal{H}_{\text{pert}}$

$$\mathcal{H}_{\text{pert}} = \mathcal{H}_{\text{atom}} + \mathcal{H}_{ww} \quad (2.29)$$

beschrieben⁶. Die daraus resultierende Eigenwertgleichung ist im allgemeinen nicht mehr analytisch lösbar. Durch eine Potenzreihenentwicklung der Wellenfunktionen des gestörten Systems nach den bekannten Lösungen des ungestörten Systems, läßt sich die Eigenwertgleichung aber in rekursiver Form lösen. Der Abbruch der unendlichen Potenzreihe führt zu Näherungen an die exakte Lösung. Diese Näherungen sind insbesondere in niedriger Ordnung umso genauer, je kleiner die Störung ist. Eine kleine Störung wird angenommen, wenn die durch die Störung eingebrachte Energie nur einen kleinen Anteil an der Gesamtenergie ausmacht, das heißt wenn sich die Eigenwerte des ungestörten Systems durch die Störung nicht wesentlich verschieben⁷, siehe zum Beispiel [53, 54].

Wenn in dem Störpotential eine Zeitabhängigkeit vorliegt $\mathcal{H}_{ww} = \mathcal{H}_{ww}(t)$, dann werden die Wellenfunktionen des ungestörten Systems (2.27) in einen zeitabhängigen und einen zeitunabhängigen Teil separiert. Die Zustände des Gesamthamiltonian werden durch explizit zeitabhängige Koeffizienten nach den Lösungen der stationären Zustände des ungestörten Systems entwickelt: $\Psi = \sum a_m(t)e^{-iE_mt/\hbar}\psi_m$, E_m und ψ_m sind die Eigenwerte bzw. Eigenfunktionen des stationären ungestörten Systems. Mit diesem Ansatz gelangt man zu einem Differentialgleichungssystem, das wiederum durch einen Potenzreihenansatz rekursiv, also genähert gelöst werden kann. Dabei wird eine Integration über die Dauer der Störung T_{pert} ausgeführt. Die so berechneten Übergangsamplituden a_{mn}^1 , hier erster Ordnung (Näherungen höherer Ordnung werden im folgenden nur in formaler Form diskutiert), liefern durch Quadrierung direkt die Übergangswahrscheinlichkeit W_{mn} aus einem Zustand ψ_m in den Zustand ψ_n . Auch hier ist die Gültigkeit der Näherung nur im Fall kleiner Störung gegeben. Es zeigt sich, daß ein Übergang nur angeregt werden kann, wenn in der Fouriertransformation von a_{mn}^1 die Frequenz ω_{mn} enthalten ist, die dem Energieabstand der Niveaus vor und nach der Störung entspricht $\omega_{mn} = (E_m - E_n)/\hbar$. Mit

⁶Es ist an dieser Stelle nicht ausschlaggebend, den Gesamthamiltonian in den des vollständigen Atoms und den der äußeren Störung aufzuspalten. Zur Berechnung der Energieeigenwerte von Atomen mit mehreren Elektronen wird zum Beispiel auch die Elektron-Elektron-Wechselwirkung aus (2.27) als Störung behandelt. Bei gleichzeitiger Überlagerung einer externen Störung kann durch Umstellen der Gleichung ebenso gut ein Beitrag der Störung in den analytisch exakten Teil des Einteilchen-Hamiltonians herangezogen werden. In diesem Zusammenhang wird auf die Abschnitte 2.2.2 und 2.2.3 verwiesen. Die Bezeichnung $\mathcal{H}_{\text{atom}}$ ist also in diesem Sinne nicht allgemeingültig.

⁷Die Bedingung der Kleinheit der Störung ist im Falle der Elektron-Elektron-Wechselwirkung nicht mehr gegeben. Daher führt eine störungstheoretische Näherung niedriger Ordnung schon im Falle des Heliumatoms nicht mehr zu präzisen Energieeigenwerten.

Hilfe der Übergangswahrscheinlichkeit von einem Energieniveau E_m nach E_n läßt sich die Frequenzbedingung auch als

$$W_{mn} = \frac{2\pi T_{\text{pert}}}{\hbar} |a_{mn}|^2 \delta(E_m - E_n - \omega_{mn}) \quad (2.30)$$

angeben. Diese Gleichung ist bekannt unter dem Namen *Fermis goldene Regel* [55]. Insbesondere gilt sie auch für Übergänge von gebundenen Zuständen in Kontinuumszustände. In diesem Fall wird ein Multiplikator ρ_{kont} hinzugenommen, der die Dichte der Kontinuumszustände berücksichtigt und daher im allgemeinen von der Wahl der Basis ψ_m abhängen wird. Die Deltafunktion kann als Charakteristikum der Energieerhaltung interpretiert werden.

Die Störungstheorie in formaler Darstellung bedient sich des sogenannten Resolventenformalismus oder der sogenannten Greensfunktionen $G_{ik}^+ = (E_i - E_k + i\epsilon)^{-1}$, die die Propagation der Störung vermittelt [53]. In diesem Formalismus wird das Übergangsmatrixelement T_{if} zwischen einem Anfangszustand ψ_i (i =initial) und einem Endzustand ψ_f (f =final), vermittelt durch die Störung $\mathcal{H}_{ww}$, dargestellt durch

$$\begin{aligned} T_{if} &= \langle \psi_f | \mathcal{H}_{ww} | \psi_i \rangle \\ &+ \sum_{\psi_k} \langle \psi_f | \mathcal{H}_{ww} | \psi_k \rangle G_{ik}^+ \langle \psi_k | \mathcal{H}_{ww} | \psi_i \rangle \\ &+ \sum_{\psi_k, \psi_l} \langle \psi_f | \mathcal{H}_{ww} | \psi_k \rangle G_{kl}^+ \langle \psi_l | \mathcal{H}_{ww} | \psi_k \rangle G_{ik}^+ \langle \psi_k | \mathcal{H}_{ww} | \psi_i \rangle \\ &+ \dots \end{aligned} \quad (2.31)$$

Das ist die sogenannte Bornsche Reihe. Der erste Summand entspricht der Rekursion in erster Ordnung Störungstheorie, der zweite Term der zweiten Ordnung, usw. ψ_k und ψ_l sind die möglichen Zwischenzustände, über die bei der Berechnung der Matrixelemente jeweils summiert werden muß.

2.2.1.2 Der Photon-Atom-Hamiltonian

Den Hamiltonoperator eines geladenen Teilchens in einem elektromagnetischen Feld erhält man durch Einsetzen des entsprechenden kanonisch konjugierten Impulses in den Freiteilchen-Hamiltonian. Dazu werden die in Abschnitt 2.1.1 vorgestellten Potentiale benötigt. Unter denselben Annahmen, $\phi = 0$ sowie $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$ (Coulombbeziehung), nimmt der Gesamthamiltonoperator eines Atoms in einem elektromagnetischen Feld die Form

$$\mathcal{H}_{pi} = \sum_i \left(\frac{(-i\hbar \nabla_i - e_0 \mathbf{A})^2}{2m_e} - \frac{e_0^2 Z}{4\pi\epsilon_0 |\mathbf{r}_i|} \right) + \frac{e_0^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_{j < i} \frac{1}{|\mathbf{r}_{ij}|} \quad (2.32)$$

und nach Auflösung des Impuls-Quadrats

$$\mathcal{H}_{pi} = \mathcal{H}_{\text{atom}} + \underbrace{\frac{i\hbar e_0}{m_e} \sum_i \mathbf{A}(\mathbf{r}_i, t) \cdot \nabla_i}_{\mathcal{H}_\gamma} + \underbrace{\sum_i \frac{e_0^2}{2m_e} \mathbf{A}^2(\mathbf{r}_i, t)}_{\mathcal{H}_{\gamma\gamma'}} \quad (2.33)$$

an. Der Hamiltonoperator ist offensichtlich aus drei Anteilen zusammengesetzt: $\mathcal{H}_{\text{atom}}$ ist exakt der aus (2.27) bekannte Hamiltonian des Atoms, $\mathcal{H}_\gamma$ ist der entscheidende Mischterm der Wechselwirkung des Elektrons mit dem elektromagnetischen Feld und $\mathcal{H}_{\gamma\gamma'}$ ist ein Zwei-Photonen-Prozeß, der zu einem Ionisationsquerschnitt durch Compton-Streuung des Photons beiträgt.

Voraussetzung für die Anwendbarkeit der Störungsrechnung ist, wie erwähnt, daß der Beitrag der Störung nur zu einer kleinen Änderung der Energieeigenwerte des Systems führt. Um eine Abschätzung der Größe der Störterme zu erhalten, kann man die Energie, die in dem elektromagnetischen Feld steckt, formal nach (2.33) für den Anteil der Photon-Elektron-Wechselwirkung E^γ und den Anteil des Zwei-Photonen-Prozesses $E^{\gamma\gamma'}$ ausrechnen und mit der Bindungsenergie vergleichen. Dazu wird ein Photonenfeld der Energie 100 eV und der Intensität von $n = 1 \times 10^{18}$ Photonen/(s mm²) angenommen. Die elektrische Feldstärke berechnet sich daraus nach

$$\epsilon = \sqrt{2 \frac{n \hbar \omega}{c \epsilon_0}}. \quad (2.34)$$

Aus (2.7) und (2.8) folgt der Zusammenhang $|\mathbf{A}_0| = \epsilon/\omega$. Verglichen mit der Bindungsenergie im Wasserstoff $E_H = 1$ a.u. (bei einem mittleren Impuls des Elektrons von $p = 1$ a.u.) fallen

$$E^\gamma = \frac{e_0}{m_e} A_0 p = 5,8 \times 10^{-8} \text{ a.u.} \quad \text{und} \quad E^{\gamma\gamma'} = \frac{e_0^2}{m_e} A_0^2 = 1,7 \times 10^{-15} \text{ a.u.}$$

sehr klein aus. Dabei kann die getroffene Annahme eines Photonenstroms von $1 \times 10^{18} \text{ s}^{-1} \text{ mm}^{-2}$ als obere Abschätzung gewertet werden, da es derzeit keine Synchrotronstrahlungsquelle dieser Intensität gibt. Somit kann die Bedingung einer kleinen Störung für störungstheoretische Betrachtungen als erfüllt angesehen werden. Außerdem ist der Anteil, der von $\mathcal{H}_{\gamma\gamma'}$ herrührt, gegenüber den anderen Komponenten vernachlässigbar. Aufgrund der quadratischen Abhängigkeit in A_0 gewinnt dieser Beitrag jedoch ab mehreren keV an Bedeutung. Dies entspricht dem experimentellen Befunden, die zeigen, daß der Anteil des Ionisationsquerschnitts durch Compton-Streuung dort zunimmt [14, 15].

Der Absorptionsbeitrag durch $\mathcal{H}_\gamma$ bleibt also als einziger Stör- oder Wechselwirkungsbeitrag übrig, und erhält daher im folgenden die Bezeichnung $\mathcal{H}_{ww}$. Er läßt sich mit (2.7) und der Konvention $\mathbf{A}_0 := -i A_0 \hat{\mathbf{P}}$ umschreiben in

$$\mathcal{H}_{ww} = \frac{e_0 \hbar}{2m_e} A_0 \sum_i e^{i\mathbf{k}_\gamma \cdot \mathbf{r}_i} \hat{\mathbf{P}} \cdot \nabla_i. \quad (2.35)$$

Aus (2.30) folgt für die Übergangswahrscheinlichkeit aus einem bekannten Anfangszustand ψ_i in den Endzustand ψ_f in erster störungstheoretischer Ordnung

$$W_{if} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \psi_f | \mathcal{H}_{ww} | \psi_i \rangle|^2 \delta_{if} \rho_{kont}. \quad (2.36)$$

Die Betrachtung der Photoabsorption in höheren Ordnungen in $\mathcal{H}_{ww}$, siehe (2.31), entspricht einem Multiphotonenprozeß. Er spielt jedoch hier keine Rolle, da die Photondichte bei den gegebenen Wirkungsquerschnitten nicht ausreicht, um einen meßbaren Beitrag höherer Ordnung zu liefern.

2.2.1.3 Dipolnäherung

Wenn man die Summe in $\mathcal{H}_{ww}$ unterschlägt, daß heißt eine Wechselwirkung mit mehreren Elektronen ausschließt, und die Exponentialfunktion darin in einer Potenzreihenentwicklung darstellt, dann hat der Operator, von den Vorfaktoren abgesehen, die Gestalt:

$$e^{i\mathbf{k}_\gamma \cdot \mathbf{r}} \hat{\mathbf{P}} \cdot \nabla = \hat{\mathbf{P}} \cdot \nabla + i(\mathbf{k}_\gamma \cdot \mathbf{r}) \hat{\mathbf{P}} \cdot \nabla - \frac{1}{2}(\mathbf{k}_\gamma \cdot \mathbf{r})^2 \hat{\mathbf{P}} \cdot \nabla + \dots \quad (2.37)$$

Auf diese Weise wird eine Zerlegung des Operators in die Multipolanteile der elektromagnetischen Strahlung erzeugt. Ergibt eine Abschätzung des Produkts $\mathbf{k}_\gamma \cdot \mathbf{r} \ll 1 \text{ a.u.}$, dann können alle Terme ab erster Ordnung vernachlässigt werden. In diesem Fall spricht man von der Dipolnäherung. Die Einfachionisation von Helium bei einer Photonenenergie $E_\gamma = 100 \text{ eV}$ ergibt $\mathbf{k}_\gamma \cdot \mathbf{r} \approx 0.025 \text{ a.u.}$, so daß die Bedingung für die Dipolnäherung als erfüllt gilt.

Wenn man als „Kleinheitsparameter“ $\mathbf{k}_\gamma$ betrachtet – $\mathbf{r}$ wird als Wechselwirkungsreichweite mit dem mittleren Radius des Elektronenorbitals abgeschätzt und ist daher fest –, erhält man folgende anschauliche Interpretation des Beitrags erster Ordnung: Die Proportionalität zu $\mathbf{k}_\gamma$ spiegelt den Impulstransfer des Photons auf das Elektron wider. Untersuchungen differentieller Einfachionisationsquerschnitte bei Photonenenergien einiger keV geben den Impulstransfer tatsächlich in einer Verschiebung der Winkelverteilungen in Richtung von $\mathbf{k}_\gamma$ wieder [56, 57, 58, 59, 60, 61]. Da der Photonenimpuls allerdings erst bei sehr hohen Energien einen relevanten Betrag liefert, kann man die Dipolnäherung für kleine Photonenenergien auch in diesem Bild als gerechtfertigt ansehen. Aus (2.36) erhält man für den Dipolübergang die Wahrscheinlichkeit

$$W_{if} = W_v \sim |\langle \psi_f | \hat{\mathbf{P}} \cdot \nabla | \psi_i \rangle|^2. \quad (2.38)$$

Diese Darstellung wird wegen $\langle \psi_f | \hat{\mathbf{P}} \cdot \nabla | \psi_i \rangle \propto \langle \psi_f | \frac{d}{dz} | \psi_i \rangle$ für $\hat{\mathbf{P}} = \hat{\mathbf{e}}_z$ *Geschwindigkeitsform* genannt und mit „v“ initiiert. Wie die Ableitung des Dipol-Übergangsmatrixelements zeigt, ist die Coulombbeziehung die der Geschwindigkeitsform korrespondierende Darstellung [62]. Man kann das Matrixelement durch eine Eichtransformation in ψ sowie eine Transformation des Dipoloperators $\hat{\mathbf{P}} \cdot \nabla$ [63] ebensogut in der *Längenform* „l“

$$W_l \sim |\langle \psi_f | \hat{\mathbf{P}} \cdot \mathbf{r} | \psi_i \rangle|^2 \quad (2.39)$$

oder in der *Beschleunigungsform* „a“

$$W_a \sim |\langle \psi_f | \hat{\mathbf{P}} \cdot \mathbf{r} \frac{1}{r^3} | \psi_i \rangle|^2 \quad (2.40)$$

angeben. Alle drei Formen sind äquivalent. Dennoch zeigt sich, daß die Wirkungsquerschnitte, berechnet in den drei Formen mit jeweils gleichen Anfangs- und Endzustandswellenfunktionen, sehr unterschiedlich ausfallen. Der Grund dafür liegt in der Wahl dieser Zustandsfunktionen, die bei Mehrelektronensystemen stets Näherungen enthalten. So

gesehen wird sich eine „schlechte“ Theorie sofort durch eine starke Abweichung in den Ergebnissen der Berechnungen in den verschiedenen Formen ausweisen. Man kann sich anhand der funktionalen Bedeutung des Ortsvektors in dem Operator bereits überlegen, welche Konsequenzen Näherungen insbesondere für den Radialteil der Zustandsfunktion nach sich ziehen. Während die Längenform insbesondere langreichweitige Beiträge liefert, werden in der Beschleunigungsform sehr kernnahe Anteile empfindlich getestet [64].

2.2.1.4 Berechnung der Wirkungsquerschnitte

Einfachionisation: Aus (2.39) errechnet sich zum Beispiel der differentielle Wirkungsquerschnitt in Längenform

$$\boxed{\frac{d^2\sigma_l^{1+}}{d\Omega} = \frac{W_l}{n_\gamma} = 4\pi^2\alpha E_\gamma |\mathbf{k}_e| \sum_{M_f} \frac{1}{2J_i + 1} \sum_{M_i} \left| \left\langle \psi_f | \hat{\mathbf{P}} \cdot \sum_j \mathbf{r}_j | \psi_i \right\rangle \right|^2}. \quad (2.41)}$$

Hierbei wurde $n_\gamma = c\epsilon_0 A_0^2 \omega / 2\hbar$, der Vorfaktor aus (2.35), der der Anzahl der Photonen entspricht, herausgekürzt, da ein Wirkungsquerschnitt nicht von der Feldstärke abhängen kann. α ist hierin die Feinstrukturkonstante, E_γ ist die Energie des Lichts und $\mathbf{k}_e$ stellt den Impuls des emittierten Elektrons dar, dessen Betrag sich aus der Beziehung $|\mathbf{k}_e| = (2m_e E_e)^{1/2}$ mit $E_e = E_\gamma - E_I$ ergibt. Die Zustandsdichte ρ aus (2.36) ist eine Funktion von $d\Omega$ und dE . Die Deltafunktion in (2.36) sorgt dafür, daß das Integral nur an der Stelle $E = E_\gamma$ einen Beitrag liefert, so daß unter allen Endzuständen derjenige mit der passenden Energie selektiert wird⁸. Desweiteren wird über alle magnetischen Unterzustände M_i und M_f summiert. Damit folgt man der Annahme, daß das Target nicht ausgerichtet ist, und über alle Orientierung vor und nach der Absorption gemittelt wird. Bei einem Ein-Elektronen-System fällt die Summe über die $\mathbf{r}_j$ weg. Das Raumwinkelement ist eine Funktion zweier Winkel, $d\Omega = \sin\vartheta d\vartheta d\varphi$. $d^2\sigma^{1+}/d\Omega$ wird daher auch doppeldifferentieller Einfachionisationswirkungsquerschnitt genannt und mit „2DCS“ oder „DDCS“ (double differential cross section) abgekürzt.

Doppelionisation: (2.41) ist allgemeingültig und läßt sich durch Erweiterung auf zwei Elektronen auch zur Berechnung des differentiellen Doppelionisationsquerschnittes angeben (ebenfalls in Längenform):

$$\boxed{\frac{d^5\sigma_l^{2+}}{d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1} = 4\pi^2\alpha E_\gamma |\mathbf{k}_1| |\mathbf{k}_2| \sum_{M_f} \frac{1}{2J_i + 1} \sum_{M_i} \left| \left\langle \psi_{f_{1,2}} | \hat{\mathbf{P}} \cdot \sum_j \mathbf{r}_j | \psi_i \right\rangle \right|^2}. \quad (2.42)}$$

Dieser Wirkungsquerschnitt ist eine fünffach differentielle Größe und erhält die Kurzbezeichnung „5DCS“. Hierin sind $\psi_{f_{1,2}}$ und ψ_i jeweils Zweielektronenzustände.

⁸Der totale Wirkungsquerschnitt skaliert bei hohen Energien wie $\sigma_{\text{tot}}^{1+} \propto E_\gamma^{-7/2}$ [56]. Dies ist allein eine Eigenschaft der Wellenfunktion, die ausdrückt, daß die Wahrscheinlichkeit dafür, ein gebundenes Elektron mit dem korrespondierenden Impuls anzutreffen, in eben diesem Maße abnimmt.

2.2.2 Die Einfach- und Doppelionisation im Sinne der MBPT

In (2.33) wurde $\mathcal{H}_{ww} = \mathcal{H}_\gamma$ als *einzigster Störbeitrag* und *in erster Ordnung* behandelt. Den Anfangszustand erhält man demnach durch eine Lösung der Schrödingergleichung mit dem Hamiltonoperator nach (2.27). Diese Gleichung ist noch exakt, jedoch im Fall von Mehrelektronensystemen unlösbar. Einen anderen, Ansatz wählt die sogenannte „Many Body Perturbation Theory“ (MBPT) [65, 66]. Sie berücksichtigt den Teil $\mathcal{H}_{ee}$ der Elektron-Elektron-Wechselwirkung in dem Gesamthamiltonian ebenso als Störung wie den Wechselwirkungsterm $\mathcal{H}_{ww}$. Ein solcher Ansatz hat den Vorteil, daß man Prozesse, an denen neben dem Projektil mehrere Elektronen beteiligt sind (zum Beispiel einen Zweielektronenübergang), nach den einzelnen Stufen trennen und in sogenannte Mechanismen oder Reaktionsabläufe aufteilen kann. Dies soll im folgenden anhand der Photoabsorption erläutert werden: Da der Elektron-Elektron-Wechselwirkungsterm aus dem Hamiltonian des Atoms herausgezogen wurde, setzt dieser sich nur noch aus der Summe der (exakt lösbaren) Einteilchenhamiltonians $\mathcal{H}_V$ zusammen. Der Anfangszustand wird daher in diesem Modell durch das Produkt zweier Einteilchenwellenfunktionen $\psi_i = i_1 i_2$ beschrieben. Analog wird zur Vereinfachung für den Endzustand die Notation $\psi_f = f_1 f_2$ gewählt. Wenn man das Übergangsmatrixelement T aus (2.42) demgemäß modifiziert, erhält man in zweiter Ordnung der Bornschen Reihe (2.31) mehrere Reaktionabläufe, die zur Doppelionisation beitragen:

$$T_{TS1} = \sum_k \langle f_1 f_2 | \mathcal{H}_{ee} | k i_2 \rangle G_{k i_2}^+ \langle k i_2 | \mathcal{H}_{ww} | i_1 i_2 \rangle \quad (2.43)$$

In dem Zweistufenprozeß $TS1$ greift die photoneninduzierte Wechselwirkung zunächst an einem Elektron an und versetzt es in einen Zwischenzustand k . Dieser wechselwirkt dann mittels $\mathcal{H}_{ee}$ mit dem zweiten Elektron, wodurch beide in einem Kontinuumsendzustand gelangen. Dieser Mechanismus kommt einer Elektronenstoßionisation nach erfolgter Photoabsorption durch eine Elektron gleich. Austauschsterme sind in dieser und allen übrigen Darstellungen von T nicht enthalten und müssen aufgrund der Ununterscheidbarkeit der Elektronen bei der konkreten Berechnung der Übergangsamplituden noch berücksichtigt werden. Es gibt neben diesem Zweistufenprozeß noch einen weiteren, den $TS2$, der sich mit einer sukzessiven Abfolge zweier Stöße des Projektils mit beiden Elektronen beschreiben läßt. Er ist jedoch wegen der oben erwähnten Unterdrückung von Multiphotonenprozessen in der hier diskutierten Photoionisation ausgeschlossen.

$$T_{SO} = - \langle f_2 i_1 | \mathcal{H}_{ww} | i_1 i_2 \rangle G_{i k}^+ \langle f_1 | \mathcal{H}_{ee} | i_1 \rangle \quad (2.44)$$

Der zweite bedeutende Term wird „Shake-Off“-Beitrag genannt. In dem Bild des SO wird ein Elektron durch Absorption des Photons schnell aus dem Atom entfernt, so daß gleichzeitig das verbleibende Elektron ein verändertes Potential vorfindet, sich aber noch in dem ursprünglichen Eigenzustand des Gesamtsystems befindet. Diese Konstellation führt zu einer endlichen Amplitude für den Übergang des zweiten Elektrons in das Kontinuum. Im Gegensatz zu dem $TS1$, der sich durch das klassische Bild zweier aufeinanderfolgender Stöße erklären läßt, liegt diesem Mechanismus eine rein quantenmechanische Vorstellung zugrunde. Diese Interpretation der Photoionisation wird in der Literatur als „Sudden Approximation“ diskutiert [67]. Dennoch wird der SO mit dem $TS1$ auch zu einem Endzustandskorrelationsbeitrag zusammengefaßt [68]. Die hierfür zugrundeliegende

Argumentation ist, daß die Elektron-Elektron-Wechselwirkung im Anfangszustand ausgeschaltet werden kann und man dennoch eine endliche SO -Amplitude erhält. Das hat eine interessante Konsequenz: Das Verhältnis von Einfach- zu Doppelionisation müßte demnach unabhängig von der Energie oder generell von Art des Projektils sein (bei Ionen so zum Beispiel von der Ladung) [64].

$$T_{GSC} = \sum_k \langle f_1 | \mathcal{H}_{ww} | k \rangle G_{ik}^+ \langle k | f_2 | \mathcal{H}_{ee} | i_1 i_2 \rangle \quad (2.45)$$

Beim sogenannte GSC -Beitrag (GSC steht für Ground State Correlation) gelangt ein Elektron durch die Elektron-Elektron-Wechselwirkung in das Kontinuum, während das zweite einen Zwischenzustand k annimmt, der dann durch die Wechselwirkung mit dem Photon in einen Kontinuumszustand transportiert wird. In diesem Bild wird für kurze Zeit die Energieerhaltung verletzt, da eine Autoionisation aus dem Grundzustand vorliegt, bevor das System seine Energie aus der Photoabsorption wieder aufnimmt. Der Prozeß muß daher im zeitlichen Rahmen der Heisenbergschen Unschärfe $\Delta t \leq \hbar/\Delta E$ ablaufen, was ebenfalls seinen quantenmechanischen Charakter bekundet.

Das Denken in Mechanismen dient also der Veranschaulichung der einzelnen Übergangsamplituden. Es beruht dabei teilweise auf klassischen Modellvorstellungen, wie am Beispiel des $TS1$ zu sehen war. Die Tatsache, daß diese Veranschaulichung aber nicht dem „Wesen“ der quantenmechanischen Beschreibung der Natur entspricht, zeigt folgendes Phänomen: So, wie in den Gleichungen (2.38)-(2.40) das Dipol-Übergangsmatrixelement in verschiedenen Eichungen dargestellt wurde, kann man auch die Amplituden T_{TS1} , T_{SO} und T_{GSC} transformieren. Stellt man das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte σ^{2+}/σ^{1+} zerlegt nach den einzelnen Mechanismen dar, stellt man fest, daß diese, in Abhängigkeit von der Eichung, sehr unterschiedliche Beiträge zu dem Verhältnis der Gesamtquerschnitte liefern. Abb. 2.1 zeigt diese Abhängigkeit für die Photoionisation von Helium. Sowohl die Form als auch die Maximalwerte der einzelnen Beiträge zeigen eine deutliche Abhängigkeit von der Eichung, obwohl sich in diesem Fall der Gesamtwirkungsquerschnitt beim Wechsel der Form nicht ändert⁹. Das bedeutet aber, daß das Bild der Mechanismen von der Wahl der Eichung abhängt und nicht allgemeingültig ist. An dieser Stelle versagt aber unser Denken in Mechanismen, wenn wir nicht festlegen, daß unsere klassische Vorstellung von den Abläufen mit einer der Eichungen verknüpft ist. Welche aber sollte es sein? Diese Überlegung wird anhand der SO -Amplitude nochmals vertieft: Stellen wir uns die Mechanismen wie oben beschrieben vor, dann würde man annehmen, daß insbesondere bei hohen Energien der SO -Beitrag dominiert, da dieser — unabhängig von der Energie der Photons — ein gleichbleibendes Verhältnis aus Einfach- zu Doppelionisation liefert. Gleichzeitig sollte die Wahrscheinlichkeit für einen Zweistufenprozeß vom Typ $TS1$ abnehmen, da die Elektronenstoßionisation mit wachsender Elektronenenergie sinkt. Diese Annahme findet man nur im Falle der Geschwindigkeits- und der Beschleunigungsform bestätigt, nicht dagegen in der Längenform.

⁹Es kann gezeigt werden, daß die Gesamtamplitude, die sich als Summe der drei aufgeführten Beiträge ergibt, invariant unter den Eichtransformationen ist [64]. Trotzdem ist eine Konvergenz des Wirkungsquerschnitts unter den drei unterschiedlichen Eichungen nicht selbstverständlich und hängt wesentlich von den in der Theorie gemachten Näherungen ab.

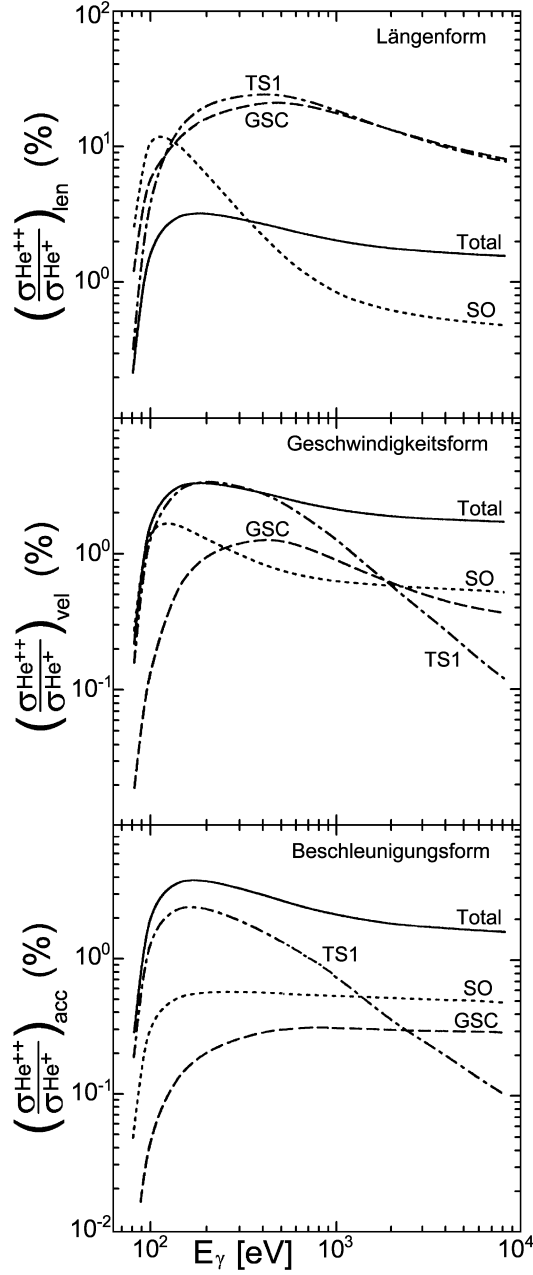


Abbildung 2.1: Das Verhältniss $R = \sigma^{2+}/\sigma^{1+}$ aus Doppel- und Einfachionisationsquerschnitt in der Photoionisation von Helium als Funktion der Photonenenergie, aufgespalten in verschiedene MBPT-Beiträge, in der Längen-, Geschwindigkeits- und Beschleunigungsform, aus [64].

Auf weitere Schwierigkeiten stößt man bei der Interpretation der Elektron-Elektron-Korrelation. Ist allein diese verantwortlich für den *GSC*-Beitrag, und hängt dieser in der in Abb. 2.1 gezeigten Weise von der Eichung ab, kann auch keine allgemeingültige Definition des Korrelationsbegriffs mit Hilfe der MBPT-Amplitude gemacht werden, ohne sich auf eine Eichung festzulegen. Diese Fragen sind durch Messungen nicht eindeutig zu klären,

da die Observable der Doppelionisation — die Summe aus allen drei Prozessen — gerade nicht durch eine Eichtransformation beeinflussbar ist.

Darüber hinaus erzeugt die Bildung der Summe der Amplituden im allgemeinen Interferenzeffekte zwischen den einzelnen Beiträgen, die, wie man in der Längenform besonders deutlich erkennen kann, auch zur Verminderung von Querschnitten führen kann. Allein diese Feststellung zeigt, daß die Verknüpfung von Matrixelementen mit klassisch anschaulichen Mechanismen nur sehr bedingt sinnvoll ist.

Wie auch immer man die Interpretation in Mechanismen auffassen mag, die MBPT liefert bereits ein bemerkenswertes Resultat in dem *Modell unabhängiger Teilchen*: In diesem Modell wird der Anteil $\mathcal{H}_{ee}$ völlig außer Acht gelassen, das heißt, dieses einfache Model sagt keine Grundzustandskorrelation der Elektronen voraus. Man wird daher keine zutreffenden Ergebnisse für die Beschreibung der Photoionisation von Helium erwarten können. Insbesondere wird es *nicht* möglich sein, mit diesem Ansatz einen Zweielektronenübergang, also eine Doppelionisation, zu erzeugen, da eine Photon-Elektron-Wechselwirkung in zweiter Ordnung ausgeschlossen wurde. Das heißt aber, daß die Photodoppelionisation genau diese Abweichung von dem Modell unabhängiger Teilchen zu Tage fördert und daher einen geeigneten Zugang zu der Elektron-Elektron-Wechselwirkung darstellt.

Zum Schluß noch eine Bemerkung zu der Darstellung der Einfachionisation: Das Übergangsmatrixelement aus (2.41) beschreibt einen Einstufenprozeß und beinhaltet somit keine Elektron-Elektron-Wechselwirkungsbeiträge. Der Übergang läßt sich folglich nur in erster Ordnung in $\mathcal{H}_{ww}$ entwickeln. Somit entfällt eine Aufspaltung in die verschiedenen Mechanismen. Daher ist sichergestellt, daß die unterschiedlichen Amplituden in Abb. 2.1 allein aus der Beiträgen der Doppelionisation herrühren.

2.2.3 Lösungsansätze mit genäherten Wellenfunktionen

Dieser und die folgenden Unterabschnitte beziehen sich nurmehr auf den Fall der Doppelionisation.

Einen anderen Ansatz zur Berechnung der Wirkungsquerschnitte nach (2.42) wählt ein Verfahren, bei dem das Übergangsmatrixelement „wörtlich“ genommen wird. In dieser Form wird die Problematik der Elektron-Elektron-Wechselwirkung in die Beschreibung des Anfangs- und des Endzustands einbezogen und es erfolgt nur eine Störungsrechnung erster Ordnung. Das heißt, man versucht den Anfangs- und den Endzustand durch Wellenfunktionen zu erfassen, die nach allen Erfahrungen die Natur des Atoms im Eingangskanal bzw. die Dynamik der Fragmente der Photoionisation im Ausgangskanal so genau wie möglich beschreibt¹⁰.

Das Hauptaugenmerk wird bei diesen Rechnungen daher auf die verwendeten Anfangs- und Endzustände zu richten sein. Alle Ansätze haben dabei fast ausschließlich eine möglichst exakte Bestimmung der Energieeigenwerte zum Ziel. Eine Ausnahme, die

¹⁰Das Wort „Dynamik“ wurde hier nur im Zusammenhang mit dem Endzustand verwendet, da eben die Untersuchung der Elektronen im gebundenen Zustand immer auch die Frage nach der dynamischen Korrelation aufwirft und eigentlich unklar ist, ob man die Dynamik mit den konventionellen Methoden der Quantenmechanik überhaupt erfassen kann.

zusätzlich geforderte Kato-Cusp-Bedingung, wird in einem anderen Zusammenhang diskutiert. Die Beschreibung des Endzustands stellt sich als deutlich schwieriger heraus, da hier die dynamischen Effekte der Elektron-Elektron-Wechselwirkung im auslaufenden Kanal wesentlich zu den Winkelverteilungen beitragen. Es ist, wie auch schon weiter oben erwähnt, nicht gelungen die Wechselwirkung dreier Teilchen analytisch exakt und vollständig zu erfassen.

Die Ergebnisse sind daher sehr von den notwendigen und modellabhängigen Näherungen bestimmt¹¹. Es zeigt sich, daß die geforderte Unabhängigkeit eines Modells von der Eichung in keinem Fall erfüllt ist. Letztlich wird der Grad der Übereinstimmung der Ergebnisse in den unterschiedlichen Formen — auch unabhängig von dem Vergleich mit den experimentellen Befunden — darüber zu entscheiden haben, welche Näherung als gut und welche als schlecht eingestuft werden kann.

Es werden zunächst die Wellenfunktionen vorgestellt, die den Rechnungen von Berakdar und Klar [3] bzw. Keller [40] zugrunde liegen, und als Vergleich dazu ein alternativer Ansatz von Pont und Shakeshaft [44, 45, 46], der eine bessere Beschreibung des totalen Wirkungsquerschnitts liefert.

2.2.3.1 Beschreibung des Anfangszustands

Wie auch schon im vorangegangenen Abschnitt diskutiert, beginnt die Suche nach der „besten“ Grundzustandswellenfunktion bei dem Modell unabhängiger Teilchen, das heißt, daß der in (2.27) eingeführte Elektron-Elektron-Wechselwirkungsterm $\mathcal{H}_{ee}$ vernachlässigt wird. In diesem Modell erhält man als Lösung ein Produkt aus Einteilchenwellenfunktionen. Die zugehörigen Eigenwerte zu dieser Funktion beschreiben in der Regel aber das Spektrum des Atoms nicht sehr genau. Um sich diesem anzunähern, greift man zu einer, neben der Störungsrechnung in der Quantenmechanik ebensowichtigen Näherungsmethode, dem Variationsverfahren [53]. Das Prinzip ist folgendes: Sei $\{E_n\}$ das unbekannte Eigenwertspektrum des Operators $\mathcal{H}_{\text{atom}}$, dann gilt in jedem Fall für einen beliebigen eigentlichen Zustand ψ

$$|\langle \psi | \mathcal{H}_{\text{atom}} | \psi \rangle|^2 \geq \min\{E_n\}. \quad (2.46)$$

Diesen Umstand macht man sich zunutze und wählt eine Funktion $\psi = \psi(\vec{\alpha})$ mit $\vec{\alpha} = (\alpha_1, \dots, \alpha_n)$, die von n Parametern abhängt. Mit dieser Funktion kann man dann den niedrigsten Eigenwert des Spektrums annähern, indem man den Parameter/-satz solange in einem iterativen Verfahren variiert, bis man ein $\psi(\vec{\alpha}^0)$ mit minimalem Eigenwert findet. Dieses Verfahren läßt sich auch auf Unterräume des Spektrums $\{E_n\}$ anwenden, sodaß es ebenso zur Bestimmung höherer Eigenwerte dient.

Diese Methode wird zum Beispiel bei den Hartree-Fock-Lösungsansätzen angewendet [70]. Das Resultat einer einparametrischen Variation (p_1) des Radialteils der Einteilchenwellenfunktion $P_{1s}(r) \propto e^{-p_1 Z r}$ für $r \rightarrow \infty$ resultiert in einer Abschirmung des Kernpotentials aus $\mathcal{H}_{\text{atom}}$. Die korrigierte Wellenfunktion enthält anstelle der Kernladung eine verminderte, effektive Ladung Z_{eff}

$$\Phi^{HF} = N e^{-Z_{\text{eff}} r} \quad \text{mit} \quad Z_{\text{eff}} = Z - \frac{5}{16} \quad (2.47)$$

¹¹Für eine detaillierte Analyse der unterschiedlichen Ansätze wird auf zahlreiche Diskussionen in der Literatur verwiesen [63, 69].

hierin ist N kein freier Parameter sondern eine Normierungskonstante. Es gibt unterschiedliche Hartree-Fock- Variationsansätze, deren Parameter sich in Anzahl und in dem funktionalen Zusammenhang unterscheiden [71], jedoch gelingt mit diesem Verfahren nur eine Optimierung des Energieeigenwertes im Rahmen des Modells unabhängiger Teilchen. Die Wellenfunktion des Gesamtsystems bleibt weiterhin das Produkt zweier identischer Einteilchenfunktionen ohne Korrelation. Es darf daher bezweifelt werden, daß diese Lösung eine ausreichende Beschreibung der dynamischen Vorgänge im Heliumatom liefern kann.

Einen Lösungsansatz, der die Elektron-Elektron-Wechselwirkung in genäherter Form zu berücksichtigen versucht, liefert die Hylleraas Funktion [72]. Der Radialteil einer $1s$ -Wellenfunktion eines einzelnen gebundenen Elektrons wird wie in (2.47) durch $R_{1s}(r) \propto e^{-Zr}$ beschrieben. Ausgehend von dieser Erkenntnis führt man für die repulsive Elektron-Elektron-Wechselwirkung ebenfalls einen Term $e^{r_{12}}$ mit $r_{12} = |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|$ ein. Die Ortsraumwellenfunktion wird daher in elliptischen Koordinaten $\{s, t, u\}$ mit

$$s = r_1 + r_2, \quad t = r_2 - r_1, \quad u = |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2| \quad (2.48)$$

dargestellt. Auch diese Lösungen sind parameterabhängig und werden nach dem Variationsverfahren erlangt. Berakdar verwendete in seinen Rechnungen mehrere verschiedene Funktionen dieses Typs [4, 5, 6]: Darunter eine 2-parametrische Funktion

$$\Phi^{Hyl} = N e^{-p_1 s + p_2 u} \quad (2.49)$$

mit $N = 1,474$ und den Parametern $p_1 = 1,858$ und $p_2 = 0,255$ oder eine 3-parametrische Funktion

$$\Phi^{Hyl} = N \left(e^{-p_1 r_1 - p_2 r_2} + e^{-p_1 r_2 - p_2 r_1} \right) e^{p_3 u}. \quad (2.50)$$

Dieser Funktionstyp kann, abweichend von der $e^{r_{12}}$ -Struktur, ganz unterschiedliche Gestalt annehmen. Allen Hylleraas-Typ-Funktionen ist dabei die Darstellung in elliptischen Koordinaten gemeinsam [73]. Ein weiteres Beispiel (in Auszügen) hierfür ist [74]

$$\Phi^{Hyl} = N e^{-p_1 s} (1 + p_2 u + p_3 t^2 + p_4 s + p_5 s^2 + p_6 u^2 + p_7 s u + p_8 t^2 u + \dots). \quad (2.51)$$

Hieran ist zu erkennen, daß das Verfahren noch weiter präzisiert werden kann, indem man einen Ansatz mit immer mehr Parametern (bis zu 200 [75]) und immer höheren Potenzen in s , t und u wählt. Dabei gilt als Maß der Genauigkeit der Wellenfunktion wiederum die Grundzustandsbindungsenergie E_0 .

Einen anderen Zugang zur Berechnung der Grundzustandswellenfunktion wählen Le Sech *et al.* [76, 77]. Sie separieren die Wellenfunktion bereits im Ansatz in ein Produkt aus einem Elektron-Kern- und einem Elektron-Elektron-Wechselwirkungsteil. In den Lösungen wird außerdem explizit die sogenannte Cusp-Bedingung [78] der Elektron-Kern-Wechselwirkung als Randbedingung gefordert:

$$\lim_{r_{1,2} \rightarrow 0} \left\langle \frac{\partial \Phi}{\partial r_{1,2}} \right\rangle = -Z. \quad (2.52)$$

Die Bedingung verlangt bildlich, daß im Grenzfall eines sehr kernnahen Elektrons, dieses keine Abschirmung des Kernpotentials mehr durch das zweite Elektron erfährt, das zweite Elektron also weit weg ist. Die Korrektur hat jedoch keinen großen Einfluß auf die Energieeigenwerte, da diese hauptsächlich aus den Beiträgen um den mittleren Elektronenradius resultieren [79]. Sie könnte hingegen für die dynamische Korrelation der Elektronen und somit für differentielle Querschnitte eine wichtige Rolle spielen.

Die Lösungen, wiederum über das Variationsverfahren ermittelt, sind ebenfalls mehrparametrische Funktionen, die im Grunde ähnliche Gestalt wie die Lösungen vom Hylleraastyp haben, jedoch mit einem Zusatzterm, der die Erfüllung der Cusp-Bedingung gewährleistet

$$\Phi^{LS} = N e^{-Zr_1} e^{-Zr_2} \left(\cosh(p_1 r_1) + \cosh(p_1 r_2) + p_2 (r_1 - r_2)^2 \right) \left(1 + \frac{1}{2} u e^{-p_3 u} \right). \quad (2.53)$$

Nur der Vollständigkeit wegen sei noch der Ansatz der „Configuration Interaction“ (CI) erwähnt. Bei diesem Verfahren wird die Gesamtwellenfunktion durch eine Linearkombination aus Lösungen unabhängiger Einteilchenfunktionen konstruiert. Das Prinzip besteht darin, eine ausreichende Basis für die Beschreibung des Targets zu finden, das heißt einen Satz von Basisfunktionen ψ_n^N , $n = 1, \dots, N$, mit

$$\langle \psi_f^N | \mathcal{H}_{\text{atom}} | \psi_i^N \rangle = \delta_{fi} E_f^N, \text{ sodaß } \langle \psi_n^N | \psi_n^N \rangle \approx 1 \text{ und } E_n^N \approx E_n, \quad (2.54)$$

zu suchen. Hierin sind ψ_n die exakten Funktionen und E_n die zugehörigen Eigenwerte. Die Koeffizienten der Linearkombination, also die Gewichtungsfaktoren der Beimischungen der einzelnen Zustände, sind hier die Variationsparameter. Die Größe der Basis wird durch den Abbruch bei Erreichen eines Konvergenz-Schwellenwertes bestimmt. Dabei werden Basissätze von typischerweise 10 oder mehr Zuständen verwendet. Ansätze dieser Art führt man auch unter dem Namen Multi-Configuration-Hartree-Fock (MCHF).

Als letztes soll ein Vergleich des experimentellen Resultats E_0^{Exp} [80] mit den Helium-Grundzustandsenergien aus dem einfachen Modell unabhängiger Teilchen (IP), dem 1-Parameter-Hartree-Fock Verfahren (HF1) nach (2.47), dem Ansatz nach (2.53) (LS), einer einem 3-parametrischen Hylleraas-Ansatz (Hyl3), einem 14-parametrischen Hylleraas-Ansatz (Hyl14) [74] und einem 18-parametrischen CI-Ansatz (CI18) nach [1] dazu dienen, die Exaktheit der Theorien in dieser „Teildisziplin“ zu verdeutlichen:

E_0^{Exp} [a.u.]	E_0^{IP}	E_0^{HF}	E_0^{LS}	E_0^{Hyl3}	E_0^{Hyl14}	E_0^{CI18}
-2,90372	-2,75	-2,862	-2,9026	-2,90244	-2,90370	-2,90326

Auch bei einer solchen Präzision in der Voraussage der Grundzustandsenergie muß jedoch nicht gewährleistet sein, daß die Wellenfunktionen das Atom in allen seinen übrigen Eigenschaften ebenso gut beschreiben. Das zu untersuchen, ist Teil der Motivation dieser Arbeit und der gesamten modernen Atomphysik.

2.2.3.2 Beschreibung des Endzustands

Die Beschreibung des Endzustands wirft folgende Problematik auf: Einerseits ist die Wechselwirkung der drei Teilchen für den Fall $t \rightarrow \infty$, die auf den langreichweitigen Coulombkräften beruhen, exakt zu beschreiben. Andererseits muß eine Wellenfunktion gefunden werden, die die aus der Übergangsamplitude resultierende Ionisationswahrscheinlichkeit richtig erfaßt.

Das Modell der BBK-Wellenfunktionen [35, 36, 37] liefert einen Ansatz, der darauf ausgelegt ist, alle Effekte der Coulomb-Wechselwirkung asymptotisch so genau wie möglich zu berechnen. In dieser Darstellung werden die Elektronen durch das Produkt zweier ebener Wellen beschrieben und alle drei Coulomb-Wechselwirkungen zwischen dem Ion und den Elektronen durch sogenannte Coulomb-Korrekturterme genähert. Daher tragen diese Wellenfunktionen auch die Bezeichnung „3C“-Wellenfunktionen

$$\Phi_{3C} = N e^{i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}_1} e^{i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}_2} F(\mathbf{k}_1, \mathbf{r}_1) F(\mathbf{k}_2, \mathbf{r}_2) F(\mathbf{k}_{12}, \mathbf{r}_{12}), \quad (2.55)$$

$$\text{mit} \quad \mathbf{k}_{12} = \frac{1}{2}(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \quad \text{und} \quad \mathbf{r}_{12} = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2.$$

Die numerisch weniger aufwendige „2C“-Wellenfunktion ergibt sich aus (2.55), durch $F(\mathbf{k}_{12}, \mathbf{r}_{12}) \equiv 1$, das heißt wenn die Elektron-Elektron-Wechselwirkung im Ausgangskanal außer Acht gelassen wird. Wählt man diese Funktion und ersetzt den fehlenden Korrekturterm durch den Gamov- oder Korrelationsfaktor, gelangt man zu einer leicht simplifizierten Näherung des Endzustands. Der Gamovfaktor ist eine von der Relativgeschwindigkeit der Elektronen abhängige Funktion. Sie wurde eigens für eine Korrektur derselben Art in (e,2e)-Rechnungen von Botero und Macek eingeführt [81]. Dieser Ansatz findet in der Rechnung von Keller Verwendung [40].

Pont und Shakeshaft gehen bei Berechnung des Wirkungsquerschnitts einen anderen Weg. Sie konnten zeigen, daß in ihrer Terminologie die einzigen Beiträge der Endzustandswellenfunktion zum Wirkungsquerschnitt aus dem asymptotischen Bereich kommen, wo es keine Elektron-Elektron-Wechselwirkungs-Beiträge mehr gibt [44, 45, 46]. Dazu bedienen sie sich einer Notation, in der sämtliche Korrelation des Endzustands in die Beschreibung des Anfangszustands $\mathcal{F}^+$ übernommen wird. Wie dieser Anfangszustand aussieht, ist zunächst unbekannt. Er wird im Gegensatz zu obigem Verfahren nicht „konstruiert“, sondern mit der Randbedingung, daß das Ortsraum-Volumenintegral über $\mathcal{H}|\mathcal{F}^+\rangle$ zu einem Oberflächenintegral an der Stelle $r \rightarrow \infty$ konvergiert, in numerisch sehr aufwendigen „Close-Coupling“- oder „gekoppelte Kanäle“-Rechnungen ermittelt¹² [73]. Das Resultat bietet im Gegensatz zu den oben vorgestellten Ansätzen keinen physikalischen Interpretationsspielraum, sondern ist das rein mathematische Ergebnis der Konvergenzbedingung. Da die Elektron-Elektron-Wechselwirkung unmittelbar nach der Absorption von der Beschreibung des Endzustands entkoppelt ist, fällt die Wahl für die Endzustandswellenfunktion auf das Produkt zweier ebener Wellen in einem abgeschirmten Coulombpotential. Die

¹²An dieser Stelle ist die Konstruktion der Anfangszustände nicht mehr allein auf eine bestmögliche Annäherung an den tatsächlichen Energieeigenwert ausgerichtet, obgleich das Resultat der Close-Coupling-Rechnung im Allgemeinen gerade die hochkorrelierten Anfangszustände mit den besten Energieeigenwerten liefert.

Abschirmung F_i wird durch die Einführung einer geschwindigkeitsabhängigen effektiven Ladung Z_i erzielt:

$$\Phi_{2SC} = N e^{i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}_1} e^{i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}_2} F(Z_1) F(Z_2), \quad (2.56)$$

$$\text{mit} \quad Z_{1,2} = Z - \Delta_{1,2}(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2).$$

Diese Rechnung erhält in der Literatur die Kurzbezeichnung „2SC“-Methode. Da die Beschreibung der auslaufenden Elektronen für $t \rightarrow \infty$ in der angegebenen Form exakt ist, sagen die Autoren für diese Rechnungen voraus, daß — sofern die Konvergenz des Matrixelements ausreichend ist — es keine durch Näherungen verursachten Fehler geben kann. Sie geben für ihre Resultate einen relativen Fehler von 5% an [69].

In dem Vergleich beider hier diskutierter Theorien wurde eine gute Übereinstimmung bezüglich der vorhergesagten Winkelverteilungen erzielt [69]. In der Berechnung der totalen Wirkungsquerschnitte weichen beide Vorhersagen jedoch wesentlich voneinander ab. Ein Vergleich mit experimentellen Daten zeigt, daß hier die Beschreibung der 3C-Wellenfunktionen versagt, während die 2SC-Theorie ein gutes Resultat liefert [82], siehe Abb. 2.2.

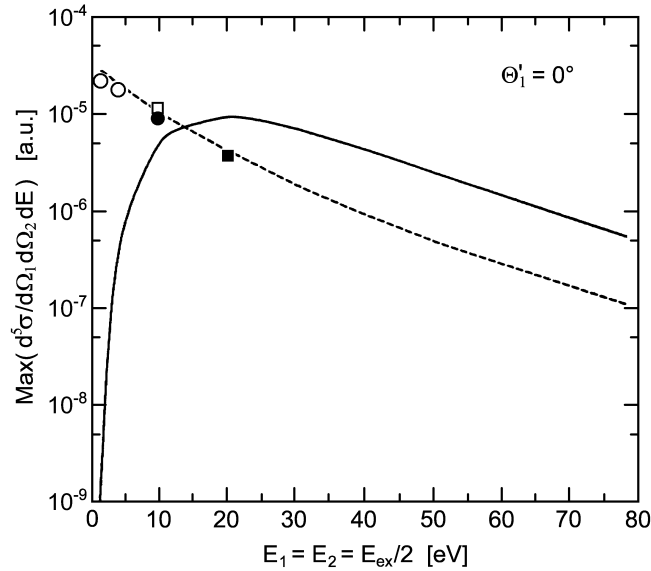


Abbildung 2.2: Vergleich des Absolutwerts des 5DCS der Photoionisation mit linear polarisiertem Licht aus [69] und [82]. Verglichen wird der Maximalwert des 5DCS in koplanarer Geometrie senkrecht zur Ausbreitungsrichtung bei gleicher Enregieaufteilung und Emission eines Elektrons in Polarisationsrichtung ($\vartheta'_1 = 0^\circ$). Gestrichelte Linie: 2SC-Rechnung nach Pont und Shakeshaft; Durchgezogene Linie: 3C-Rechnungen nach Maulbetsch und Briggs; Experimentelle Datenpunkte von Schwarzkopf (offenes Quadrat [24]), Dawber (offene Kreise [83]), Bräuning (gefüllter Kreis [27]), sowie Vogt (gefülltes Quadrat [25]).

2.2.4 CCC-Rechnung nach Bray *et al.*

Die sogenannte „Convergent Close Coupling“-Rechnung (CCC) nach Bray *et al.* [41, 42, 43] beruht ebenfalls auf dem Ansatz gekoppelter Kanäle. Bei dieser Theorie ist — im Gegensatz zu den Rechnungen von Shakeshaft *et al.* — jedoch keine physikalisch motivierte Annahme für den Endzustand enthalten [73]. Sie beruht vollständig auf dem numerischen Ergebnis der Konvergenz der T-Matrix in gekoppelte-Kanäle-Rechnungen. Aufgrund des methodischen Unterschieds dieser Theorie wurde dieser Abschnitt nicht in die Diskussion der „Lösungsansätze mit genäherten Wellenfunktionen“ einbezogen.

Das CCC-Verfahren wurden erstmals in Rechnungen zu Elektron-Wasserstoff- und Elektron-Helium-Stößen mit Anregung bzw. Einfachionisation des Atoms angewendet [42]. Als atomare Anfangszustände verwenden die Autoren hochkorrelierte CI-Ansätze oder Hylleraas-Typ-Funktionen. Mit Hilfe eines formalen Projektionsoperators auf diese Zustände wird sowohl der komplette Anfangszustands- als auch der Endzustandsraum gebildet. Der Hamiltonian der Reaktion setzt sich aus $\mathcal{H}_{\text{atom}}$ und einem Operator der kinetischen Energie des Projektilelektrons $\mathcal{K}_0$ zusammen. Auf diese Weise nimmt der Endzustand in der Basisdarstellung (2.54) die Gestalt $|k_f \psi_f^N\rangle$ an. Die Lösung der formalen T-Matrix ist Aufgabe der Close-Coupling-Methode, die das eigentliche Konvergenzkriterium einbringt: Erst wenn die Hinzunahme von weiteren Basisfunktionen (nach Diagonalisierung der Matrix) keine Verbesserung der Konvergenz bewirkt, gilt die Basis als ausreichend¹³. Auf diese Weise wurden zur Berechnung der Winkelverteilungen, die als Vergleich zu den Messungen dieser Arbeit vorliegen, Basissätze von 75 Zuständen gebildet [84].

Die Resultate der Rechnung ergaben hervorragende Übereinstimmung mit Experimenten zu totalen und auch zu differentiellen Wirkungsquerschnitten der elastischen Elektronenstreuung [42, 85], Elektronenstoßanregung [43, 86] sowie auch der Ionisation (e,2e) [87, 88, 86].

Darauf aufbauend konnte die Theorie auch für die Photodoppelionisation erweitert werden [89, 1, 84]. Dazu wird die Doppelionisation in einen Zweistufenprozeß zerlegt¹⁴: Nach obigem CCC-Verfahren wird eine Basis von He^{1+} -Zuständen $|k_j \psi_j^N\rangle$ berechnet. Diese Basis dient dazu den, Zwischenzustand nach der Einfachionisation zu beschreiben. Die Übergangsmatrix der Photodoppelionisation nimmt dann die Form

$$T \propto \sum_j \langle k_f \psi_f^- | \mathcal{T}_{CCC} | k_j \psi_j^+ \rangle \langle k_j \psi_j^+ | \mathcal{D} | k_i \psi_i \rangle, \quad (2.57)$$

mit dem Dipoloperator $\mathcal{D} = \hat{\mathbf{P}} \cdot \nabla$ an.

Unter Erweiterung der Basis des Anfangszustands konnte gezeigt werden, daß nicht nur eine Konvergenz gegen den exakten Energieeigenwert des Heliumgrundzustands erzielt wird,

¹³Die Abbruchbedingung wird in der Praxis durch einen Kompromiß aus Rechenzeit und Exaktheit gegeben sein.

¹⁴Hierin wird der konzeptionelle Unterschied zu obigen Theorien sichtbar, die Elektron-Elektron-Wechselwirkung wird nicht in die Beschreibung des Zustands einbezogen, sondern als zweite Störung behandelt. Diese Zerlegung des Operators gleicht eher dem aus der MBPT bekannten Vorgehen.

sondern sich in dieser Rechnung auch das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte σ^{2+}/σ^{1+} dem experimentellen Wert von Spielberger *et al.* annähert [14, 1]. Weitere ausgezeichnete Übereinstimmung mit experimentellen Daten zeigt der Vergleich mit den 5DCS-Daten von Bräuning *et al.* [27], siehe Anhang B.

Abgesehen von dem Vergleich mit experimentellen Befunden, zeigen auch die Berechnungen des Verhältnisses in den verschiedenen Eichungen eine gute Übereinstimmung. Hierbei wird der Einfluß des gewählten Anfangszustands deutlich erkennbar, siehe Abb. 2.3. Es

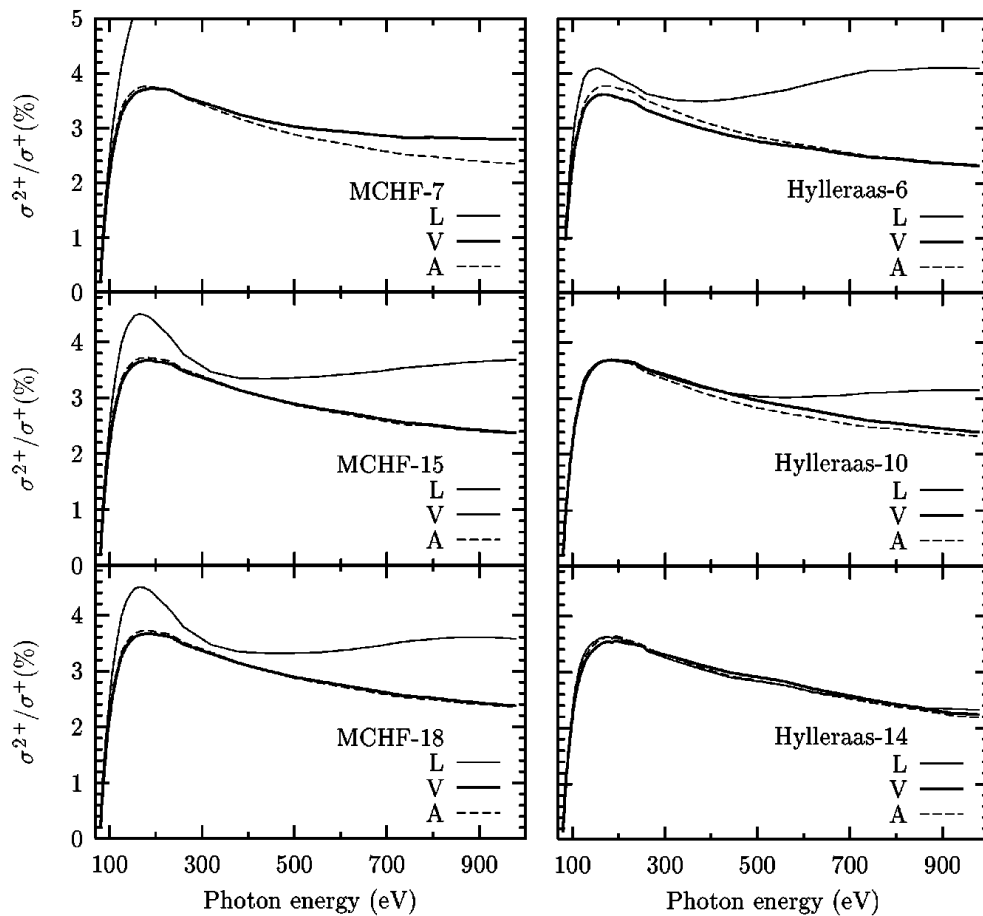


Abbildung 2.3: Verhältnis σ^{2+}/σ^{1+} in CCC-Rechnungen. Links sind drei mehrparametrische Multi-Configuration-Hartree-Fock-Ansätze gewählt, rechts drei Anfangszustände vom Hylleraas-Typ. Die Anzahl der Parameter sind jeweils in den Abbildungen indiziert. Alle Rechnung wurden zur Kontrolle der Übereinstimmung in verschiedenen Eichungen durchgeführt, aus [1].

zeigt sich, daß die Rechnung in der Längen- und Geschwindigkeitsform, basierend auf einem Hylleraas-Anfangszustand, bereits mit einem 6-parametrischen Ansatz gut zur Deckung gelangen und mit 14 Parametern in dem betrachteten Energieintervall bis $E_\gamma = 1 \text{ keV}$ eine nahezu perfekte Übereinstimmung in allen drei Formen aufweist. Etwas aufwendiger ist es, dieselbe Qualität mit Anfangszuständen vom Hartree-Fock-Typ zu erzwingen.

Generell kann festgestellt werden, daß die Übereinstimmung der Ergebnisse in den unterschiedlichen Formen auch eine unabdingbare Voraussetzung für einen Vergleich mit

experimentellen Ergebnissen liefert, da die Wirklichkeit nicht von der Eichung abhängen kann, in der man rechnet.

2.3 Semiklassische Methoden, Wannier-Theorie

Die Wannier-Theorie basiert auf der rein klassischen Überlegung, daß zwei Elektronen, die mit wenig Überschußenergie ins Kontinuum gehoben werden, bei nahezu gleicher Energieaufteilung in entgegengesetzter Richtung auseinanderlaufen, der Schwerpunkt verharrt im Grenzfall in Ruhe [28]. Damit beschränkt sich diese Beschreibung allein auf den Fall der Doppelionisation. Die Forderung nach einem ruhenden Schwerpunkt — und somit auch nach einem ruhenden Ion — ist äquivalent zu der Forderung $\mathbf{k}_1 = -\mathbf{k}_2$, wie anhand der Impulserhaltung deutlich wird. Für die Photoionisation von Helium ist aufgrund der ungeraden Parität des Endzustands aber genau dieser Fall kinematisch verboten, vgl. Abschnitt 2.4.2.1. Dennoch konnten Dörner *et al.* experimentell bestätigen, daß mit abnehmender Überschußenergie ein zunehmender Anteil der Energie in die Relativbewegung der Elektronen und weniger in die Schwerpunktsbewegung fließt [90], siehe Abb. 2.5. Anders gesagt, die Elektronen formen einen Potentialsattel, auf dem das He^{2+} -Ion verweilt oder nur langsam senkrecht zur Relativbewegung der Elektronen entkommen kann. Für die Darstellung dieser Resultate werden aufgrund dieser Symmetrie üblicherweise Jakobikoordinaten gewählt (vgl. Abb. 2.4):

$$\mathbf{R} = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2 \quad \text{und} \quad \mathbf{r} = \frac{1}{2}(\mathbf{r}_1 + \mathbf{r}_2) \quad (2.58)$$

$$\mathbf{k}_r = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = -\mathbf{K}_{\text{ion}} \quad \text{und} \quad \mathbf{k}_R = \frac{1}{2}(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \quad (2.59)$$

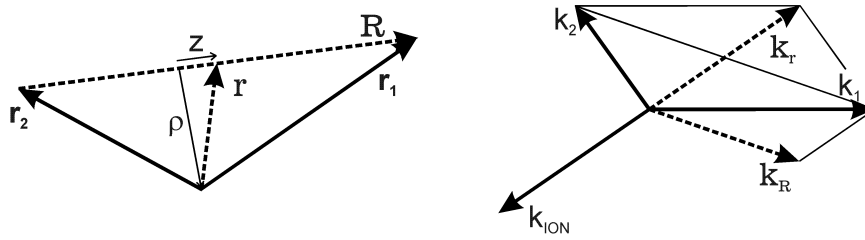


Abbildung 2.4: Transformation der Elektronenimpulse $\mathbf{k}_1$ und $\mathbf{k}_2$ und der Ortsvektoren $\mathbf{r}_1$ und $\mathbf{r}_2$ in Jakobi-Koordinaten $\mathbf{k}_r$ und $\mathbf{k}_R$ bzw. $\mathbf{R}$ und $\mathbf{r}$. $\mathbf{R}$ definiert die z -Achse und ρ den Radius der Zylinderkoordinatensystems.

Die quantenmechanische Erweiterung des Modells zeigt für Energien $E_{\text{ex}} > 0$, daß der Fall, bei dem der Summenimpuls $\mathbf{k}_r$ in Richtung des Polarisationsvektors weist, bevorzugt wird [29, 34]. Dieser Befund läßt sich damit begründen, daß sich ein stabiler Zustand nur einstellt, wenn der Schwerpunkt auf dem Sattel der Elektronenpotentiale oszilliert. Indes führt der Fall $\mathbf{R} \parallel \hat{\mathbf{P}}$ automatisch zu einer Rekombination und steht damit

nicht länger dem Doppelionisationskanal zur Verfügung. Dagegen weist der Vektor der Relativgeschwindigkeit $\mathbf{k}_R$ in senkrechter Richtung dazu. Auch diese Ergebnisse wurde experimentell durch die Arbeit von Dörner *et al.* bestätigt, wie in Abb. 2.6 zu sehen ist.

Eine andere zentrale Aussage dieses Modells ist, daß der totale Wirkungsquerschnitt proportional zu E_{ex}^ω ist, wobei der „Wannier-Exponent“ für die Photodoppelionisation mit $\omega = 1,056$ angegeben wird [33]. Die Gültigkeit dieses Modells beschränkt sich dabei im wesentlichen auf den Energiebereich knapp oberhalb der Doppelionisationsschwelle [30, 31, 32], in neueren Arbeiten konnte Feagin diesen Bereich auf 10 – 20 eV ausdehnen [33, 34].

Das Interessante an der Darstellung — ungeachtet der Bedeutung der theoretischen Beschreibung — ist, daß sie den Resultaten der Rückstoßionenimpulsspektroskopie, die in Abschnitt 3.2 ausführlich vorgestellt wird, eine direkte Vergleichsmöglichkeit mit den theoretischen Vorhersagen bietet, da der Impuls $\mathbf{k}_r = -\mathbf{K}_{\text{ion}}$ bei dieser Technik direkt nachgewiesen wird. Die Transformation in Jakobikoordinaten erfordert allerdings die vollständige Kenntnis des 9-dimensionalen Impulsraums, da Raumwinkelausschnitte im Laborsystem nach (2.59) zu unvollständigen Beiträgen des Wirkungsquerschnitts im Schwerpunktsystem führen.

2.4 Parametrisierung der Winkelverteilungen

Eine Parametrisierung soll dazu dienen, (Teil-) Ergebnisse einer Messung in einer einfachen oder allgemeingültigen mathematischen Gestalt zusammenzufassen, ohne dabei unmittelbar die der Reaktion zugrundeliegenden physikalischen Gesetze beschreiben zu müssen¹⁵. Eine physikalische Erkenntnis muß also nicht direkt aus einer Parametrisierung hervorgehen¹⁶. Im Fall der Photoionisation ist das experimentelle Ergebnis der Wirkungsquerschnitt, daher wird man versuchen, den quantenmechanischen Endzustandsraum bzw. das quantenmechanische Übergangsmatrixelement (oder zumindest Teile davon) nach Parametern zu entwickeln. Dabei kann man so vorgehen, daß zum Beispiel die Winkelverteilung oder den Anfangszustand nach bestimmten Symmetrien untersucht und diese dazu genutzt werden die Anzahl der Freiheitsgrade zu reduzieren. Die verbleibenden Unbekannten werden dann durch die sogenannten „Asymmetrieparameter“ dargestellt.

Im Fall der Einfachionisation durch Photonen zeigt sich, daß die Polarisation nur kinematisch zu der Winkelverteilung des emittierten Elektrons beiträgt. Somit kann die Polarisationsrichtung im Rahmen der Dipolnäherung als geometrischer Parameter aus dem differentiellen Wirkungsquerschnitt, der sich aus (2.41) berechnen läßt, herausgezogen werden [91, 92, 93, 94].

Da sich diese Parametrisierung als erfolgreich erwies, wurde eine Erweiterung des Einfachionisations-Kalküls auch auf die Beschreibung des differentiellen Wirkungsquerschnitts

¹⁵Dies ist insbesondere dort von Interesse, wo die physikalische Theorie nicht in der Lage ist, die Natur in geschlossener Form zu beschreiben.

¹⁶Historisch betrachtet, wurden viele Parametrisierungen basierend auf verschiedenen Theorien, zum Beispiel im Bereich der Elementarteilchenphysik, dazu genutzt, die experimentellen Daten zu untersuchen und so Symmetrien in dem „Teilchenzoo“ aufzudecken oder Wechselwirkungsterme zu analysieren.

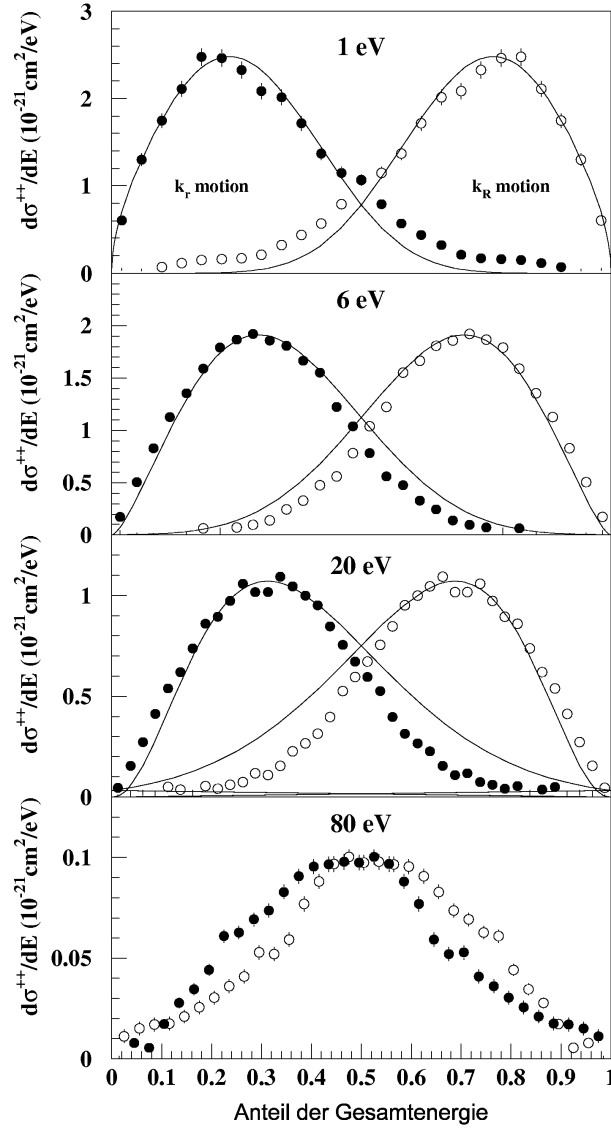


Abbildung 2.5: Absoluter einfach differentieller Doppelionisations-Wirkungsquerschnitt in Abhängigkeit der Energieaufteilung in den Anteil der Relativbewegung $E_R = \mathbf{k}_R^2$ (offene Kreise) und den Anteil der Schwerpunktsbewegung $E_r = \mathbf{k}_r^2/4$ (volle Kreise) für verschiedene Photonenenergien aus [90]. Die Linien sind Resultate der Wanniertheorie in vierter Ordnung, normiert auf die experimentellen Daten.

der Photodoppelionisation angewandt [95, 3, 4]. Eine weitere Verallgemeinerung auf eine alle Polarisationsformen implizit enthaltende oder targetunabhängige Parametrisierung bedeutet in der Regel eine Reduktion der Symmetrien und führt somit letztlich zu einer komplizierteren Darstellung¹⁷. Eine solche Verallgemeinerung wird in den Arbeiten von Huetz *et al.* vorgestellt und auch auf ihre Anwendbarkeit untersucht [96, 97].

¹⁷Im dem Grenzfall der „vollständigen Verallgemeinerung“ erhält man wieder alle Freiheitsgrade der Reaktion. Im Grunde stellt daher die physikalische Theorie selbst nichts anderes als eine Parametrisierung dar, mit der Besonderheit, daß die Parameter die uns vertrauten physikalische Observablen sind.

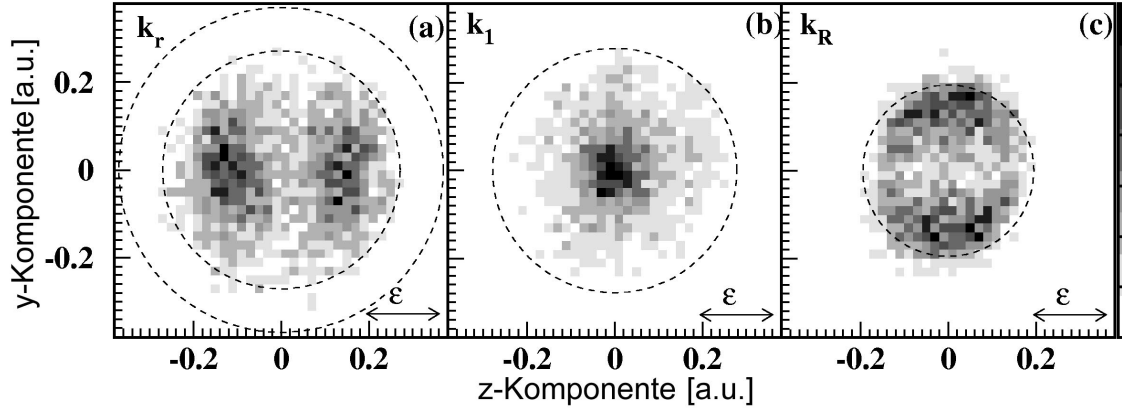


Abbildung 2.6: Impulsverteilung in der Ebene senkrecht zur Ausbreitungsrichtung (x-Richtung), der Polarisationsvektor zeigt in z-Richtung, bei einer Photonenenergie von 80,1 eV aus [90]. In Teil (a) ist die Verteilung des Schwerpunktsimpulses $\mathbf{k}_r$ aufgetragen, der innere Kreis markiert den Werte gehörend zur halben Überschußenergie, der äußere den Maximalwert. In (b) ist die Verteilung des Impulses eines Elektrons $\mathbf{k}_1$ dargestellt, der Kreis entspricht dem maximal möglichen Impuls eines Elektrons. In (c) ist die Verteilung des Relativimpulses $\mathbf{k}_R$ aufgetragen, der Kreis markiert hier ebenfalls den Maximalwert.

Allen Fällen ist gemeinsam, daß ihrer Parametrisierung die Darstellung des Übergangsmatrixelements in Dipolnäherung zugrundeliegt. Auf eine detaillierte Analyse der technischen Besonderheiten wird hier im einzelnen verzichtet.

2.4.1 Einfachionisation

Die parametrisierte Darstellung von Photoionisationsquerschnitten geht in ihren Ursprüngen auf eine Arbeit von Jacobs [93, 94] zurück. Er entkoppelte die Kinematik von der Dynamik des Prozesses, indem er die Entwicklung des Endzustandskontinuums in Drehimpuls- und Paritäts-Eigenzustände durchführte. Nach Einführung des Dipoloperators in der entsprechenden Eichung reduzierte er mit Hilfe eines Dichte-Matrix-Formalismus [98] die Darstellung des differentiellen Querschnitts auf sogenannte „Winkelverteilungsparameter“. Das Resultat für die Winkelverteilung eines Photoelektrons unter Annahme eines nicht ausgerichteten Targets nimmt eine einfache Gestalt an. In dem Koordinatensystem, in dem die Polarachse z durch die Richtung der Lichtausbreitung $\mathbf{k}_\gamma$ und die x -Achse durch die Hauptachse der Polarisationsellipse ausgezeichnet ist, beschreibt ϑ den Polarwinkel der Emissionsrichtung $\mathbf{k}_e$ des Elektrons und φ den Azimutalwinkel, siehe Abb. 2.7. In der allgemeinsten Form (den Elektronenspin ausgenommen), läßt sich der differentielle Querschnitt nach [99] parametrisieren

$$\frac{d^2\sigma^{1+}}{d\Omega} = \frac{\sigma_{\text{tot}}^{1+}}{4\pi} \left[1 - \frac{\beta}{2} \left(P_2(\cos \vartheta) - \frac{3}{2} \tilde{S}_1 \cos 2\varphi \sin^2 \vartheta \right) \right], \quad (2.60)$$

$$P_2(\cos \vartheta) = \frac{3}{2} \cos^2 \vartheta - \frac{1}{2}.$$

Hierin sind σ_{tot} der totale Einfachionisationsquerschnitt und β der dimensionslose Anisotropieparameter (auch als β -Parameter bezeichnet). Dies sind die aus den experimen-

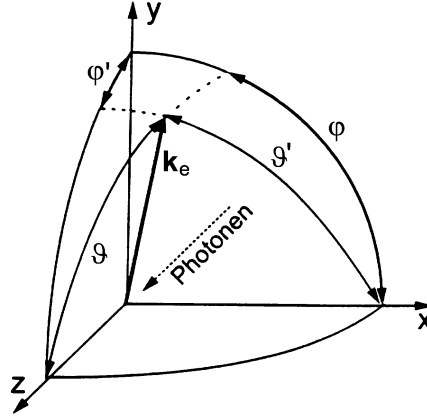


Abbildung 2.7: Definition der Polarkoordinatensysteme für zirkuläre und lineare Polarisation. Hierin sind die z -Achse durch die Lichtausbreitungsrichtung und die x -Achse durch die Hauptachse der Polarisationsellipse definiert. Man erhält zwei Koordinatensysteme: Das „Strahlsystem“ (ohne Indizierung), in dem die Polarachse in z -Richtung weist und das vorwiegend für die Darstellung zirkularer Polarisation herangezogen wird, sowie das „Polarisationssystem“ (einfach gestrichen), in dem die Polarachse in x -Richtung weist, die im allgemeinen Fall durch die Lage der Hauptachse der Polarisationsellipse ausgewiesen ist.

tellen Daten zu ermittelnden Größen (Parameter). Diese einfache Parametrisierung beschreibt den differentiellen Wirkungsquerschnitt, ausgenommen den Spin des Elektrons, vollständig¹⁸. Der totale Wirkungsquerschnitt ist energieabhängig, der β -Parameter hingegen nicht. Der Wert für β wird bestimmt durch die Drehimpulserhaltung des Systems: Wird der Drehimpuls des Photons auf die Relativbewegung zwischen dem Elektron und dem Ion übertragen, dann nimmt β den Wert zwei an. In dem Fall, daß die Drehimpulserhaltung durch eine Ionisation mit gleichzeitiger Anregung des Ions in einen p -Zustand gewährleistet wird, erhält man $\beta = 0$.

Für rein zirkuläre Polarisation ($\tilde{S}_1 = 0$) gilt in diesem Koordinatensystem die vereinfachte Beziehung

$$\frac{d^2\sigma^{1+}}{d\Omega} = \frac{\sigma_{\text{tot}}^{1+}}{4\pi} \left[1 - \frac{\beta}{2} P_2(\cos \vartheta) \right], \quad (2.61)$$

Der Wegfall einer Winkelkoordinate trägt der Symmetrie um die Strahlachse Rechnung. Zwischen links und rechts zirkularer Polarisation kann dabei nicht unterschieden werden, daß heißt die Wirkungsquerschnitte sind identisch. Für vollständig linear polarisiertes Licht ($\tilde{S}_1 = 1$) bietet sich aufgrund der veränderten Symmetrie die Darstellung in einem Koordinatensystem an, in dem die Polarisationsrichtung x die Polarachse bildet. In diesem System ist die Winkelverteilung nur noch eine Funktion des Polarwinkels ϑ' und (2.60) kann zusammengefaßt werden zu

$$\frac{d^2\sigma^{1+}}{d\Omega'} = \frac{\sigma_{\text{tot}}^{1+}}{4\pi} [1 + \beta P_2(\cos \vartheta')]. \quad (2.62)$$

¹⁸Der Elektronenspin läßt sich durch drei zusätzliche Spinpolarisationsparameter ebenfalls erfassen, wird aber im folgenden nicht betrachtet, da die vorgestellten Messungen nicht spinsensitiv waren.

Diese Darstellung unterscheidet sich nur durch einen Faktor $-1/2$ von der Parameterdarstellung des Falls zirkularer Polarisation. Der β -Parameter drückt in (2.62) (2.61) jeweils die Abweichung von der isotropen Winkelverteilung ($\beta = 0$) des emittierten Elektrons aus, vgl. auch Abb. 2.8.

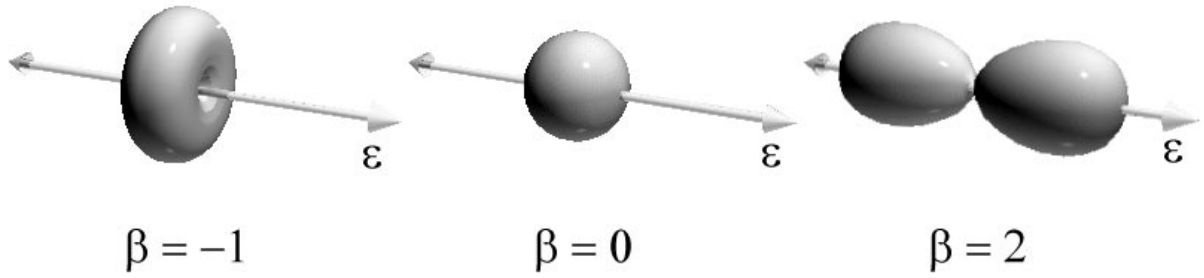


Abbildung 2.8: Winkelverteilung der Einfachionisation im Fall linearer Polarisation in Abhängigkeit des β -Parameters. Wird der Spin des Photons auf die Relativbewegung zwischen Elektron und Ion übertragen ($\beta = 2$), dann erhält man die typische Dipolcharakteristik. Wird gleichzeitig das Ion in einen p -Zustand angeregt ($\beta = 0$), dann ist die Verteilung des Elektrons isotrop.

Das Ergebnis der Winkelverteilungen wird allein aus den Symmetriebedingungen des quantenmechanischen Endzustands gewonnen. Daß die Emission im Fall linearer Polarisation entlang der Richtung des elektrischen Feldvektors ausgeprägt, hingegen bei zirkularer Polarisation rotationssymmetrisch zur Ausbreitungsrichtung ist, ist jedoch auch intuitiv klar.

Da in der Regel die experimentellen Bedingungen keine reinen Polarisationszustände bieten, wird sich die Messung der Winkelverteilung der Einfachionisation als einfache Methode zur Bestimmung des Polarisationsgrades erweisen. Betrachtet man die Funktion (2.60) für ein festes $\vartheta = \pi/2$ in der Ebene senkrecht zur Strahlausbreitungsrichtung und untersucht nur die Ionisation ohne Anregung ($\beta = 2$), dann erhält man die einfache Beziehung

$$\frac{d^2\sigma^{1+}}{d\Omega} = \frac{3\sigma_{\text{tot}}^{1+}}{4\pi} \tilde{S}_1 \cos^2 \varphi, \quad (2.63)$$

in der $d^2\sigma^{1+}/d\Omega$ nur noch eine Funktion des Azimutalwinkels bezüglich der Photonenachse $\hat{\mathbf{e}}_x$ ist.

2.4.2 Doppelionisation

Im Fall der Doppelionisation ist der Wirkungsquerschnitt eine Funktion von insgesamt 5 Variablen, daher müssen die hinzugetretenen Abhängigkeiten von der Winkelverteilung des zweiten Elektrons sowie der Energieaufteilung zusätzlich von den Parametern erfaßt werden. Im Fall nicht vollständig differentieller Wirkungsquerschnitte läßt sich die Anzahl der Parameter entsprechend reduzieren.

Maulbetsch und Briggs konnten nachweisen, daß es innerhalb der Dipolnäherung Auswahlregeln für die Winkelverteilung der Elektronen nach Photodoppelionisation eines $\text{He}(1s^2)$ Zustands mit linear polarisiertem Licht gibt [36, 37]. Diese sind als Einstieg in das Kapitel der Parametrisierungen des Doppelionisationswirkungsquerschnitts sehr hilfreich, da sie in jeder Parametrisierung enthalten sein müssen.

2.4.2.1 Auswahlregeln

Die Auswahlregeln besagen, daß der Wirkungsquerschnitt unter gewissen kinematischen Konstellationen verschwinden muß:

$$\begin{aligned} \text{(I)} \quad & \mathbf{k}_1 \perp \hat{\mathbf{P}} \quad \wedge \quad \mathbf{k}_2 \perp \hat{\mathbf{P}}, \\ \text{(II)} \quad & \mathbf{k}_1 = -\mathbf{k}_2, \\ \text{(III)} \quad & \mathbf{k}_1 = \mathbf{k}_2, \\ \text{(IV)} \quad & |\mathbf{k}_1| = |\mathbf{k}_2| \quad \wedge \quad \vartheta'_1 + \vartheta'_2 = \pi. \end{aligned}$$

Im letzten Fall wird der Wirkungsquerschnitt für solche Elektronen gleicher Energie unterdrückt, deren Emissionswinkel bezüglich der Ebene senkrecht zur Polarisationsachse spiegelsymmetrisch ist, vgl. Abb. 2.7. Die Auswahlregel (I) ist eine Konsequenz des Übergangs aus einem 1S - in einen 1P -Zustand. Sie besagt somit, daß Elektronen, die beide senkrecht zur Polarisationsachse emittiert werden, keinen Übergang mit dem Drehimpulsübertrag $L = 1$ und $M = 0$ erlauben. Die Auswahlregel (II) wird durch die Parität der Endzustandsfunktionen erzeugt und spiegelt folgenden Sachverhalt wieder: Die Parität des Anfangszustands, das heißt des Heliumatoms, ist positiv. Aufgrund des Photonenimpulses ergibt sich insgesamt eine negative Parität des Endzustands, welche im Fall $\mathbf{k}_1 = -\mathbf{k}_2$ nicht gewährleistet ist. Die Auswahlregel (III) ist dynamischer Natur. Sie ergibt sich aus der Symmetrie des Übergangsmatrixelements und besagt, daß eine Emission beider Elektronen in derselben Richtung mit derselben Geschwindigkeit aufgrund der Coulombabstoßung nicht möglich ist. Diese Auswahlregeln bewirken eine starke Einschränkung der Winkelverteilungen insbesondere für den Fall gleicher Energieaufteilung und werden diese besonders bei niedrigen Energien dominieren.

2.4.2.2 Integrale Wirkungsquerschnitte

Proulx und Shakeshaft [44] haben anhand des dreifach differentiellen Wirkungsquerschnitts $d\sigma^{2+}/(dE_1 d\Omega_1)$ der Photodoppelionisation mit linear polarisiertem Licht eine Untersuchung der Parametrisierung nach [100] vorgenommen. Diese hat dieselbe Gestalt wie (2.62):

$$\frac{d^3\sigma^{2+}}{dE_1 d\Omega_1} = \frac{1}{4\pi} \frac{d\sigma^{2+}}{dE_1} [1 + \beta(E_1)P_2(\cos \vartheta'_1)] . \quad (2.64)$$

Ebenso wie oben hängt die Winkelverteilung des Elektrons nur noch von einer Winkelkoordinate ab. Die Unterschiede zur Einfachionisation bestehen darin, daß anstelle des totalen Wirkungsquerschnitts der einfach differentielle Wirkungsquerschnitt nach der Energie eines Elektrons getreten ist $d\sigma^{2+}/dE_1(E_1)$. Außerdem stellt der β -Parameter diesmal ebenfalls eine Funktion dieser Energie dar $\beta(E_1)$. Beide Größen hängen zudem noch von der absoluten Photonenenergie ab. Der Vergleich zwischen Theorie und Experiment

beschränkt sich also im Fall des dreifach differentiellen Wirkungsquerschnitts auf diese zwei eindimensionalen Funktionen. Die Berechnung des Parameters für eine Photonenenergie von $E_\gamma = 100$ eV ergibt nach dem Ansatz einer 2SC-Endzustandswellenfunktion (vgl. Abschnitt 2.2.3.2) für $\beta(E_1) \approx 0$. Dies entspricht der Voraussage einer isotropen Winkelverteilung für das erste Elektron, unabhängig von seiner Energie. Das Resultat konnte in Messungen belegt werden, siehe Abb. 2.9. In derselben Rechnung wurde auch gezeigt, daß der einfach differentielle Wirkungsquerschnitt $d\sigma^{2+}/dE_1$ bei 100 eV nicht von der Energie des Elektrons abhängt, und so einen konstanten Wert annimmt [44], siehe Abb. 2.10.

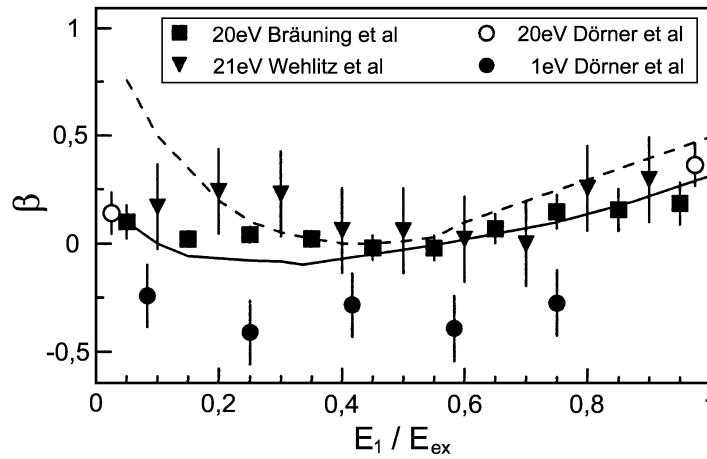


Abbildung 2.9: Abhängigkeit des β -Parameters von der Energieaufteilung nach Rechnungen von Proulx und Shakeshaft [44], durchgezogene Linie, und Maulbetsch und Briggs [36], gestrichelte Linie, jeweils für $E_{\text{ex}} = 21$ eV Überschußenergie. Die experimentellen Daten sind aus Arbeiten von Bräuning [101], Wehlitz [102] und Dörner [90].

In weiteren Arbeiten gelang es Pont und Shakeshaft [46] sowie Feagin [34], den dreifach differentiellen Wirkungsquerschnitt als Funktion des Rückstoßionenimpulses (oder genauer des Summenimpulses $\mathbf{k}_e = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2$ beider Elektronen) zu parametrisieren: $d^3\sigma^{2+}/d\mathbf{k}_e d\Omega_e(\mathbf{k}_e)$. Hierfür gilt dieselbe Winkelabhängigkeit wie in (2.64). Der β -Parameter ist also eine Funktion des Impulses $\mathbf{k}_e$ und wieder von der totalen Energie E_γ abhängig. Er nimmt typischerweise Werte zwischen 1 und 2 an, woraus eine Verteilung der Ionen resultiert, die der der Elektronen nach Einfachionisation sehr ähnlich ist. Diese Darstellung bietet wiederum einen direkten Vergleich mit Resultaten der Rückstoßionenimpulsspektroskopie.

2.4.2.3 Fünffach differentielle Wirkungsquerschnitte

Man findet in der Literatur zwei Parametrisierungen des fünffach differentiellen Wirkungsquerschnitts, deren exakte Darstellung sowie eine detailliertere Diskussion in Anhang C zu finden sind. Diese Parametrisierungen sind von Interesse, da sich erst hier die Unterschiede zirkularer und linearer Polarisation herausarbeiten lassen. Auf die Darstellung von

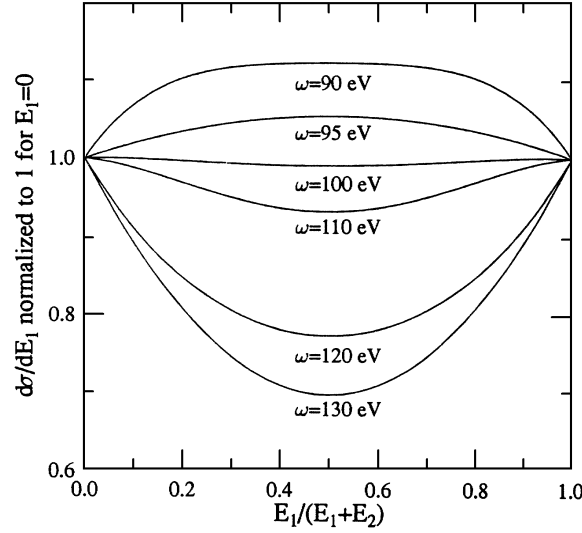


Abbildung 2.10: Einfachdifferentieller Doppelionisationsquerschnitt als Funktion der Energieaufteilung für verschiedene Überschußenergien E_{ex} nach der Rechnung aus [44].

Klar und Fehr [95] stützten sich desweiteren die quantenmechanischen Rechnungen von Berakdar *et al.* [4].

In der Einfachionisation stellt sich der Parameter als einfache Zahl dar. Im Fall des dreifach differentiellen Wirkungsquerschnitts ist er eine Funktion der Energie. Daher ist zu erwarten, daß der Parameter in höher differentiellen Wirkungsquerschnitten ein Funktion von weiteren Variablen sein wird.

Die Parametrisierung nach Klar und Fehr [95] ist formal eine direkte Verallgemeinerung des Falls der Einfachionisation durch linear polarisiertes Licht und führt daher auch zu einer Darstellung, aus der sich (2.62) ableiten läßt.

Die Wahl eines Koordinatensystems wird wie oben durch die Symmetrieachse — die Polarisationsachse bzw. Propagationsrichtung des Lichts im Fall linearer bzw. zirkularer Polarisation — gegeben. Die Parametrisierung entsteht aus der Partialwellenzerlegung des Wirkungsquerschnitts, die sämtliche Symmetrieeigenschaften des Systems enthalten. Dabei wird im Fall linearer Polarisation ein Ausdruck zweier additiver unendlicher Summen erzeugt, die den kinematischen Anteil der Wechselwirkung mit dem Photon von dem dynamischen Teil der Elektron-Elektron-Wechselwirkung separieren.

Zirkulare Polarisation liefert durch einen Tensorkalkül einen zusätzlichen, dritten Parametersatz. Diesen kann man isoliert bestimmen, indem man den sogenannten Zirkulardichroismus, der im folgenden Abschnitt vorgestellt wird, aus den Daten rechts- und linkszirkularer Polarisation bildet. Desweiteren unterscheiden sich die Anisotropieparameter wie auch im Fall der Einfachionisation durch einen Faktor $-1/2$.

Die praktische Anwendbarkeit dieser Parametrisierung beschränkt sich auf besondere geometrische Konstellationen (beispielsweise bei entgegengesetzt emittierten Elektronen) oder integrierte Querschnitte, da nur hier die Ermittlung einer endlichen Anzahl von Parametern ausreicht.

Die Parametrisierung nach Malegat *et al.* [96, 97] ist von den oben vorgestellten stark abweichend. Hier wird der Wirkungsquerschnitt, zunächst ohne Beschränkung auf bestimmte Symmetrien, allein durch Zerlegung des Übergangsmatrixelements dargestellt. Das wesentliche Merkmal dabei besteht in der Einführung zweier Koordinatensysteme, die durch die Emissionscharakteristik der Elektronen bestimmt sind. Automatisch tritt hierin die Trennung des dynamischen Anteils der Elektron-Elektron-Wechselwirkung von dem kinematischen Anteil in elementarer Form zu Tage. Der sich daraus ergebende Zusammenhang zwischen der Parameterdarstellung und den Winkelfunktionen weist deutliche Analogie zu der Einfachionisation auf: Während bei linearer Polarisierung der kinematische Winkelanteil allein Funktion des Winkels $\vartheta_{1,2}$ ist, tritt beim Übergang zu zirkularem Licht eine Abhängigkeit von beiden Winkeln $\vartheta_{1,2}$ und $\varphi_{1,2}$ auf. Der dynamische Term ist das Quadrat einer Übergangsmatrix $\mathcal{M}$ und damit der Teil der Rechnung, der analytisch nicht zu erfassen war und als Parameter bestimmt wird. Diese sind, wie bereits angedeutet, Funktionen der Energie und des Zwischenwinkels der Elektronen $\mathcal{M} = \mathcal{M}(E_1, E_2, \vartheta_{12})$. Es zeigt sich auch hier durch einen hinzukommenden Term, daß die Photodoppelionisation mit zirkularer Polarisierung eine Verallgemeinerung der mit linearer Polarisierung darstellt. Dieser Informationsgewinn kann wiederum durch die Berechnung des zirkularen Dichroismus extrahiert werden, siehe Anhang (C.7). Durch Umformung läßt sich der Unterschied beider Polarisationsformen letztlich bis auf die Unbestimmtheit eines Vorzeichnes reduzieren.

2.5 Der zirkulare Dichroismus

Wie im letzten Abschnitt gezeigt wurde, spielt bei der Untersuchung von Wirkungsquerschnitten die Ausnutzung von Symmetrien eine wesentliche Rolle. Bei der Parametrisierung linearer Polarisierung wird deutlich, daß die Polarisationsachse eine Symmetrie liefert, die die Darstellung der Querschnitte $d^2\sigma^{1+}/d\Omega'$ bzw. $d^3\sigma^{2+}/dE_e d\Omega'_e$ auf die Raumwinkelkoordinate eines Teilchens reduziert. Der Übergang zu zirkularer Polarisierung bringt im Fall der Einfachionisation keine neue Information. Auch für den dreifach differentiellen Doppelionisationswirkungsquerschnitt wird hierbei dasselbe Ergebnis erwartet¹⁹: Der Übergang von LCP nach RCP ändert das Winkelspektrum nicht, da dieses bezüglich der Quantisierungsachse wie im Fall linearer Polarisierung rotationssymmetrisch ist. Dieser Befund wird allgemein als Konsequenz des sphärisch symmetrischen Anfangszustands des Atoms verstanden. Dagegen zeigen Messungen von Elektronen-Emissionsspektren an polarisierten orientierten Atomen und Molekülen bzw. von Absorptionsspektren an optisch aktiven Molekülen, die eine innere Chiralität aufweisen, bereits in der Einfachionisation eine Polarisationsabhängigkeit [103, 104, 105, 106, 107, 108, 12]. Bei kugelsymmetrischen Anfangszuständen wird ein Unterschied in der Winkelverteilung erst durch den Übergang zu einer Geometrie, die eine zusätzliche Orientierung ermöglicht, erkennbar. Eine solche Orientierung erhält man nur in der Doppelionisation, wenn zusätzlich die Emissionscharakteristik des zweiten Elektrons differentiell betrachtet wird. Eine Polarisationsabhängig-

¹⁹Ogleich die theoretische Arbeit zirkular polarisiertes Licht nicht explizit behandelt und experimentelle Befunde hierfür nicht vorliegen.

keit kann daher erst ab dreifach differentiellen Wirkungsquerschnitten $d^3\sigma^{2+}/(d\varphi_1 d\varphi_2 dE_1)$ (oder höher- differentiellen) beobachtet werden.

Der zirkulare Dichroismus Δ , auch CD für „circular dichroism“ genannt, wird wie folgt definiert:

$$\Delta = \frac{d^5\sigma_+^{2+} - d^5\sigma_-^{2+}}{d^5\sigma_+^{2+} + d^5\sigma_-^{2+}}. \quad (2.65)$$

Der CD ist die normierte Differenz der fünffach differentiellen Wirkungsquerschnitte aus der Photodoppelionisation, die hier mit $d^5\sigma_+^{2+}$ für links zirkular polarisiertes und $d^5\sigma_-^{2+}$ für rechts zirkular polarisiertes Licht abgekürzt wurden²⁰. Die Differenz kann ebensogut aus integraleren Wirkungsquerschnitten oder im Fall der Einfachionisation gebildet werden. Damit läßt sich obiger Befund auch wie folgt formulieren: Im Falle der Einfachionisation verschwindet der Dichroismus, erst in der differentiellen Spektren der Doppelionisation kann er auftreten.

Aufgrund der Partitätserhaltung verschwinden bei der Bildung der Differenz im Fall der Einfachionisation alle Terme der Partialwellenzerlegung. Anders gesagt, fordert die Paritätserhaltung einen rotationssymmetrischen Endzustand. Bei der Doppelionisation zeigt die Untersuchung der Winkelfunktion $B_{10}^{\ell}(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2)$ (siehe Anhang C.1), daß er positive Parität und ungerade Symmetrie bezüglich des Elektronenaustauschs aufweist [4, 95]. Das bedeutet, daß eine Asymmetrie in der Winkelverteilung auftreten kann, ohne die Paritätserhaltung zu verletzen. Hier kann also ein Dichroismus auftreten.

Die geometrischen Eigenschaften des Dichroismus lassen sich anhand der Darstellung einer exemplarisch ausgewählten Funktion B_{10}^{11} aus (C.3) zusammenfassen²¹:

$$B_{10}^{11} = \frac{i}{\sqrt{2}} (\hat{\mathbf{k}}_1 \times \hat{\mathbf{k}}_2) \cdot \hat{\mathbf{k}}_\gamma. \quad (2.66)$$

Daraus resultiert das Verschwinden des Dichroismus

- bei gleicher Energieaufteilung der Elektronen, da hier ein Austausch der Elektronen einem Übergang von einer zur anderen Polarität gleichkommt,
- wenn alle drei Impulse koplanar sind, dann nämlich würde eine Orientierung fehlen,
- oder wenn einer der Vektoren $\mathbf{k}_1$, $\mathbf{k}_2$ oder $\mathbf{k}_\gamma$ verschwindet und somit die Orientierung des Dreieins nicht mehr gegeben ist.
- Darüber hinaus verschwindet der CD auch in Spektren, in denen über den Winkel eines Elektrons vollständig integriert wurde, s.o.

²⁰Sollte an anderer Stelle bei der Angabe des CD auf die Normierung verzichtet worden sein, wird dies dort explizit kenntlich gemacht.

²¹(2.66) behält Gültigkeit auch bei gemachter Dipolnäherung. Der darin auftauchende Vektor $\hat{\mathbf{k}}_\gamma$ resultiert aus dem Kreuzprodukt $\hat{\mathbf{P}} \times \hat{\mathbf{P}}^*$. Er fällt daher mit der Richtung von $\mathbf{k}_\gamma$ zusammen.

Desweiteren ist es interessant, sich mit dem Nenner in (2.65) zu beschäftigen. Setzt man in (2.42) den zirkularen Polarisationsvektor in der Darstellung kartesischer Koordinaten ein ($\hat{\mathbf{P}}_{\pm} = 1/\sqrt{2}(1, \pm i, 0)$), dann kann man das Matrixelement in

$$T_{\pm} = \langle \psi_f | \hat{\mathbf{P}}_{\pm} \cdot \mathcal{D} | \psi_i \rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\langle \psi_f | \hat{\mathbf{P}}_x \cdot \mathcal{D} | \psi_i \rangle e^{i\phi_x} + \langle \psi_f | \hat{\mathbf{P}}_y \cdot \mathcal{D} | \psi_i \rangle e^{i(\phi_y \pm \pi/2)} \right] \quad (2.67)$$

umschreiben [6], worin $\mathcal{D}$ den Dipoloperator und ϕ_x bzw. ϕ_y die Phasen der Übergangsamplituden mit $\hat{\mathbf{P}}_x = (1, 0, 0)$ sowie $\hat{\mathbf{P}}_y = (0, 1, 0)$ repräsentieren. Der Wirkungsquerschnitt, das heißt das Betragsquadrat der Amplituden nimmt dann mit $T_{x,y} = \langle \psi_f | \hat{\mathbf{P}}_{x,y} \cdot \mathcal{D} | \psi_i \rangle$ die Gestalt

$$|T_{\pm}|^2 = \frac{1}{2} \left[|T_x|^2 + |T_y|^2 \pm 2|T_x||T_y| \sin(\phi_y - \phi_x) \right] \quad (2.68)$$

an. Setzt man dies in den Ausdruck des Nenners in (2.65) ein erhält man folgendes Resultat

$$\boxed{|T_+|^2 + |T_-|^2 = |T_x|^2 + |T_y|^2}. \quad (2.69)$$

An dieser Stelle sei explizit darauf hingewiesen, daß alle Überlegungen in diesem Abschnitt unter der Annahme der Gültigkeit der Dipolnähierungen gemacht wurden und sich in diesem Punkt auf eine quantenmechanische Näherung stützen. Ansonsten ist das Ergebnis jedoch nicht abhängig von der konkreten Berechnung der Matrixelemente. Es ist von weiteren quantenmechanischen Näherungen frei.

(2.69) entspricht einer *inkohärenten* Addition der Übergangsamplituden der Photodoppelionisation mit links- und rechts-zirkular polarisierter Wellen bzw. linear polarisierter Wellen entlang der zwei senkrechten Richtungen x und y. Darin geht die Phasenbeziehung verloren. Die Summe stellt demnach den differentiellen Wirkungsquerschnitt unpolarisierter Strahlung dar, den man, unabhängig von der gewählten Basis, aus den Photoionisations-Wirkungsquerschnitten jeweils orthogonaler Polarisationsrichtungen bilden kann. Dieser Umstand bietet eine inhärente Kontrollmöglichkeit, wenn die Daten einer Messung die Darstellung differentieller Wirkungsquerschnitte in verschiedenen Koordinatensystemen ermöglichen. Darüber hinaus bieten sie einen systematischen Vergleich der differentiellen Ergebnisse aus der Photodoppelionisation zirkular und linear polarisierten Lichts, obwohl die Verteilungen im einzelnen nicht dieselbe Struktur zeigen. Das Ergebnis (2.69) ist — abgesehen von der Dipolnäherung — allgemeingültig, das heißt unabhängig von dem betrachteten Wirkungsquerschnitt. Das kann zum Beispiel anhand der Einfachionisation leicht überprüft werden²²: Führt man die Addition der doppelt differentiellen Wirkungsquerschnitte in der Parameterdarstellung (2.61) für den Fall zirkularer Polarisation aus, erhält man trivialerweise $2d^2\sigma^{1+}/d\Omega$, den doppelten Wert des differentiellen Wirkungsquerschnitts, da sich beide Wirkungsquerschnitte nicht unterscheiden. Rein lineare Polarisation $\tilde{S}_1 = 1$ entlang der x-Achse wird in derselben Parametrisierung (2.60) durch

$$\frac{d^2\sigma_x^{1+}}{d\Omega} = \frac{\sigma_0^{1+}}{4\pi} \left[1 - \frac{\beta}{2} \left(P_2(\cos \vartheta) - \frac{3}{2} \cos 2\varphi \sin^2 \vartheta \right) \right]$$

²²Auch wenn hier kein CD auftritt.

beschrieben²³. Der Übergang von $d^2\sigma_x^{1+}$ nach $d^2\sigma_y^{1+}$ entspricht einer Drehung um den Winkel $\varphi \rightarrow \varphi + \pi/2$, wodurch in der Summe $d^2\sigma_x^{1+} + d^2\sigma_y^{1+}$ alle Terme, die φ enthalten, verschwinden. Das Ergebnis ist wiederum $2d^2\sigma^{1+}/d\Omega$.

Bezogen auf die Darstellung des Dichroismus nach (2.65) heißt das: Setzt man darin (2.68) und (2.69) ein, erhält man

$$\Delta = \frac{2|T_x||T_y|\sin(\phi_y - \phi_x)}{|T_x|^2 + |T_y|^2} = -\frac{2\text{Im}(T_y T_x^*)}{|T_x|^2 + |T_y|^2}. \quad (2.70)$$

Dieses Ergebnis besagt, daß der Dichroismus allein die Information der Phasenbeziehung beider Übergangsamplituden enthält und somit ein reiner Interferenzterm ist. Zu genau demselben Ergebnis gelangt man, wenn man die Parametrisierung nach Malegat *et al.* verfolgt, vgl. Anhang C.2.

Der Ausdruck (2.68) besagt, daß eine Asymmetrie in den Wirkungsquerschnitten für den Fall links und rechts zirkular polarisierter Photonen geben wird. Jedoch kann die Information über das Vorzeichen nur durch die explizite Berechnung oder das Experiment ermittelt werden. Das bedeutet, sind die Amplituden aus der Messung der Photoionisation mit linear polarisiertem Licht bekannt, kann man noch immer keine intuitive Vorhersage — zum Beispiel anhand der Parametrisierung — über das Vorzeichen des Dichroismus machen, obwohl die Anfangsbedingung der Messung einschließlich des Spins des Photons determiniert ist.

2.6 Die Kinematik der Photoabsorption

Die Ableitungen in diesem Kapitel gehen in die Auswertung der nicht gemessenen Impuls-komponenten aus Kapitel 4 ein und waren daher bereits für die Planung des Experiments von entscheidender Bedeutung.

Den Überlegungen zur Kinematik der Photoionisation liegen die Annahmen kalter Helium-atome und nicht relativistischer Elektronen zugrunde. Demnach nehmen Impuls- und Energieerhaltung die in folgenden Bilanzgleichungen dargestellte Form an

$$\mathbf{k}_\gamma - \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{K}_{\text{ion}} = 0, \quad (2.71)$$

$$E_\gamma - E_1 - E_2 - E_{\text{ion}} - E_b^i + E_b^f = 0. \quad (2.72)$$

Hierin sind die Impulse bzw. Energien der Elektronen durch die Ziffern 1 und 2 sowie Impuls und Energie des Ions durch „ion“ indiziert. E_b^i ist die Bindungsenergie der Elektronen vor dem Stoß, E_b^f nach dem Stoß. Für Helium entfällt letzterer Term im Fall der Photodoppelionisation. Für den Photonenimpuls kann aufgrund kleiner Energien ($E_\gamma = 99 \text{ eV}$, bzw. $E_\gamma = 174 \text{ eV}$) die vereinfachende Annahme

$$\mathbf{k}_\gamma = \frac{E_\gamma}{c_0} \approx 0 \quad \Rightarrow \quad \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{K}_{\text{ion}} = 0 \quad (2.73)$$

²³In diesem Fall wird zum Vergleich ein einheitliches Koordinatensystem verwendet.

gemacht werden. Der Impulssatz (2.73) gilt gleichermaßen für alle Komponenten separat. Durch Einsetzen von (2.73) in (2.72) erhält man nach elementaren Umformungen für die Elektronenenergie

$$\frac{M_{\text{ion}}}{M_{\text{ion}} + m_e} E_{\text{ex}} \geq E_1 + E_2 \geq \frac{M_{\text{ion}} - m_e}{M_{\text{ion}} + m_e} E_{\text{ex}} \quad (2.74)$$

mit der Überschußenergie $E_{\text{ex}} = E_\gamma - E_b^i + E_b^f$. Hierin gilt die obere Abschätzung für den Fall, daß die Energie vollständig auf ein Elektron übertragen wird, während die untere Grenze den Fall gleicher Energieaufteilung repräsentiert. Entsprechend ergibt die Energie der Ionen

$$\frac{m_e}{M_{\text{ion}} + m_e} E_{\text{ex}} \leq E_{\text{ion}} \leq \frac{2m_e}{M_{\text{ion}} + m_e} E_{\text{ex}}. \quad (2.75)$$

Aufgrund des Massenverhältnisses $m_e/M_{\text{ion}} = 1/7296$ wird bei weiteren Betrachtungen die Energie der Ionen vernachlässigt. Der Energiesatz nimmt dann die einfache Gestalt

$$E_1 + E_2 = E_{\text{ex}} \quad \text{und} \quad E_{\text{ion}} = 0 \quad (2.76)$$

an. Diese Näherung ist auch für den Fall der Einfachionisation gerechtfertigt, hier gilt dann

$$k_{xe}^2 + k_{ye}^2 + k_{ze}^2 = 2m_e E_e = 2m_e E_{\text{ex}}. \quad (2.77)$$

Diese Gleichung beschreibt eine Kugel im Impulsraum mit dem Radius $\sqrt{2m_e E_e}$.

Die Photodoppelionisation erzeugt im Ausgangskanal drei freie Teilchen mit insgesamt neun Impulskomponenten. Durch Anwendung des Impulsatzes (in allen drei Komponenten) sowie des Energiesatzes reduziert sich die Zahl der Freiheitsgrade auf $9 - 4 = 5$. Im allgemeinen führt jedoch die Berechnung nicht gemessener Impulse unter Verwendung des Energiesatzes zu einer Zweideutigkeit aufgrund der quadratischen Abhängigkeit. Diese Problematik kann jedoch durch die Beschränkung der Messung auf eine besondere Geometrie, die eine Entscheidung für die eindeutig richtige Lösung prinzipiell ermöglicht, umgangen werden. Eine solche Situation wird in Kapitel 4 näher erläutert.

Kapitel 3

Experimentelle Grundlagen

Im letzten Kapitel wurde herausgestellt, daß zur Untersuchung des zirkularen Dichroismus die Messung des Doppelionisations-Wirkungsquerschnitts in differentieller Form nötig ist. Aus der Photodoppelionisation mit linear polarisiertem Licht ist bekannt, daß der fünffach differentielle Wirkungsquerschnitt im Bereich $< 10^{-4}$ a.u. bzw. $< 10^{-22}$ cm² eV⁻¹ster⁻² angesiedelt ist. Die systematische und detaillierte Analyse des Meßergebnisses erfordert ebenso hinreichende Auflösung wie statistische Signifikanz und nach Möglichkeit auch ein Resultat, das den vollständigen dreidimensionalen Raum abdeckt. All diese Anforderungen zu erfüllen, wird erst durch einen experimentellen Aufwand möglich, der den neuesten Entwicklungsstand atomphysikalischer Technologie repräsentiert.

Grundlegende Einblicke in diese Technologie werden in diesem Kapitel gegeben. Die experimentellen Besonderheiten der Messung folgen in Kapitel 4.

3.1 Synchrotronstrahlung

Der interessante Spektralbereich für die Photoelektronenspektroskopie reicht je nach den experimentellen Aufgabestellungen von wenigen eV bis zu mehreren keV; bei der Untersuchung von asymptotischem Verhalten, also in Grenzfällen, auch bis zu 100 keV [14]. Der gesamte Bereich von der sogenannten VUV-Strahlung (Vakuum-Ultraviolett-Strahlung reicht von ca. 6 eV bis 2 keV) bis hin zu harter Röntgenstrahlung wird heute von Elektronen- oder Positronen-Synchrotrons zur Verfügung gestellt, siehe Abb. 3.1. Die Größen, die zur Charakterisierung eines Photonenstrahls von Bedeutung sind, sowie einige technische Details über die Erzeugung von Photonen, werden in diesem Abschnitt diskutiert.

3.1.1 Erzeugung und Charakterisierung

3.1.1.1 Erzeugung von Synchrotronstrahlung

Die Funktionsweise der Synchrotron-Strahlungsquellen beruht auf der physikalischen Eigenschaft geladener Teilchen, in einer Phase der Beschleunigung elektromagnetische Strahlung zu emittieren. In Speicherringen werden die Teilchen auf geschlossenen Ringbahnen geführt, die dazu erforderliche Ablenkung wird durch Magnete erzwungen, siehe Abb. 3.2.

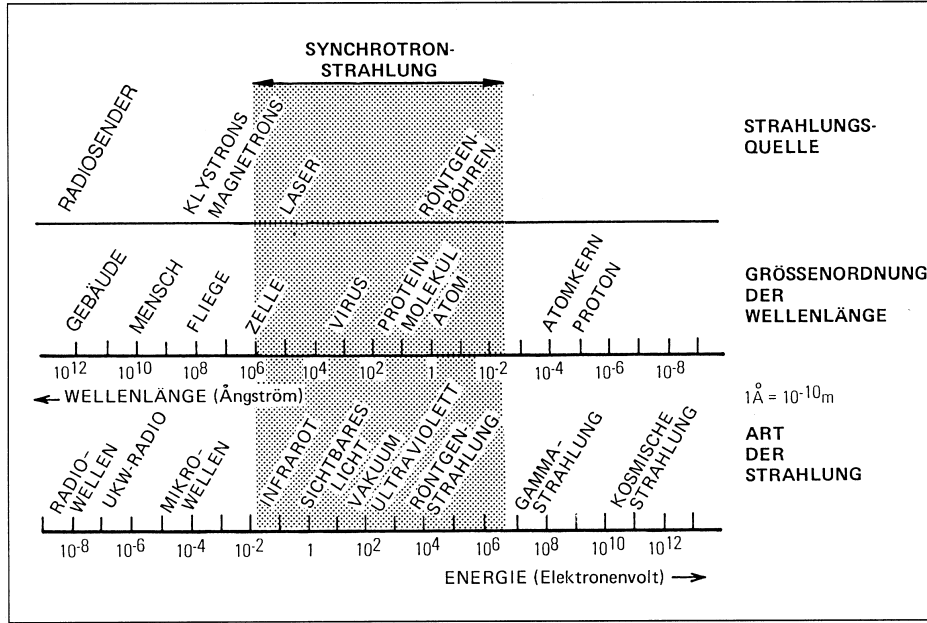


Abbildung 3.1: Das elektromagnetische Spektrum und darin eingeordnet der Spektralbereich, den Elektronen- oder Positronen-Speicherringe zur Verfügung stellen, aus [15].

Bei jeder Richtungsänderung innerhalb eines Magneten treten beschleunigende Zentripetalkräfte auf, die zur Emission elektromagnetischer Strahlung führen. Dieser Abschnitt befaßt sich zunächst nur mit der Erzeugung von Synchrotronstrahlung an einfachen Ablenk Magneten, während in Abschnitt 3.1.2 auf besondere Strukturen mit besserer Lichtausbeute eingegangen wird.

Die abgestrahlte Leistung P eines relativistischen Teilchens mit der Ruhemasse m_0 bei der linearen Energieänderung dE/dx beträgt nach [49]:

$$P = \frac{2}{3} \frac{e^2}{m_0^2 c_0^3} \left(\frac{dE}{dx} \right)^2, \quad (3.1)$$

woraus sich die Leistungsabgabe für zentripetalbeschleunigte hochrelativistische Teilchen der Energie E ($\beta = v/c_0 \rightarrow 1$) auf einem Bahnradius R ergibt:

$$P = \frac{2}{3} \frac{e^2 c_0}{R^2} \frac{E^4}{(m_0 c_0^2)^4}. \quad (3.2)$$

Dabei wird sofort ersichtlich, warum für die Photonenerzeugung leichte Teilchen, das heißt Elektronen oder Positronen (und nicht beispielsweise Protonen), bevorzugt werden: Die Leistungsausbeute ist im Falle der 1836-fach leichteren Teilchen bei gleicher Energie um einen Faktor 10^{13} größer.

Diese Art der Strahlungserzeugung wurde zunächst zufällig als Randerscheinung bei Elektronenbeschleunigern entdeckt. Seither wurde viel Arbeit in die Konstruktion von Elektronen- oder Positronenspeicherringen eigens zur Erzeugung von Licht investiert und dabei die Teilchenenergie bei den modernsten Maschinen derzeit bis auf mehrere GeV ge-

steigert (z.B. ALS in Berkeley/USA mit 1,5-1,9 GeV, ESRF in Grenoble/Frankreich mit 6,0 GeV oder Photon Factory in Tsukuba/Japan mit 0,75-3,0 GeV).

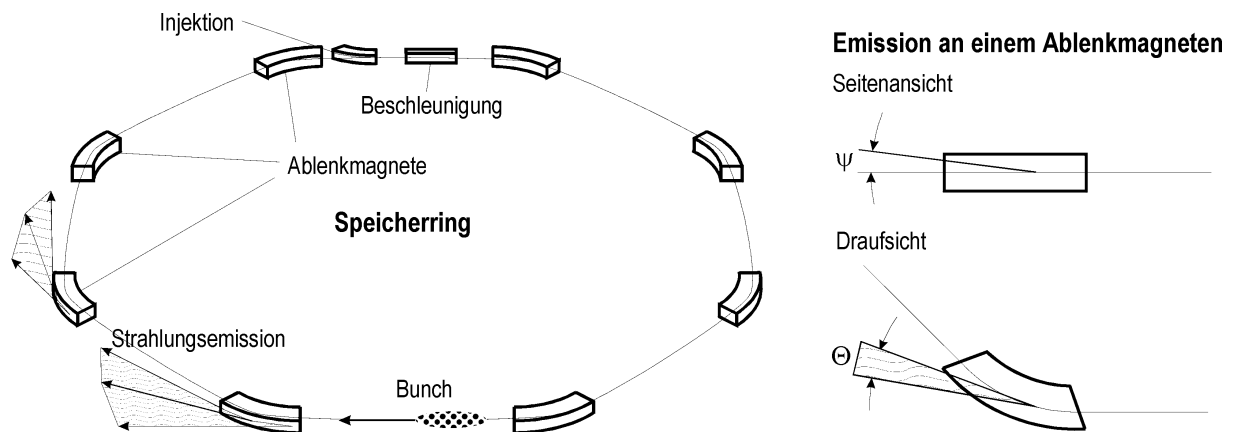


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung der Anordnung der strahlführenden Elemente in einem Speicherring.

3.1.1.2 Strahlungscharakteristik und Divergenz

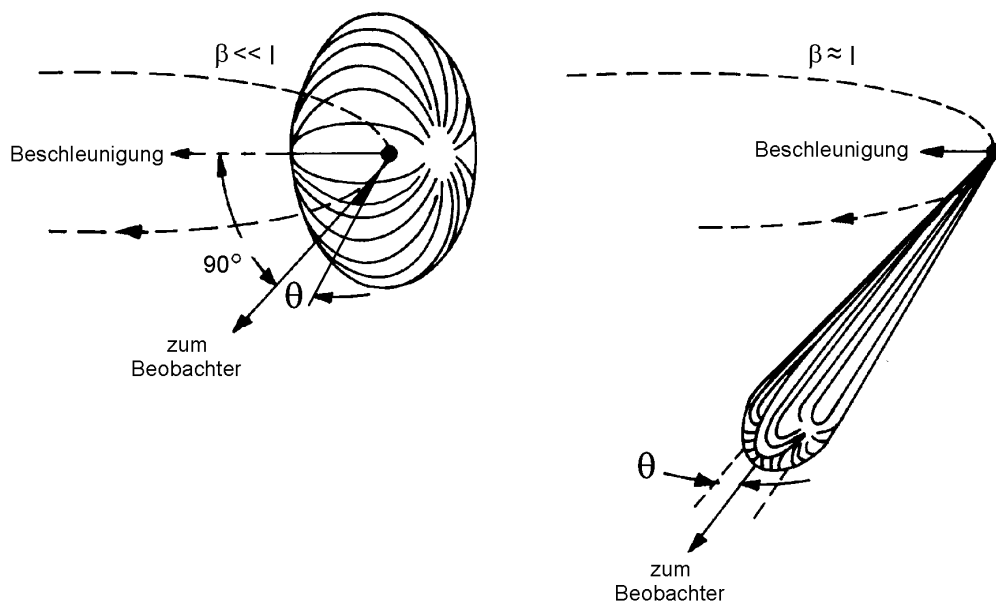


Abbildung 3.3: Strahlungscharakteristik eines beschleunigten Teilchens auf einer Kreisbahn, im Falle $\beta \ll 1$ (links) und $\beta \rightarrow 1$ (rechts), aus [109].

Ein anderer wichtiger Aspekt sehr hoher Energien ist die geometrische Strahlungscharakteristik, Abb. 3.3. Langsame Elektronen, die sich auf einer Kreisbahn bewegen, das heißt eine beschleunigende Kraft senkrecht zu ihrer Bewegungsrichtung erfahren, emittieren einen „Strahlungsreifen“, der rotationssymmetrisch zur Beschleunigungsrichtung ist.

Trägt man die Intensität I als Funktion des Winkels θ gegen die Tangente der Bewegungsrichtung des Elektrons auf, findet man den Zusammenhang $I \propto (1 + \cos^2 \theta)$ [110, 111]. Für relativistische Teilchen ändert sich die Charakteristik. Der Strahlungsreifen in dem bewegten Bezugssystem des Teilchens wird durch Lorentz-Transformation in das Laborsystem in einen in Bewegungsrichtung der Teilchen stark gerichteten Strahlungskegel deformiert. [112, 113, 114]. Der Öffnungswinkel θ dieser „Keule“ ist daher eine Funktion der Energie:

$$\theta = 1/\gamma = \sqrt{1 - \beta^2} = \frac{m_0 c_0^2}{E}, \quad . \quad (3.3)$$

Die Strahlungscharakteristik geht per Definition von einem Emissionspunkt aus (Abb. 3.2, rechts) und ist nicht zu verwechseln mit dem Effekt der Auffächerung oder Divergenz. Diese ist auf die Ausdehnung der Kreisbahn innerhalb des Magneten zurückzuführen und verursacht eine inkohärente Addition der Strahlung (siehe Abb. 3.2, links und Abb. 3.8). Beide Charakteristika spielen für die „nutzbare Photonenausbeute“ eine wichtige Rolle. Daher ist es zunächst zweckmäßig, die nutzbare Photonenausbeute in sinnvolle quantitative Größen zu fassen:

- Der spektrale Fluß mit der Dimension $\frac{\text{Photonen}}{\text{sec} \times 0.1\% \Delta E/E}$

stellt die integralste dieser Größen dar. Er ist definiert durch die totale Anzahl an Photonen, die innerhalb einer Sekunde und in einer Bandbreite von $\Delta E/E = 10^{-4}$ emittiert werden. Demnach hängt er nicht von der Größe des Quellpunkts ab und wird über alle Raumrichtung integriert. Aus diesem Grund läßt sich der Fluß nur zur Angabe der gesamten Lichtausbeute eines Synchrotron-Bauteils verwenden. Er ist nach dem Satz von Liouville [115] eine Erhaltungsgröße und wird daher in der Regel von optischen Komponenten reduziert, kann jedoch niemals verstärkt werden.

- Die spektrale Strahlstärke mit der Dimension $\frac{\text{Photonen}}{\text{sec} \times \text{mrad}^2 \times 0.1\% \Delta E/E}$

trägt zusätzlich der Divergenz des Strahls Rechnung, indem sie den spektralen Fluß pro Raumwinkel beschreibt. Sie ist nicht allein von den Eigenschaften der Quelle abhängig, sondern wird in der Praxis durch fokussierende optische Elemente erhöht.

- Die Brillanz mit der Dimension $\frac{\text{Photonen}}{\text{sec} \times \text{mm}^2 \times \text{mrad}^2 \times 0.1\% \Delta E/E}$

stellt die Photonenausbeute in der differentiellsten Form dar. Sie berücksichtigt neben der Divergenz auch die effektive Quellgröße. Die Brillanz eines Strahls ist genauso wie der spektrale Fluß wieder eine Erhaltungsgröße. Sie ist entscheidend für die Bestimmung der Anzahl der Photonen an einem Strahlplatz und dient daher zur Abschätzung der Ereignisraten eines gegebenen Experiments bei bekanntem Wirkungsquerschnitt und bekannter Targetdichte.

3.1.1.3 Spektrale Verteilung

Man kann die totale Intensitätsverteilung¹ I_{tot} des emittierten Lichts an einem bestimmten Ablenkmagneten für jede Wellenlänge und jede Emissionsrichtung berechnen. Im allgemeinen wird sie daher als Funktion der Teilchenenergie und der Beobachtungswinkel angegeben $I_{\text{tot}} = I(E, \Theta, \Psi)$ [109]. Daraus lassen sich alle oben definierten charakteristischen Größen ableiten. Durch Normierung auf die Elektronenenergie und den Elektronenstrom des Beschleunigers sowie die kritische Wellenlänge des Magneten kann man die Intensität als universelle Funktion der Teilchenenergie und der Wellenlänge des Lichts darstellen. Die kritische Wellenlänge λ_c wird definiert als der Wert, bei dem das Integral über die emittierte Gesamtleistung die Hälfte erreicht. Leitet man λ_c aus der Intensitätsverteilung ab, findet man

$$\lambda_c = \frac{4/3\pi R}{\gamma^3} \quad \text{bzw.} \quad \lambda_c [\text{\AA}] = 5,59 \frac{R [\text{m}]}{E^3 [\text{GeV}]} . \quad (3.4)$$

Die kritische Wellenlänge liegt etwa auch in der Nähe des Intensitätsmaximums, danach fällt die Strahlungsleistung sehr stark ab. Bereits bei $\lambda_c/6$ ist die Intensität auf 1% des Wertes bei λ_c zurückgegangen.

Durch Normierung der spektralen Verteilung auf diesen Wert erhält man einen universellen Ausdruck der charakteristischen Größen, der unabhängig von den spezifischen Eigenschaften des Speicherrings ist. Eine solche Verteilung ist in Abb.3.4 exemplarisch für die spektrale Strahlstärke gezeigt. Die spezifischen Eigenschaften eines Speicherrings, genau-

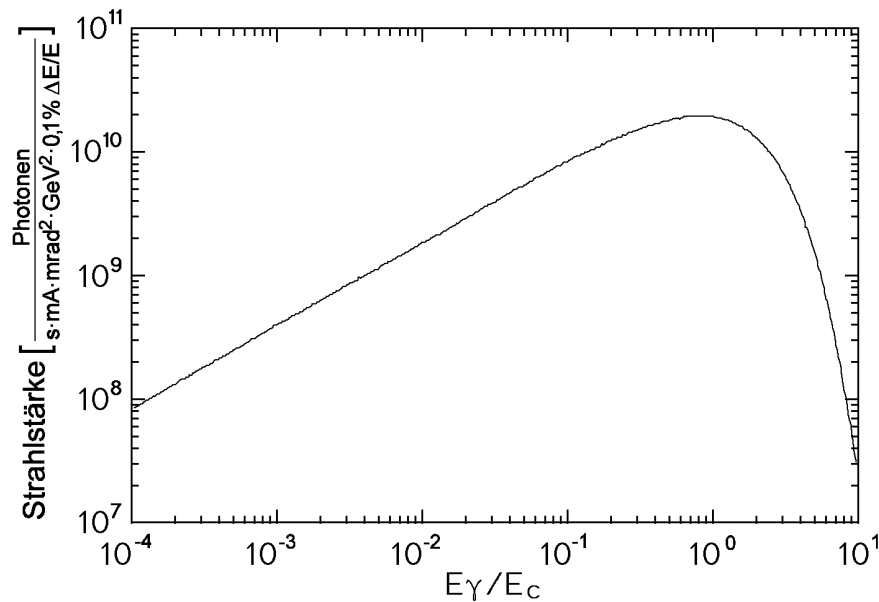


Abbildung 3.4: Normierte Strahlstärke in Abhängigkeit von der normierten Photonenfrequenz, aus [109].

er, die an einem Ablenkmagneten erzeugte absolute Strahlung, erhält man durch Multiplikation der Achsen mit der entsprechenden Teilchenenergie zum Quadrat (in GeV^2)

¹Diese Intensität ist identisch mit der in (2.18) definierten Größe.

und dem Teilchenstrom (in mA), beziehungsweise der nach (3.4) berechneten kritischen Wellenlänge λ_c (in Å).

Die Lage des Intensitätsmaximums ist für die Konzeptionierung und Dimensionierung eines Speicherrings ausschlaggebend. Anhand (3.4) ist ersichtlich, daß auch für die Verschiebung des Strahlungsmaximums die Teilchenstrahlenergie der Schlüsselparameter ist, da die kritische Energie mit der dritten Potenz der Teilchenenergie steigt. Der Bahnradius eignet sich hierzu weniger, da er einerseits linear in (3.4) eingeht, vor allem aber, weil $1/R$ proportional zu dem ablenkenden Magnetfeld B ist und technisch bedingt der Stärke des Magnetfeldes bei 1 T bis max. 5 T Grenzen gesetzt sind.

3.1.1.4 Polarisation

Der Polarisationsgrad der Photonen ist eine entscheidende Größe, über die, insbesondere im Hinblick auf die Interpretation der experimentellen Ergebnisse, genaue Kenntnis erforderlich ist. Daher wird die Zusammensetzung der Strahlung in diesem Zusammenhang noch etwas ausführlicher diskutiert. Die totale Intensitätsverteilung I_{tot} läßt sich gemäß (2.8) und (2.9) in ihre Anteile linearer Polarisation parallel $I_{\parallel}$ und senkrecht $I_{\perp}$ zur Bahnebene zerlegen. Beide Anteile können wieder als Funktion der kritischen Wellenlänge und der Teilchenenergie dargestellt werden. Die Universalität dieser Funktionen bleibt durch die Normierung auf λ_c erhalten. Eine Darstellung beider Anteile zeigt Abb.3.5. Hier

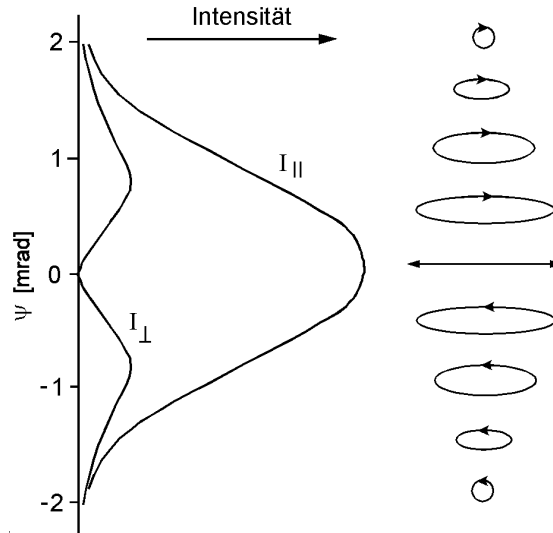


Abbildung 3.5: Intensitätsverteilung der Polarisationskomponenten parallel und senkrecht (links). Drehsinn des Feldvektors in Abhängigkeit des Beobachtungswinkels zur Strahlebene (rechts). Aus [50].

werden $I_{\parallel}$ und $I_{\perp}$ in willkürlichen Anteilen der maximalen Intensität gegenüber dem vertikalen Auslenkungswinkel Ψ dargestellt. Der Verlauf der einzelnen Anteile unterscheidet sich drastisch: Während in der Strahlebene 100% parallele Polarisation gegeben ist, nimmt

der Anteil dieser zu größer werdenden Winkeln ab und gleichzeitig der Anteil der senkrechten Polarisation zu. Somit kann, durch Variation des Beobachtungswinkels bei fester Wellenlänge², jeder Polarisationsgrad von horizontaler bis beinahe vollständig zirkulare Polarisation erreicht werden, siehe Abb.3.5 rechts. Die Pfeile an den Ellipsen indizieren die Richtung der zirkularen/elliptischen Polarisation des Photons unter der Voraussetzung, daß die Elektronen im Speicherring, der hier horizontal angeordnet ist, von oben gesehen im Uhrzeigersinn umlaufen.

Prinzipiell gilt: Die Rotation des elektrischen Feldvektors bei elliptischer Polarisation weist dieselbe Richtung auf, die auch die Beobachtung der Rotation des Teilchenstrahls vom selben Beobachtungspunkt unterhalb bzw. oberhalb der Ringebene ergibt.

Der Polarisationsgrad der Strahlung läßt sich nach (2.17)–(2.21) in Form der Stokes-Komponenten angeben. In der Darstellung der Stokes-Parameter $\tilde{S}_1$ und S_3 bekommt die winkelabhängige Verteilung die in Abb.3.6 gezeigte Gestalt.

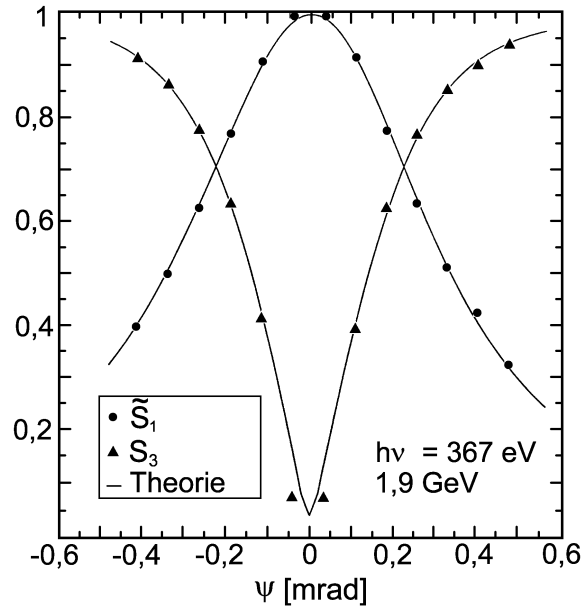


Abbildung 3.6: Intensitätsverteilung linearer Polarisation $\tilde{S}_1$ und zirkularer Polarisation S_3 an dem Ablenkmagneten 9.3 der ALS in Abhängigkeit von der Auslenkung Ψ aus der Strahlebene. Dazu im Vergleich eine theoretische Simulation aus [116].

3.1.1.5 Zeitstruktur

Eine ganz andere charakteristische Eigenschaft der Synchrotronstrahlung ist ihre Zeitstruktur. Diese ist beispielsweise für ein Experiment, das eine Flugzeitmessung beinhaltet, von Bedeutung. Voraussetzung ist dabei, mit einem Projektilstrahl zu arbeiten, der eine

²Der Einfluß der Wellenlänge, hier nicht abgebildet, bewirkt eine schmäler werdende Winkelverteilung mit wachsender Energie: Dies entspricht der Erkenntnis aus (3.3). Die Intensitätsverteilung ändert sich dabei gleichermaßen in beiden Polarisationsanteilen.

Zeitstruktur aufweist, deren Verhältnis aus Einschalt- und Ausschaltphase der notwendigen Flugzeitauflösung sowie der maximalen Signalverarbeitungsgeschwindigkeit genügt.

Die Zeitstruktur des Photonenstrahls steht in Zusammenhang mit der Beschleunigung des primären Teilchenstrahls. Die abgestrahlte Energie der Primärteilchen pro Umlauf liegt in der Größenordnung des 10^{-4} -fachen der nominellen Teilchenenergie, je nach Art und Anzahl der Synchrotronstrahlungsquellen im Speicherring. Diese wird den Elektronen durch eine RF-Beschleunigung (radio frequency) wieder zugeführt. Dadurch werden die Elektronen automatisch zu Paketen, den sogenannten „Bunches“, zusammengefaßt. Der minimale zeitliche Abstand dieser Bunches ist daher durch die Hochfrequenz mit $1/f_{RF}$ vorgegeben. Bei einer typischen Frequenz von 500 MHz bedeutet das einen Abstand von 2 ns. Die maximale Anzahl der Bunches in dem Ring wird dadurch ebenso bestimmt: $N_{max} = f_{RF}L/c_0$. Hierin sind L der Umfang des Rings und c_0 die Vakuumlichtgeschwindigkeit. Man spricht in diesem Fall von dem sogenannten „Multi-Bunch Modus“. Die zeitliche Länge eines Bunches liegt hier in der Größenordnung einiger 10 – 100 ps.

Die Anzahl der Bunches in dem Ring kann jedoch bis auf ein einzelnes Teilchenpaket reduziert werden. In diesem Fall spricht man von dem „Single-Bunch-Modus“. Hier ist der zeitliche Abstand zweier Pulse nur noch von dem Umfang des Rings abhängig, typische Umlaufzeiten liegen zwischen 100 ns und 1 μ s. Der Nachteil in diesem Modus ist der vergleichsweise geringe Strahlstrom. Die Teilchenzahl eines einzelnen Bunches läßt sich dabei zwar erhöhen, was jedoch auf Kosten der Zeitstruktur des einzelnen Bunches geht. An der Advanced Light Source (ALS) des Lawrence Berkeley National Laboratory wird der Strahlstrom beispielsweise in einem 2-Bunch-Modus auf 40 mA (gegenüber 400 mA im Multi-Bunch-Modus) reduziert, dabei verdoppelt sich die Bunch-Länge von < 35 ps auf etwa < 70 ps [117].

Es sind auch beliebige andere Strahlkonfigurationen denkbar: zum Beispiel stellt der sogenannte „hybrid Modus“ die Vorteile beider Modi den Nutzern gleichzeitig zur Verfügung zu stellen. Dazu wird eine Hälfte des Rings mit Bunches in 2 ns-Abständen gefüllt und in der Mitte der zweiten Hälfte läßt man einen einzelnen Bunch umlaufen.

Der Multi-Bunch-Modus läßt sich beispielsweise in den meisten Fällen nicht für eine Flugzeitmessung verwenden. Hier sind die zeitlichen Abstände der Photonenpakete kürzer, als die Zuordnung der Koinzidenzsignale zuläßt. Andererseits setzt die Zeitmessung ebenso voraus, daß die Länge der einzelnen Bunches kurz gegen die veranschlagte Auflösung ist.

3.1.2 Spezielle Synchrotron-Komponenten

Bisher wurde nur Erzeugung von Licht an Ablenkmagneten, also strahlführenden Komponenten des Speicherrings, besprochen. Es gibt daneben auch Bauteile, die eigens für eine effiziente Lichterzeugung entwickelt sind. Deren Eigenschaften wie zum Beispiel Divergenz, Polarisationsgrad und Brillanz sind denen der Ablenkmagnete überlegen. Alle in Abschnitt 3.1.1 vorgestellten Zusammenhänge sind allgemeingültig. Das heißt, sie gelten unabhängig von der Funktion eines Magneten als Ablenkeinheit oder als die im folgenden vorgestellten Komponenten.

Fügt man an den geradlinigen Abschnitten des Rings (siehe Abb. 3.2) eine Struktur ein,

die aus drei abwechselnd entgegengesetzt gepolten Magneten besteht, durchläuft der Teilchenstrahl an dieser Stelle einen zusätzlichen Bogen und wird danach auf seine Sollbahn zurückgeführt. Bei entsprechend stärkerer Dimensionierung der Magnete wird nach (3.4) die spektrale Emissionscharakteristik gegenüber der der Ablenkmagnete deutlich zu höheren Energien verschoben. Dieses Einfügen eines sogenannten Wellenlängenschiebers bietet den Vorteil, daß man dabei die spezifischen Parameter des Rings, wie zum Beispiel Teilchenenergie oder Radius, nicht zu verändern braucht.

Eine konsequente Weiterführung dieses Gedankens führt auf eine Struktur, bei der mehrere solcher abwechselnd gepolter Magnete periodisch hintereinander angeordnet sind, siehe Abb.3.7. Die Charakterisierung der Eigenschaften erfolgt über die Größe

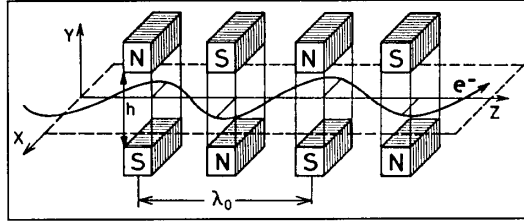


Abbildung 3.7: Schematische Darstellung einer periodischen Wiggler- oder Undulatorstruktur mit der Periodenlänge λ_0 , aus [109].

$$K = 0,934\lambda_0 [\text{cm}] B_0 [\text{T}] \quad \text{bzw.} \quad K = \delta\gamma. \quad (3.5)$$

Hierin repräsentieren λ_0 die Periodenlänge, B_0 das Magnetfeldmaximum, und δ den maximalen Ablenkwinkel aus der geraden Strahlrichtung z . Anhand von K unterscheidet man den Wiggler und den sogenannten Undulator.

3.1.2.1 Wiggler

Gilt $K \gg 1$, so spricht man von einem Wiggler. Nimmt man eine Struktur mit N Perioden — es handelt sich dabei um eine Aneinanderreihung von $2N$ Ablenkmagneten — resultieren daraus folgende Eigenschaften, beziehend auf die eines einzelnen Ablenkmagneten:

- Eine $2N$ -fach höhere zentrale Strahlstärke,
- dieselbe spektrale Verteilung bei gleichem B_0 ,
- dieselbe Inkohärenz,
- horizontaler Öffnungswinkel von $2\delta = K\gamma^{-1} \approx (10 - 50)\gamma^{-1}$, siehe Abb. 3.8,
- $\approx 100\%$ linear polarisierte Strahlung in der Beschleunigerebene.

Der wesentliche Vorteil gegenüber dem Ablenkmagneten liegt also in der deutlich erhöhten Strahlstärke. Die spektrale Verteilung hat denselben kontinuierlichen Verlauf, ist jedoch, abhängig von B_0 meist hochenergetischer.

3.1.2.2 Undulatoren

Gilt $K < 1$, dann spricht man von einem Undulator. Seine Eigenschaften unterscheiden sich wesentlich von denen der bisher benannten Strukturen:

- Hohe Kohärenz und dadurch
- Interferenzeffekte, die scharfe Intensitätsmaxima bei der Wellenlänge der Strukturperiode und Harmonischen höherer Ordnung erzeugen,

$$\lambda = \frac{\lambda_0}{2n\gamma^2} \left(1 + \frac{1}{2}K^2 + \gamma^2\theta^2\right), \quad n = 1, 2, 3, \dots, \quad (3.6)$$

- deutlich kleinerer Öffnungswinkel $2\delta = K\gamma^{-1} \approx \gamma^{-1}$, siehe Abb.3.8
- und dadurch eine extrem hohe zentrale Strahlstärke $\approx N^2$,
- $\approx 100\%$ linear polarisierte Strahlung in der Ringebene.

Aus diesen Eigenschaften resultieren jedoch nicht nur Vorteile. Aufgrund der Diskretisierung des Undulatorspektrums kann man Durchstimmbarkeit nur durch Veränderung des Magnetfeldes erzeugen: Dies geschieht in der Praxis durch eine Veränderung des Abstandes der Polschuhe. Der technische Aufwand hierfür ist denkbar hoch, wogegen der Frequenzbereich vergleichsweise schmal ist. Als Beispiel wird in Abb.3.9 ein Undulator-Spektrum des Speicherrings Bessy in Berlin gezeigt, das die Lage der Intensitätsmaxima der ersten Harmonischen in Abhängigkeit vom Polschuhabstand des Undulators zeigt [118]. Die Energiebreite eines Undulatormaximums beträgt hier $\Delta E/E \approx 0.06(\text{FWHM})$. Es sei noch bemerkt, daß Undulatorspektren oftmals als kontinuierliche Spektren dargestellt werden. Diese Spektren werden beim Durchfahren des Undulators durch Verbinden der Intensitätsmaxima erzeugt.

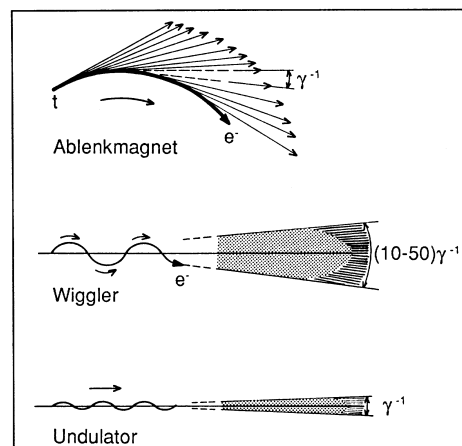


Abbildung 3.8: Vergleich der Strahldivergenz der verschiedenen Synchrotronstrahlungsquellen, aus [109].

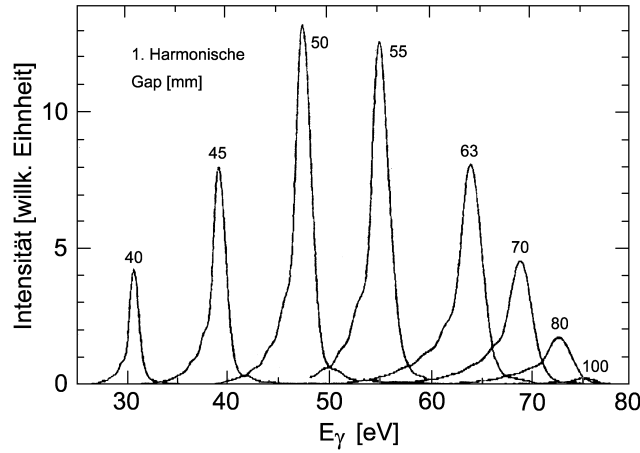


Abbildung 3.9: Spektrum des BESSY-Undulators für verschiedene Polschuhabstände, aus [109].

3.1.2.3 Spezielle Strukturen zur Erzeugung zirkularer Polarisation

In Abschnitt 3.1.1 wurde bereits gezeigt, daß man „natürliche“ zirkularpolarisierte Strahlung aus dem Emissionsspektrum eines einfachen Ablenkmagneten erhalten kann. Die Intensität ist jedoch gegenüber der aus Undulatoren oder Wiggeln sehr viel geringer. Es wurden daher verschiedene Techniken entwickelt, auch mit Hilfe solcher Komponenten zirkular polarisierte Strahlung zu erzeugen.

Das Prinzip des gekreuzten Undulators wird hier vorgestellt. Hierbei sind zwei Undulatoren, deren Magnetfeldrichtungen senkrecht aufeinander stehen, hintereinander angeordnet. Aufgrund der kohärenten Strahlung wird sich automatisch eine feste Phasenbeziehung der beiden linear polarisierten Anteile ergeben. Der Einbau eines sogenannten Modulators oder Phasenschiebers zwischen beiden Undulatoren ermöglicht eine Variation dieser Phasendifferenz $\Delta\zeta$ zwischen 0 und 2π , siehe Abb. 3.10. Die Superposition der kohärenten Wellen erlaubt somit die Erzeugung jedes Polarisationszustands von linear über elliptisch bis zirkular [119]. Die Hauptachse der Polarisationsellipse ist dabei – gleiche Amplituden beider Polarisationsrichtungen vorausgesetzt – um 45% gegenüber den Undulatorebenen geneigt, siehe Abb. 3.11.

Alternative Lösungen sind: Einerseits beide Undulatoren ineinander zu verschränken und andererseits den Grad der Polarisation durch individuelles Verfahren der Polschuhabstände beider Magnetbänke zu erzielen.

3.1.2.4 Monochromatoren

Allen Licht erzeugenden Quellen ist gemeinsam, daß die Bandbreite der emittierten Strahlung für die oftmals erforderliche experimentelle Auflösung zu groß ist. Im Fall des Undulators ist bestenfalls ein Emissionsspektrum mit der Halbwertsbreite von 5 eV bei 100 eV totaler Energie zu erwarten. Daher wird ein Monochromator in den Strahlengang eingefügt, der in den meisten Fällen unmittelbar vor dem Experimentierplatz angeordnet ist.

Im VUV-Bereich sind alle bekannten Materialien absorbierend. Daraus ergibt sich die Not-

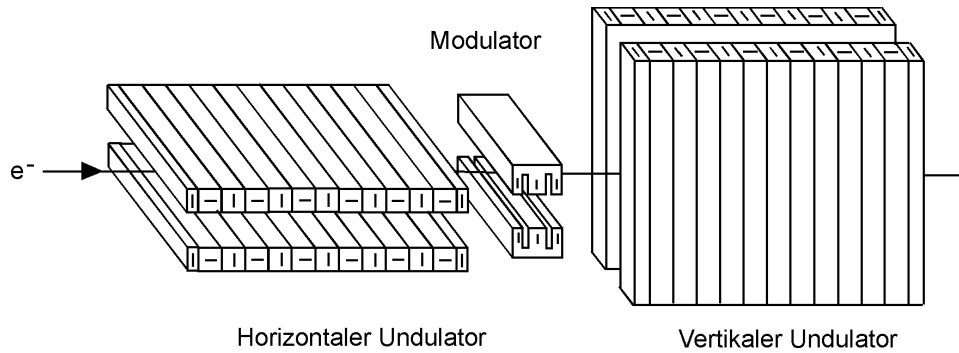


Abbildung 3.10: Anordnung zweier gekreuzter Undulatoren und eines Modulators oder Phasenschiebers zur Erzeugung zirkular polarisierter Strahlung, aus [15].

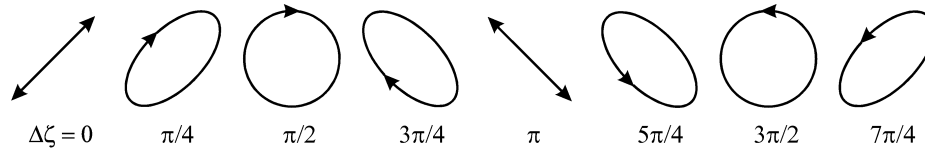


Abbildung 3.11: Polarisationsrichtung in Abhängigkeit von der Phasendifferenz zwischen den Undulatorphasen.

wendigkeit, Monochromatoren im Reflexionsmodus, das heißt Beugungsverfahren, einzusetzen. Hierfür werden bei kleineren Energien (bis 1000 eV) Gittermonochromatoren und darüber Kristallmonochromatoren verwendet. Das Prinzip beider Verfahren beruht auf der Interferenz der Strahlung ausgehend von den verschiedenen Streuzentren. Die Streuzentren werden bei einem Kristall durch die verschiedenen Gitterebenen gebildet. Für den Zusammenhang zwischen dem Beugungswinkel und der Wellenlänge der Strahlung gilt hier die sogenannte Bragg-Bedingung³. Für diese Arbeit sind nur Gittermonochromatoren interessant.

Die Strahlführung ist exemplarisch in Abb. 3.12 schematisiert: Der primäre Lichtstrahl wird mit fokussierenden Spiegeln auf einen Eintrittsspalt projiziert und über das Gitter, das ebenfalls fokussierende Eigenschaften besitzt, wiederum auf eine Blende am Ausgang reflektiert. Dieser Austrittsspalt schneidet aus dem Spektrum das gewünschte Wellenlängenband heraus. Danach wird der „monochromatische“ Strahl über einen weiteren Spiegel auf das Target fokussiert. Bei dem hier gezeigten Beispiel ist zusätzlich eine Blende, die zur Wahl des Polarisationsgrads dient, eingezeichnet. Diese kann bei der Strahlführung nach einem zirkular polarisierender Undulator prinzipiell entfallen.

Die Energieauflösung $\Delta E/E$ wird durch die Breite der beiden Spalte bestimmt. Für die Streuung an dem Gitter gilt die Gittergleichung

$$n\lambda = g(\sin \alpha + \sin \beta), \quad n = 1, 2, 3, \dots \quad (3.7)$$

Darin ist n die Beugungsordnung, g die Gitterkonstante, α der Einfallswinkel und β der Ausfallswinkel der Strahlung. Um die Wellenlänge der selektierten Strahlung zu variieren, muß man demnach die Winkelverhältnisse ändern, das heißt den Monochromator

³Das Verfahren der Kristalldiffraktometrie wird zum Beispiel in [120] ausführlich diskutiert

kippen. Dabei tritt jedoch das Problem auf, daß die Fokussierungseigenschaften des Monochromators in erster Ordnung verloren gehen [121]. Das hat zur Folge, daß entweder nur auf Kosten des Strahlstroms die Energieauflösung konstant gehalten werden kann, oder umgekehrt, der Strahlstrom festgehalten wird, was eine deutliche Frequenzverbreiterung nach sich zieht. Der Einsatz eines solchen Gitters ist also nur über einen begrenzten Energiebereich sinnvoll. Das Problem kann jedoch prinzipiell auf zwei Wegen umgangen werden: Entweder es werden mehrere Gitter mit verschiedenen Gitterkonstanten alternativ eingesetzt, die auch im laufenden Betrieb ausgetauscht werden können, und deren aktiver Bereich das Emissionsspektrum überlappend überdeckt. Oder man verändert die Position des Ein- und Austrittsspalts synchron zur Gitterdrehung so, daß sie jeweils an die Fokusebene des Gitters angepaßt wird, siehe Abb. 3.12.

Im allgemeinen verändert ein Reflexionsgitter, abhängig von der Neigung des Einfalls- und des Reflexionswinkels der Strahlung, auch den Polarisationsgrad. Nur in den hypothetischen Grenzfällen eines senkrechten und streifenden Einfalls würde man keine Veränderung erwarten. Jedoch alle Winkel dazwischen — und nur solche sind real praktikabel — führen zu einer Phasenverschiebung zwischen den Anteilen paralleler und senkrechter Polarisation zur Oberfläche. Dieses Problem kann durch Anpassen des Polarisationszustandes vor dem Monochromator kompensiert werden. Dies geschieht zum Beispiel durch Einstellen einer anderen Phase am Phasenschieber, vgl. Abb. 3.10.

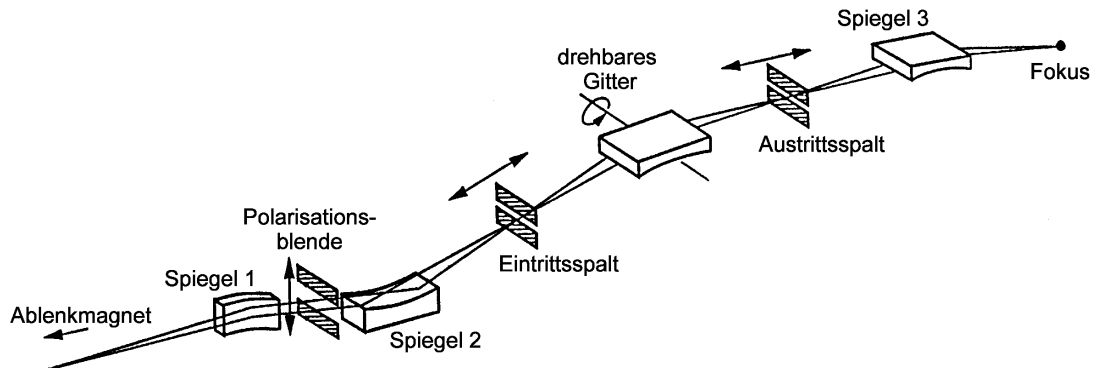


Abbildung 3.12: Schema des Monochromators nach einem Ablenkmagneten, aus [116]. Neben den optischen Elementen des Monochromators ist eine horizontale Blende dargestellt, die den Polarisationsgrad bestimmt.

3.2 Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy (COLTRIMS)

Die zweite entscheidende Komponente des Experiments neben der Photonenquelle ist das Spektrometer oder Impulsmikroskop. In dieser Arbeit wurde die *Rückstoßionenimpulsspektroskopie* [122, 123, 124, 125, 126, 127, 128, 129, 130, 131, 132, 133, 134, 135] zur Messung des differentiellen Wirkungsquerschnitts eingesetzt. In Abschnitt 2.6 wurde bereits darauf hingewiesen, daß die Kenntnis des Ionenimpulses äquivalent zur Kenntnis der Winkelverteilung und Energie eines Elektrons ist⁴. Der Wirkungsquerschnitt läßt sich daher sowohl als Funktion des Ionenimpulses als auch als eine Funktion der Elektronenverteilung darstellen. Beide Darstellungen können durch Anwendung des Impulssatzes und durch Koordinatentransformation ineinander überführt werden.

Die Meßtechnik hingegen beruht auf einem völlig anderen Konzept als die traditionelle Elektronenspektroskopie und bietet gegenüber dieser einige technologische Vorteile, die sich in drei wesentlichen Punkten zusammenfassen lassen:

- Die Detektion der Rückstoßionen erfolgt über den vollen Raumwinkel von 4π .
- Es werden alle Rückstoßionimpulse vom gewählten Maximal-Impuls herab bis zum Impuls null simultan nachgewiesen.
- Der Ladungszustand des Ions wird automatisch analysiert und damit eine einfache Separation der Ereignisse aus Prozessen der Einfachionisation und der Doppelionisation ermöglicht.

Der erste Punkt bedeutet eine quantitative Steigerung des Raumwinkels um einen Faktor 1000 gegenüber dem eines klassischen Elektronenanalysators⁵ [137]. Der zweite Aspekt ist, gemessen an den traditionellen Verfahren, ebenfalls gleichbedeutend mit einer deutlichen Steigerung der Meßeffizienz. Bei diesen ist es nämlich erforderlich, den interessanten Energiebereich in vielen einzelnen Meßschritten abzudecken^{6,7}. Darüber hinaus bietet dieser Aspekt aber auch noch einen erheblichen qualitativen Vorteil: Die Impulsprojektion der schweren Ionen ist relativ unanfällig gegenüber äußeren magnetischen und elektrischen Störfeldern. Dadurch wird eine hohe Meßgenauigkeit auch bei sehr kleinen Impulsüberträgen erzielt⁸. Der dritte Punkt bietet nicht nur den Vorteil, der Untergrundunterdrückung, sondern auch die Möglichkeit der eindeutigen Zuordnung von Ereignissen

⁴Diese Feststellung ist unabhängig von der Anzahl der Freiheitsgrade, gilt also für die Einfach- genauso wie für die Doppelionisation.

⁵In Mehr-Teilchen-Koinzidenz-Messungen, die zum Beispiel im Falle der Doppelionisation durch Elektronenstoß bis zu acht zu vermessende Freiheitsgrade enthalten, werden oftmals große apparative Anstrengungen unternommen, um den simultan erfaßbaren Raumwinkelbereich der Elektronenspektrometer zu maximieren [136]. Dazu werden die Symmetrien der Reaktion ausgenutzt, was einerseits eine sehr spezielle, anwendungsorientierte Apparatur verlangt und wodurch andererseits die Integration über eine oder mehrere Raumkoordinaten irreversibel erfolgt.

⁶Die Steigerung der Zählrate hängt von der Energieauflösung des Elektronenspektrometers ab und kann daher nicht pauschal angegeben werden.

⁷Einige Verfahren der Elektronenspektroskopie bedienen sich der Flugzeitmethode zur Bestimmung der Elektronenenergie und sind ebenfalls in der Lage, ein breites Energiespektrum simultan zu erfassen [7].

⁸Die absolute Impulsauflösung kann bei kleineren Impulsüberträgen sogar gesteigert werden.

zur Mehrfachionisation, ohne auf den koinzidenten Nachweis mehrerer Teilchen angewiesen zu sein. So spiegelt zum Beispiel die direkte Messung des Ionenimpulses nach (2.73) den Summenimpuls der Elektronenbewegung wieder. Dadurch ist die Untersuchung der Schwerpunktsbewegung der Elektronen, wie sie etwa dem Wanniermodell vorhergesagt wird [33, 34], allein mit dem Nachweis des Ions möglich und so auf unmittelbare Weise mit dieser Technik verknüpft.

Weitere Vorteile dieser Technik ergeben sich bei der Messung bestimmter Prozesse, die sich kinematisch eindeutig von einem konkurrierenden Prozeß durch die Rückstoßionenimpulsverteilung unterscheiden. Beispielsweise läßt sich dadurch die Comptonstreuung von der Photoabsorption differenzieren [13, 14, 15, 16]. Der Rückstoßionenimpuls spiegelt im Falle der Comptonstreuung das Comptonprofil der gebundenen Elektronen wider, ist also um den Nullpunkt verteilt. Die Verteilung nach Photoabsorption führt dagegen zu großen Rückstoßionenimpulsen. Als weiteres Beispiel sei die Unterscheidungsmöglichkeit des Thomas-Mechanismus und der Transferionisation mit kinematischem Einfangprozeß [11, 19, 20] angeführt. In diesen Messungen kann die Zuordnung der Ereignisse zu einem der Prozesse bereits ohne vollständige Bestimmung des Impulsraums erfolgen.

Will man darüber hinaus den Endzustand dreier (oder mehr) Teilchen vollständig bestimmen, läßt sich die Rückstoßionenimpulsspektroskopie zusätzlich mit der koinzidenten Detektion eines (oder mehrerer) Elektronen kombinieren. Auch die Elektronen können dabei mittels Impulsspektroskopie mit einem Raumwinkel zwischen 10% und 100% von 4π nachgewiesen werden, abhängig von der konkreten Technologie, siehe Abschnitt 3.2.3. Die vollständige simultane Erfassung aller Reaktionskanäle erlaubt daher beispielsweise in der Photodoppelionisation, differentielle Wirkungsquerschnitte zu messen, die um einen Faktor 10^6 geringer sind, als es bei gleicher Auflösung seither mit der Elektronenspektroskopie möglich war.

3.2.1 Targetpräparation

Die Anwendbarkeit der Rückstoßionenimpulsspektroskopie beschränkt sich derzeit allein auf Gastargets.

Betrachtet man eine Doppelionisation, bei der den Elektronen im Ausgangskanal 20 eV Energie zur Verfügung stehen, dann werden sich die Impulse der drei freien Teilchen in der Größenordnung 1 a.u. bewegen. Diesen Impulsen ist die thermische Bewegung der Targetatome im Anfangszustand überlagert. Um eine ausreichende Auflösung zu erzielen, verlangt die Rückstoßionenimpulsspektroskopie daher gekühlte Targetatome: Ein Heliumatom bewegt sich beispielsweise bei Zimmertemperatur mit einer mittleren Geschwindigkeit von etwa 6×10^{-4} a.u. Das entspricht einer thermischen Energie von 36 meV. Diese ist klein im Vergleich zu der Auflösung der Elektronenmessung spielt hier demnach keine Rolle. Jedoch dominiert sie die Bewegung der Ionen. Deren mittlerer Impuls beträgt 4,5 a.u. Um die Rückstoßionen mit akzeptabler Auflösung ($< 0,25$ a.u.) messen zu können, benötigt man daher Targettemperaturen von weniger als 1 K. Die Kombination der Rückstoßionenimpulsspektroskopie mit kalten Gastargets wird als COLTRIMS (**C**old **T**arget **R**ecoil **I**on **M**omentum **S**pectroscopy) bezeichnet.

Um eine ausreichende Kühlung der Targetatome zu erzielen, kann man sich des Prinzips des „Ultraschallgasjets“ bedienen⁹. Die Abkühlung des Gases erfolgt hierbei durch adiabatische Expansion: Im Fall des „freien Jets“ strömt das Gas aus einem unter Druck (p_0) stehenden Behälter durch eine kleine Öffnung in ein Vakuum (p_b). Im idealisierten Fall der Expansion in das perfekte Vakuum $p_b = 0$ wird dadurch die gesamte Enthalpie des Gases, also die thermische Energie kT_0 und die gespeicherte Druckarbeit PV , in eine gerichtete Bewegung der Gasatome umgewandelt. Die daraus resultierende Geschwindigkeit der Atome beträgt

$$v_{\text{jet}} = \sqrt{5kT_0/m_{\text{He}}} . \quad (3.8)$$

Die freie Weglänge der Atome ist in der Expansionszone wegen $p_b = 0$ unendlich. Anders gesagt, finden nach der Expansion keine Stöße der Atome untereinander statt, das heißt die interne Gastemperatur nach der Expansion verschwindet, $T = 0$.

Unter realen Bedingungen $p_b > 0$ ist die relative Geschwindigkeitsverteilung der Atome nach der Expansion entscheidend für die erzielbare Auflösung. Das „Speedratio“

$$S := \sqrt{m_{\text{He}} v_{\text{jet}}^2 / (2kT)} \quad \text{bzw.} \quad T_0/T = 2,5S \quad (3.9)$$

ist das Verhältnis aus Jetgeschwindigkeit und der Relativgeschwindigkeit der Atome untereinander. T ist hierin die Temperatur des Gases nach der Expansion. Es kann gezeigt werden, daß diese Größe von dem Druck und dem Durchmesser der Düse abhängt. In einem eingeschränkten Gültigkeitsbereich zeigt sich $S \propto (p_0 d_D)^\beta$, mit einem Exponenten $\beta \approx 0,5$ [138], vgl. Abb. 3.13. Sowohl die Steigerung des Drucks als auch die Vergrößerung des Durchmessers führen somit zu einer Verringerung der Targettemperatur. Gleichzeitig gilt für den totalen Gasfluß $\dot{N} \propto p_0 d_D^2$ [139]. Bei gegebener Pumpleistung kann dieser nicht beliebig gesteigert werden, da ansonsten der Druck p_b zu stark ansteigt. Somit ist die günstigste Lösung zur Senkung der Temperatur die Erhöhung des Druckes bei möglichst kleiner Düsenöffnung.

Anhand (3.9) ist auch zu sehen, daß eine Senkung der Gastemperatur vor der Expansion die thermische Verbreiterung der intrinsischen Impulse nach der Expansion verringern wird. Das Verhalten des Speedratio in Abhängigkeit von der Temperatur T_0 und dem Produkt $p_0 d_D$ kann Abb. 3.13 entnommen werden. Damit läßt sich dann die Targettemperatur und letztlich — unter Annahme einer Boltzmann-Verteilung für der Geschwindigkeit der Atome — die Impulsauflösung des Gasjets in Ausbreitungsrichtung y ermitteln. Die transversale Impulsunschärfe des Gasjets kann einfach anhand der geometrischen Divergenz und der Geschwindigkeit des Gasstrahls bestimmt werden. Diese hängt nur von den Durchmessern der Düse d_D und des Skimmers d_S , sowie deren Abstand l ab. Die Impulsverteilung der Ionen in allen Komponenten ergibt sich also aus

$$\Delta \mathbf{K}_{\text{He}} = m_{\text{He}} v_{\text{jet}} \begin{pmatrix} (d_D + d_S)/l \\ (2\sqrt{\ln 2})/S \\ (d_D + d_S)/l \end{pmatrix} \quad (\text{FWHM}) \quad . \quad (3.10)$$

⁹Es gibt neben dem Ultraschall-Gasjets noch wesentlich aufwendigere Technologien der Kühlung von Atomen, wie zum Beispiel lasergekühlte Gastargets. Hier werden die Atome in magneto-optischen Fallen eingefangen. Mit dieser Technik sind Temperaturen weniger μK und somit Impulsaufösungen in der Größenordnung 10^{-3} a.u. erreichbar. Diese Technologie wird insbesondere für hochauflösende COLTRIMS-Experimente in der Zukunft eine Rolle spielen.

Die Vorkühlung des Gases hat nebenbei den Effekt, daß die „Offsetgeschwindigkeit“ v_{jet} gesenkt wird: Die Targetatome haben einen um $\sqrt{T_{0\text{warm}}/T_{0\text{kalt}}}$ niedrigeren Impuls in Jetrichtung.

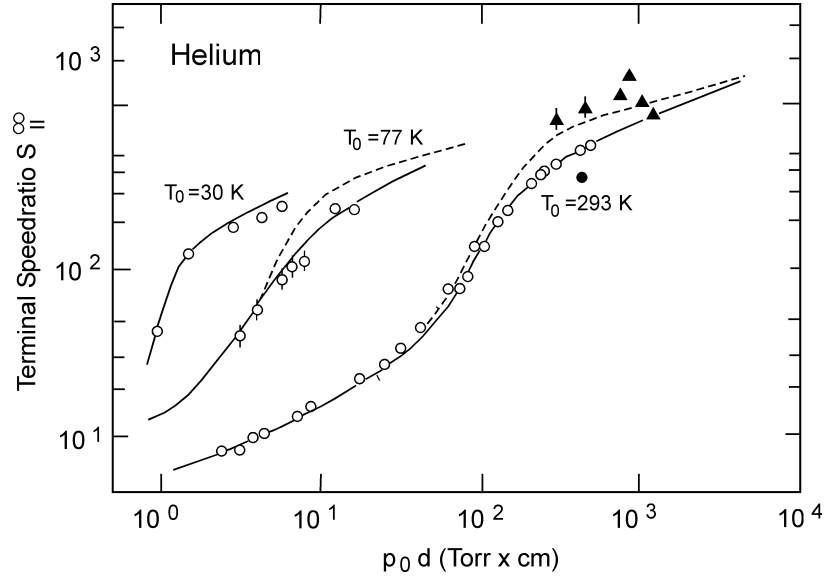


Abbildung 3.13: Das Speedratio für den Helium-Ultraschalljet in Abhängigkeit vom Produkt aus Druck und Düsendurchmesser für verschiedene Temperaturen T_0 , aus [140].

In einem Bereich weniger Millimeter vor der Austrittsöffnung bildet sich eine Machsche Schockfront aufgrund der Wechselwirkung mit dem umgebenden Restgas. Die Ausdehnung l_M der wechselwirkungsfreien Zone ist umso größer, je besser das Vakuum in der Umgebung der Düse bei gegebenem Druck p_0 ist, das heißt je mehr Pumpleistung dort zur Verfügung steht. Es gilt $l_M = 2/3 d_D (p_0/p_b)^{1/2}$. Die Bedingungen für die adiabatische Abkühlung gelten nur innerhalb dieser Zone. Mit Hilfe eines Skimmers kann jedoch das schlechte Vakuum der Jet-Kammer von dem der Wechselwirkungs- oder Targetkammer getrennt werden¹⁰. Der Skimmer wird dazu in die Zone eingetaucht. Er schält einen schmalen Anteil des kalten Gasstrahls heraus. Der Durchmesser des Ultraschallgasjets beträgt am Ort des Überlapps mit den Projektilstrahl typischerweise 1 – 5 mm, abhängig von den Durchmessern von Düse und Skimmer und den geometrischen Verhältnissen des Aufbaus. Der Gasstrahl wird hinter der Targetzone durch eine größere Öffnung (ca. 1 cm) geleitet und in einer separat gepumpten Kammer, dem sogenannten „Jetdump“, aufgefangen. Warmer Heliumuntergrund ist dabei in der Targetkammer nicht erwünscht, er läßt sich dennoch nicht vollständig unterdrücken. Aufgrund des relativ hohen Untergrundgasdrucks in der Jetstufe liefert die nicht gerichtete Querströmung durch den Skimmer den größten Beitrag. Die Querströmung aus dem Jetdump verursacht vor allem wegen dessen großer Eintrittsöffnung ein relevantes Leck. Für eine effizientere Unterdrückung, können jeweils

¹⁰In der Targetkammer kann ohne große Pumpleistung ein wesentlich besseres Vakuum aufrecht erhalten werden. In der Targetkammer ist daher die mittlere freie Weglänge (beispielsweise bei 1×10^{-7} mbar wenige Meter) ausreichend, um die Kühlung zu erhalten.

zwei oder mehr Pumpstufen für die Jetkammer bzw. den Jetdump eingesetzt werden. Das ist besonders für Anlagen interessant, die bei hohen Drucken ($p_b \gg 1$ bar) operieren und gleichzeitig ein sehr gutes Grundvakuum in der Targetkammer verlangen, wie sie zum Beispiel an Speicherringen eingesetzt werden [141]. Ein zweistufiger Jet ist in Abb. 3.14 dargestellt. Die Auslegung der Pumpleistung hängt von dem Vordruck p_0 , der Wahl der Pumpen und der Anzahl der Pumpstufen ab. Bei zweistufigen Jets liegt es nahe, in der ersten Stufe eine Rootspumpe mit großer Pumpleistung bei relativ hohen Drucken einzusetzen und den Druck in der zweiten, differentiellen Stufe durch eine Turbomolekularpumpe zu reduzieren. Bei einstufigen Jets muß der Druck in der Jetkammer bereits sehr gering sein ($p_b < 1 \times 10^{-3}$ mbar). Dazu ist der Einsatz von Turbomolekularpumpen oder Öldiffusionspumpen sinnvoll.

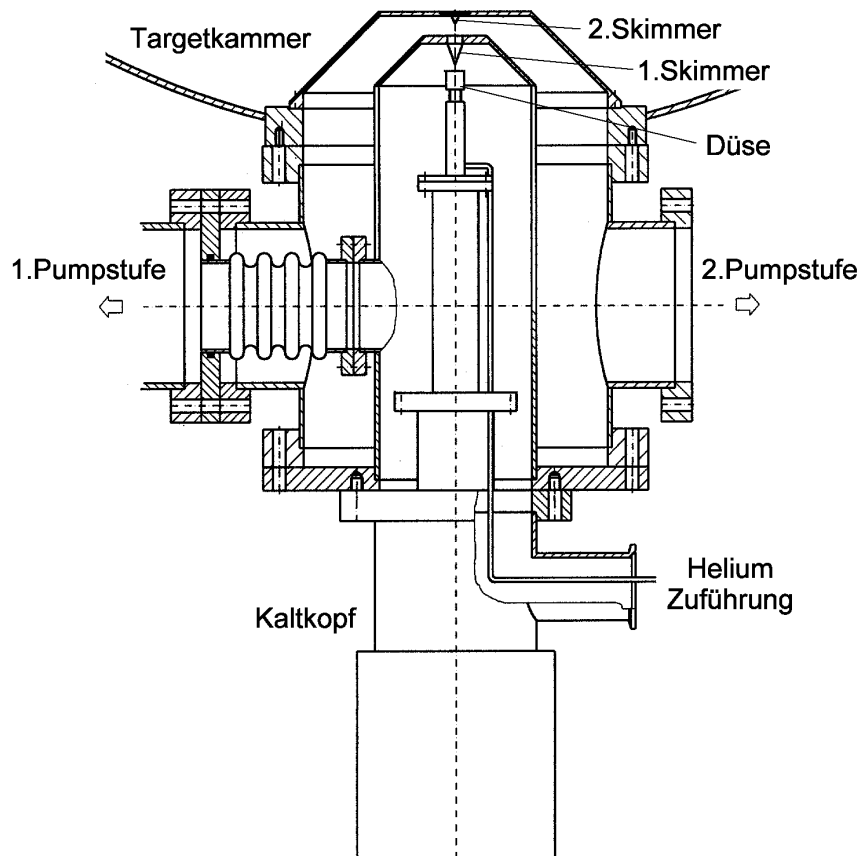


Abbildung 3.14: Schnittzeichnung durch einen zweistufigen Gasjet aus [142].

3.2.2 Die Rückstoßionenimpulsmessung

Das Herzstück der COLTRIMS ist das Rückstoßionenspektrometer.

Atome, die in der Reaktion mit einem Projektil ionisiert werden und dabei einen Startimpuls von

$$\mathbf{K}_{\text{ion}} = \begin{pmatrix} K_{x\text{ion}} \\ K_{y\text{ion}} \\ K_{z\text{ion}} \end{pmatrix} \quad (3.11)$$

aufnehmen, werden mittels eines schwachen, homogenen, elektrostatischen Feldes am Ort des Überlapps von Gasjet und Projektilstrahl in Richtung eines ortsauflösenden „Micro-Channel-Plate-Detektors“ (MCP) abgesaugt. Diese Zone wird im folgenden als Beschleunigungsstrecke bezeichnet. Die drei Impulskomponenten werden dabei auf die zwei Ortskoordinaten des Detektors sowie die Flugzeit(-koordinate) projiziert. Hierin liegt der wesentliche (prinzipielle) Unterschied zu Verfahren, die nur auf der Messung der Driftzeit in einer feldfreien Region beruhen. Während das Vermeiden von Störfeldern bei diesen Verfahren essentiell ist und zugleich die größte Schwierigkeit darstellt, kann man bei der Impulsprojektion durch das kontrollierte Anlegen eines Beschleunigungsfeldes weitestgehend auf diese Sorgfalt verzichten¹¹. Entscheidend ist dabei, daß ausschließlich Relativimpulse bestimmt werden. Die exakte Kenntnis der Feldgeometrie in dem Spektrometer ist daher prinzipiell nicht mehr erforderlich und die Messung wird somit unempfindlich gegen elektrische Störfelder.

Die folgenden Betrachtungen gelten für den Fall, daß die Energie, mit der die Ionen starten, gering gegen die Energie ist, die sie in dem Feld aufnehmen. Diese Forderung ist mit Potentialdifferenzen von wenigen Volt in den meisten Stoßprozessen erfüllt. Ausnahmen bilden Experimente zur Fragmentation von Molekülen, bei denen die einzelnen Fragmente aufgrund der Coulombabstoßung Energien von bis zu einigen 10 eV aufnehmen [143]. Hier sind die Absaugfelder entsprechend zu erhöhen.

3.2.2.1 Die Flugzeitmessung und Flugzeitfokussierung

Die Rückstoßionenflugzeit wird entweder durch den koinzidenten Nachweis der Ionen mit den zugehörigen Elektronen oder Projektilen oder gegebenenfalls durch die koinzidente Messung des Zeitsignals des Projektilstrahlpulses ermittelt. Die Gesamtflugzeit der Ionen beinhaltet die Information des Startimpulses. Sie hängt aber vor allem von der Länge der durchlaufenen Beschleunigungsstrecke ab. Die Impulsauflösung in Flugzeitrichtung ist daher durch die Ausdehnung der Targetzone in dieser Richtung beeinflußt. Dieser Effekt wird durch eine sogenannte Flugzeitfokussierung¹² unterdrückt, indem man die Ionen nach der Beschleunigung eine feldfreie Driftstrecke durchlaufen läßt. Das elektrische Beschleunigungsfeld kann durch ein Metallgitter von dem feldfreien Driftbereich getrennt werden, um hier störende Feldeingriffe zu unterbinden. Die Länge der Driftstrecke wird durch Minimierung der Flugzeitdifferenz als Funktion des Startortes $\partial t(s)/\partial s$ in erster Ordnung berechnet [125]. Im Fall einer homogenen Beschleunigung ergibt dies eine Drift-

¹¹Abgesehen von Inhomogenitäten am Startort der Ionen.

¹²Damit ist nur eine Fokussierung der Flugzeitunterschiede bedingt durch verschiedene Startorte (und nicht Startimpulse) gemeint.

strecke, die doppelt so lang ist wie die Beschleunigungsstrecke. Für die Umrechnung der Flugzeit in den Anfangsimpuls eines in x-Richtung abgesaugten Ions findet man

$$K_{x_{\text{ion}}} = \frac{q_{\text{ion}}U}{s_B}(t - t_0), \quad \text{mit} \quad t_0 = t(K_{x_{\text{ion}}} = 0) = 2\sqrt{\frac{2M_{\text{ion}}s_B^2}{q_{\text{ion}}U}}. \quad (3.12)$$

Hierin ist q_{ion} die Ladung des Ions, U die Beschleunigungsspannung, s_B die Länge der Beschleunigungsstrecke und t_0 die Flugzeit zum Startimpuls 0. Die Gesamtflugzeit t skaliert offenbar mit der Wurzel aus der in dem beschleunigenden Feld aufgenommenen Energie. Daraus resultiert automatisch die Separation der Ladungszustände der Ionen. Die Flugzeitdifferenz $\Delta t = t - t_0$ hängt dagegen linear von dem Ladungszustand ab und beinhaltet auch in einem linearen Zusammenhang die Information über den Startimpuls. Die Bestimmung der Startimpulse beruht auf der Relativmessung von Flugzeitunterschieden. Sie erfolgt durch die Ermittlung der Eichfaktoren $q_{\text{ion}}U/s_B$ und t_0 , die für die verschiedenen Ladungszustände unterschiedlich ausfallen. Diese gewinnt man in der Praxis durch die Zuordnung bekannter, fester Impulsbeträge (zum Beispiel aus der Photoeinfachionisation), sowie im Fall des Zeitnullpunkts beispielweise durch die Symmetrie des Spektrums. Somit ist die genaue Kenntnis des Feldes am Targetort nicht erforderlich. Kleinere zeitunabhängige Inhomogenitäten sind ebenfalls nicht relevant, da die Eichung diese Informationen impliziert. Im Fall starker lokaler Inhomogenitäten oder zeitlicher Veränderung wird eine Eichung jedoch unpraktikabel.

3.2.2.2 Die Ortsfokussierung

Die beiden übrigen Impulskomponenten sind transversal zu dem Beschleunigungsfeld und werden daher ebenfalls linear in Ortskoordinaten transformiert. Damit erhält man den Gesamtimpuls

$$\mathbf{K}_{\text{ion}} = \begin{pmatrix} \frac{q_{\text{ion}}U}{s_B}(t - t_0) \\ \frac{M_{\text{ion}}}{t}(y_{\text{ion}} - y_{0\text{ion}}) \\ \frac{M_{\text{ion}}}{t}(z_{\text{ion}} - z_{0\text{ion}}) \end{pmatrix}, \quad (3.13)$$

mit den Ortskomponenten $y_{0\text{ion}}, z_{0\text{ion}}$ zum Impuls null. Die Bestimmung der Komponenten in Ortsrichtung sind somit ebenfalls unabhängig von der exakten Kenntnis des Felds, mit derselben Einschränkung auf ein statisches und weitgehend homogenes Feld. Der Eichfaktor zur Berechnung der Impulskomponenten in Ortsrichtung M_{ion}/t enthält nach (3.13) streng genommen die exakte Flugzeit des Ions und hängt somit von der Impulskomponente in x-Richtung ab. Die Gesamtflugzeit t_0 der Ionen beträgt größenordnungsmäßig $10 \mu\text{s}$, dem gegenüber liegt die Flugzeitverteilung $(t - t_0)$ in einem Intervall von typischerweise 100 ns . Somit kann in guter Näherung der Einfluß der Impulskomponente in Flugzeitrichtung vernachlässigt werden. Man kann anstelle des Vorfaktors in (3.13) auch pauschal M_{ion}/t_0 schreiben.

Vorgreifend auf Abschnitt 3.2.4 geht bereits an dieser Stelle die Ortsauflösung der MCP-Detektoren in die Überlegung ein: Nimmt man eine mittlere Auflösung von etwa $0,1 \text{ mm}$ total oder $\Delta y/y = \Delta z/z = 1/500$ relativ bei 50 mm aktivem Durchmesser an, findet man, daß die Impulsauflösung in erster Linie, wie auch in Flugzeitrichtung,

durch die vergleichsweise große Ausdehnung des Quellpunkts ($\approx 1 \text{ mm}^3$) beschränkt wird, $\Delta K_{\text{zion}}/K_{\text{zion}} \propto \Delta z_{\text{target}}/z$. Auch in den beiden Ortkoordinaten ist daher eine Fokussierung des Startorts vorgesehen. Eine elektrostatische Linse im Bereich der Beschleunigungsstrecke kann eine solche Fokussierung bewirken, siehe Abb. 4.9. Die Linse wird einfach durch einen Potentialsprung zwischen zwei eng benachbarten Potentialringen erzeugt. Durch den Potentialsprung ergibt sich eine insgesamt größere Beschleunigung der Ionen, was wiederum eine Verlängerung der Driftstrecke erfordert. Die Gesamtlänge der Driftstrecke läßt sich analytisch angeben als

$$s_D = 2(s_1 + s_2 + s') \left(1 + \sqrt{\frac{s_1 + s_2 + s'}{s_1}} + \sqrt{\frac{2s_1 + s'}{s_1 + s'}} \right), \quad (3.14)$$

mit den Beschleunigungsabschnitten s_1 und s_2 vor bzw. hinter der Linse und $s' = U_L/E$ [11]. Im allgemeinen beeinflußt eine solche Linse den Potentialverlauf innerhalb großer Bereiche des Spektrometers. Daher ist darauf zu achten, daß Felddeformierungen durch die Linse im Bereich des Targetvolumens vermieden werden, denn gerade an dieser Stelle kann der Informationsgehalt der Ortsabbildung durch Inhomogenitäten beeinträchtigt werden: Am Startort, wo die Ionen noch keine Energie durch das Feld aufgenommen haben, dominiert der Startimpuls die Bewegung. Die Ionen fliegen in unterschiedliche Richtungen. Eine inhomogenes fokussierendes Feld am Startort bewirkt dann, daß die entgegen der Feldrichtung startenden Ionen zunächst bis zum Umkehrpunkt den abnehmenden Gradienten der Linse verspüren. Diese Ionen sind daher auch länger den transversalen Feldkomponenten der Linse ausgesetzt und werden somit stärker fokussiert als Ionen, die direkt in Richtung der Linse starten. Im Gegensatz zu den Ortkomponenten $K_{y\text{ion}}$ und $K_{z\text{ion}}$ in (3.13) behält (3.12) auch bei nicht konstantem Feldgradienten entlang der Beschleunigungsrichtung weiterhin Gültigkeit, wenn man anstelle U/s_B das Feld am Targetort E_{target} einsetzt. Mit anderen Worten: Für die Auflösung der Ionenimpulse in Flugzeitrichtung ist nicht das totale Beschleunigungspotential ausschlaggebend, sondern nur das Feld am Targetort.

Das vollständige Design des Spektrometers wird mit Hilfe des Simulationsprogramms „SIMION“ entworfen. Die Simulationen umfassen Tests der Fokussierungseigenschaften in allen drei Richtungen sowie der Abbildungslinearität des Spektrometers. Wie auch in Abb. 4.9 zu sehen ist, erfährt das Feld eine zusätzliche Beeinträchtigung durch das Weglassen des Abschlußgitters zwischen Beschleunigungs- und Driftstrecke. Nach entsprechender Anpassung der Linse kann jedoch darauf verzichtet werden. Daraus ergibt sich der Vorteil einer höheren Transmission der Teilchen bei gleichzeitiger Vermeidung einer unkontrollierten Defokussierung an den kleinen Maschen des Gitters.

Der Einfluß des Gitters auf die Trajektorien hängt von dem Feldgradienten, der Teilchenenergie und der Maschenweite des Gitters ab. Für das Gitter zwischen Beschleunigungs- und Driftstrecke kann dieser nach [144] abgeschätzt werden: Die mittlere Ablenkung der Teilchen auf dem Detektor Δx , verursacht durch ein gewobenes Gitter mit der Maschenweite g und einer Transmission von 49%, beträgt

$$\Delta x = s_D \tan \left(\frac{g}{s_B} 0,058 [\text{rad}] \right). \quad (3.15)$$

Hierin ist s_B die Gesamtlänge der Beschleunigungsstrecke. Hierbei wurde das Linsenpotential gegenüber der gesamten Potentialdifferenz zwischen Targetort und Driftstrecke vernachlässigt. Bei einer Spektrometergeometrie, wie sie in Abb. 4.9 zu sehen ist, spielt dieser Effekt eine untergeordnete Rolle: Die mittlere Ablenkung beträgt hier weniger als $50\text{ }\mu\text{m}$ für ein Standardgitter der Maschenweite $250\text{ }\mu\text{m}$. Wird jedoch beispielsweise die Linse direkt vor dem Gitter plaziert, hat das den Effekt, daß der Feldgradient an dieser Stelle ohne weiteres den dreifachen Wert des homogenen Feldes erreichen kann. In diesem Fall ist (3.15) nicht mehr gültig. Um dieselbe Auflösung zu gewährleisten, wäre dann der Einsatz eines dreifach feineren Gitters erforderlich.

Ein oder zwei weitere Gitter schirmen das starke Feld vor dem Detektor gegenüber der Driftstrecke ab. Diese Gitter sind bei der hier vorgestellten Bauweise des Spektrometers unerlässlich. Die Teilchen werden durch die Gittermaschen völlig überfokussiert und treten stark divergent auf der Rückseite aus¹³. Daher wird die Auflösung der Orte allein durch die Maschenweite des Gitters vor dem Detektor beschränkt. Der Felddurchgriff durch das Gitter bewirkt zum anderen eine Fokussierung der Trajektorien noch innerhalb der Driftstrecke, die jedoch durch sorgfältigere Abschirmung — zum Beispiel mit Hilfe mehrerer Gitter — hinreichend unterdrückt werden kann, siehe Abb. 3.15.

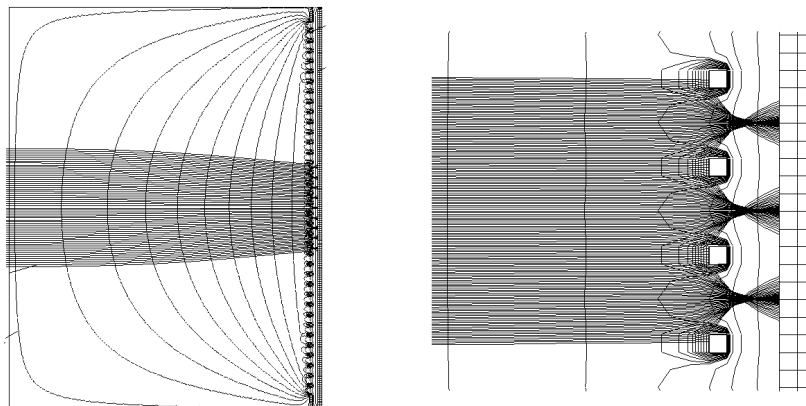


Abbildung 3.15: *Simulation der Auswirkung einer Gitterstruktur auf die Ortsauflösung: a) Fokussierung trotz Abschirmung, b) Auflösungsbeschränkung auf die Maschenweite des Gitters, Ausschnitt aus a). Simuliert sind in diesem Fall Drähte, die ringförmig um die zentrale Spektrometerachse angeordnet sind. Die He^{1+} -Ionen bewegen sich horizontal von links nach rechts mit einer kinetischen Energie von 100 eV . Das Potential des Detektors (jeweils rechts) liegt auf -2000 V gegenüber dem abgeschirmten Driftbereich mit -100 V . Die Simulation entspricht einem Gitter mit einer offenen Fläche von 80% .*

¹³Die Abschätzung der Defokussierung nach [144] hat bei Feldgradienten dieser Stärke keine Gültigkeit mehr.

3.2.3 Elektronenimpulsmessung

In dem elektrostatischen Absaugfeld werden neben den Ionen auch die emittierten Elektronen in entgegengesetzter Richtung entlang der Strecke s_{Be} beschleunigt. Daher ist der gleichzeitige Nachweis von Elektronen durch die Verwendung eines weiteren Detektors auf der gegenüberliegenden Seite des Rückstoßionendetektors naheliegend. Je nach Auslegung des Feldes und der Energie der Elektronen werden diese entweder nur sehr schwach abgelenkt oder ebenfalls vollständig auf den Detektor projiziert. Das heißt, der Nachweisraumwinkel ist bei kontinuierlicher Energieverteilung der Elektronen nicht konstant. Er kann vom geometrischen Raumwinkel, der durch den Abstand und den Durchmesser des Elektronendetektors gegeben ist, bis zu 100% des vollen Raumwinkels reichen. Daraus ergeben sich verschiedene Konsequenzen: Die Bestimmung der Impulskomponenten transversal zum Absaugfeld kann nicht, wie im Fall der Ionen, generell nach (3.13) erfolgen. Grund dafür ist, daß die Energie E_e , mit der die Elektronen starten, in derselben Größenordnung liegt wie die im Feld aufgenommene Energie E_b . Nur für sehr niederenergetische Elektronen gilt (3.13), für schnelle dagegen muß die Verteilung geometrisch in Impulse umgerechnet werden. In Flugzeitrichtung ergibt sich das selbe Problem. Wieder gilt (3.12) nur für den Fall $E_e \ll E_b$. Für schnelle Elektronen konvergiert t_e gegen $s_{Be}\sqrt{m_e/(2E_e)}$. Für einen Nachweis aller Elektronen mit 4π Raumwinkel würden mit zunehmenden Energien sehr hohe Absaugfelder notwendig. Damit geht jedoch sowohl die Auflösung der Ionenimpulse als auch die der Elektronen verloren. Zum vollständigen Nachweis der Elektronen scheint dieser Weg daher nicht sinnvoll.

Somit bleibt in Verbindung mit dem einfachen Absaugfeld nur der geometrische Nachweisraumwinkel direkt in Richtung des Detektors emittierter Elektronen. Für solche gilt, sofern $E_e \gg E_b$ angenommen wird,

$$\mathbf{k}_e = \begin{pmatrix} \frac{x_e}{t_e} \\ \frac{y_e - y_{0e}}{t_e} \\ \frac{z_e - z_{0e}}{t_e} \end{pmatrix}. \quad (3.16)$$

Hierin ist t_e die Flugzeit, y_e und z_e die Position des Elektrons, y_{0e}, z_{0e} sind die Nullpunktkoordinaten und x_e ist die Länge der Flugstrecke in Richtung der Spektrometerachse.

3.2.3.1 Erweiterte Technologie mit Solenoidfeld

Den vollständigen Raumwinkel für den Elektronennachweis kann man, einem Vorschlag von Moshhammer *et al.* folgend [132], jedoch anders erlangen. Durch Überlagerung des schwachen Absaugfelds mit einem parallelen Solenoid-Magnetfeld erfahren alle Elektronen mit transversalen Impulskomponenten eine Kraft, die zur Aufwicklung der Trajektorien auf Spiralbahnen führen, siehe Abb. 3.16. Der Radius der Bahn ist durch den transversalen Impuls und das Magnetfeld bestimmt: $R = \frac{k_{\perp e}}{q_e B}$. Somit kann die Maximalenergie der mit vollem Raumwinkel nachgewiesenen Elektronen beliebig durch Anpassung des Magnetfelds variiert werden¹⁴. Die Elektronenflugstrecke kann vergrößert werden, ohne den Raumwinkel zu beeinträchtigen. Insbesondere ist es dadurch möglich, die Auflösung der Elektronenflugzeit in gleicher Weise wie die der Ionenflugzeit durch eine Driftstrecke zu

¹⁴Dieses Vorgehen verringert jedoch die Auflösung.

verbessern.

Die Zyklotronfrequenz hängt allein von dem Magnetfeld ab: $\omega_z = (e/m)B$. Es treten in den Ortsspektren immer Knotenpunkte auf, wenn die Flugzeit der Elektronen ein ganzzahliges Vielfaches der Umlaufzeit beträgt, $t_e = nT_z$ mit $n = 1, 2, 3, \dots$. Dann nämlich sind die Elektronen nach einem oder mehreren Umläufen, unabhängig von ihrem Startimpuls, an den Ausgangspunkt im Ortsspektrum zurückgekehrt. Die transversale Impulsinformation geht an dieser Stelle völlig verloren. Der Impuls in transversaler Richtung zum Absaugfeld kann bei bekannter Zyklotronfrequenz aus

$$k_{\perp e} = \frac{1}{2} r_e \omega_z m_e \left(\sin \frac{\omega_z t_e}{2} \right)^{-1} \quad \text{mit} \quad r_e = \sqrt{(y_e - y_{0e})^2 + (z_e - z_{0e})^2} \quad (3.17)$$

ermittelt werden. Der Impuls in Flugzeitrichtung bleibt durch das Magnetfeld unbeeinflusst. Für ihn gilt weiterhin, die Beziehung aus (3.12) oder (3.16) je nach dem Verhältnis E_e/E_b . In der Praxis, läßt sich diese Impulsinformation aus einer Simulationsrechnung ermitteln. Eine ausführliche Darstellung dieser experimentellen Technik findet sich in [132, 135].

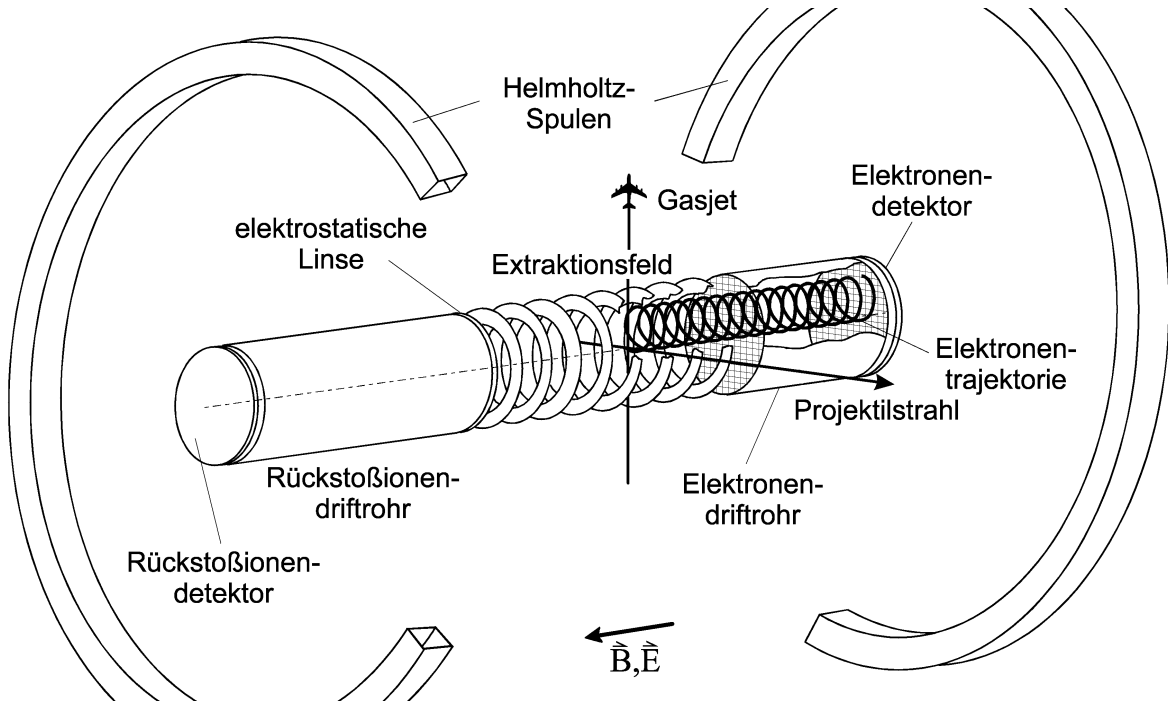


Abbildung 3.16: Rückstoßionenimpuls-Spektrometer mit Solenoidmagnetfeld zum vollständigen Nachweis aller Elektronen. Das Beschleunigungsfeld wird hier durch Potentialringe erzeugt.

3.2.4 Die Teilchendetektoren und die Signalauslese

Der Nachweis der Ionen und der Elektronen erfolgt mit Hilfe ortsempfindlicher Detektoren. Die Detektoren bestehen aus zwei Elementen, den „Micro-Channel-Plates“ (MCP) und einer ortsauflösenden Anode. Geladene Teilchen oder auch hochenergetische Photonen, die in einen Kanal eines MCP eintreten, lösen aus der Oberfläche Elektronen aus, die sich durch ein beschleunigendes Potential entlang der Kanalrichtung kaskadenartig vervielfachen, siehe Abb.3.17. Der Durchmesser der einzelnen Kanäle beträgt bei den hier verwendeten Detektoren $25\,\mu\text{m}$. Daraus resultiert die obere Grenze der Auflösung. Die Ladungsverstärkung und damit die Pulshöhe des Ausgangssignals, hängt von der Länge sowie der Beschichtung der Kanäle und von der angelegten Beschleunigungsspannung ab. Die Sättigung eines 1 mm dicken MCP tritt bei typischerweise 1 kV auf¹⁵. Die Verstärkung kann durch Anordnung mehrerer Channel-Plates hintereinander gesteigert werden. Beim Übergang zwischen zwei Plates breiten sich die Elektronenlawinen meist auf mehrere benachbarte Kanäle aus. Die einzelnen Kanäle sind gegenüber der Normalen auf die Plate-Oberfläche geneigt, der Neigungswinkel beträgt 7° . Die aufeinanderliegenden Plates werden zur Vermeidung von Ionenrückkopplung so gegeneinander verdreht, daß die Kanäle eine Zick-Zack-Struktur ergeben. Bei der Verwendung zweier Plates spricht man von der „Chevron-Anordnung“ [146], hier beträgt die Verstärkung etwa 10^6 . Drei Plates bilden einen sogenannten „Z-Stack“ und erreichen eine Verstärkung von etwa 10^7 [11]. Die Länge des Pulses liegt in der Größenordnung 1 ns. Diese kurze Pulsdauer ermöglicht die Verwendung des kapazitiv ausgekoppelten Channel-Plate-Signals für Zeitmessungen. Die Nachweiseffizienz der primären Teilchen ist – abgesehen von der Materialbeschaffenheit der Channel-Plates – durch die Neigung der Kanäle sowie die Energie und die Art der Teilchen bestimmt: Das Maximum der Elektronennachweisrate wird schon bei einer Energie unterhalb 1000 eV erreicht und fällt darüber langsam ab. Für den Nachweis von Heliumionen wird die maximale Effizienz bei einer Energie oberhalb 2000 eV erzielt und ist bis weit über 10 keV nahezu konstant [145]. Abb. 3.18 zeigt den Verlauf der Nachweiseffizienz eines Z-Stacks für He^{1+} -Ionen als Funktion der kinetischen Energie.

Bei der Auslese der Orte mit Hilfe einer sogenannten Wedge&Strip-Anode werden die Ladungslawinen über drei unterschiedlich strukturierte Segmente (Wedge, Strip und Mäander) verteilt nachgewiesen, siehe Abb.3.19 a. Da die Struktur der Anode gegenüber dem Durchmesser der Channel-Plate-Kanäle wesentlich größer ist, würde das direkte Auftreffen der Ladungslawine auf die Anode in den meisten Fällen zu einer Digitalisierung der Messung führen. Um das zu verhindern, muß dafür gesorgt werden, daß sich die Elektronenwolke genügend aufweitet, so daß die „Ausleuchtung“ mehrerer Segmente sichergestellt ist. Dazu kann eine kurze Driftstrecke zwischen MCP und Anode dienen. Besser noch ist es, die Elektronen direkt auf eine halbleitende Schicht (meist Germanium) auftreffen zu lassen. Die langsam abfließende Influenzladung wird dann auf der abgewandten Seite des Trägers (typischerweise eine 1 mm dicke Glas- oder Keramikplatte) mit Hilfe der Anode nachgewiesen [148]. Das Prinzip der Ortsbestimmung beruht auf der Messung der La-

¹⁵Die Abhängigkeit der Sättigungsspannung von der Kanallänge ist nur in grober Näherung linear [145]

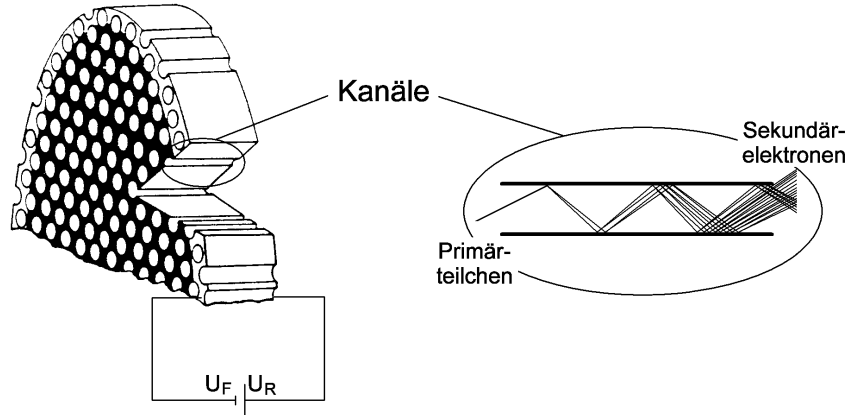


Abbildung 3.17: Ortsempfindliche Elektronenvervielfachung mit einem MCP, teilweise aus [147]. Das Channel-Plate bzw. der Stack wird über zwei Kontaktringe von der Front- und der Rückseite auf die Potentiale U_F und U_R gelegt. Die Potentialdifferenz beschleunigt die Elektronen innerhalb der Kanäle. Die abfließende Ladung wird über die leitende MCP-Oberfläche nachgeliefert. Der Widerstand beträgt typischerweise 50 – 100 M Ω pro MCP.

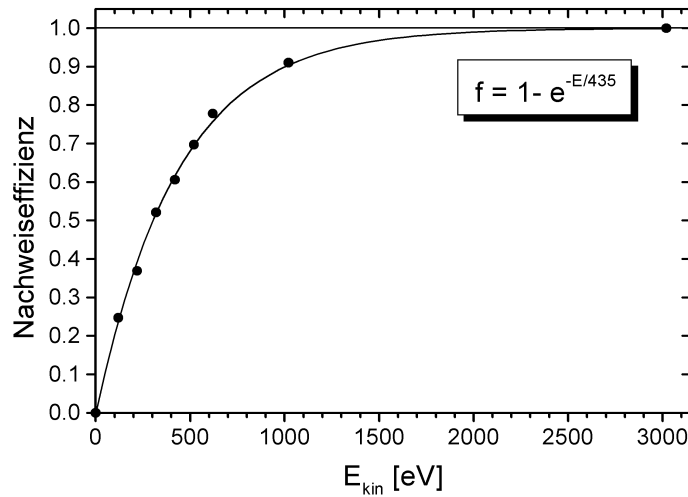


Abbildung 3.18: Nachweiseffizienz von He^{1+} -Ionen als Funktion der kinetischen Energie, Aufgenommen mit einem Z-Stack. Die Meßwerte sind auf den Maximalwert bei 3000 eV normiert, die Kurve ist eine exponentielle Fitfunktion, aus [11].

dungsmenge und erfordert daher die Integration über die gesamte Pulsdauer. Die Orte werden aus den Verhältnissen der jeweils auftreffenden Ladungsmengen bestimmt.

$$x = \frac{Q_W}{Q_W + Q_S + Q_M} \quad \text{und} \quad y = \frac{Q_S}{Q_W + Q_S + Q_M} \quad (3.18)$$

Aus der Ladungsmessung resultiert eine relativ lange Meßzeit ($\approx 1 \mu\text{s}$), daher läßt sich dieses Verfahren der Ortsbestimmung nicht für sehr hohe Zählraten oder „Multi-Hit-Anwendungen“ verwenden.

Aufgrund des geringen Abstands und der langen parallelen Kanten der Segmente ergibt

sich grundsätzlich ein kapazitives Übersprechen der Signale jedes Segments zu dem jeweils benachbarten. Die Folge hiervon ist eine verfälschte Ortsinformation, die korrigiert werden muß. In der Praxis gelingt die Korrektur am einfachsten durch die Aufnahme einer bekannten Eichmaske und anschließender Entzerrung des Bildes. Für das Signal-zu-Rausch-Verhältnis erweist es sich aufgrund des thermischen Rauschens der Verstärkerelektronik am günstigsten, die Detektoren in der Sättigung maximaler Verstärkung zu betreiben. Dieser Betrieb verspricht zudem die bestmögliche Ortsauflösung bei Verwendung von Wedge&Strip-Anoden. Die Ortsauflösung dieser Anoden kann weniger als $50\text{ }\mu\text{m}$ betragen und schöpft damit nahezu das volle Auflösungsvermögen der Channel-Plates aus. In den Anwendungen der Rückstoßionenimpulsspektroskopie wird diese Auflösung aufgrund der oben demonstrierten Gitterstruktur nicht erreicht. Die feinsten verwendeten Gitter haben einen Maschenabstand von $50\text{ }\mu\text{m}$. Da dieser jedoch zu Lasten der Transmission geht, werden meistens Kompromißlösungen mit $100\text{ }\mu\text{m}$ -Gittern bevorzugt.

Eine Alternative zu den Wedge&Strip-Anoden stellt die Delay-Line-Anode dar. Ihr Meßprinzip beruht auf der Messung der Laufzeit des Signals auf einem Draht, ausgelöst durch die Elektronenlawine. Zwei solcher Drähte werden in 1 mm Abständen parallel über die Breite des Detektors auf einen isolierenden Rahmen aufgewickelt. Die Ladungswolke induziert in den beiden Drähten ein Differenzsignal, das durch schnelle Differenzverstärker frei von Rauschen extrahiert werden kann. Die Differenz der Signallaufzeiten zu den beiden Enden der Drähte ergibt unmittelbar die Ortsinformation einer Richtung. Die zweite Ortskomponente erhält man durch eine zweite Drahtebene senkrecht zur ersten auf derselben Anodenhalterung. Der Abstand zwischen Detektor und Anode muß wiederum ausreichend sein (typischerweise 10 mm), um eine Mittelung der Ladungswolke über mehrere Wicklungen zu gewährleisten¹⁶. Der Hauptvorteil dieser Technik liegt in der hohen Signalverarbeitungsgeschwindigkeit, die im wesentlichen durch die eingesetzten Elektronikmodule begrenzt wird und momentan die Verarbeitung zweier aufeinanderfolgender Signale im Abstand weniger ns erlaubt. Damit wird die Anwendbarkeit dieses Detektortyps auch auf den Multi-Hit-Nachweis erweitert. Außerdem lassen sich Raten bis 1 MHz verarbeiten.

Die Auflösung der Delay-Line-Anode hängt einerseits aufgrund der Signallaufzeit von der Größe der Anode und andererseits von der Zeitauflösung des „Time-to-Digital-Converters“ (TDC) ab. Die bislang beste nachgewiesene Auflösung wird auch mit $50\text{ }\mu\text{m}$ angegeben [150].

¹⁶Das Prinzip der Influenzladung funktioniert bei dieser Bauweise der Delay-Line-Anode nicht. Eine andere Entwicklung vereint die Vorteile beider vorgestellter Anodentypen. Die „Eland-Anode“ [149] ist eine auf einem dünnen Träger aufgebrachte Leiterstruktur, die nach dem Prinzip der Delay-Line-Anode eine schnelle Signallaufzeitmessung erlaubt. Die zweite Dimension wird durch eine gekreuzte Struktur derselben Form auf der Rückseite des Trägers registriert. Diese Anode bietet den Vorteil, daß man sie mit dem Prinzip der Influenzladungsmessung verbinden kann, indem man die Anode direkt auf der Rückseite des Trägers mit der Halbleiterschicht anbringt. Dadurch ist dieselbe kompakte Bauweise einer Wedge&Strip-Anode möglich; auch ein Einsatz außerhalb des Vakuums ist prinzipiell denkbar. Technische Schwierigkeiten ergeben sich durch eine störende gegenseitige Beeinflussung beider Signalzweige.

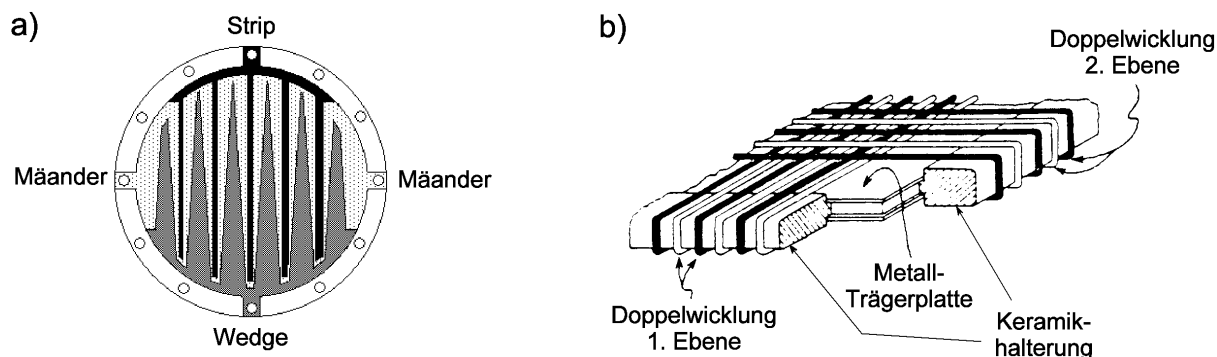


Abbildung 3.19: Ortsempfindliche Anoden: a) Wedge&Strip-Anode (aus [11]), b) Delay-Line-Anode (aus [15]).

3.2.5 Technologischer Ausblick

Ein weiterführendes Projekt befindet sich im Test, bei dem auch das Gitter vor dem Detektor weggelassen wurde. Damit wird die Ortsauflösung allein durch die Auflösung des Detektors beschränkt. Gleichzeitig ist eine Maximierung der Transparenz des Spektrometers erzielbar, wodurch eine Steigerung der Nachweiswahrscheinlichkeit bis zu 50% erreicht werden kann [151]. Durch die völlig offene Feldgeometrie und den großen Feldgradienten vor dem Detektor ergeben sich dort jedoch starke fokussierende Linsen, die die Impulsauflösung zunichte machen. Um eine gute Nachweiseffizienz zu gewährleisten und diese vor allem auch ladungsunabhängig zu machen, wird nach Abb. 3.18 eine Beschleunigungsspannung von wenigstens 1000 V benötigt. In Einzelfällen kann eine Absenkung der Nachweisrate für He^{1+} -Ionen gewünscht sein, in diesem Fall ist auch eine Beschleunigungsspannung von 500 V ausreichend. Es hat sich jedoch im Experiment gezeigt, daß eine Reduktion der Beschleunigungsspannung unter 1000 V zu ratenabhängigen und lokalen Nachweiseffizienzverlusten führt, was die praktische Anwendung deutlich stärker einschränkt. Eine praktikable Vermeidung der Impulsfokussierung bei leichter Verringerung der Detektorspannung ist daher nur durch gleichzeitige größerer Dimensionierung des Spektrometers denkbar. Dazu werden elektrostatische Linsensysteme zur Nachbeschleunigung der Ionen und eine entsprechende Anpassung des Feldgradienten am Targetort nötig.

Kapitel 4

Die Messungen

Das Experiment beinhaltet zwei Messungen zur Photodoppelionisation mit zirkular polarisiertem Licht der Energien $E_\gamma = 99 \text{ eV}$ und $E_\gamma = 174 \text{ eV}$, also 20 eV bzw. 95 eV über der Doppelionisationsschwelle. Die gesamte Meßzeit wurde in 48 Stunden für die erste und 36 Stunden für die zweite Messung aufgeteilt. Dabei wurden folgende Raten eingestellt:

Raten in s^{-1}	Ionen, total	Elektronen	Koinzidenz, total	Koinzidenz, He^{2+}
99 eV	10000	5000	800	50
174 eV	2200	1000	120	6

Insgesamt wurden so $2,6 \times 10^6$ Ereignisse für links zirkulare Polarisation (LCP) und $3,3 \times 10^6$ Ereignisse für rechts zirkulare Polarisation (RCP) bei 99 eV registriert. Daraus ergaben sich nach der im folgenden beschriebenen Auswertung einschließlich Untergrundabzug 21000 (LCP) und 23000 (RCP) echte He^{2+} -Koinzidenzen.

Im Fall der 174 eV lag die gesamte Ereigniszahl bei $8,3 \times 10^5$ (LCP) und 7×10^5 (RCP). Daraus folgen bei dieser Energie nach vollständiger Säuberung der Spektren 6900 bzw. 5400 echte He^{2+} -Koinzidenzen.

Beide Experimente wurden mit derselben Apparatur und bis auf kleine Änderungen mit denselben Einstellungen durchgeführt. Eine gemeinsame Diskussion der experimentellen Bedingungen sowie der Datenanalyse ist daher sinnvoll. Die Einstellungen und Zwischenergebnisse der folgenden Abschnitte werden, sofern sie sich für die beiden Energien unterscheiden, explizit angegeben.

4.1 Experimentelle Bedingungen

4.1.1 Die Beamline

Die Messungen wurden an der „Beamline“ BL 28A der Photon Factory des KEK durchgeführt. Diese ist mit zwei gekreuzten Undulatoren ausgerüstet, deren Spektrum von 40 eV bis 350 eV reicht [152]. Die Intensität der Strahlung bleibt nach Rechnungen von Yamamoto *et al.* über den gesamten Energiebereich beider Messungen nahezu konstant

[153]. Der Polarisationsgrad des zirkularen Anteils wird ebenfalls in derselben Arbeit als energieunabhängig angegeben, vgl. Abb. 4.1. Die Umschaltung zwischen rechts zirkularer und links zirkularer Polarisation erfolgt durch mechanische Verschiebung des horizontal angeordneten Magnetsatzes um $\pm\lambda_0/4$.

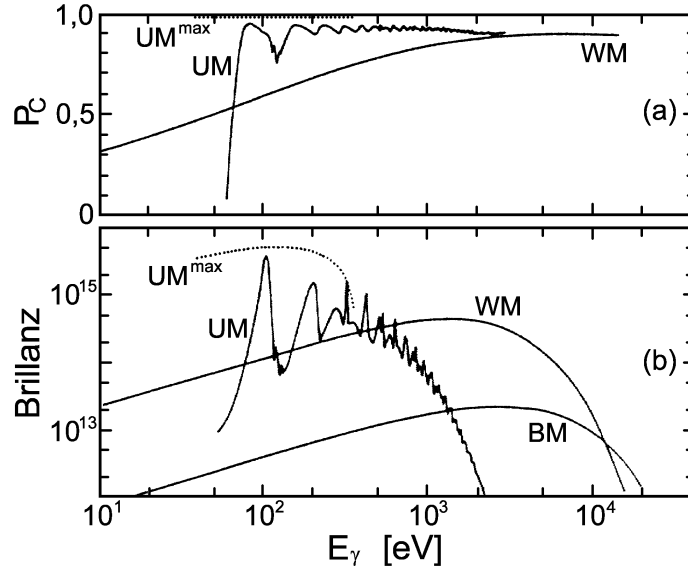
In einer experimentellen Arbeit von Kimura *et al.* wurde der totale Polarisationsgrad $V = \sqrt{\tilde{S}_1^2 + S_3^2}$, der Anteil zirkularer Polarisation S_3 sowie der Kippwinkel der Hauptachse der Polarisationsellipse φ_ϵ gegenüber der Horizontalen für beide Polarisationsrichtungen bestimmt [154]. Diese Messung wurde mit Hilfe eines $\lambda/4$ -Platten-Analysators bei einer Energie von 97 eV an der ersten Harmonischen des Undulatorspektrums durchgeführt. Das Resultat ist

Einstellung	V	φ_ϵ [deg]	S_3
RCP	$0,97 \pm 0,01$	-44 ± 2	$0,95 \pm 0,01$
LCP	$0,97 \pm 0,01$	44 ± 2	$-0,95 \pm 0,01$

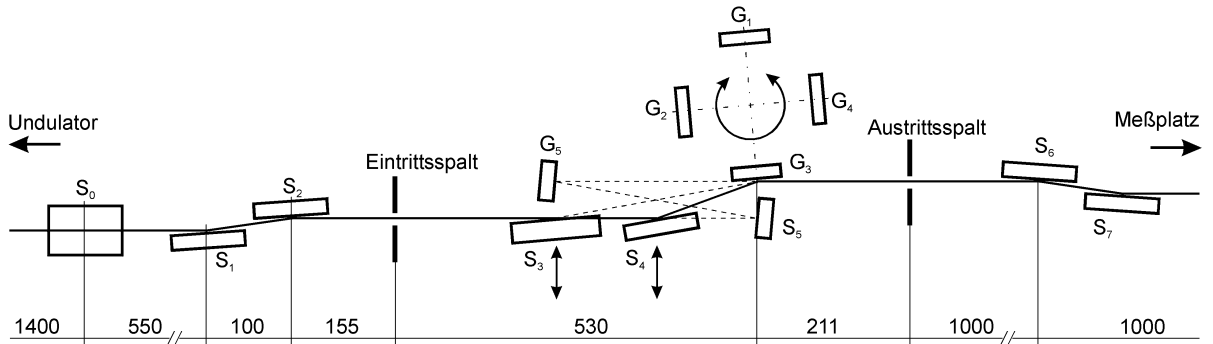
Diese Resultate hängen jedoch entgegen der theoretischen Voraussagen empfindlich von der Energie ab, wie Koide *et al.* in einer Messung der Stokesparameter S_3 und S_1 sowie des Kippwinkels φ_ϵ in Abhängigkeit der Energie zeigen konnten [155]. Die Messung wurde in einem Intervall von 50 eV bis 80 eV durchgeführt. Es zeigte sich, daß der Polarisationsgrad von der Position des Undulatoremaximums relativ zur Monochromatoreinstellung abhängt. Reproduzierbare Werte sind dann am besten gewährleistet, wenn die Monochromatoreinstellung knapp (etwa 0-2 eV) unterhalb des Undulatoremaximums liegt [156]. Die Ursache der Anteile linear polarisierter und unpolarisierter Strahlung liegt im allgemeinen in der Fokussierung in unterschiedlicher Richtung emittierter Strahlung durch die optischen Elemente des Monochromators. In diesem Fall werden zudem Beimischungen von Strahlung aus einem in der Nähe des Undulators befindlichen Ablenkmagneten vermutet [155].

Als Monochromator können für den gesamten Energiebereich fünf verschiedene Gitter eingesetzt werden, vier davon in streifendem Einfall und eins in senkrechtem Einfall. Zur Durchführung der Messung bei 99 eV wurde Gitter 3 mit einer Brennweite von 2 m und einer Gitterkonstanten von 1200 mm^{-1} gewählt. Für 174 eV wurde Gitter 2 mit 4 m Brennweite und einer Gitterkonstanten von 600 mm^{-1} verwendet. Der Brennweite der Gitter entsprechend, wird der Strahl über verschiedene Spiegelsysteme geführt, siehe Abb. 4.2.

Zur Kontrolle der Undulatoreinstellung wurde für die Energie 99 eV und 174 eV jeweils eine Messung der ersten Harmonischen des Emissionsspektrums mit Hilfe der Rückstoßionenimpulsspektroskopie durchgeführt. Dazu wurde die Position des Monochromatorgitters bei fester Undulatoreinstellung schrittweise verändert und so das Spektrum im Bereich des Intensitätsmaximums durchgefahren. In Abb. 4.3 und Abb. 4.4 wird als Maß der Strahlintensität die totale Rückstoßionenzählrate als Funktion des Nennwertes der Photonenenergie aufgetragen. In diesen Spektren sind jeweils auch die Werte der Monochromatoreinstellung markiert, die während der eigentlichen Messungen verwendet wurden.



Abbildungung 4.1: Undulatorspektren BL 28A, aus [153]. Oben: Zirkularer Polarisationsgrad $P_C = S_3$ (in Anteilen der totalen Intensität). Unten: Brillanz (in Photonen/(sec $\times$ mm $^2 \times$ mrad $^2 \times$ 0.1% $\Delta E/E$)). Die Rechnungen zeigen zwei feste Undulatoreinstellungen, den sogenannten „Wiggler-Modus“ (WM) und den „Undulator-Modus“ (UM), sowie den Verlauf des Maximums der ersten Harmonischen des Undulators (UM^{max}) in Abhängigkeit von der Energie. Zum quantitativen Vergleich ist die Brillanz eines Ablenkmagneten (BM) gezeigt.



Abbildungung 4.2: Anordnung der Monochromatorelemente an der Photon Factory, BL 28A nach [152]. Die Spiegel sind mit S, die Gitter mit G abgekürzt. Die Längen sind in cm angegeben.

Es wurden Kalibrierungsmessungen anhand der Helium $^{**}(2s2p)$ Doppelanregung bei 60,123 eV [157], und der Krypton $^{*}(3d_{3/2})$, $(3d_{5/2})$ und $(3d_{7/2})$ Anregungslinien bei 91,2 eV, 92,5 eV bzw. 93,75 eV durchgeführt. Der Vergleich mit den vom Monochromator-Steuerprogramm ausgegebenen Nennwerten zeigt eine mittlere Abweichung um +1,2 eV, unabhängig von der absoluten Energie, siehe Abb. 4.5 und Abb. 4.6. Der Nennwert ist daher bei jeder Einstellung um diesen Betrag zu korrigieren.

Die Energieauflösung des Monochromators — die natürliche Linienbreite kann im Ver-

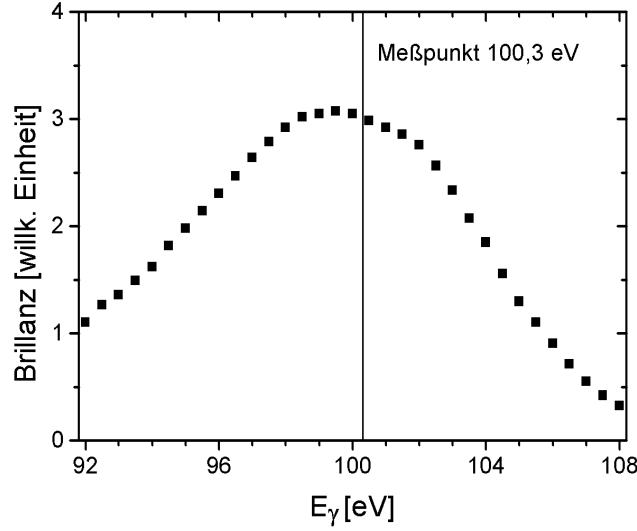


Abbildung 4.3: Erste Harmonische des Undulatorspektrums mit der Markierung des Monochromator-Einstellwertes für 99 eV Photonenenergie.

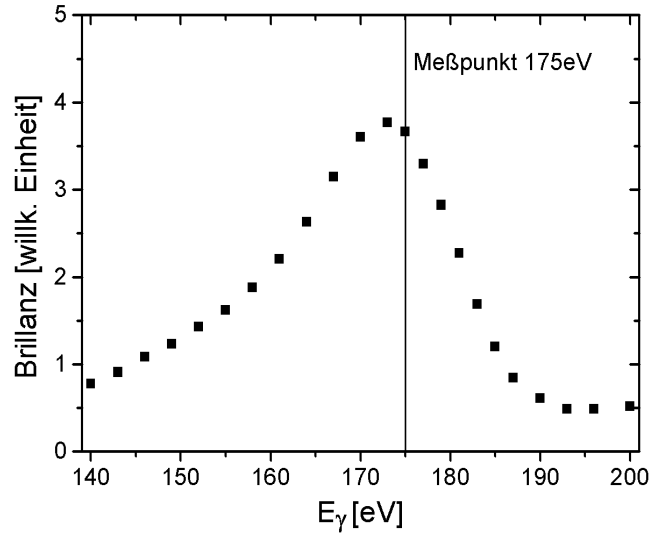


Abbildung 4.4: Erste Harmonische des Undulatorspektrums mit der Markierung des Monochromator-Einstellwertes für 174 eV Photonenenergie.

gleich dazu vernachlässigt werden — konnte ebenfalls mit Hilfe dieser Methode bestimmt werden. Sie beträgt 0,12 eV (FWHM) bei 90 eV totaler Energie. Dieser Wert bestätigt die in [152] gemachte Angabe.

Der Strahlbetrieb wurde während der gesamten Meßzeit im Multi-Bunch-Modus durchgeführt. Die RF-Beschleunigung des Rings erzeugt eine Frequenz von 500 MHz [158], so daß ein zeitlicher Bunch-Abstand von 2 ns gegeben war. Die Flugzeitverteilung der Ionen und Elektronen beträgt hingegen typischerweise etwa 100 ns bzw. 10 ns. Somit konnte weder die Elektronen- noch die Ionenflugzeit durch eine direkte Messung gegen das Zeitsignal des Beschleunigers bestimmt werden. Es war daher eine Beschränkung auf die Messung der relativen Ion-Elektron-Flugzeitdifferenz erforderlich.

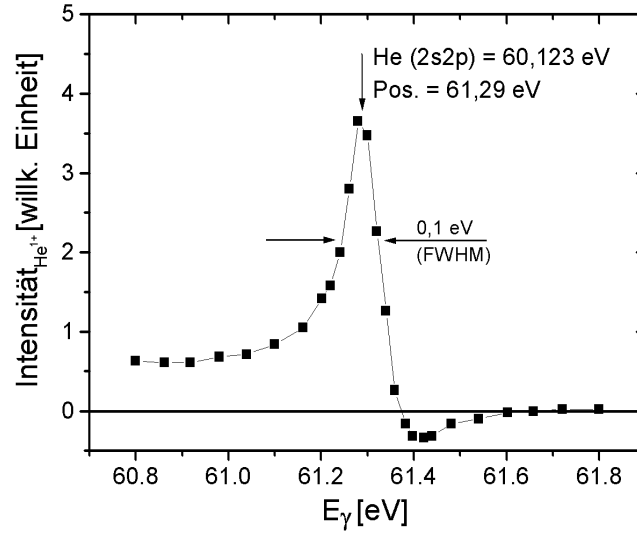


Abbildung 4.5: Kalibrierung der Monochromatoreinstellung anhand der $\text{He}^{**}(2s2p)$ -Resonanz. Oben angegeben ist der Literaturwert nach [157], unten der Nennwert der Monochromatoreinstellung.

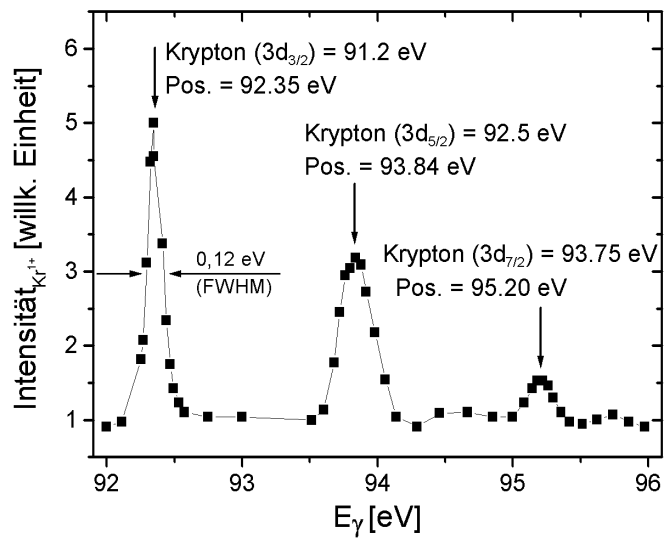


Abbildung 4.6: Kalibrierung der Monochromatoreinstellung anhand der $\text{Kr}^*(3d_{3/2,5/2,7/2})$ -Resonanzen, sonst wie Abb. 4.5.

4.1.2 Die COLTRIMS-Apparatur

Zur Erzeugung des Gastargets wurde ein einstufiger Jet mit gekühltem Heliumreservoir verwendet. Der Betriebsdruck während der gesamten Messung betrug (470 ± 10) mbar. Die Jetkammer wurde mit zwei Turbomolekularpumpen mit je 200 l/s Pumpleistung für Helium evakuiert. Dadurch stellte sich in der Jetkammer ein mittlerer Druck von $(2,68 \pm 0,13) \times 10^{-4}$ mbar ein. Die Kühlung erfolgte durch einen Kaltkopf mit einer nominellen Kühlleistung von 2 W bei 20 K. Die Temperatur des Gasreservoirs wurde mit einem Thermowiderstand überwacht. Aufgrund mangelnder Kühlleistung des Kaltkopfs erreichte die Temperatur lediglich den mittleren Wert von (56 ± 1) K. Daraus resultiert bei einem Düsendurchmesser von $30 \mu\text{m}$ nach Abb. 3.13 ein Speedratio von $S = 17,5 \pm 2,5$. Der Skimmerdurchmesser betrug 0,3 mm und der Abstand $l = 15$ mm. Der Durchmesser des Gasstrahls am Kreuzungspunkt mit dem Photonenstrahl lag somit bei 1,15 mm. Dies ergibt nach (3.10) eine zu erwartende Impulsverschmierung durch die interne Targettemperatur von

$$\Delta \mathbf{K}_{\text{He}} = \begin{pmatrix} \pm 0,03 \\ \pm 0,12 \\ \pm 0,03 \end{pmatrix} \quad (\text{FWHM}). \quad (4.1)$$

Der Offset-Impuls der Ionen, bedingt durch die Jet-Geschwindigkeit nach (3.8), wird mit 2,6 a.u. berechnet.

In diesem Versuch wurde ein Rückstoßionenimpuls-Spektrometer mit dreidimensionaler Fokussierung für Ionen und mit direktem geometrischen Elektronennachweis verwendet, Abb. 4.7. Die Ionen wurden über den gesamten Impulsbereich in vollem Raumwinkel detektiert. Da kein Zeitsignal seitens des Beschleunigers zur Verfügung stand konnten die Flugzeiten für das Elektron und das Ion nicht getrennt ermittelt werden: Nur die Differenzflugzeit des Ions und eines Elektrons war zugänglich. Ein Solenoidfeld konnte daher nicht zum Einsatz kommen, da ohne die genaue Kenntnis der Elektronenflugzeit auch alle übrigen Impulsinformationen der Elektronen verloren gehen, vgl. (3.17). Der Elektronendetektor war im Abstand von 30 mm vom Targetpunkt entfernt montiert. Aus der aktiven Fläche des Detektors mit 48 mm Durchmesser resultiert der maximale geometrische Raumwinkel für den Elektronennachweis von 11% von 4π .

Zur Bestimmung der Impulskomponenten aller Teilchen muß in diesem Fall auf den Energieerhaltungssatz zurückgegriffen werden. Wie in Abschnitt 2.6 diskutiert wurde, erfordert dies aus Gründen der Eindeutigkeit eine zusätzliche Information. Die Wahl fiel auf die Festlegung der Emissionsrichtung des nachzuweisenden Elektrons: Ein zusätzliches Gegenspannungsgitter, das auf ein frei wählbares Potential einstellbar war, wurde unmittelbar vor dem Elektronendetektor montiert. Damit konnten Elektronen mit einer Energie unterhalb ca. 60% der Überschußenergie zurückgehalten werden. Die Spektrometerpotentiale waren so gewählt, daß die in dem Feld aufgenommene Energie der Ionen gerade der Hälfte der Überschußenergie entsprach. Somit ließ sich eine ausreichende Rückstoßionenimpuls-Auflösung gewährleisten. Gleichzeitig war sichergestellt, daß Elektronen mit ausreichend Energie, um die Potentialbarriere des Gegenspannungsgitters zu überwinden, die aber in entgegengesetzter Richtung des Detektors starteten, nicht nachgewiesen werden konnten, da das elektrische Feld nicht reichte, sie zu reflektieren. Der Nachteil eines solchen

Verfahrens liegt darin, daß der Nachweisraumwinkel der Elektronen energieabhängig ist. Denn nicht die totale Energie der Elektronen ist ausschlaggebend für das Überwinden des Gegenspannungsgitters, sondern die Komponente des Impulses senkrecht zum Gitter. Während Elektronen mit der vollen Überschußenergie den ganzen Detektor ausleuchten, wird der Nachweisraumwinkel Ω_e für Elektronen an der Schwelle des Gegenpotentials bis auf den Mittelpunkt des Detektors zusammengeschnürt. Abb. 4.8a zeigt das Ergebnis einer Simulation dieses Effekts. Für die Elektronen aus der Doppelionisation bei 99 eV werden Flugzeiten von 11,5 ns bis 17,5 ns erwartet, für die aus der Einfachionisation 5,8 ns bis 10,5 ns (ohne bzw. mit Anregung in $n=2$) in Abhängigkeit von der Energie und der Emissionsrichtung, siehe Abb. 4.8b). Alle Potentiale der Spektrometersimulation entsprechen dabei den unten tabellierten Werten.

Auf das Abschlußgitter zwischen der Beschleunigungsstrecke und der Driftstrecke wurde verzichtet. An dieser Stelle entstand daher eine Linse, durch welche die Ionentrajektorien aufgeweitet wurden, siehe Abb. 4.9. Zur Kompensation mußte die Linsenpannung erhöht werden, was wiederum zu einer stärkeren Felddeformierung am Targetort führte. Dieser Umstand verursachte letztlich nicht ganz optimale Abbildungseigenschaften. Die in der Simulation gewählte Targetausdehnung ist zur besseren Illustration sehr groß. Beschränkt man den Startort in der Simulation auf das realitätsnahe Volumen von 1 mm^3 , dann erhält man eine Fokussierung in Ortsrichtung von 14:1, das heißt der Startort wird auf $\pm 0,035 \text{ mm}$ abgebildet. In Flugzeitrichtung ergibt die Simulation für Ionen mit Impuls null eine Fokussierung auf $\pm 5 \text{ ns}$. Die mittlere Ionenflugzeit (ebenfalls bei einem Impuls $K_{\text{ion}} = 0$) beträgt bei den unten angegebenen Potentialen nach der Simulation für ein He^{1+} -Ion $19,4 \mu\text{s}$ und für ein He^{2+} -Ion $13,7 \mu\text{s}$. Eine Nicht-Linearität der Impulsabbildung innerhalb der Auflösung des Detektors ist bis zu dem maximalen Durchmesser von 48 mm nicht festzustellen. Die Eichung der Rückstoßionenimpulse ergibt nach der Simulation $0,21 \text{ a.u./mm}$ im Ort und etwa $0,01 \text{ a.u./ns}$ in Zeitrichtung. Somit gewährleiten die Abbildungseigenschaften eine ausreichende Impulsauflösung in Ortsrichtung $< \pm 0,01 \text{ a.u.}$, jedoch eine deutlich schlechtere Auflösung in Flugzeitrichtung $< \pm 0,05 \text{ a.u.}$

In der Praxis wurden die „Pusher-Spannung“ U_P auf der Seite des Elektronendetektors und die „Drift-Spannung“ U_D auf der Seite der Driftstrecke mit Hilfe von 1 kV-Rampengeneratoren erzeugt¹. Die einzelnen Potentialringe wurden durch eine Widerstandskette verbunden, deren Summenwiderstand $9,8 \text{ M}\Omega$ betrug. Nach den optimalen Spannungsverhältnissen aus der Simulation resultierte daraus ein Linsenwiderstand von $5,6 \text{ M}\Omega$. Die Kontakte für die Linsenpotentiale U_{LP} und U_{LD} wurden über Durchführungen nach außen gelegt, so daß der Widerstand während der Testmessung eingestellt werden konnte. Dazu wurde die Strahlposition nach oben und unten bewegt und dabei die Lage des Abbilds des Jets auf dem Detektor kontrolliert. Der Linsenwiderstand, bei dem diese Bewegung den geringsten Versatz der Abbildung hervorrief, betrug $(5,6 \pm 0,1) \text{ M}\Omega$ und ist somit in guter Übereinstimmung mit der Simulation.

Die Gegenspannung an dem Gitter vor dem Elektronendetektor U_G wird bestimmt durch das Targetpotential. Dieses konnte ermittelt werden, indem bei einer Energie $E_\gamma = 79,4 \text{ eV}$

¹Die Potentiale U_{xx} sind zur Illustration in Abb. 4.9 eingezeichnet.

Ionen nahezu ohne Startimpuls erzeugt, durch Umpolung der Spektrometerspannungen auf den Elektronendetektor gelenkt und dort nachgewiesen wurden. Dabei wurde durch Variation der Spannung U_G der Wert gesucht, bei dem die Ionenrate vollständig unterdrückt wurde. Dann nämlich wurde das Potential, von dem aus die Ionen starteten, also das Targetpotential, überschritten. Hierbei kann angemerkt werden, daß dieser Einstellwert geringfügig über dem tatsächlichen Targetpotential gelegen haben muß, da der Felddurchgriff des Detektors das effektive Gitterpotential etwas anhebt². Der absolute Wert spielt für die Einstellung der Gegenspannung während der Messung jedoch keine Rolle — die Potentialdifferenz bestimmt die Energieselektion — sondern ist allein für die Simulation von Bedeutung. In folgender Tabelle werden der Einstellwert des Gitterpotentials und das daraus ermittelte Targetpotential, das tatsächliche Schwellenpotential an dem Gitter und das hieraus resultierende tatsächliche Targetpotential (jeweils in Klammern) angegeben. Die Spektrometer-Potentiale im Überblick in [V]:

E_γ	U_G	U_P	U_T	U_{LP}	U_{LD}	U_D
99 eV	+9,3(+11,9)	+25	+20,8(+23,4)	+21,2	+17,5	+15
174 eV	-43,2(-40,6)	+25	+20,8(+23,4)	+21,2	+17,5	+15

Als Detektoren wurden sowohl für den Ionen- als auch für den Elektronennachweis je ein Z-Stack (3 MCPs) mit Wedge&Strip-Anode verwendet. Die Spannung der Detektorfront U_F wurde jeweils so gewählt, daß der Teilchennachweis mit der größtmöglichen Effizienz erfolgte. Als Hochspannungsversorgungen der Detektoren dienten 4 kV-Hochspannungsgeneratoren (HV). Der Elektronendetektor wurde auf der Vorderseite über einen angepaßten Widerstand, der Rückstoßionendetektor auf der Rückseite direkt geerdet, siehe Abb. 4.10. Die Spannungsdifferenz zwischen Vorder- und Rückseite ($U_F - U_R$) bestimmt die Verstärkung des Signals. Die Channel-Plates wurden im Fall des Ionennachweises in der Sättigung betrieben, Bei dem Elektronennachweis war das nicht möglich. Da die Rückseite des Elektronendetektors auf ein hohes absolutes Potential (gegenüber Erdung) gelegt werden mußte, war es aufgrund des kleinen Abstands zur Anode bzw. zur Halbleiterschicht erforderlich diese ebenfalls auf ein hohes positives Potential (U_A und U_{Ge}) zu legen. Das minderte die Gefahr von Spannungsüberschlägen zwischen Plate bzw. Halterung und Anode, dasselbe Problem konnte jedoch dadurch rückseitig auftreten. Ein Spannungsüberschlag führt bei den verwendeten Vorverstärkern in den meisten Fällen zu einem völligen Ausfall, den es unter allen Umständen zu vermeiden galt. Daher wurde als Kompromiß auf eine optimale Signalverstärkung verzichtet. Die spezifischen Channel-Plate-Widerstände und die angelegten Spannungen sind der folgenden Tabelle zu entnehmen:

Detektor	U_F [V]	U_R [V]	U_{Ge} [V]	U_A [V]	R_{Stack} [M Ω]
Elektron	+218	+2647	+2651	+2000	138
Ion	-3100	0	+230	0	137

²Bei der beschriebenen Vorgehensweise wurde das Elektronendetektor-Potential im Fall des Ionennachweises dem des Elektronennachweises mit umgekehrter Polarität nachempfunden.

4.1.3 Elektronik

Die Auslese der Detektoren erfolgte mittels Standard-NIM-Elektronikmodulen, vgl. Abb. 4.10. Die Zeitsignale wurden jeweils von der Channel-Plate-Frontseite beider Detektoren über RC -Glieder ausgekoppelt und über schnelle Spannungsverstärker (FA) sowie „Constant-Fraction“-Diskriminatoren (CF) zu Standard-NIM-Signalen verarbeitet. Diese wurden anschließend verzweigt, wobei die Zeitsignale des Elektronendetektors mittels verschiedener „Gate-and-Delay“-Generatoren ($G\&D$) individuell so verzögert wurden, daß gewährleistet war, daß sie jeweils nach dem Zeitsignal des He^{1+} - bzw. He^{2+} -Ions eintrafen. Die Ionensignale dienten somit als Start und die Elektronensignale als Stop zweier „Time-to-Analog-Converter“ (TAC) mit Zeitfenstern von $1\ \mu\text{s}$ bzw. $10\ \mu\text{s}$. Damit wurde ein hochauflösendes He^{2+} -Flugzeitspektrum sowie ein weiteres Spektrum erzeugt, das sowohl den He^{2+} - als auch den He^{1+} -Flugzeitpeak enthielt. Im folgenden wird es als „Full-Range“-Spektrum bezeichnet. Des weiteren wurde ein Pulsgenerator (PG) dazu verwendet, ein Signal mit einer Frequenz von $2,7\text{ Hz}$ zu erzeugen. Dieses wurde in einem festen zeitlichen Abstand zur Kontrolle der Stabilität beider TAC -Koinzidenzen parallel zu den Detektorsignalen registriert. Die Triggerkoinzidenz wurde aus dem logischen „Oder“ der beiden SCA-Ausgänge der TAC s erzeugt, wobei der Full-Range- TAC mit Hilfe einer Trigger-Box im Verhältnis $1:32$ untersetzt war. Die zu Pulshöhen konvertierten Zeitsignale wurden mittels „Linear Gate&Stretcher“ ($LG\&S$) zu einem Überlapp mit dem Triggersignal gebracht.

Die Ortsauslese der Wedge&Strip-Anoden geschah mit Hilfe von drei ladungsintegrierenden Vorverstärkern je Detektor, den sogenannten „CATSAs“ (CA). Deren Ausgangssignal wurde wiederum über Hauptverstärker (MA) und Linear Gate&Stretcher weitergeleitet. Alle Signale wurden somit in Pulshöhensignalen umgewandelt, die gleichzeitig mit dem Triggersignal dem „Analog-to-Digital-Converter“ (ADC) zur Auslese bereitstanden. Diese Daten wurden via $CAMAC$ -crate-controller dem ATARI-Computersystem übermittelt, das mit dem Datenaufnahmeprogramm „MPDAS“ [159] ausgerüstet war und die Daten im „List-Mode-Verfahren“, also Ereignis für Ereignis speicherte.

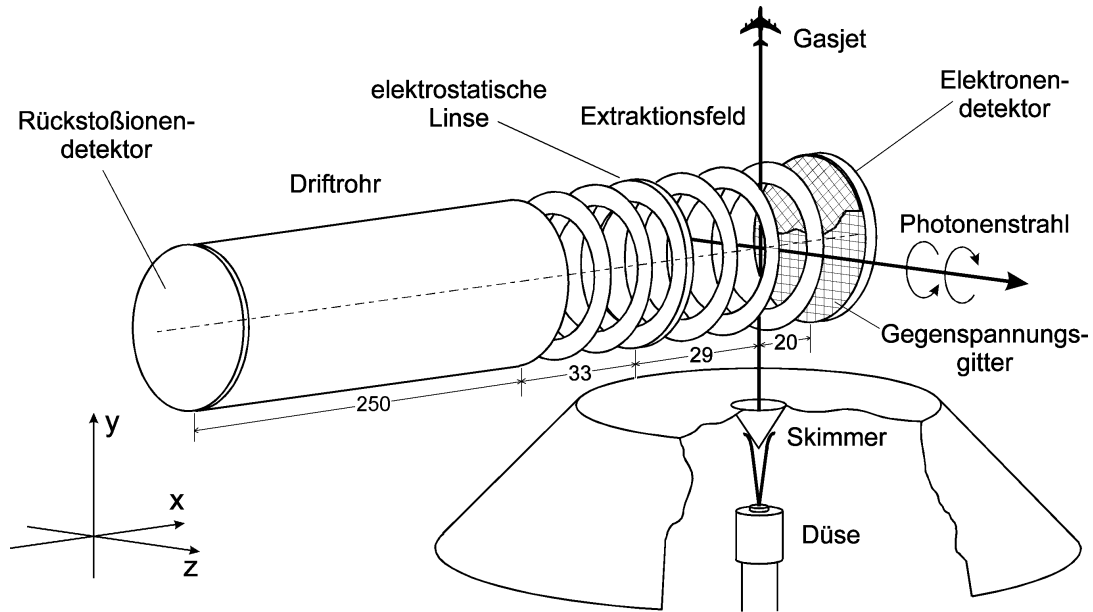


Abbildung 4.7: Die COLTRIMS-Apparatur: Einstufiger Jet, Rückstoßionenimpuls-Spektrometer mit einfachem Elektronennachweis. Die Abmessungen sind in mm angegeben. Weitere Besonderheiten siehe Text.

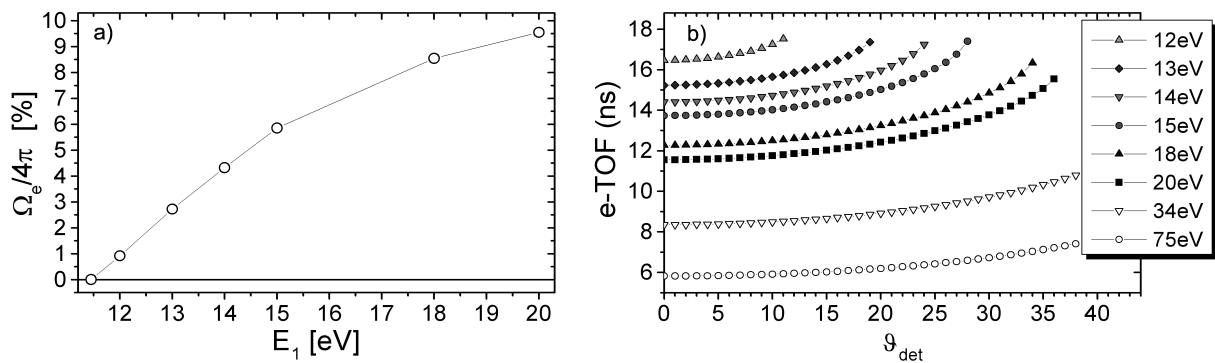


Abbildung 4.8: Simulation des Elektronennachweises: a) Abhängigkeit des Nachweisraumwinkels Ω_e von der Energie des Elektrons, b) Elektronenflugzeit als Funktion des Nachweiswinkels ϑ_{det} (vgl. Abb. 4.14) für verschiedene Elektronenenergien.

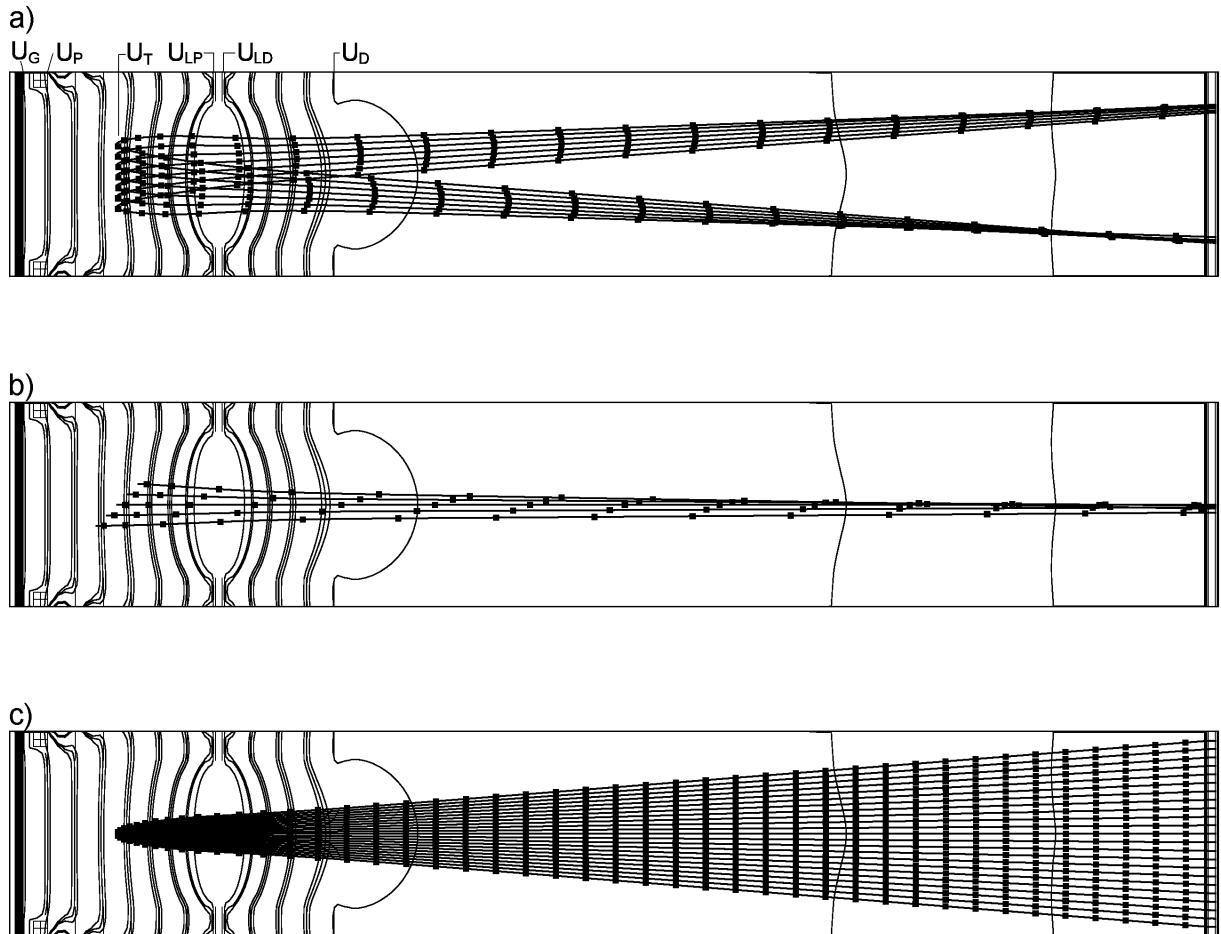


Abbildung 4.9: Simulation des Rückstoßionenimpuls-Spektrometers. Senkrecht sind einige Äquipotentiallinien und von links nach rechts verlaufend die Iontrajektorien abgebildet. In Teil a) der Abbildung sind die Ortsfokussierungseigenschaften zu erkennen. Die vertikale Ausdehnung des Quellpunkts beträgt 18 mm. Die He^{1+} -Ionen haben einen Impuls von 4 a.u. und starten einmal unter 45° und unter -135° zur Horizontalen. Teil b) demonstriert die Zeitfokussierung anhand von Zeitmarkern in Abständen von $1 \mu s$. Die Trajektorien werden von He^{2+} -Ionen beschrieben, die ohne Impuls entlang einer Diagonalen mit insgesamt je 12 mm Versatz in horizontaler wie vertikaler Richtung starten. In Teil c) ist die Abbildungslinearität des Spektrometers dargestellt. Die Ionen starten jeweils mit Impulsen von 0 bis 5,5 a.u. in Schritten von 0,5 a.u. senkrecht zur Absaugrichtung nach oben bzw. unten.

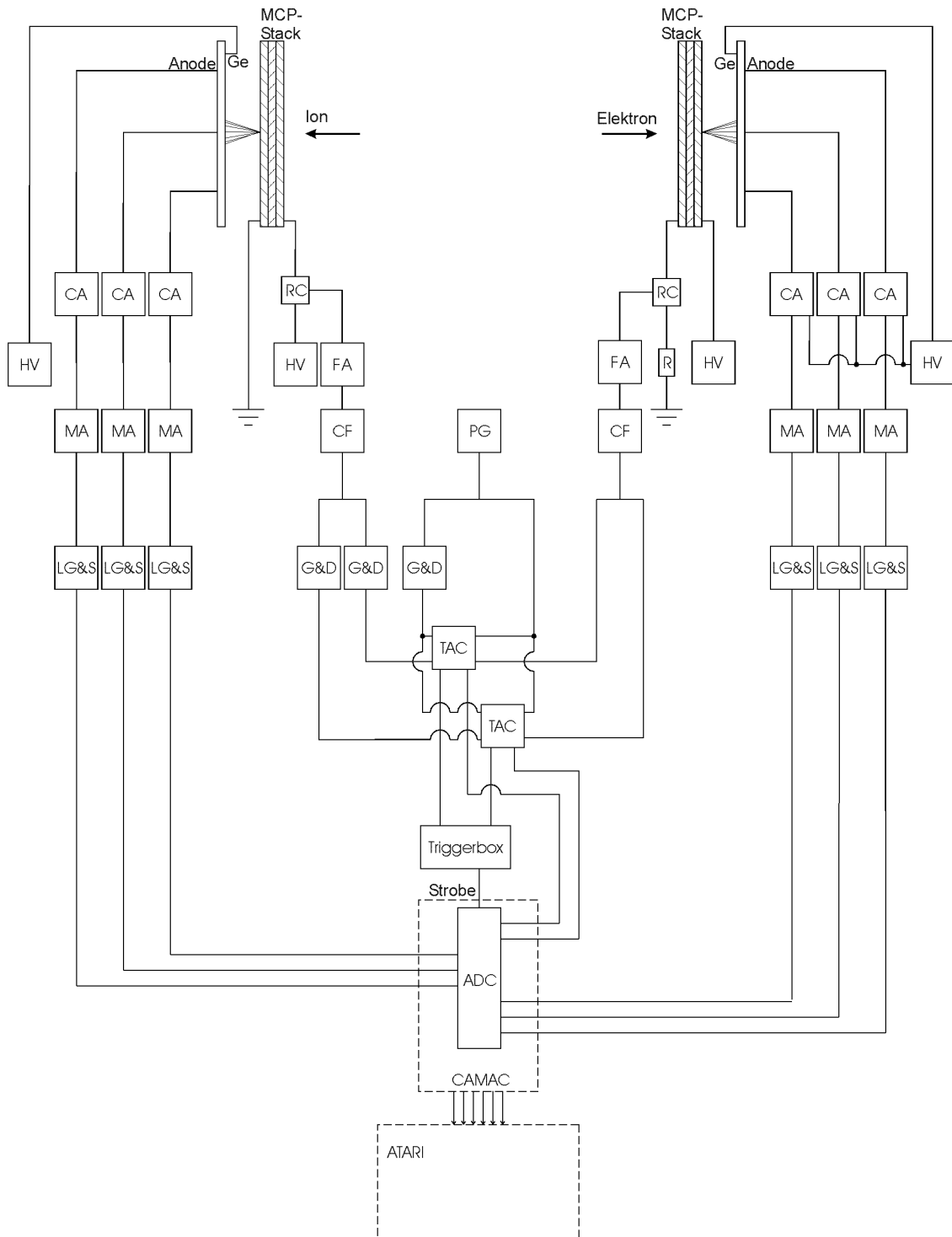


Abbildung 4.10: Blockschaltbild der Datenaufnahmeelektronik. Die Abkürzungen stehen für: Ge - Germaniumschicht, CA - Vorverstärker, RC - Koppelglied, HV - Hochspannungsversorgung, FA - schneller Vorverstärker, R - Widerstand, MA - Hauptverstärker, CF - Constant Fraction Diskriminator, PG - Pulsgenerator, LG&S - Linear Gate&Stretcher, G&D - Gate&Delay-Generator, TAC - Time to Analog Converter, ADC - Analog-Digital-Converter.

4.2 Datenanalyse

Die Daten wurden mit dem Programm „PAW“ (Physics Analysis Workstation) [160] ausgewertet. Für eine allgemeine Darstellung der Daten in Impulsen oder Winkelverteilungen müssen Eichungen und die Normierung der Rohdaten erfolgen. Daneben ist aufgrund von Detektorverzerrungen und Nichtlinearitäten eine Reihe von Korrekturen notwendig. Die verbleibenden statistischen und systematischen Fehler sind abzuschätzen. Diese Prozeduren sowie einige Zwischenresultate werden in den folgenden Unterabschnitten diskutiert.

4.2.1 Rohdaten

Wie in Abschnitt 3.2.4 angesprochen, erhält man wegen des kapazitiven Übersprechens der Anodensegmente und aufgrund unterschiedlicher Verstärkung der Signale eine verzerrte Abbildung des Detektors. Die Untersuchung der unkorrigierten Bilder dieser Messung zeigt, daß das Elektronendetektorbild keiner Nachbearbeitung bedarf. Lediglich der Ionendetektor muß korrigiert werden. Im ersten Schritt der Korrektur werden anhand der Deformierung des Rands eines vollständig ausgeleuchteten Detektorbilds unter Verwendung einer Rechenroutine die Übersprechparameter und Verstärkungsfaktoren ermittelt. Diese gehen danach in die Berechnung der Orte nach (3.18) ein. Abb. 4.11 zeigt die Abbildung einer Lochmaske vor und nach der Entzerrung.

Ein zweiter Abbildungsfehler am Rand des Detektors wurde durch Feldeingriffe in die Flugstrecke zwischen Gitter und Detektor verursacht. Er hat eine Stauchung der Trajektorien zur Folge. Die daraus resultierende Nichtlinearität wird am besten im Vergleich der Impulsdarstellung beider Detektoren in der Einfachionisation sichtbar und deshalb in Abschnitt 4.2.2 behandelt, vgl. Abb. 4.15.

Die Eichung des Full-Range-TAC ergibt eine Auflösung von 3,831 ns/Kanal. In Abb. 4.12 ist das unbehandelte Rohspektrum dieser Zeitmessung bei 99 eV dargestellt. Unterhalb des Kanals 300 ist (überhöht) der Ausschnitt des He^{2+} -TAC-Spektrums zu erkennen. Der übrige Teil des Spektrums ist, wie an dem Untergrund deutlich wird, im Verhältnis 1:32 untersetzt. Das Spektrum des He^{1+} -Zeitpeaks entspricht einer Projektion des Koinzidenz-Raumwinkelausschnitts von der Impulskugel der Rückstoßionen (2.77) auf die Flugzeitrichtung. Es läßt daher sofort einige interpretierbare Strukturen erkennen: Der Doppelpeak zwischen den Kanälen 1350 und 1520 gibt die Flugzeitverteilung echter He^{1+} -Koinzidenzen wieder. Dessen linke Hälfte (unterhalb Kanal 1420) resultiert aus den gewünschten Koinzidenzen, in denen die Elektronen und Ionen jeweils in Richtung des entsprechenden Detektors emittiert wurden. Die zu erkennende Schulter auf der rechten Seite des Maximums wird angeregten He^{1+} -Ionen ($n=2$) zugeordnet. Die rechte Hälfte des Zeitpeaks (oberhalb Kanal 1420) gehört zu den gegen das Feld gestarteten und reflektierten Elektronen, die mit Hilfe der Potentialbarriere im Verhältnis 1:20 unterdrückt werden konnten. Die Elektronen gingen aus der Einfachionisation mit 75 eV ($n=1$) bzw. 34 eV ($n=2$) hervor. Daher kann die Reflexion der schnellen Elektronen nur an dem Potential des Ionendetektors erfolgt sein. Aus dem Verhältnis läßt sich der effektive Raumwinkel der reflektierten Elektronen mit $\Delta\Omega/4\pi = 0,5\%$ abschätzen. Der daraus resultierende

Öffnungswinkel schließt alle Elektronen ein, die in streifendem Einfall an der Innenwand des Ionendriftrohrs (etwa in der Mitte) reflektiert und somit gesammelt wurden. Auch der Peak der reflektierten Elektronen weist die Struktur angeregter He^{1+} -Zustände auf.

Das Verhältnis der echten He^{2+} - zu He^{1+} -Koinzidenzen beträgt hier $R = 1,8\%$. Dieser Wert ist jedoch nicht physikalisch verwertbar, da die Winkelverteilungen für Einfach- und Doppelionisation in dem Raumwinkelausschnitt des Elektronendetektors nicht isotrop sind und außerdem der Elektronennachweis im Fall der Doppelionisation energiewahlend ist.

Der He^{2+} -TAC, Abb. 4.13, zeigt den Ausschnitt der Doppelionisation in einer Auflösung von $0,399 \text{ ns/Kanal}$.

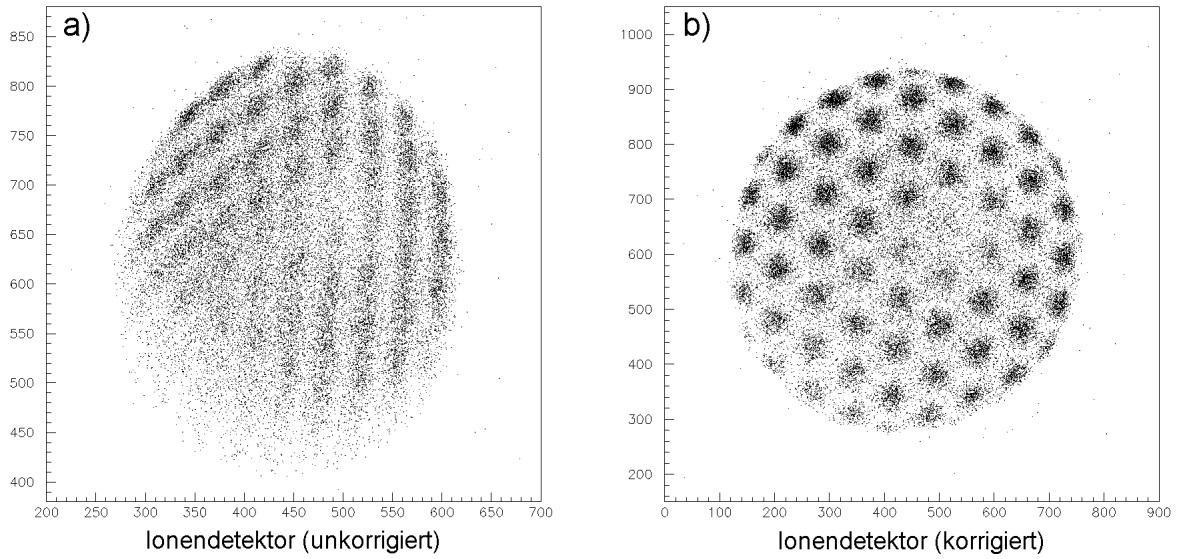


Abbildung 4.11: Ortsabbildung einer Lochmaske auf dem Ionendetektor a) vor und b) nach der Übersprechkorrektur.

4.2.2 Impulseichung

Unter Impulseichung wird die experimentelle Ermittlung der Proportionalitätskonstanten und Nullpunkte in der Zuordnungsfunktion zwischen den unmittelbar gemessenen Größen Ort und Zeit und den zu ermittelnden Impulsen verstanden. Im Fall der Ionenimpulse ist die Zuordnungsfunktion durch (3.13) gegeben, die Nullpunkte sind $t_0, y_{0\text{ion}}, z_{0\text{ion}}$ und die Proportionalitätskonstanten $q_{\text{ion}} E_{\text{target}}$ bzw. M_{ion}/t_0 . Die Berechnung der Elektronenimpulse verlangt die Bestimmung der Nullpunkte $y_{0\text{e}}, z_{0\text{e}}$. Die Zuordnungsfunktion ist in diesen beiden Komponenten rein geometrisch, jedoch gelangt man aufgrund der fehlenden dritten Meßgröße³ in den Fällen der Einfach- und der Doppelionisation auf verschiedenen Wegen zu der Impulsinformation. Während in der Einfachionisation der Impulsbetrag fest und somit die Berechnung der einzelnen Komponenten trivial ist, wird in der Doppel-

³Da die Flugzeit der Elektronen nicht bekannt ist, findet die direkte Berechnung nach (3.16) hier keine Anwendung.

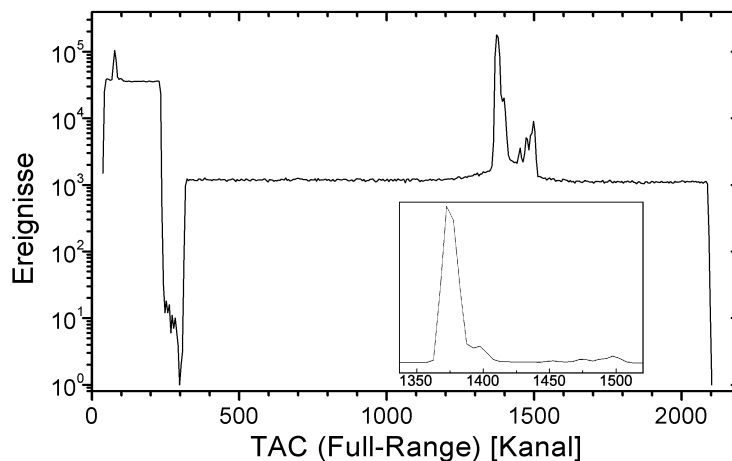


Abbildung 4.12: Rohspektrum der He^{1+} - und der He^{2+} -Flugzeiten: Der linke Peak auf dem hohen Untergrundniveau ist die vollständig erfaßte He^{2+} -Koinzidenz. Das Spektrum ist rechts von Kanal 300 um den Faktor 32 untersetzt (He^{1+} -Trigger).

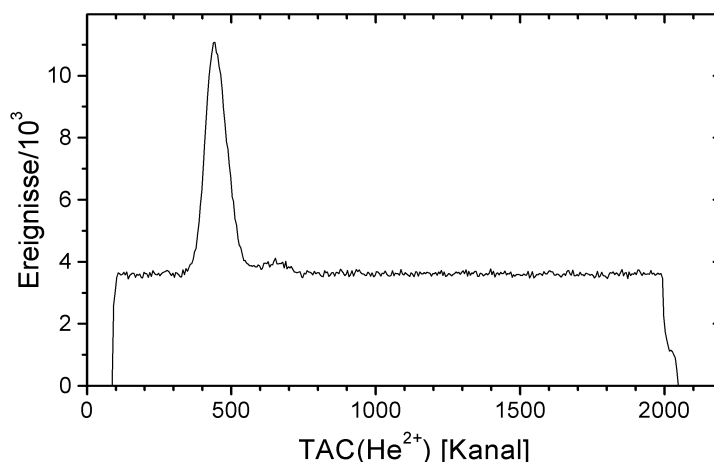


Abbildung 4.13: Rohspektrum der He^{2+} -Flugzeit: Hier ist das hochauflösende Flugzeit-spektrum der He^{2+} -Ionen dargestellt.

ionisation die Zuhilfenahme der bereits ermittelten Ionenimpulse und der Erhaltungssätze benötigt.

Für die Eichung des Elektronendetektors ist es zweckmäßig, ein Koordinatensystem einzuführen, in dem die Abbildungssymmetrie ausgenutzt wird, vgl Abb. 4.14. Hierzu werden die Ortsinformationen x_e, y_e, z_e in Polarkoordinaten mit der Polarachse entlang x umgerechnet⁴.

Die Messungen bei 99 eV und 174 eV Photonenenergie wurden bei identischer Einstellung der COLTRIMS-Apparatur durchgeführt. Daher war für die Umrechnung der Meßgrößen Ort und Zeit in Impulse keine zusätzliche Eichung erforderlich. Sie wurde jedoch zur Kontrolle nach jeder Umstellung des Undulators erneut durchgeführt.

⁴Die Komponente x_e ist darin der feste Abstand des Targetorts zum Detektor.

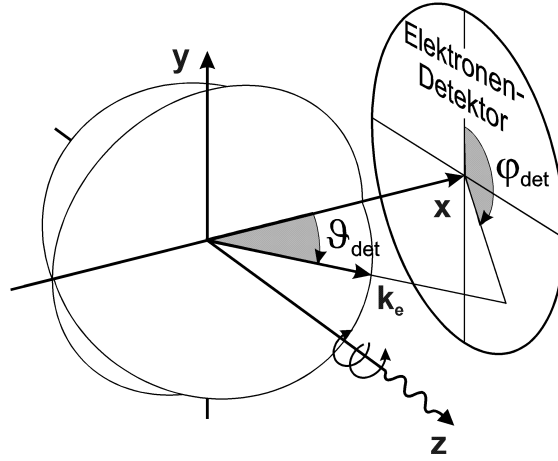


Abbildung 4.14: Polarkoordinatensystem zur Berechnung der nicht gemessenen Impulskomponenten.

Einfachionisation: Für die genaue Bestimmung der Eichfaktoren muß nach (3.13) bzw. (3.16) zunächst der Nullpunkt aller Impulskomponenten bekannt sein. Für die Kalibrierung des Elektronenorts wurden Ionen knapp oberhalb der Doppelionisationsschwelle ($E_{\text{ex}} < 0,5 \text{ eV}$) durch Umpolung der Spektrometerpotentiale auf den Elektronendetektor projiziert. Die Impulsverteilung der Ionen beträgt dann weniger als 0,2 a.u.. Der Offset-Impuls von etwa 2,6 a.u. verschiebt den Mittelpunkt gegenüber dem der Elektronen nach oben. Daher wurden die Absaugfelder in mehreren Schritten von 50 V auf 840 V über das gesamte Spektrometer erhöht. Durch Extrapolation nach unendlich hoher Spannung gelangt man zum Aufpunkt des Reaktionsvolumens. Den Nullpunkt der He^{1+} -Ortskomponenten erhält man durch das koinzidente Abbild des Elektronenimpulsnullpunkts auf dem Ionendetektor.

Der Elektronenimpulsbetrag $|\mathbf{k}_e|$ ist nach (2.77) diskret, das heißt alle Elektronen (und damit auch alle Ionen) können im Impulsraum nur auf der Oberfläche einer Kugel emittiert werden. Diese Erkenntnis ermöglicht die direkte Umrechnung der Emissionswinkel ϑ_{det} in Impulse nach

$$\mathbf{k}_e = \begin{pmatrix} |\mathbf{k}_e| \cos \vartheta_{\text{det}} \\ |\mathbf{k}_e| \cos \varphi_{\text{det}} \sin \vartheta_{\text{det}} \\ |\mathbf{k}_e| \sin \varphi_{\text{det}} \sin \vartheta_{\text{det}} \end{pmatrix} \quad (4.2)$$

Die Impulse der Ionen sind, wie aus (3.13) bekannt, linear mit dem Ort verknüpft. Zu deren Eichung kann man die Koinzidenz mit dem Elektron eines bekannten Impulses verwenden. Auf diese Weise ist eine Kontrolle der Abbildungslinearität im Impulsraum zwischen beiden Detektoren möglich, siehe Abb. 4.15. Anhand der Auftragung der hier exemplarisch gewählten z-Komponente beider Detektoren kann eine Abweichung von der Diagonalen zu größer werdenden positiven Elektronen-Impulsen festgestellt werden. Die experimentelle Ursache hierfür lag in der Fokussierung der Elektronentrajektorien durch die Feldeingriffe unmittelbar vor dem Detektor. Die Asymmetrie der Abweichung, die nur auf der Seite positiver Elektronenimpulse auftritt, kann mit der exzentrischen Lage des Nullpunkts erklärt werden: In negativer z-Richtung war der Detektor im dargestellten Bereich noch nicht bis zum Rand ausgeleuchtet. Auf eine Korrektur wird verzichtet, da der

Effekt innerhalb eines Winkels $\vartheta_{\text{det}} < 30^\circ$ vernachlässigbar ist. Für die weitere Auswertung wird der Randbereich daher ausgelassen, zumal dieser Teil des Raumwinkels ohnehin nur für hochenergetische Elektronen erfaßbar war.

Die Eichung der Ionenimpulse in Flugzeitrichtung erfolgt über die Vermessung der Lage des Flugzeitpeaks des He^{1+} -Grundzustands und des angeregten Zustands $n = 2$. Aus der Differenzflugzeit läßt sich der Impulsnullpunkt der Einfachionisation extrapolieren und mit (3.12) daraus das Feld am Targetort ermitteln. Der Vergleich mit der Simulation zeigt hervorragende Übereinstimmung⁵: $E_{\text{exp}} = 0,977 \text{ V/cm}$ und $E_{\text{sim}} = 0,978 \text{ V/cm}$.

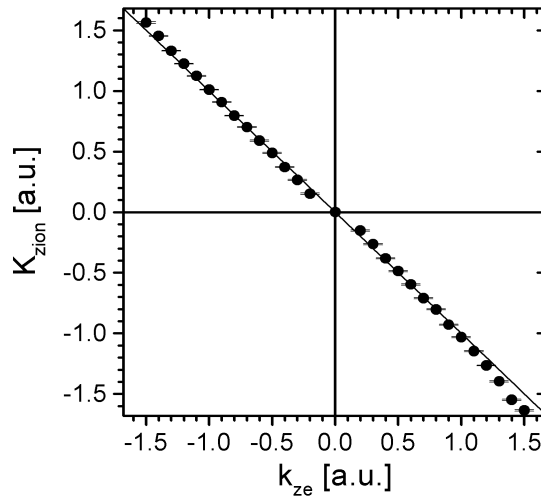


Abbildung 4.15: *Abbildungsfehler des Elektronen- und des Ionendetektors: Die Abbildung zeigt den Impuls k_{ze} des Elektrons im Vergleich mit dem des He^{1+} -Ions, $K_{z\text{ion}}$. Die Abweichung von der Diagonalen rührt von der verbleibenden Nichtlinearität der Detektorabbildung her. Die Fehlerbalken geben die statistische Genauigkeit der Bestimmung des Impulsmittelpunkts nach einem Gaussfit an.*

Doppelionisation: Beim Übergang von Einfachionisation zur Doppelionisation verkürzt sich die Ionenflugzeit nach (3.12) um einen Faktor $\sqrt{2}$, der durch die veränderte Ladung der Ionen bedingt ist. Durch die Jetgeschwindigkeit v_{jet} wird nach (3.13) somit eine Verschiebung des Nullpunkts in negativer y-Richtung bewirkt. Der Nullpunkt der He^{2+} -Ionen mußte daher gesondert ermittelt werden. Es wurden hierzu vier Messungen bei Überschußenergien nahe der Doppelionisationsschwelle ($E_\gamma = 79,2 \text{ eV} - 79,5 \text{ eV}$) in $0,1 \text{ eV}$ -Schritten durchgeführt und daraus die Impulsnullpunkte des Ions in allen drei Komponenten direkt bestimmt. Die Umrechnung der Orte in Impulse erfolgt dann direkt nach (3.13). Die Rückstoßionenimpulse in Flugzeitrichtung werden aus dem Spektrum des He^{2+} -TACs gewonnen. Für die Umrechnung in Impulse wird der Eichfaktor aus der Einfachionisation verwendet und durch Multiplikation mit zwei und unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Kalibrierung beider TACs auf den des He^{2+} -Ions umgerechnet.

⁵Durch diese Feststellung wird die Rechtfertigung für das Vernachlässigen der Elektronenflugzeitdifferenz geliefert (siehe Abb. 4.8), da deren Beitrag keinen nennenswerten Einfluß auf die Ionenimpulseichung hat, vgl. auch Abschnitt 4.2.5.

Im Fall der Doppelionisation kann nur der Ionendetektor direkt geeicht werden. Die Überschußenergie wird auf zwei Elektronen aufgeteilt, so daß die Information über den Impulsbetrag des nachgewiesenen Elektrons fehlt. Die Elektronenimpulse werden daher nach der Eichung des Ionendetektors anhand der geometrischen Ortsverteilung sowie durch Anwendung der Erhaltungssätze errechnet. Dazu wird nur der Elektronennullpunkt benötigt, der nach oben beschriebenem Verfahren bereits ermittelt wurde⁶.

4.2.3 Berechnung der nicht gemessenen Impulskomponenten

Mit den direkt geeichten Impulskomponenten $K_{x\text{ion}}, K_{y\text{ion}}, K_{z\text{ion}}$ und den gemessenen Winkelkoordinaten $\vartheta_{\text{det}}, \varphi_{\text{det}}$ eines Elektrons gilt es, die Elektronenimpulskomponenten zu ermitteln. Es werden zunächst Impuls- und Energiesatz (2.73) bzw. (2.76) verwendet, um die Koordinaten des nicht gemessenen Elektrons zu substituieren. Außerdem werden zur Übersichtlichkeit für die Verhältnisse der Impulskomponenten und für die Energiebilanz die Variablen

$$\begin{aligned} c_{yx} &:= \frac{k_{y1}}{k_{x1}} = \tan \vartheta_{\text{det}} \cos \varphi_{\text{det}} \\ c_{zx} &:= \frac{k_{z1}}{k_{x1}} = \tan \vartheta_{\text{det}} \sin \varphi_{\text{det}} \\ \delta_r &:= E_{\text{ex}} - \frac{1}{2} |\mathbf{K}_{\text{ion}}|^2 \geq 0 \end{aligned}$$

eingeführt. Die Endlichkeit dieser Ausdrücke ist aufgrund von $k_{x1} > 0$ immer sichergestellt. Damit läßt sich nach einigen Umformungen der Impuls des Elektrons nach

$$\mathbf{k}_1 = \begin{pmatrix} k_{x1} \\ k_{x1} c_{yx} \\ k_{x1} c_{zx} \end{pmatrix} \quad (4.3)$$

mit

$$\begin{aligned} k_{x1} = & \cos \vartheta_{\text{det}} \left(-\frac{1}{2} \cos \vartheta_{\text{det}} (K_{x\text{ion}} + c_{yx} K_{y\text{ion}} + c_{zx} K_{z\text{ion}}) \right. \\ & \left. \pm \sqrt{\frac{1}{4} \cos^2 \vartheta_{\text{det}} (K_{x\text{ion}} + c_{yx} K_{y\text{ion}} + c_{zx} K_{z\text{ion}})^2 + \delta_r} \right) \end{aligned}$$

errechnen. Die Bestimmung der Impulskomponenten ist ohne Zusatzinformation nur bis auf das Vorzeichen vor der Wurzel eindeutig. Dieser Umstand ist auf die Verwendung des Energiesatzes zurückzuführen. Aufgrund der Einschränkung der Messung auf Elektronen, die auf den Detektor zulaufen, gilt jedoch $k_{x1} \geq 0$. Damit ist eine eindeutige Entscheidung

⁶Eine Verschiebung des Nullpunkts tritt – anders als bei den Ionen – hier nicht ein, da sich die Gesamtflugzeit der Elektronen beim Übergang zur Doppelionisation nicht wesentlich verändert und die Jet-Geschwindigkeit außerdem keinen nennenswerten Beitrag zu dem Elektronenimpuls liefert.

für das positive Vorzeichen möglich.

Der Impuls des zweiten Elektrons ergibt sich aus dem Impulssatz (2.73)

$$\mathbf{k}_2 = - \begin{pmatrix} k_{x1} + K_{x\text{ion}} \\ k_{y1} + K_{y\text{ion}} \\ k_{z1} + K_{z\text{ion}} \end{pmatrix}. \quad (4.4)$$

4.2.4 Auflösung

In der Einfachionisation enthält die Bewegung aller Teilchen nur zwei Freiheitsgrade. Der Nachweis der 5 Impulskomponenten liefert daher eine dreifache Überbestimmtheit, die zur Ermittlung der Auflösung der Messung verwendet wird: Aus der Projektion eines ausgewählten Elektronimpulses $k_{xe} \in [2,3; 2,31]$, $k_{ye} \in [-0,01; 0,01]$ und $k_{ze} \in [-0,01; 0,01]$ auf den koinzidenten He^{1+} -Rückstoßionenimpuls erhält man eine Verteilung, die allein durch die Auflösung der Messung bestimmt ist. Die Halbwertsbreiten dieser Projektionen ergeben nach Abb. 4.16

$$\Delta \mathbf{K}_{\text{ion}} = \begin{pmatrix} \pm 0,065 \\ \pm 0,13 \\ \pm 0,07 \end{pmatrix} \quad (\text{FWHM}).$$

Diese Werte repräsentieren die kombinierte Auflösung des Elektronenimpulses und des Ionenimpulses. Eine isolierte Abschätzung der Elektronenimpulsauflösung, die in erster Linie aus der Targetausdehnung resultiert⁷, ergibt für einen angenommenen Ortsfehler $\Delta x = \Delta y = \Delta z = \pm 0,5 \text{ mm}$ im Fall der Einfachionisation eine Impulsungenauigkeit von $\Delta k_{xe} = \pm 0,025$, $\Delta k_{ye} = \pm 0,038$ und $\Delta k_{ze} = \pm 0,038$.

Hiermit reduziert sich die gemessene Impulsauflösung in y-Richtung zu einer „tatsächlichen“ Ionenimpulsverteilung von $\Delta K_{y\text{ion}} = \pm 0,125$. Dieser Wert ist in sehr guter Übereinstimmung mit der aus der Temperaturmessung ermittelten Auflösung, vgl. 80.

Die in (4.5) angegebene Auflösung wird jedoch als obere Grenze in der folgenden Fehlerfortpflanzung der Ionenimpulsunschärfe verwendet.

Abb. 4.16 zeigt neben der Auflösung auch die Linearität der Elektronen-Ionen-Impulsabbildung. Die Bedingungen auf den Elektronendetektor entsprechen Fenstern bei jeweils 0 und $\pm 1 \text{ a.u.}$ in y- und z-Richtung. Die Positionen der Maxima auf dem Ionendetektor weichen maximal $0,05 \text{ a.u.}$ von den Sollwerten ab.

4.2.5 Fehlerbetrachtung

Durch die Vernachlässigung der Elektronenflugzeitdifferenz entsteht nach Abb. 4.8 eine Abweichung der tatsächlichen He^{2+} -Ionenflugzeit von maximal 6 ns . Bei gegebener Eichung und mit der Korrektur der Ionenflugzeiten um die mittlere Elektronenflugzeit $t_e = 14,5 \text{ ns}$ resultiert daraus ein Fehler von $\Delta K_{x\text{ion}} < \pm 0,05 \text{ a.u.}$ Dieser führt zu einer zusätzlichen Verschlechterung der Auflösung in x-Richtung. Auf die exakte dynamische

⁷Dagegen ist die Nachweisgenauigkeit des Detektors vernachlässigbar.

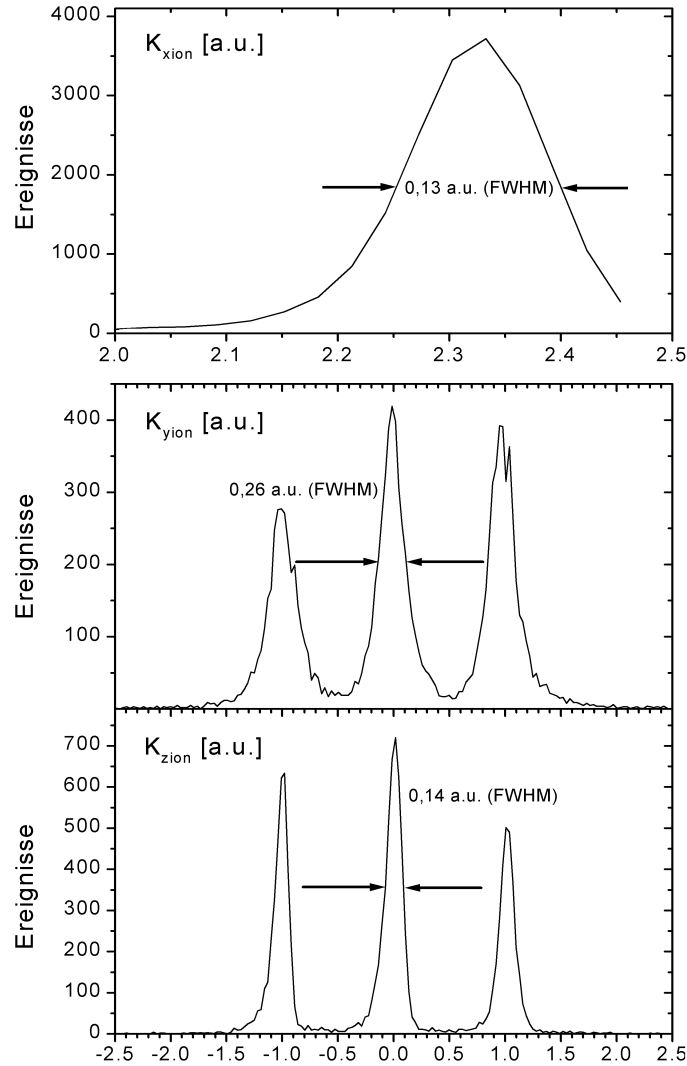


Abbildung 4.16: Rückstoßionenimpuls-Auflösung: a) x-, b) in y- und c) in z-Richtung.

Korrektur der Ionenflugzeit wurde wegen der Geringfügigkeit dieses Anteils am Gesamtfehler verzichtet. Hinzu kommt, daß die Elektronenflugzeit aufgrund der Energieselektion bei 14,5 ns ein ausgeprägtes Maximum aufweist, so daß der hieraus resultierende mittlere Fehler weit geringer ausfällt.

Die in Abschnitt 4.2.3 abgeleiteten Formeln zur Berechnung der nicht direkt gemessenen Elektronenimpulse sind Funktionen der 5 Meßgrößen sowie der Länge der Elektronenflugstrecke x_e . Dieser Umstand und wiederum der energieabhängige Nachweisraumwinkel für das Elektron machen die Angabe eines Fehlers in den Elektronenimpulsen in analytisch vollständiger Form schwierig. Statt dessen wird hier anhand einer speziellen Konfiguration im Impulsraum, die aber den wesentlichen Teil der Messung repräsentiert, eine aus (4.3) hervorgehende Fehlerfortpflanzung der Rückstoßionenimpulsauflösung diskutiert. Mit der Beschränkung auf Elektronen, die entlang der x-Achse direkt auf den Detektor zulaufen

($\vartheta_{\text{det}} = 0$), erhält man folgende Ergebnisse für die partiellen Ableitungen der Elektronenimpulskomponenten

$$\frac{\partial k_{x1}}{\partial K_{x\text{ion}}} = \frac{1}{2} (C_E K_{x\text{ion}} - 1), \quad \frac{\partial k_{x1}}{\partial K_{y\text{ion}}} = C_E K_{y\text{ion}}, \quad \frac{\partial k_{x1}}{\partial K_{z\text{ion}}} = C_E K_{z\text{ion}}, \quad (4.5)$$

mit $C_E = -\frac{1}{2\sqrt{E_{\text{ex}} - \frac{1}{2}\left(\frac{1}{2}K_{x\text{ion}}^2 + K_{y\text{ion}}^2 + K_{z\text{ion}}^2\right)}}$.

Beschränkt man sich zusätzlich auf die Ebene senkrecht zur z-Achse, entfallen alle Terme mit $K_{z\text{ion}}$ und die Fehlerfunktion des Elektronenimpulses in x-Richtung reduziert sich auf zwei Dimensionen $\Delta k_{x1} = f(K_{x\text{ion}}, K_{y\text{ion}})$. Aus der Auflösung der Rückstoßionenimpulsverteilung $\Delta K_{x\text{ion}} = \pm 0,074$ a.u., $\Delta K_{y\text{ion}} = \pm 0,14$ a.u. ergibt sich die in Abb. 4.17 dargestellte Fehlerverteilung: Sobald die Ionen und die Elektronen auf der x-Achse in entgegengesetzter Richtung emittiert werden, nimmt der Fehler den geringsten Wert an. Sowohl mit abnehmendem Impulsbetrag in x-Richtung als auch bei Impulskomponenten der Ionen in y-Richtung nimmt dieser zu. Die Unsicherheit der Elektronenimpulse in den anderen Komponenten $\Delta k_{y1}, \Delta k_{z1}$ verschwindet nach (4.3) bzw. (4.3) in dem Fall $\vartheta_{\text{det}} = 0$. Desweiteren werden der maximale Fehler unter der Variation des Winkels ϑ_{det} und der mittlere Fehler der Elektronenimpulsverteilung unter der Berücksichtigung der Gewichtung der Elektronenwinkel- und Ionenimpulsverteilung abgeschätzt: Die größte Unsicherheit tritt dort auf, wo Elektronen und Rückstoßionen mit großen Impulskomponenten gleichen Vorzeichens entlang der y-Richtung emittiert werden. Die Abschätzung in dem Extremfall, daß ein Elektron unter einem Winkel $\vartheta_{\text{det}} = 35^\circ$ in Richtung des Detektorrands emittiert wird, ergibt einen Beitrag der „Recoil-Auflösung“ zum mittleren Fehler in k_{xe} und k_{ye} von $\pm 0,075$ a.u. Hinzu kommt der aus der Unsicherheit in ϑ_{det} und φ_{det} resultierende Fehler, der in erster Näherung mit der Ortsunsicherheit also im wesentlichen mit der Targetausdehnung gleichzusetzen ist. Er wird im Fall der Doppelionisation mit den oberen Werten $\Delta k_{x1} < \pm 0,013$ und $\Delta k_{y1} = k_{z1} < \pm 0,02$ abgeschätzt. Der gesamte maximale Fehler des Elektronenimpulses wird mit

$$\Delta \mathbf{k}_1^{\text{max}} = \Delta k_{x1}^{\text{max}} = \Delta k_{y1}^{\text{max}} = \pm 0,078 \text{ a.u. } (> \Delta k_{z1}^{\text{max}})$$

angegeben. Δk_{z1} wird fortan vernachlässigt, da alle relevanten Betrachtungen in der Ebene senkrecht zur Strahlausbreitungsrichtung erfolgen und hier mit $\sin \varphi_{\text{det}}$ auch der Fehler minimal wird.

Der maximale Fehler reduziert sich jedoch für den wahrscheinlicheren Fall, daß erstens der Winkel zwischen Elektron und Rückstoßion in dem Intervall $[150^\circ; 210^\circ]$ liegt und zweitens die Elektronen nach ihrer Verteilung bezüglich des Winkels ϑ_{det} gegen die x-Achse gewichtet werden zu einem mittleren Fehler von $\widehat{\Delta \mathbf{k}}_1 = \pm 0,05$ a.u.

Übersetzt man diese Abweichung in eine Energieauflösung, erhält man für den Schwerpunkt der Energieverteilung der nachgewiesenen Elektronen im Falle der Doppelionisation

$$\widehat{\Delta E}_1 = |\widehat{\mathbf{k}}_1| \cdot \widehat{\Delta \mathbf{k}}_1 = \pm 0,06 \text{ a.u. } \approx \pm 1,5 \text{ eV}. \quad (4.6)$$

Vergleiche hierzu Abb. 5.3.

Für das zweite Elektron resultiert die Impulsauflösung nach (4.4) aus der quadratischen Addition der Rückstoßionenimpuls-Auflösung und dem mittleren Fehler des ersten Elektrons. Die Ungenauigkeit erreicht daher — ebenso wie das Ion — den maximalen Wert in y-Richtung $\widehat{\Delta k_{y2}} = \pm 0,15 \text{ a.u.}$

Im Fall der 95 eV Überschußenergie verbessert sich die Auflösung der Elektronenimpulse geringfügig. Der Beitrag der Ortsunsicherheit im Elektronennachweis transformiert sich hier zwar zu einem größeren Fehler im Impuls und die Fortpflanzung der Ionenimpulsungenauigkeit ist von der Energie der Elektronen unabhängig. Die Ionenimpulsverteilung zeigt sich aber deutlich stärker rückwärts gehäuft als im Fall der 20 eV Überschußenergie. Das bewirkt, daß der Fehler gemäß Abb. 4.17 geringer ausfällt. In der Summe aller Fehler beträgt die mittlere Abweichung hier $\widehat{\Delta \mathbf{k}_1} = \pm 0,04 \text{ a.u.}$

Beim Vergleich der Detektormittelpunkte, der auch zur Ermittlung des He^{1+} -Impulsnullpunkts herangezogen wurde, sowie bei der Beobachtung der Maxima beider Zeitpeaks über die gesamte Dauer der Messung hat sich gezeigt, daß die elektrischen Felder im Spektrometer nicht konstant geblieben sind. Dabei kann eine Drift des TAC-Moduls selbst ausgeschlossen werden, da die Kontrolle anhand des Pulserpeaks keine Schwankung entdecken ließ. Es wird davon ausgegangen, daß hierfür eine elektrostatische Aufladung im Bereich der Ionenflugstrecke verantwortlich war. Daraus ergab sich eine Drift des Ionenimpulsnullpunkts⁸, die bis zu 20 ns in Zeitrichtung und 20 Kanäle in Ortsrichtung betrug. Da der Fehler oberhalb der Auflösung lag, wurde diese Variation durch eine „moving-Average“-Analyse mit anschließender Korrektur eliminiert. Während der Umstellung des Monochromators konnte der Verlauf des Nullpunkts jedoch nicht beobachtet werden. Vielmehr wurde anhand einer erneuten Kalibrierung nach der Umstellung ein Sprung des nominellen Mittelpunkts festgestellt. Daher muß noch immer eine maximale Unsicherheit von 3 ns bzw. $\pm 0,05 \text{ a.u.}$ in x-, ± 10 Kanälen bzw. $\pm 0,11 \text{ a.u.}$ in y- und ± 6 Kanälen bzw. $\pm 0,07 \text{ a.u.}$ in z-Richtung angenommen werden. Da es sich hierbei um einen systematischen Fehler handelt, wird er nicht in die Auflösungsfunktion mit einbezogen, sondern separat behandelt. Bei der Darstellung der Wirkungsquerschnitte in der Winkelverteilung des langsamen Elektrons werden die Fehler im Falle asymmetrischer Energieaufteilung sehr groß. Hier führt die Impulsauflösung des Rückstoßions umgerechnet in die des langsamen Elektrons bis zu einem vollständigen Informationsverlust über den Winkel φ_2 : Das ist der Fall, wenn $\Delta \mathbf{k}_2 / \mathbf{k}_2 \approx 1$ wird, also besonders bei kleinem $\mathbf{k}_2$. Besondere Bachtung ist an dieser Stelle der Abhängigkeit dieser Winkeldarstellung von der genauen Kenntnis des Impulsnullpunkts zu schenken. Während eine Verschiebung des Nullpunkts aufgrund oben angesprochener elektronischer Instabilitäten in den Impulsdarstellungen der Teilchen zu einer linearen Verschiebung der Querschnitte führt, bedeutet sie für die Winkeldarstellung des langsamen Elektrons — wiederum besonders bei sehr asymmetrischer Energieaufteilung — eine starke Veränderung der Richtungscharakteristik. Die Fehlerfortpflanzung in die Darstellung der Winkelplots wird an dieser Stelle nicht näher diskutiert, da diese von dem jeweilig dargestellten Ausschnitt des fünffach differentiellen Wirkungsquerschnitts abhängt. Anstelle dessen wird in Anhang A.5 eine

⁸Die Drift wird der Rückstoßionenimpuls-Messung zugeordnet, da die Elektronen aufgrund 7000-mal höheren Energie nicht so empfindlich auf Veränderungen elektrischer Störfelder reagieren.

Schar von Winkelverteilungen für verschiedene Nullpunktseichungen abgebildet, anhand der der resultierende maximale Fehler abgeschätzt werden kann.

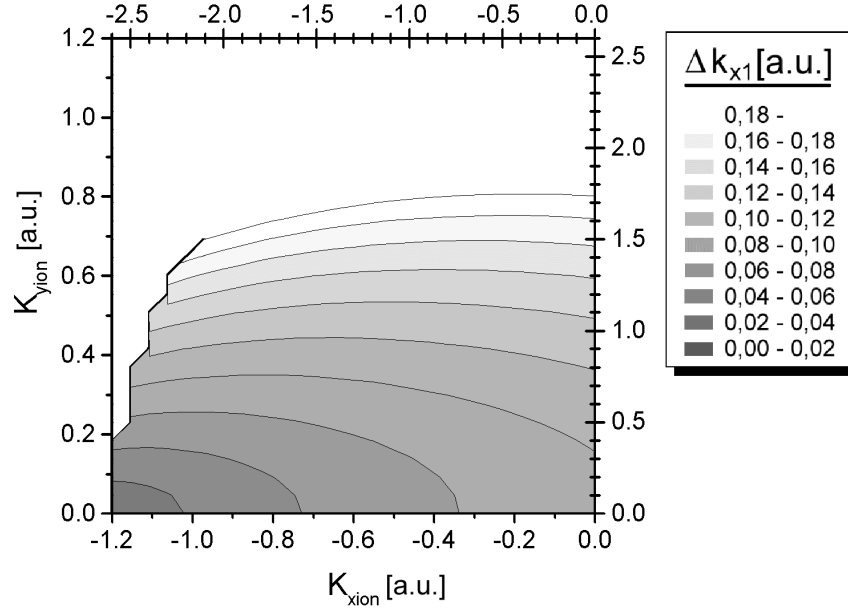


Abbildung 4.17: Fehlerfortpflanzung der Rückstoßionenimpulsauflösung als Funktion der Rückstoßionenimpulsverteilung in der x-y-Ebene. In Graustufen dargestellt ist die Abweichung $\pm\Delta k_{x1}$ der Elektronenimpulsverteilung in atomaren Einheiten. Das Elektron wird in dieser Darstellung auf der x-Achse in positiver Richtung festgehalten. Die Beschriftungen der unteren und linken Achse gehören zu der Überschußenergie $E_\gamma = 99$ eV, die der oberen und rechten Achse entsprechen $E_\gamma = 174$ eV.

Folgende Tabelle faßt nochmals die mittleren Fehler in den Impulskomponenten aller drei Teilchen im Fall der 99 eV Messung zusammen. Der absolute mittlere Fehler nimmt bei 174 eV nur geringfügig ab und wird daher nicht gesondert aufgeführt.

	$\widehat{\Delta k_x}$	$\widehat{\Delta k_y}$	$\widehat{\Delta k_z}$
Ion	$\pm 0,074$	$\pm 0,13$	$\pm 0,07$
Elektron1	$\pm 0,05$	$\pm 0,05$	$\pm 0,03$
Elektron2	$\pm 0,09$	$\pm 0,14$	$\pm 0,077$

4.2.6 Analyse des Polarisationsgrads

Anhand der Einfachionisation kann unter Verwendung von (2.63) der Polarisationsgrad, genauer der Stokes-Parameter $\tilde{S}_1$, sowie der Kippwinkel der Polarisationsellipse gegenüber der Spektrometerachse φ_ϵ ermittelt werden:

$$\frac{d^2\sigma^{1+}}{d\Omega_e} = N\tilde{S}_1 \cos^2(\varphi + \varphi_\epsilon). \quad (4.7)$$

Die Parameter dieser Fitfunktion werden für beide Energien 99 eV und 174 eV sowie jeweils beide Polarisationszustände LCP und RCP berechnet, der Normierungsparameter N ist dabei nicht relevant. Hierzu wird die Winkelverteilung der Elektronen in der Ebene senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Lichts in einem eindimensionalen Winkelspektrum betrachtet. Die Winkelkoordinaten sind in Abb. 2.7 definiert. Die folgenden Spektren stellen, radial aufgetragen, die Häufigkeitsverteilung der Ereignisse auf dem Elektronendetektor mit einer Bedingung auf den He^{1+} -Zeitpeak und den zugehörigen Ort auf dem Rückstoßionendetektor in einem Winkelfenster $\vartheta_e = (90 \pm 10)^\circ$ dar. Unter $\pm 30^\circ$ zur Horizontalen, an dem oberen und unteren Ende der Verteilung, tritt jeweils eine Häufung der Ereignisse auf, die auf die angesprochene Verzerrung am Detektorrand zurückzuführen ist. Dieser Randbereich wurde in den Fit der Winkelfunktion nicht mit einbezogen. Im Gegensatz zu der Doppelionisation kann in diesem Fall der Nachweisraumwinkel der Elektronen über den gesamten Detektor wegen der erhöhten Überschußenergie $E_{\text{ex}} = 75 \text{ eV}$ als konstant angenommen werden, vgl. Abb. 4.8.

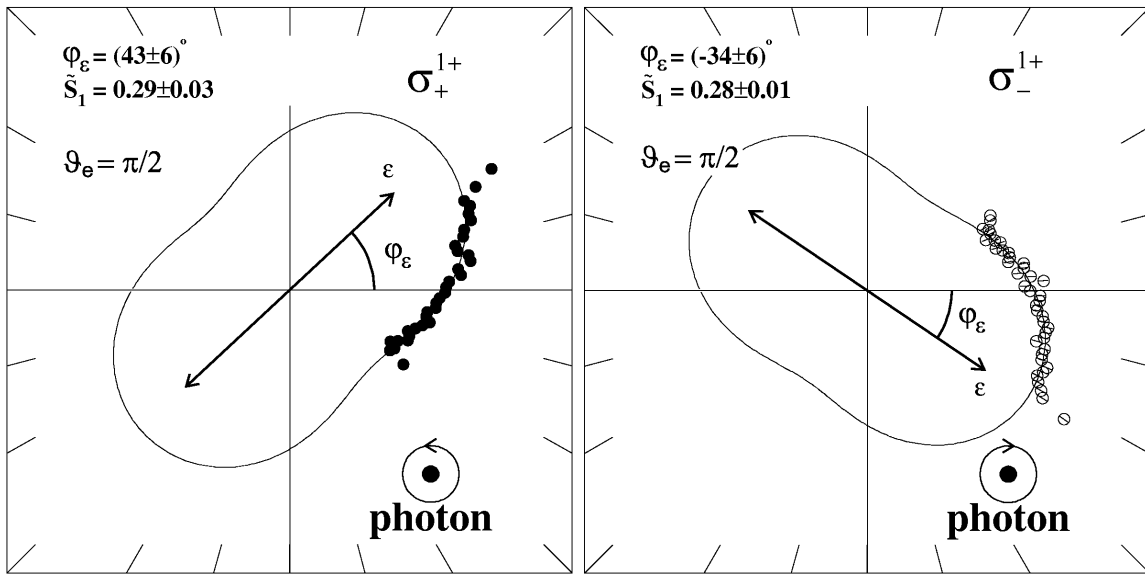


Abbildung 4.18: *Doppelt differentieller Wirkungsquerschnitt der Einfachionisation $d^2\sigma^{1+}/d\Omega_e$ als Funktion des Azimuthalwinkels φ_e : $E_\gamma = 99 \text{ eV}$, Links LCP, rechts RCP. In radialer Richtung ist der Wirkungsquerschnitt in willkürlichen Einheiten aufgetragen.*

Während die Ergebnisse des Fits bei 99 eV Gesamtenergie eindeutige Werte für den Kippwinkel sowie den Anteil linearer Polarisation liefern, lassen die Verteilungen bei 174 eV Gesamtenergie keine eindeutigen Aussagen über die Lage der Hauptachse der Ellipse zu. Hier kann nur als gesichert gelten, daß der Anteil linearer Polarisation insgesamt abnimmt. Die Abschätzung des linearen Anteils an dem Photodoppelionisations-Wirkungsquerschnitt wird daher nur bei der Messung mit $E_\gamma = 99 \text{ eV}$ möglich sein. Jedoch bewirkt dieser Beitrag keine signifikante Änderung der Winkelverteilung und kann daher insbesondere im Fall der 174 eV vernachlässigt werden.

Die Bestimmung von $\tilde{S}_1$ nach (2.63) ist exakt. Jedoch liefert sowohl unpolarisiertes wie

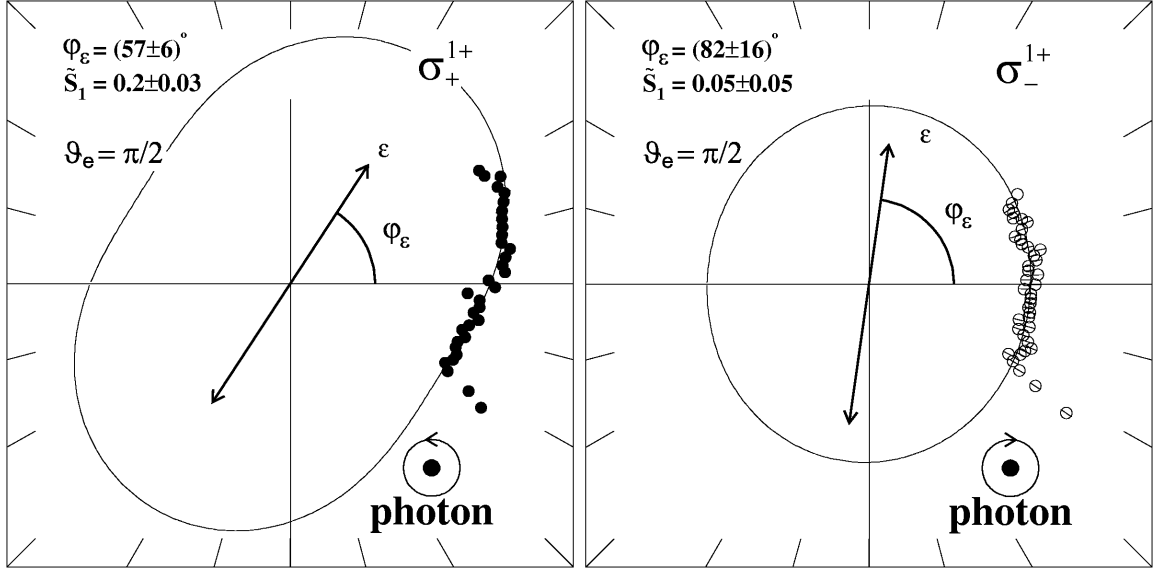


Abbildung 4.19: Doppelt differentieller Wirkungsquerschnitt der Einfachionisation $d^2\sigma^{1+}/d\Omega_e$ für $E_\gamma = 174$ eV, sonst wie Abb. 4.18.

auch zirkular polarisiertes Licht Beiträge zur isotropen Winkelverteilung der Elektronen in der betrachteten Ebene. Der Anteil unpolarisierter Strahlung ist mit dieser Methode nicht von dem zirkular polarisierter zu unterscheiden. Unter der Annahme, daß der totale Polarisationsgrad $P = \sqrt{\tilde{S}_1^2 + S_3^2}$, den Wert $P = 0,97 \pm 0,01$ aus der Testmessung von Kimura *et al.* [154] nicht unterschritten hat, erhält man für den Polarisationszustand:

	99 eV		174 eV	
	LCP	RCP	LCP	RCP
φ_ϵ [deg]	43 ± 6	-34 ± 6	57 ± 6	82 ± 16
$\tilde{S}_1$	$0,29 \pm 0,03$	$0,28 \pm 0,01$	$0,2 \pm 0,03$	$0,05 \pm 0,05$
S_3	$-0,926 \pm 0,01$	$0,929 \pm 0,004$	$-0,95 \pm 0,007$	$0,969 \pm 0,003$

Der Vergleich der Ergebnisse bei 99 eV zeigt eine gute Übereinstimmung mit der Messung von Kimura *et al.* bei $E_\gamma = 97$ eV, siehe Seite 76.

4.2.7 Untergrundabzug

In den Rohspektren der Flugzeitmessung Abb. 4.12 und Abb. 4.13 ist ein hoher Untergrund erkennbar. Dieser stammt im wesentlichen aus zufälligen Koinzidenzen eines Elektrons mit einem He^{1+} -Ion und macht sich insbesondere in dem Spektrum der He^{2+} -Ionenflugzeit bemerkbar, da die Koinzidenzrate hier um etwa einen Faktor 50 niedriger ist. Das Signal-zu-Untergrund-Verhältnis fällt entsprechend schlechter aus als in der Einfachionisation: Das Verhältnis des He^{2+} -Maximums zum Untergrund beträgt etwa 3:1.

Durch die Berechnung der Impulse werden alle Spektren auf einen Bereich eingeschränkt, für den die Summe unter der Wurzel in (4.3) positiv ist. Führt man dieselbe Impulsberechnung ein zweites Mal mit verschobenem Zeitnullpunkt durch, also an einer Stelle im TAC-Spektrum, an der nur Untergrundereignisse zu finden sind, erhält man die Verteilung der zufällig koinzidenten Ereignisse. Die so berechnete Verteilung ist in allen folgenden Spektren subtrahiert, wobei statistisch bedingte Fluktuationen der Untergrundspektren falls nötig durch Glätten der Verteilung unterdrückt wurden. Ein Beispiel für die Berechnung des Untergrunds im He^{2+} -Zeitspektrum zeigt Abb. 4.20, vgl. hierzu auch Abb. 5.3.

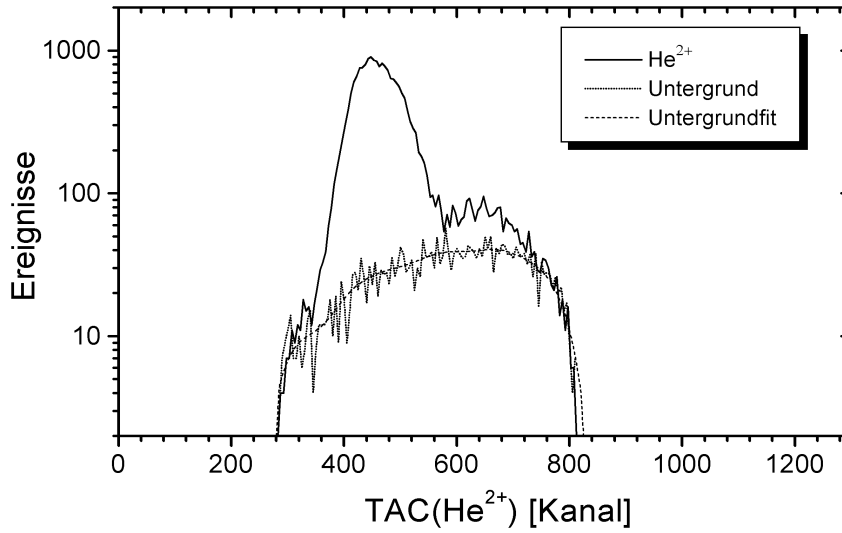


Abbildung 4.20: Untergrundabzug anhand des TAC2-Zeitspektrums nach Berechnung der Impulse.

4.2.8 Normierung der fünffach differentiellen Wirkungsquerschnitte

Eine Absolutbestimmung des Doppelionisations-Wirkungsquerschnitts ohne Zuhilfenahme bekannter Normierungsfaktoren ist bei dieser Messung nicht möglich, da hierzu die genaue Kenntnis des Strahlstroms, der Targetdichte, des Nachweisraumwinkels und der Nachweiseffizienz erforderlich wäre. Der aus den Unsicherheiten dieser einzelnen Faktoren resultierende relative Gesamtfehler des Wirkungsquerschnitts übersteigt jedoch 75%.

Wäre die Messung aller Ereignisse in einem Raumwinkel von 4π erfolgt, könnte man die Gesamtzahl der Ereignisse direkt auf den bekannten totalen Doppelionisationsquerschnitt normieren.

Da diese Bedingung nicht erfüllt wird, kann die Normierung nur unter zusätzlichen, als gesichert geltenden Annahmen erfolgen:

- Nach (2.64) ist bereits bekannt, daß der Wirkungsquerschnitt $d^3\sigma^{2+}/(dE_1d\Omega_1)$ sich als Funktion eines energieabhängigen β -Parameters darstellen läßt. Bei 100 eV Photonenenergie konnte die Voraussage einer nahezu isotropen Winkelverteilung für das

erste Elektron unabhängig von seiner Energie durch experimentelle Befunde mehrfach belegt werden [44, 101, 102, 90] : Sie ist daher als gesichert anzusehen, vgl. Abb. 2.9.

- Es wird vorausgesetzt, daß der einfach differentielle Wirkungsquerschnitt $d\sigma^{2+}/dE_1$ bei 100eV einen konstanten Wert annimmt, also nicht von der Energieaufteilung der Elektronen abhängt [44], siehe Abb. 2.10.

Es gilt somit

$$\frac{d^3\sigma^{2+}}{d\Omega_1 dE_1}(\varphi_1, \vartheta_1, E_1) = \sigma_{\text{tot}}^{2+} \frac{\Delta\Omega_1 \Delta E_1}{4\pi E_{\text{ex}}/2} = \text{const.} \quad (4.8)$$

Der totale Doppelionisations-Wirkungsquerschnitt ist seit längerem aus präzisen Messungen des totalen Wirkungsquerschnitts ($\sigma_{\text{tot}}^{1+} + \sigma_{\text{tot}}^{2+}$) [161, 162] und des Verhältnisses aus Einfach- zu Doppelionisation [90] bekannt⁹. Jüngst wurden direkt gemessene Werte des totalen Doppelionisations-Wirkungsquerschnitts von Helium für Energien von der Doppelionisationsschwelle bis 820 eV von Samson *et al.* publiziert [163], die die alten Resultate sehr gut bestätigen. Die verwendeten Werte betragen nach [163] bei 99 eV $8,76 \times 10^{-21} \text{cm}^2$ bzw. $3,13 \times 10^{-4} \text{a.u.}$ und bei 174 eV $2,96 \times 10^{-21} \text{cm}^2$ bzw. $1,06 \times 10^{-4} \text{a.u.}$

Die Ergebnisse dieser Messung lassen den linearen Zusammenhang aus (4.8) nicht unmittelbar erkennen, da der Raumwinkel und somit auch die Nachweisrate für geringer werdende Energie E_1 abnimmt, vgl. Abschnitt 4.1.2 Abb. 4.8 und Abb. 5.3. Diese Abhängigkeit muß daher durch die im folgenden beschriebene Normierung ebenfalls kompensiert werden.

Die Normierungsschritte sehen skizziert wie folgt aus:

- Normierung der Ereignisse $N(\Delta E_1, \Delta\Omega_1^*)$ in einem Raumwinkelfenster $\Delta\Omega_1^*$ und einem Energiefenster ΔE_1 auf den Wert des dreifach differentiellen Wirkungsquerschnitts

$$\begin{aligned} n^*[\text{a.u.}] &= \frac{1}{N(\Delta E_1, \Delta\Omega_1^*)} \int_{\Delta\Omega_1^*} \int_{\Delta E_1} \frac{d^3\sigma^{2+}}{d\Omega_1 dE_1} dE_1 d\Omega_1 \\ &\approx \frac{\sigma_{\text{tot}}^{2+}[\text{a.u.}]}{N(\Delta E_1, \Delta\Omega_1^*)} \frac{\Delta\Omega_1^* \Delta E_1}{4\pi E_{\text{ex}}/2} \end{aligned} \quad (4.9)$$

Das Raumwinkelfenster entspricht einem kleinen Ausschnitt in der Detektormitte, in dem der Elektronenachweis keine Energieabhängigkeit aufweist. Die Verteilung des zweiten Elektrons, respektive des Ions wird über alle Koordinaten integriert.

- Erweiterung des Raumwinkelfensters für ein Elektron auf den entsprechenden Ausschnitt des zu normierenden Spektrums $\Delta\Omega_1$ (z.B.: $\Delta\vartheta_1 = (90 \pm 10)^\circ$, $\Delta\varphi_1 = (0 \pm 30)^\circ$). Berechnung des effektiven Raumwinkelanteils aus dem geometrischen

⁹Diese Messungen wurden ausschließlich mit linear polarisiertem Licht durchgeführt, es wird jedoch davon ausgegangen, daß der totale Wirkungsquerschnitt sowie das Verhältnis aus Doppel- zu Einfachionisation sich beim Übergang zu zirkularer Polarisation nicht ändert.

Raumwinkel aus Normierungsschritt 1 und dem Verhältnis aus den gemessenen Ereignissen in $\Delta\Omega_1$ und $\Delta\Omega_1^*$

$$\Delta\Omega_{1\text{eff}} = \frac{N(\Delta E_1, \Delta\Omega_1)}{N(\Delta E_1, \Delta\Omega_1^*)} \Delta\Omega_1^* . \quad (4.10)$$

$\Delta\Omega_{1\text{eff}}$ ist aufgrund der Energieabhängigkeit im allgemeinen kleiner als $\Delta\Omega_1$. Ω_2 wird in diesem Schritt weiterhin über den vollen Raumwinkel integriert.

- Beschränkung des Raumwinkels für das zweite Elektron (Ion) auf den entsprechenden Ausschnitt $\Delta\Omega_2$ des zu normierenden Spektrums unter Berücksichtigung der zugehörigen Größe der Bins.

$$\frac{d^5\sigma^{2+}}{d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1}(\varphi_1, \vartheta_1, \varphi_2, \vartheta_2, E_1)[\text{a.u.}] = \frac{n^* N(\Delta E_1, \Delta\Omega_1, \Delta\Omega_2)}{\Delta\Omega_{1\text{eff}}[\text{rad}] \Delta\Omega_2[\text{rad}] \Delta E_1[\text{a.u.}]} . \quad (4.11)$$

Die vorausgesetzten Annahmen treffen nur für die Energie $E_\gamma = 100\text{ eV}$ zu und sind nicht auf die Messung bei $E_\gamma = 174\text{ eV}$ übertragbar. Es zeigt sich vielmehr, daß bei zunehmender Überschußenergie die Energieaufteilung asymmetrischer wird, das heißt, daß man vorzugsweise ein schnelleres und ein langsames Elektron findet [44]. Für die Winkelverteilung gilt als erwiesen, daß bei steigender Energie eine Anisotropie auftritt, die von der Energieaufteilung der Elektronen abhängt, vgl. [36, 102].

Experimentelle Resultate, die eine quantitative Aussage zur Energieaufteilung und Winkelverteilung machen, liegen bei einer Energie von $E_\gamma = 174\text{ eV}$ zur Zeit jedoch nicht vor. Da es daher nicht möglich ist, die Normierung auf experimentelle Befunde zu stützen, wird auf eine Absolutnormierung der Resultate dieser Arbeit bei der Energie $E_\gamma = 174\text{ eV}$ verzichtet.

Kapitel 5

Zusammenstellung und Diskussion der Ergebnisse

5.1 Bisherige Resultate

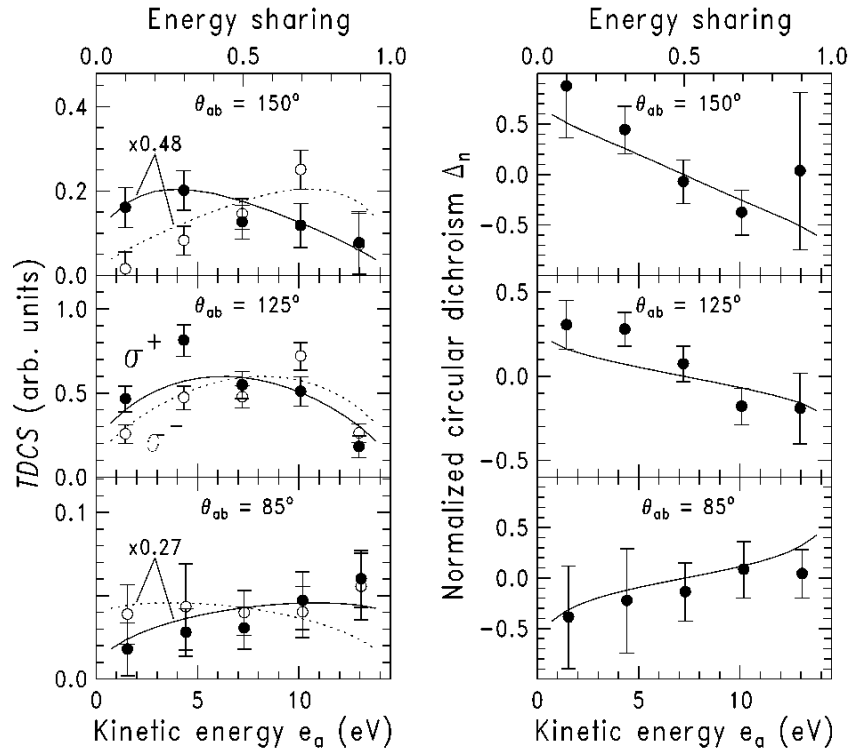


Abbildung 5.1: Erster experimenteller Nachweis des Dichroismus von Vieffhaus et al. [7] bei $(93,5 \text{ eV})\gamma + \text{He} \rightarrow \text{He}^{2+} + 2e^-$ Links: 5DCS bei drei verschiedenen Winkeln φ_2 (hier θ_{ab} genannt). Die vollen Punkte repräsentieren σ_+ -Licht, die offenen σ_- -Licht. Die Linien sind 3C-Rechnungen von Berakdar und Klar. Der Wirkungsquerschnitt ist in willkürlichen Einheiten aufgetragen, die theoretischen Resultate sind entsprechend der Indizierung unterschiedlich skaliert. Rechts: CD.

Der zirkulare Dichroismus in der Photodoppelionisation von Helium wurde theoretisch bereits 1992 von Berakdar und Klar vorhergesagt [3]. Die quantenmechanische Rechnung, basierend auf der 3C-Methode, siehe Abschnitt 2.2.3.2, wurde für eine Überschußenergie von $E_{\text{ex}} = 50 \text{ eV}$ durchgeführt. Die Asymmetrie des Wirkungsquerschnitts wird sowohl als Funktion der Energieaufteilung bei festgehaltenem Zwischenwinkel als auch als Winkelverteilung für eine asymmetrische Energieaufteilung dargestellt. Bei Umkehrung der Polarisierung spiegeln sich beide Spektren, was aufgrund der Ununterscheidbarkeit der Elektronen zwangsläufig gefordert wird.

Der erste und bis zum Zeitpunkt dieser Messung einzige experimentell bestimmte differentielle Wirkungsquerschnitt hierzu wurde 1996 von Viefhaus *et al.* veröffentlicht [7]. Diese Messung wurde mittels dreier Elektronen-Flugzeitspektrometern in koplanarer Geometrie (senkrecht zur Lichtausbreitungsrichtung) am Berliner Synchrotron (BESSY) durchgeführt. Das Experiment fand an einem Undulator-Strahlrohr für linear polarisiertes Licht bei einer Energie von 93,5 eV statt. Zur Erzeugung zirkularer Polarisation fügten die Experimentatoren ein $\lambda/4$ -Plättchen in den Strahlengang ein, wodurch sich die Intensität der Strahlung um einen Faktor 100 auf insgesamt etwa 10^{11} Photonen pro Sekunde reduzierte. Aufgrund der Meßmethode war nur ein sehr begrenzter Raumwinkel simultan erfassbar, so daß zugunsten statistischer Signifikanz auf einen Winkelscan verzichtet wurde. Die Messung blieb letztlich auf die drei festen Zwischenwinkel der Spektrometeranordnung beschränkt. Für die Ergebnisse der Messung bot sich daher eine Darstellung des Wirkungsquerschnitts bzw. des Dichroismus als Funktion der Energieaufteilung an, siehe Abb. 5.1. Das Resultat zeigt den Wirkungsquerschnitt bei Zwischenwinkeln von 85° , 125° und 150° für insgesamt fünf verschiedene Energieaufteilungen sowie für beide Polarisationsrichtungen. Die Symmetrie des Spektrums vorausgesetzt, sind die zwei Meßpunkte oberhalb und unterhalb gleicher Energieaufteilung paarweise redundant, jedoch statistisch unabhängig.

Der Vergleich mit den theoretischen Daten zeigt eine tendenzielle Übereinstimmung in der Energieverteilung, wenn auch speziell in der Darstellung des CD die statistische Genauigkeit nicht immer eine eindeutige Aussage erlaubt. Dies ist insbesondere bei dem Zwischenwinkel von 85° der Fall, bei dem eine Vorzeichenumkehr erwartet wird. Darüber hinaus zeichnet sich ab, daß die experimentelle und theoretische Winkelverteilung, sehr unterschiedlich ausfällt. Die theoretischen Kurven wurden, wie in Abb. 5.1 indiziert, unterschiedlich skaliert. Auch hier kann bestenfalls eine tendenzielle Übereinstimmung festgestellt werden. Ein signifikanter Vergleich mit der Theorie in der Winkelverteilung der Elektronen kann anhand der Daten von Viefhaus *et al.* jedoch nicht geleistet werden. Über die Absoluthöhe der Wirkungsquerschnitte wird keine Aussage gemacht.

Eine Vermessung der Winkelverteilung über den vollen Raumwinkel, zumindest aber über den gesamten Azimuthalwinkelbereich, mit ausreichender statistischer Signifikanz und gleichzeitig bei kontinuierlicher Energieaufteilung, erfordert nach dieser Erfahrung eine deutlich effizientere Technologie. Dies betrifft sowohl die Nachweismethode als auch die Photonenquelle. Die Rückstoßionenimpulsspektroskopie stellt zusammen mit der Beamline BL28A der Photon Factory dazu das geeignete Werkzeug dar.

5.2 Energieverteilung 99 eV und 174 eV

Die Energieverteilung der nachgewiesenen Elektronen ist, wie in den vorangegangenen Kapiteln an verschiedenen Stellen betont, ein Artefakt des experimentellen Aufbaus. Jedoch bietet sich anhand der Simulation und der nach Abschnitt 4.2.5 abgeschätzten Elektronenimpulsauflösung eine systematische Kontrollmöglichkeit.

Hierzu wird in Abb. 5.2 der Winkel ϑ_{det} gegen die errechnete Elektronenenergie aufgetragen. Die Punkte in den Spektren markieren die Endpunkte der in Abb. 4.8 dargestellten, errechneten Elektronenflugzeiten. Diese markieren gleichzeitig den äußersten Emissionswinkel unter dem ein Elektron der dort angegebenen Energie den Detektor erreichen konnte. Das Ergebnis der Messung bei 99 eV zeigt, daß nur eine geringe systematische Abweichung der aus der Simulation zu erwartenden Detektorausleuchtung vorliegt. Diese Abweichung besagt, daß die Anzahl der unter schrägem Einfallswinkel auf den Detektor gelangten Elektronen geringer war, als das Ergebnis der Simulation erwarten ließ. Ein wahrscheinlicher Grund dafür ist, daß die Transmission des Gitters für Elektronen mit flachem Einfallswinkel abnimmt. Dieser Effekt spielt bei geringer werdendem Abstand zwischen der Targetzone und dem Gitter eine immer größere Rolle. Bei der vorgegebenen Geometrie reduziert sich die Transmission für ein Gitter mit 50% offener Fläche bei einem Einfallswinkel von 30° bereits auf 40%. Dagegen werden die Drähte in der Simulation aus Abb. 4.8 durch unendlich dünne Linien markiert; ein solches Gitter besitzt immer eine Transmission von 100%.

Eine Verzerrung des Detektors wird nach der vorgenommenen Kalibrierung mit den Ereignissen aus der Einfachionisation ausgeschlossen.

Die Projektion derselben Spektren auf die x-Achse gibt die über alle koinzident nachgewiesenen Elektronen integrierte Energieverteilung wieder. Zur Demonstration des Untergrundabzugs ist in dem Spektrum der 99 eV-Messung nochmals die Verteilung mit und ohne Zeituntergrund dargestellt.

Anhand dieser Verteilung wird zum einen die Energieauflösung an der rechten Flanke der Spektren erkennbar. Hierzu ist festzuhalten, daß die Auflösungsbeschränkung tatsächlich, wie in Abschnitt 4.2.5 diskutiert, aus der Fortpflanzung der Rückstoßionenimpulsauflösung herrührt. Die Auflösung der zweiten Messung bei $E_\gamma = 174 \text{ eV}$ ist die gleiche, was auch die Abschätzung aus Abschnitt 4.2.5 bestätigt. Sie beträgt einheitlich $\Delta E_1 = \pm 1,5 \text{ eV}$. Die Anwendung des Energierhaltungssatzes zwingt die Verteilungen am rechten Rand des Intervalls bei $E_1 = E_{\text{ex}}$ jeweils auf den Wert null. Die linke Flanke dagegen repräsentiert eine Faltung aus der Energieauflösung und dem energieabhängig kleiner werdenden Nachweisintervall.

Weiterhin ist zu erkennen, daß die Spektren jeweils beider Polarisationsrichtungen innerhalb der statistischen Genauigkeit einen identischen Verlauf haben, woraus die Schlußfolgerung gezogen wird, daß die systematischen Fehler aus der Eichung des Ionenimpulsnullpunkts minimiert werden konnten.

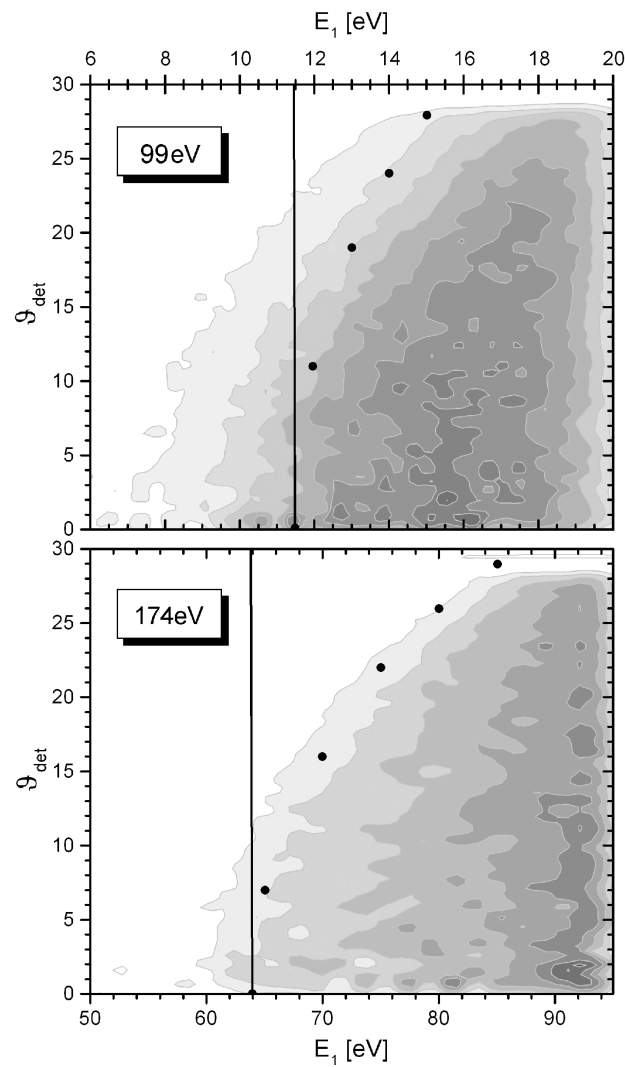


Abbildung 5.2: Detektorausleuchtung als Funktion der Energie des gemessenen Elektrons bei $E_\gamma = 99$ eV oben und bei $E_\gamma = 174$ eV unten. In vertikaler Richtung ist der Emissionswinkel des Elektrons ϑ_{det} aufgetragen. Die Punkte sind simulierte Werte der maximalen Winkel bei der entsprechenden Energie. Die senkrechten Linien markieren jeweils das Nachweisintervall.

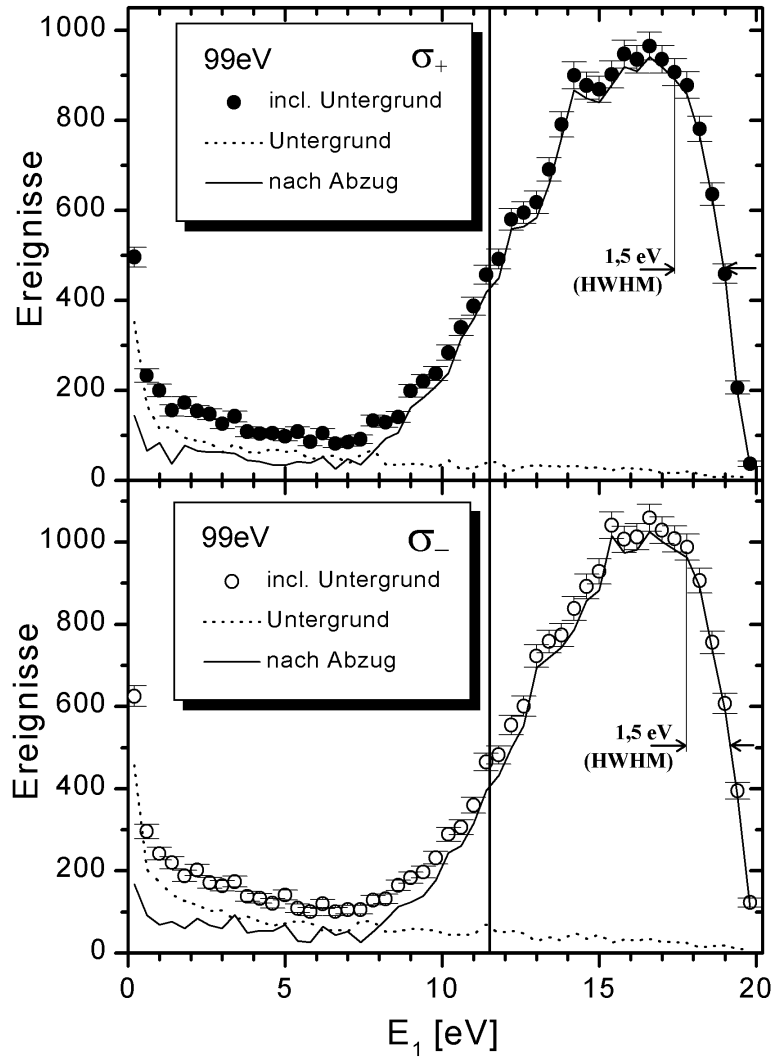


Abbildung 5.3: Energieverteilung des gemessenen Elektrons bei $E_\gamma = 99\text{ eV}$: oben LCP, unten RCP. Die senkrechte Linie markiert die untere Grenze des Nachweisintervalls.

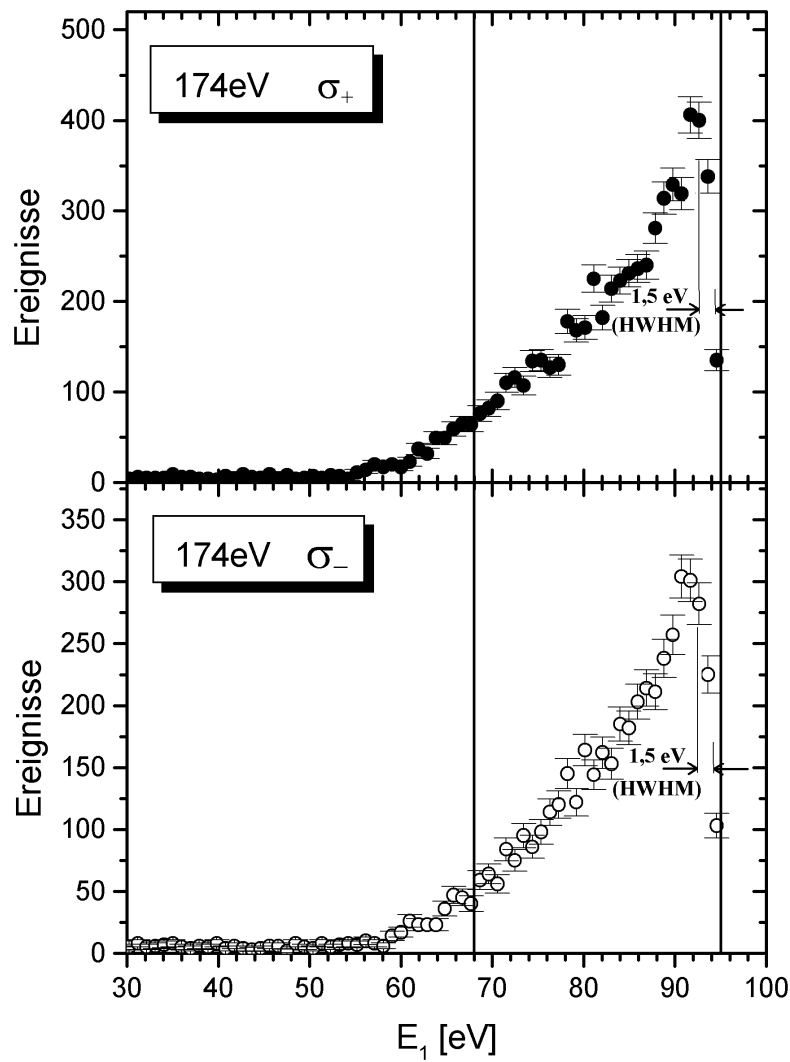


Abbildung 5.4: Energieverteilung des gemessenen Elektrons bei $E_\gamma = 174$ eV: oben LCP, unten RCP. Die senkrechten Linien markieren die untere und obere Grenze des Nachweisintervalls.

5.3 Impulsverteilung 99 eV und 174 eV

Eine sehr illustrative Darstellung des differentiellen Wirkungsquerschnitts bietet sich im Impulsraum der nachgewiesenen Teilchen in kartesischen Koordinaten. Diese Form der Spektren sind eng mit der Rückstoßionenimpulsspektroskopie verknüpft, stehen sie doch unmittelbar in linearem Zusammenhang mit den direkten Meßgrößen¹, vgl. (3.13).

Durch die technisch bedingten Vorgaben des Elektronennachweises ist eine differentielle Messung im Impulsraum erfolgt. Dadurch wird die Asymmetrie in der Ionenverteilung bereits in den Rohspektren erkennbar. Andererseits ist eine integralere Darstellung der Daten gar nicht mehr möglich, da sowohl die Energie als auch der Raumwinkel des Elektrons auf einen Ausschnitt beschränkt waren. Dadurch wird eine Koordinatentransformation zum Beispiel in Jakobikoordinaten unmöglich. Das kann man insbesondere an der Verteilung des Relativimpulses $\mathbf{k}_R = 1/2(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2)$ im dreidimensionalen Impulsraum erkennen, über den, aufgrund der komplizierten Transformation des Raumwinkels, nur sehr lückenhafte Information vorliegt.

Der Impulsraum wird durch den Impuls des einlaufenden Photons (positive z-Achse) und die Richtung des emittierten schnelleren und damit direkt nachgewiesenen Elektrons (positive x-Richtung) aufgespannt, vgl. Abb. 4.7 und Abb. 4.14. Die Spektren Abb. 5.5 und 5.6 zeigen den Wirkungsquerschnitt als Funktion der Impulsverteilung sowohl des Ions als auch des zweiten Elektrons in der x-y-Ebene. Diese beiden Darstellungen sind redundant und dienen hier nur zur Verdeutlichung der Äquivalenz zwischen der Impulsinformation des Elektrons und des Ions. Die Spektren sind in der Ebene senkrecht zur Photonenachse über einen Winkelbereich $\vartheta_1 = (90 \pm 10)^\circ$ bzw. $\vartheta_2 = (90 \pm 10)^\circ$ integriert (der Winkel ϑ_e wurde in Abb. 2.7 eingeführt). Diese Geometrie wird als koplanare Geometrie bezeichnet. Weitere Spektren für den Fall nicht koplanarer Geometrie $\vartheta_2 \in [0^\circ; 180^\circ]$ befinden sich im Anhang A.1. Der Impulsbetrag des Elektrons $|\mathbf{k}_1| = k_{x1}$ ist, dem Energienachweisfenster entsprechend, über das volle Nachweisintervall $k_{x1} \in [0,92; 1,21]$ bei 99 eV bzw. $k_{x1} \in [2,17; 2,64]$ bei 174 eV dargestellt. Das führt jedoch nicht zu einer Reduktion der Differenziertheit des Spektrums, da die Information über den Impulsbetrag redundant ist².

Der Wirkungsquerschnitt ist in dieser Darstellung folglich fünffach differentiell und wird mit $d^5\sigma^{2+}/(d\vartheta_1 dk_{y1} d\vartheta_2 dK_{xion} dK_{yion})$ und $d^5\sigma^{2+}/(d\vartheta_1 dk_{y1} d\vartheta_2 dk_{x2} dk_{y2})$ bezeichnet³.

Eine Asymmetrie tritt deutlich in y-Richtung zu Tage. Man sieht, daß die Elektronen in dieser Geometrie weitgehend in entgegengesetzter Richtung auseinanderlaufen,

¹Die Darstellung im Impulsraum ist aus der traditionellen Elektronenspektroskopie nicht bekannt, da diese eine direkte Bestimmung der Winkel- und Energieverteilung bietet. Differentielle Spektren dieser Form haben in der Spektroskopie daher eine größere Tradition, obgleich sie unserer räumlichen Vorstellung nicht unmittelbar zugänglich sind.

²Eine Einschränkung des Impulsintervalls für k_{x1} würde den dargestellten Impuls $\mathbf{k}_2$ auf einen Kreis mit dem Radius $\sqrt{2E_{ex} - k_{x1}^2}$ beschränken, vgl. Abb. 5.5 und Abb. 5.6.

³Tatsächlich existiert für das erste Elektron eine Rotationssymmetrie bezüglich der Strahlachse, die das Problem auf eine vierfach differentielle Darstellung reduziert. Aus technischen Gründen wurde aber dieses Elektron in einem Raumwinkel Fenster von 60° und somit differentiell nachgewiesen. In diesem Sinn werden alle künftigen Spektren als fünffach differentielle Spektren bezeichnet.

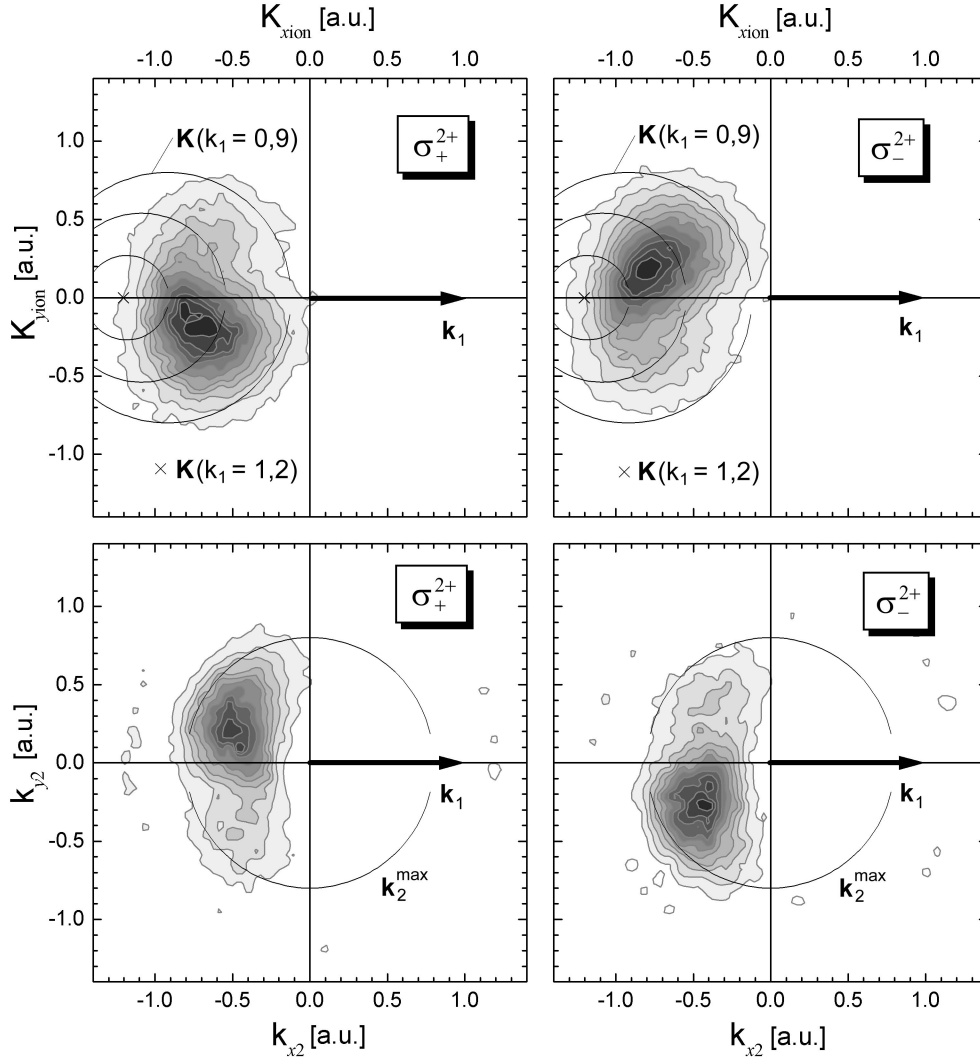


Abbildung 5.5: Fünffach differentielle Wirkungsquerschnitte für $E_\gamma = 99$ eV in koplanarer Geometrie. Oben: $d^5\sigma^{2+}/(d\vartheta_1 dk_{y1} d\vartheta_2 dK_{xion} dK_{yion})$. Die eingezeichneten Kreise und das Kreuz markieren mögliche Impulsverteilungen des Ions für verschiedene k_{x1} vom Maximal bis zum Minimum des Nachweisintervalls. Unten: $d^5\sigma^{2+}/(d\vartheta_1 dk_{y1} d\vartheta_2 dk_{x2} dk_{y2})$. Der Kreis markiert hier den maximal möglichen Impuls $|\mathbf{k}_2|$. Für die festgehaltenen Komponenten gilt: $\vartheta_1 = \vartheta_2 = (90 \pm 10)^\circ$, $k_{y1} = 0$ und $k_{x1} \in [0,92; 1,21]$.

Zwischenwinkel kleiner als 90° kommen somit kaum vor. Der Wirkungsquerschnitt ist nicht normiert, das heißt die Lage des Maximums der Verteilung ist entsprechend der Erkenntnis aus Abschnitt 5.2 falsch gewichtet⁴. Die Überschreitung der maximal möglichen Elektronenimpulse $\mathbf{k}_2^{\max}$ korrespondiert mit der Auflösung der Energieverteilung auf der niederenergetischen Seite der Spektren in Abb. 5.3 bzw. Abb. 5.4.

Zur Vollständigkeit der Darstellung des Impulsraums wird die Beschränkung auf die koplanare Geometrie aufgehoben und die Projektion des Ionenimpulses auf die z-Achse

⁴Eine flache Energieverteilung würde das Maximum an der Stelle des Kreuzes erscheinen lassen.

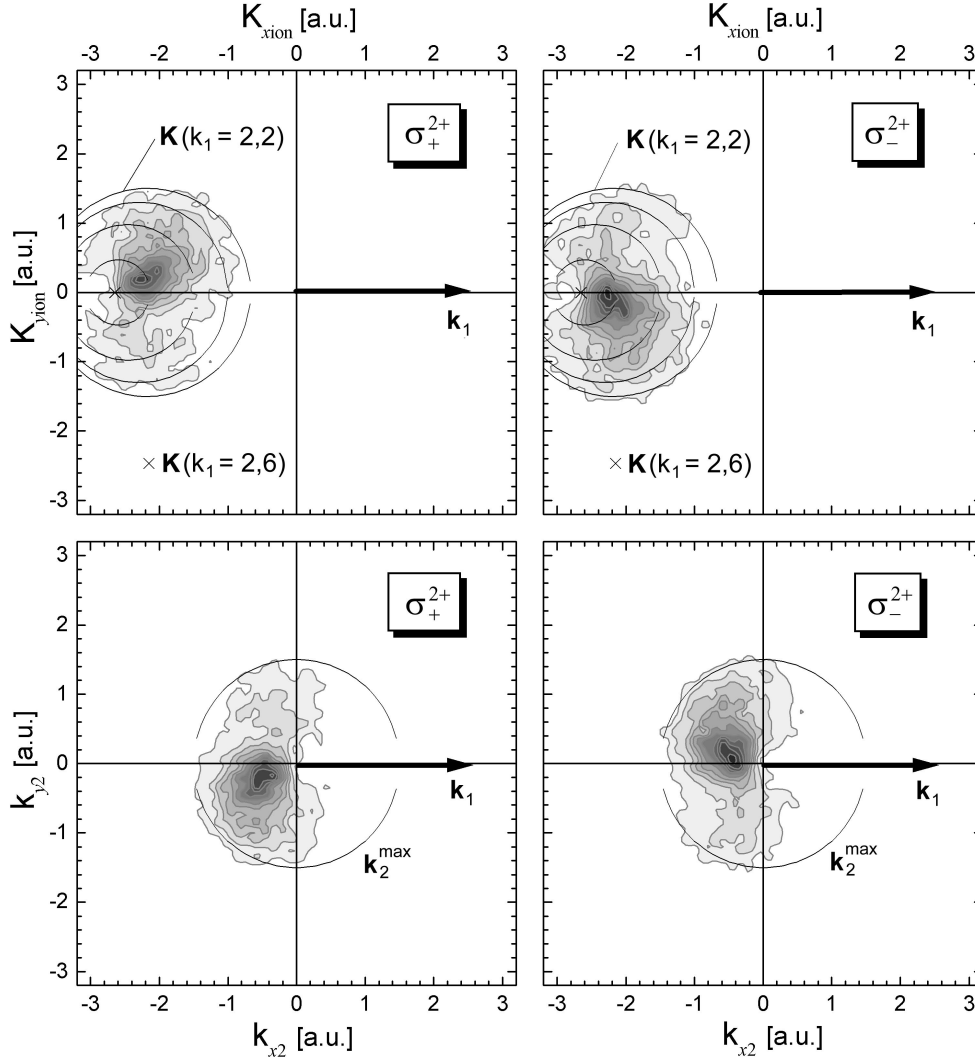
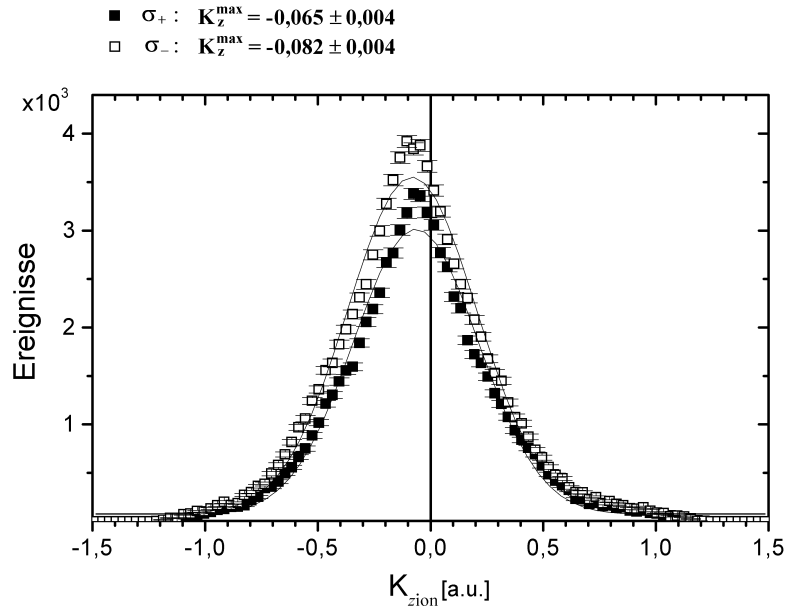
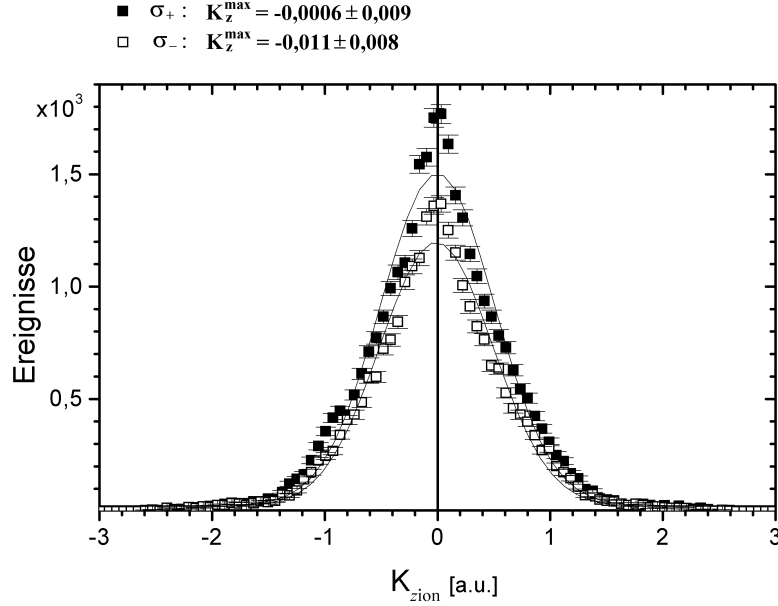


Abbildung 5.6: Fünffach differentielle Wirkungsquerschnitte für $E_\gamma = 174 \text{ eV}$ in koplanarer Geometrie. Oben: $d^5\sigma^{2+}/(d\vartheta_1 dk_{y1} d\vartheta_2 dK_{xion} dK_{yion})$. Die eingezeichneten Kreise und das Kreuz markieren mögliche Impulsverteilungen des Ions für verschiedene k_{x1} vom Maximal bis zum Minimum des Nachweisintervalls. Unten: $d^5\sigma^{2+}/(d\vartheta_1 dk_{y1} d\vartheta_2 dk_{x2} dk_{y2})$. Der Kreis markiert hier den maximal möglichen Impuls $|\mathbf{k}_2|$. Für die festgehaltenen Komponenten gilt: $\vartheta_1 = \vartheta_2 = (90 \pm 10)^\circ$, $k_{y1} = 0$ und $k_{x1} \in [2,17; 2,64]$.

ergänzt. Dabei wird über die beiden anderen Impulskomponenten K_{xion} und K_{yion} integriert, für das erste Elektron gilt weiterhin $\vartheta_1 = (90 \pm 10)^\circ$.

Die Impulsverteilung der Ionen zeigt eine leichte Rückwärtsorientierung, was nur auf eine etwas ungenaue Nullpunkteichung in der z-Richtung zurückzuführen ist. Der Betrag liegt im Mittel bei 0,07 für 99 eV und 0,01 für 174 eV und damit in beiden Fällen innerhalb der Auflösung der Impulsverteilung in z-Richtung. Deshalb wurde an dieser Stelle keine nachträgliche Korrektur dieses Wertes vorgenommen. Eine signifikante Auswirkung auf die Verteilung in den anderen Richtungen wird nicht angenommen. (Eine ausführliche Diskussion zu dem Einfluß der Eichung auf die Winkelverteilung des Elektrons befindet


Abbildung 5.7: $d^2\sigma^{2+}(K_{z\text{ion}})/(d\vartheta_1 dK_{z\text{ion}})$ bei $E_\gamma = 99$ eV.

Abbildung 5.8: $d^2\sigma^{2+}(K_{z\text{ion}})/(d\vartheta_1 dK_{z\text{ion}})$ bei $E_\gamma = 174$ eV.

sich im Anhang A.5.) In beiden Fällen ist keine deutliche Abhängigkeit der z-Komponenten des Ionenimpulses von der Polarisationsrichtung erkennbar.

5.4 Elektronenwinkelverteilung 99 eV

In diesem Abschnitt werden die Daten in Form von Winkelspektren, das heißt in Polarkoordinaten, dargestellt, da die zum Vergleich vorliegenden theoretischen Ergebnisse ebenfalls diese Form aufweisen. Dies ist die aus der Elektronenspektroskopie stammende traditionelle Darstellungsform. Die Ergebnisse werden zur besseren Übersicht für 99 und 174 eV getrennt behandelt, bevor im letzten Abschnitt dieses Kapitels eine zusammenhängende Interpretation erfolgt.

Die verwendeten Polarkoordinaten wurden in Abb. 2.7 als Strahlsystemkoordinaten eingeführt. Das schnelle Elektron wird, wie in der Impulsdarstellung, in x-Richtung, also in den Spektren nach rechts aufgetragen, während die durch $\mathbf{k}_\gamma$ definierte z-Richtung aus der Bildebene herausdeutet. Der Winkel φ_2 wird entgegen dem Uhrzeigersinn gegen die positive x-Richtung aufgetragen und bildet den Zwischenwinkel beider Elektronen-Emissionsrichtungen. Beide Winkel ϑ_1 und ϑ_2 beschränken sich wiederum auf das Intervall $[80^\circ; 100^\circ]$ (koplanare Geometrie).

Im Anhang A.2 befinden sich weitere Spektren, in denen auch Winkel $\vartheta_2 \in [0^\circ; 180^\circ]$ zugelassen werden.

Bevor zu den einzelnen Winkelspektren in eindimensionaler Darstellung übergegangen wird, soll zunächst eine zweidimensionale Übersichtsdarstellung der Winkelverteilung erfolgen. Hierin ist der Wirkungsquerschnitt in willkürlichen Einheiten als Funktion des Zwischenwinkels φ_2 im Intervall $[90^\circ; 270^\circ]$ und der Elektronenenergieaufteilung aufgetragen. Nach (2.66) wird das Verschwinden des Dichroismus für den Fall gleicher Energieaufteilung sowie für das Entfallen eines der Vektoren $\mathbf{k}_1$, $\mathbf{k}_2$ oder $\mathbf{k}_\gamma$ vorhergesagt. Beiden Fällen liegen Symmetrieüberlegungen zugrunde: Ersterer ist eine Konsequenz der Ununterscheidbarkeit der Elektronen, zweiter eine Konsequenz der Notwendigkeit eines Dreibeins, um eine Orientierung oder Händigkeit zu ermöglichen. An dieser Stelle bleibt die Frage offen, ob eine Asymmetrie in der Winkelverteilung als Funktion der Energieaufteilung stetig variiert oder ob der Dichroismus für $E_1 \rightarrow E_{\text{ex}}$ bzw. $E_2 \rightarrow 0$ beispielsweise konstant bleibt. Aus (2.66) geht dafür keine Notwendigkeit hervor. Es wäre sogar denkbar, daß im Fall stark asymmetrischer Energieaufteilung der CD einen konstanten Betrag behält der sich in der Einfachionisation mit einem hochangeregten Rydbergzustand durch eine Art „asymmetrische Polarisation“ des He^{1+} -Ions fortsetzt⁵.

In den theoretischen Rechnungen ist dazu keine einheitliche Aussage zu finden. Die Winkelverteilung nach [3] von Berakdar und Klar deuten für der Fall $E_2 \rightarrow 0$ eV an, daß der Dichroismus nicht stetig verschwindet. Feagin sagt dagegen voraus, daß die Asymmetrie in stetiger Weise gegen null geht [164].

Das Ergebnis dieser Messung zeigt, daß die Winkelverteilung eine deutlich stärkere Asymmetrie für Energien $E_1 \in [12 \text{ eV}; 18 \text{ eV}]$ aufweist als im Fall $E_1 > 18 \text{ eV}$. Die experimentellen Befunde für $E_{\text{ex}} = 20 \text{ eV}$ deuten im Rahmen der Auflösung somit eher darauf hin, daß der Dichroismus stetig als Funktion der Energieaufteilung abnimmt.

⁵Selbst dann wäre die Forderung nach (2.66) nicht verletzt, da auch hier der Impuls des zweiten Elektrons wegfiel und eine meßbare Asymmetrie somit aufgehoben wäre.

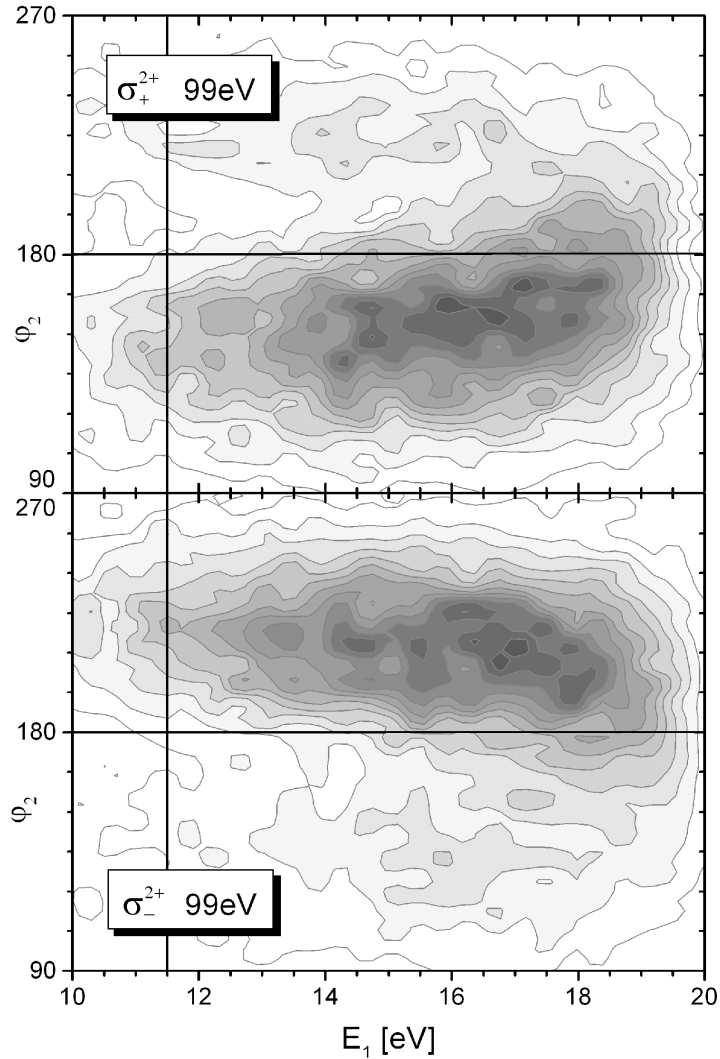


Abbildung 5.9: 5DCS als 2D-Funktion von E_1 und φ_2 bei 99 eV, oben σ^+ , unten σ^- . Die senkrechte Linie markiert die untere Grenze des Nachweisintervalls.

An dieser Stelle sei vorab bemerkt, daß ein Vergleich der Verteilungen rechts und links zirkularer Polarisation als Kontrollmöglichkeit der Nullpunktbestimmung in y-Richtung dient, wenn man Spiegelsymmetrie für beide Verteilungen voraussetzt. Diese Symmetrie ist in Abb. 5.9 gut zu erkennen, ein quantitativer Vergleich erfolgt in Abb. 5.14.

Im folgenden werden Projektionen der Spektren aus Abb. 5.9 auf die Winkelkoordinate vorgestellt. Sie enthalten keine neue Information, ermöglichen aber aufgrund der Reduktion auf eine einzelne Koordinate einen signifikanteren quantitativen Vergleich mit den experimentellen Daten aus der Photodoppelionisation mit linear polarisiertem Licht sowie mit theoretischen Ergebnissen.

5.4.1 Abzug linearer Anteile

Anhand der Ergebnisse aus Abschnitt 2.2.1.4 zeigt sich, daß zur Berechnung von Wirkungsquerschnitten der Polarisationsvektor unmittelbar in das Übergangsmatrixelement eingeht. Die Analyse des Verhaltens der Fragmente der Photoionisation beschränkt sich in der dort angegebenen Form auf reine Polarisationszustände. Auch die in dieser Arbeit vorgestellten theoretischen Ergebnisse verwenden nur rein zirkular polarisierte elektromagnetische Wellen.

Der experimentell vorliegende Polarisationszustand ist jedoch nach Abschnitt 4.2.6 im Fall $E_\gamma = 99 \text{ eV}$ unter der Voraussetzung eines Polarisationsgrads $P = 0,97$ durch den Stokesvektor

$$\mathbf{S}_{\text{Stokes}}(LCP) = I_{\text{tot}} \begin{pmatrix} 1 \\ 0,29 \\ 0 \\ -0,93 \end{pmatrix}$$

$$\mathbf{S}_{\text{Stokes}}(RCP) = I_{\text{tot}} \begin{pmatrix} 1 \\ 0,28 \\ 0 \\ 0,93 \end{pmatrix}$$

definiert⁶.

Um die Auswirkung der linearen Anteile auf den differentiellen Wirkungsquerschnitt abschätzen zu können, betrachten wir uns zunächst den Wirkungsquerschnitt linear polarisierter Strahlung allein, siehe Abb. 5.10. In dieser Darstellung ist der absolut normierte Wirkungsquerschnitt für linear polarisiertes Licht aus einer Messung von Bräuning *et al.* [27] wie auch der gemessene Wirkungsquerschnitt im Fall rechts zirkularer Polarisation in gleicher Weise aufgetragen. Das schnelle Elektron wird für vier verschiedene Energieaufteilungen nach rechts festgehalten, die Polarisationsachse ist dem Ergebnis aus Abschnitt 4.2.6 entsprechend eingezeichnet. Es läßt sich feststellen, daß die Winkelverteilungen aus den Messungen mit beiden Polarisationszuständen sehr ähnliche Formen aufweisen. Hieraus ergibt sich insbesondere dadurch ein Problem, daß beim Wechsel der Polarisationsrichtung von RCP nach LCP auch die Neigung der Polarisationsachse der linearen Anteile umklappte. Das bedeutet nämlich, daß die nachweisbare Asymmetrie in der Winkelverteilung nicht von vorne herein auf die Anteile zirkular polarisierter Strahlung zurückzuführen ist. Wie aber ist der Beitrag durch linear polarisierte Strahlung zu dem gemessenen Gesamtwirkungsquerschnitt gewichtet?

Bei der folgenden Überlegung zur Korrektur der Daten wird davon ausgegangen, daß es sich um einen gemischten Polarisationszustand also die inkohärente Überlagerung jeweils einer rein zirkular, rein linear und einer völlig unpolarisierten Welle handelt. Nach (2.19)-(2.21) ergibt sich dadurch für die Intensitäten entlang der jeweiligen Koordinaten

$$I_x(LCP) = I_{\text{tot}} \tilde{S}_1 = 0,29 \quad I_x(RCP) = I_{\text{tot}} \tilde{S}_1 = 0,28$$

⁶Hierbei wird, den Ergebnissen aus Abschnitt 4.2.6 entsprechend, das Koordinatensystem so gedreht, daß die Hauptachse der Polarisationsellipse mit der x-Achse des Koordinatensystems zusammenfällt.

$$I_+(LCP) = I_{\text{tot}} S_3 = -0,93 \quad I_-(RCP) = I_{\text{tot}} S_3 = 0,93$$

$$I_{\text{unpol}} = \sqrt{1 - P} = 0,24,$$

mit der Intensität des Anteils unpolarisierter Strahlung I_{unpol} und der totalen Intensität, die sich aus der Summe aller Einzelintensitäten errechnet. Der gemessene Wirkungsquerschnitt $5DCS_{\text{meas}}$ setzt sich nach [165] aus

$$5DCS_{\text{meas}} = \sum_j \frac{I_j}{I_{\text{tot}}} 5DCS_j, \quad (5.1)$$

zusammen. Die Summe hierin wird über alle Polarisationsrichtungen $j = (x, y, +, -, \text{unpol})$ gebildet. Daraus resultiert die Korrekturfunktion für die Berechnung des Wirkungsquerschnitts aus Photoionisationen durch rein zirkular polarisiertes Licht

$$5DCS_{+/-} = \frac{1}{S_3} 5DCS_{\text{meas}} - \frac{\tilde{S}_1}{S_3} 5DCS_x - \frac{\sqrt{1 - (\tilde{S}_1^2 + S_3^2)}}{S_3} 5DCS_{\text{unpol}}. \quad (5.2)$$

Unter Vernachlässigung des unpolarisierten Anteils — der zugehörige Wirkungsquerschnitt ist zwangsläufig in der oberen und unteren Hälfte des Spektrums symmetrisch und kann somit keinen Beitrag zum Dichroismus liefern — gewinnt man die Verteilung des Elektrons für den rein zirkular polarisierten Fall durch Subtraktion des entsprechend der Stokes-Parameter gewichteten linearen Anteils.

Es zeigt sich hier, daß in dieser Messung die linearen Anteile keine wesentliche Veränderung der Winkelverteilung der Elektronen herbeiführen. Damit kann die Asymmetrie nahezu vollständig den zirkularen Anteilen des Lichts zugerechnet werden.

5.4.2 Eindimensionale Winkelspektren

Neben den Winkelspektren in Polardarstellung ist in den nun folgenden Spektren jeweils auf der rechten Abbildungshälfte der aus den Winkelverteilungen errechnete Dichroismus linear gegen den Winkel φ_2 aufgetragen. Es werden hier exemplarisch die Ergebnisse für zwei Energieaufteilungen vorgestellt, weitere befinden sich im Anhang A.2.

Die Ergebnisse der Messung bei der Energie $E_\gamma = 99 \text{ eV}$ zeigen in der Form der Winkelverteilung eine deutliche Abweichung von allen theoretischen Vorhersagen, unabhängig von der Energieaufteilung. Dabei ist vor allem auffällig, daß die Elektronen stärker in entgegengesetzter Richtung orientiert sind, als es die theoretischen Modelle prognostizieren. Dies wird insbesondere bei stark asymmetrischer Energieaufteilung ($E_1 = 18,5 \text{ eV}$ und $19,5 \text{ eV}$, siehe Anhang A.2) sichtbar. Als Folge des überhöhten Wirkungsquerschnitts bei entgegengesetzt emittierten Elektronen ist der Nulldurchgang des Dichroismus bei 180° nach den experimentellen Ergebnissen deutlich flacher als bei den theoretischen Resultaten. Auch der Absolutwert des experimentell ermittelten Dichroismus erreicht in keinem Fall den theoretischen Wert.

Darüber hinaus kann festgestellt werden, daß es auch signifikante Abweichungen der Theorien untereinander gibt. Insbesondere der Absolutwert der 3C- und 2C-Rechnungen ist, wie schon in Abschnitt 2.2.3.2 herausgestellt, eine Schwachstelle dieses quantenmechanischen Ansatzes. Die Ergebnisse aus diesen Rechnungen wurden mit unterschiedlichen Faktoren

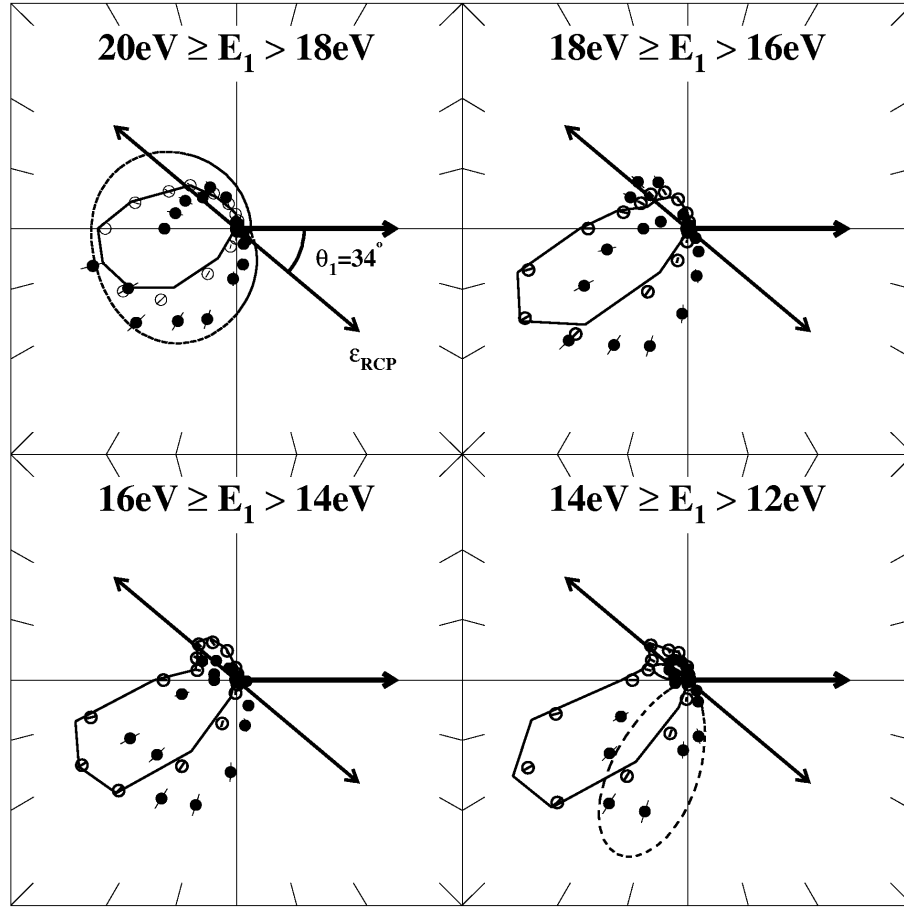


Abbildung 5.10: 5DCS als Funktion von φ_2 bei 99 eV. Die vollen Punkte sind absolut normierte Daten aus der Messung mit linear polarisiertem Licht von Bräuning et al. [27], der Doppelpfeil indiziert die Lage der Polarisationsachse. Zur Orientierung ist eine Rechnung vierter Ordnung Wannier-Theorie für linear polarisiertes Licht von Feagin aus [26] als gestrichelte Linie eingezeichnet. Die offenen Punkte sind die absolut normierten Daten aus dieser Messung (RCP), die durchgezogene Linie entspricht der Differenz beider nach (5.2) gewichteter Datensätze.

skaliert, siehe Abb. 5.11. Das Resultat der CCC-Rechnung ist dagegen absolut und im Fall asymmetrischer Energieaufteilung in guter Übereinstimmung mit den experimentell bestimmten Werten. Bei zunehmend gleichmäßig aufgeteilter Überschußenergie unterschätzt die Theorie das experimentelle Resultat um etwa einen Faktor zwei im Maximalwert. Der theoretische Wirkungsquerschnitt, integriert über φ_2 , variiert vom symmetrischen zum asymmetrischen Fall im Intervall $[2,4 \times 10^{-4} \text{ a.u.}; 3,3 \times 10^{-4} \text{ a.u.}]$. Dieser Sachverhalt kann anhand der Winkelspektren im Anhang A.2 nochmals überprüft werden. Dort sind Spektren über das gesamte Nachweisintervall in 1 eV-Schritten dargestellt. Diese enthalten zum Vergleich die Verteilung nach der Rechnung von Bray *et al.*

Interessant für die Beurteilung der theoretischen Ergebnisse ist die Konsistenz der Ergebnisse, wenn sie in unterschiedlichen Eichungen berechnet werden. In Abb. 5.12 sind zu diesem Zweck die 3C- und die CCC-Rechnungen jeweils in zwei bzw. drei Eichungen gegenübergestellt. Die 3C-Rechnung wurde zudem für drei unterschiedliche Anfangs-

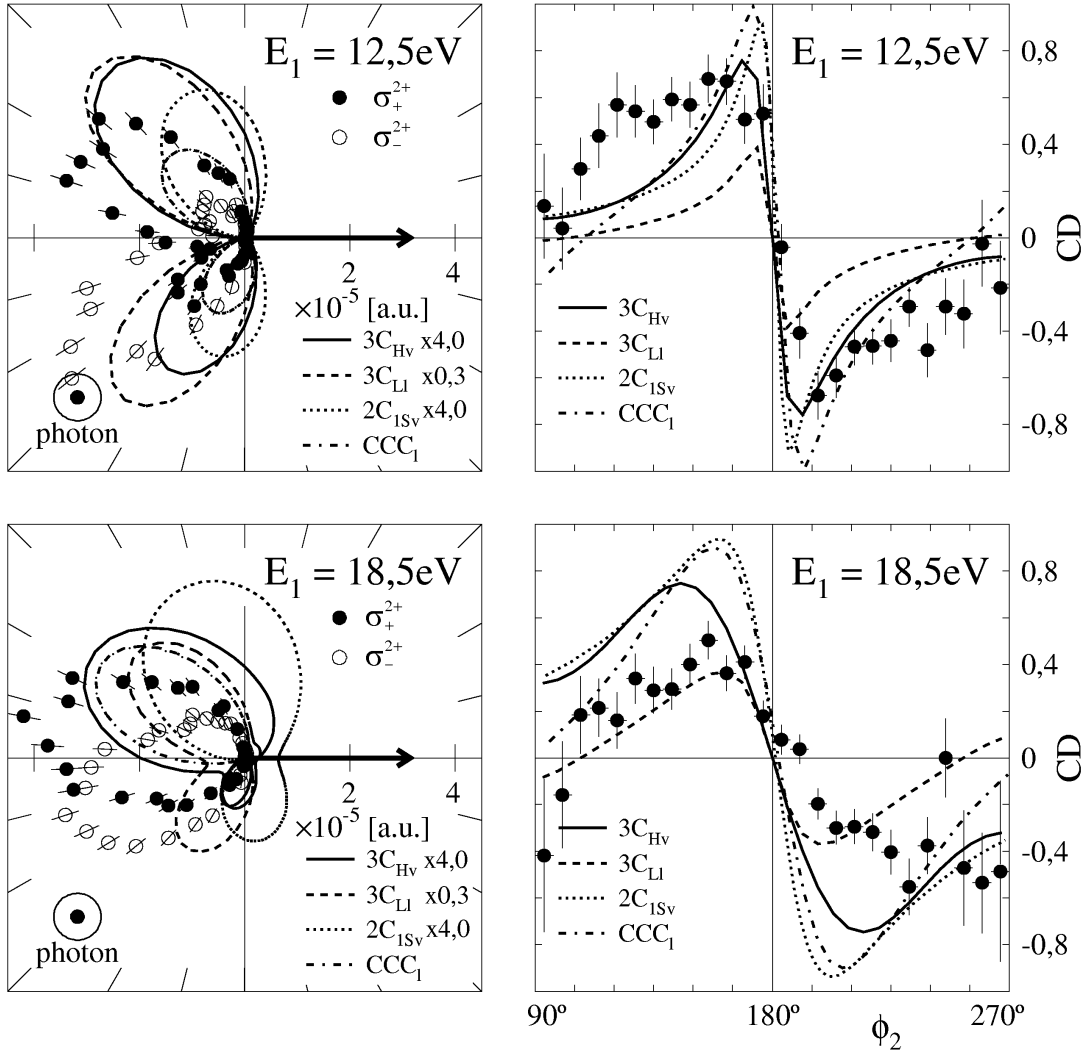


Abbildung 5.11: $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\phi_2)$ links und CD rechts für $E_\gamma = 99\text{ eV}$, $E_1 = 12,5\text{ eV}$ oben und $18,5\text{ eV}$ unten. Die vollen Punkte markieren die Meßdaten für LCP die offenen für RCP. Zum Vergleich sind für links zirkulare Polarisation eingezeichnet: Zwei $3C$ -Rechnungen von Berakdar mit einem Anfangszustand vom Hylleraas-Typ in Geschwindigkeitsform (durchgezogene Linie) und vom Le Sech-Typ in Längenform (gestrichelte Linie); eine $2C$ -Rechnung von Keller mit zwei $1s$ -Grundzuständen in Geschwindigkeitsform (punktierte Linie); und eine CCC -Rechnung von Bray et al. (strichpunktierte Linie). Die CCC -Rechnung ist absolut, die übrigen Theorien sind wie angegeben skaliert. Spektren dieses Typs bei anderer Energieaufteilung sind in Anhang A.2 zu finden.

zustände durchgeführt. Das Ergebnis zeigt im Fall der convergent-close-coupling-Methode von Bray *et al.* eine hervorragende Übereinstimmung aller drei Formen. Dies betrifft sowohl die Winkelverteilung als auch die Absoluthöhe. Die Rechnung von Berakdar zeigt eine dramatische Abhängigkeit von der gewählten Eichung, dagegen ist der Einfluß des Grundzustands zunächst vernachlässigbar: Der Wechsel von der Längen- zur Geschwindigkeitsform, unter Beibehaltung derselben Grundzustandsbeschreibung, führt sowohl zu einer Änderung der Winkelverteilung als auch der Absoluthöhe des Wirkungsquerschnitts.

Der Austausch der Grundzustandswellenfunktion ändert die Winkelverteilung nur geringfügig. Die 2C-Rechnung von Keller nimmt, die Form der Winkelverteilung betreffend, eine Sonderstellung ein, da hier die Wechselwirkung der Elektronen im auslaufenden Kanal nicht berücksichtigt werden. Sie dient in diesem Sinn der systematischen Untersuchung unterschiedlicher Einflüsse der verschiedenen theoretischen Modelle. Hierzu liegt keine Betrachtung in unterschiedlichen Formen vor.

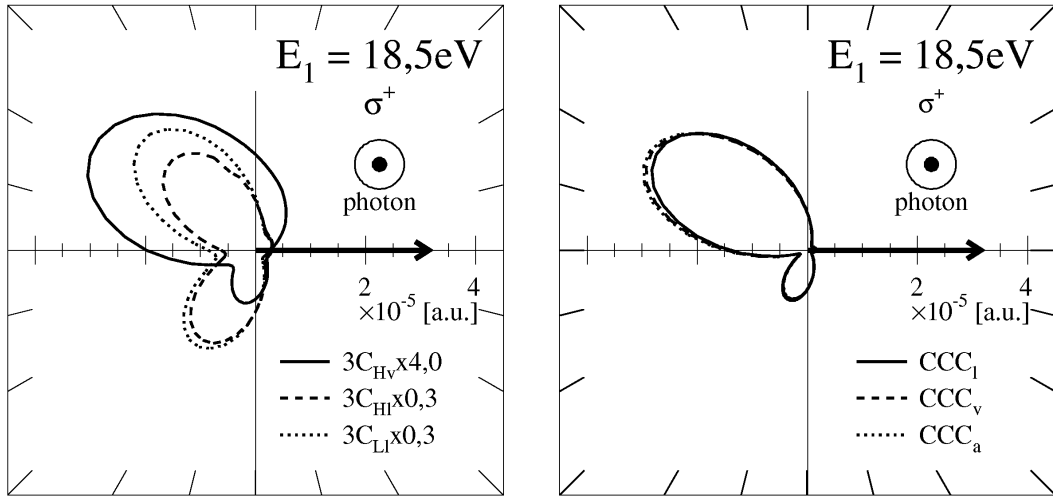


Abbildung 5.12: Konsistenz der Theorien anhand der Energieaufteilung $E_1 = 18,5 \text{ eV}$ aus Abb. 5.11. Links 3C-Rechnungen von Berakdar mit Hylleraas- und Le Sech-Anfangszuständen in Längen- und Geschwindigkeitsform; rechts CCC-Rechnungen von Bray in Längen-, Geschwindigkeits- und Beschleunigungsform.

Dem im Abschnitt 2.5 vorgestellten Vorschlag von Berakdar [6] folgend wird die Summe aus den Wirkungsquerschnitten rechts- und links zirkularer Polarisation anhand der Winkelspektren untersucht und mit den Ergebnissen aus der Photodoppelionisation mit linear polarisiertem Licht verglichen⁷. Die Addition wird für insgesamt vier verschiedene Energieaufteilungen durchgeführt. Die übrigen Variablen sind wie bisher durch koplanare Geometrie und erstes Elektron nach links fixiert. Im Fall linearer Polarisation erhält man als ersten Summanden den Wirkungsquerschnitt als Funktion von ϑ'_2 für einen beliebigen Winkel ϑ'_ϵ zwischen dem ersten Elektron und der Polarisationsachse. Der zweite Summand wird durch Drehung der Polarisationsachse auf einen Zwischenwinkel $\vartheta'_\epsilon + \pi/2$ gebildet. Dabei wird die Verteilung jeweils über φ'_1 integriert, um die Rotationssymmetrie auszunutzen. Die Summe der Wirkungsquerschnitte aus der Messung mit linearer Polarisation wird zur inhärenten Kontrolle dieser Daten über jeweils drei verschiedene Zwischenwinkel ϑ'_ϵ zwischen $17,5^\circ$ und 40° gebildet. Ein Vergleich dieser Spektren befindet sich im Anhang A.4. Das Ergebnis dieses Vergleichs sei hier vorweggenommen: Man findet, daß die Summen immer im Rahmen der statistischen Fehler der gemessenen Wirkungsquer-

⁷Die Gesetzmäßigkeit (2.69) aus Abschnitt 2.5 hat in allen Darstellungsformen des Wirkungsquerschnitts Gültigkeit. Der Vergleich linearer und zirkularer Polarisation kann daher prinzipiell auch in anderen Spektren erfolgen. Dies gilt auch für integrale Darstellungen.

schnitte übereinstimmen.

Vergleicht man die Summen als Funktion der Energieaufteilung, findet man ein wesentliches Unterscheidungsmerkmal: Im Fall nahezu gleicher Energie der Elektronen weist die Summe ein charakteristisches Minimum bei 180° auf, das bei ungleicher Energieaufteilung vollständig aufgefüllt ist. Diese Tendenz zeigen sowohl die Messungen mit linear wie auch mit zirkular polarisiertem Licht. Die Verteilung des Summen-Wirkungsquerschnitts ist im Fall zirkularer Polarisation jedoch deutlich schmaler: Als Folge zeigt sich der absolute Maximalwert der Summe etwa 20 – 50% höher als im Fall linearer Polarisation.

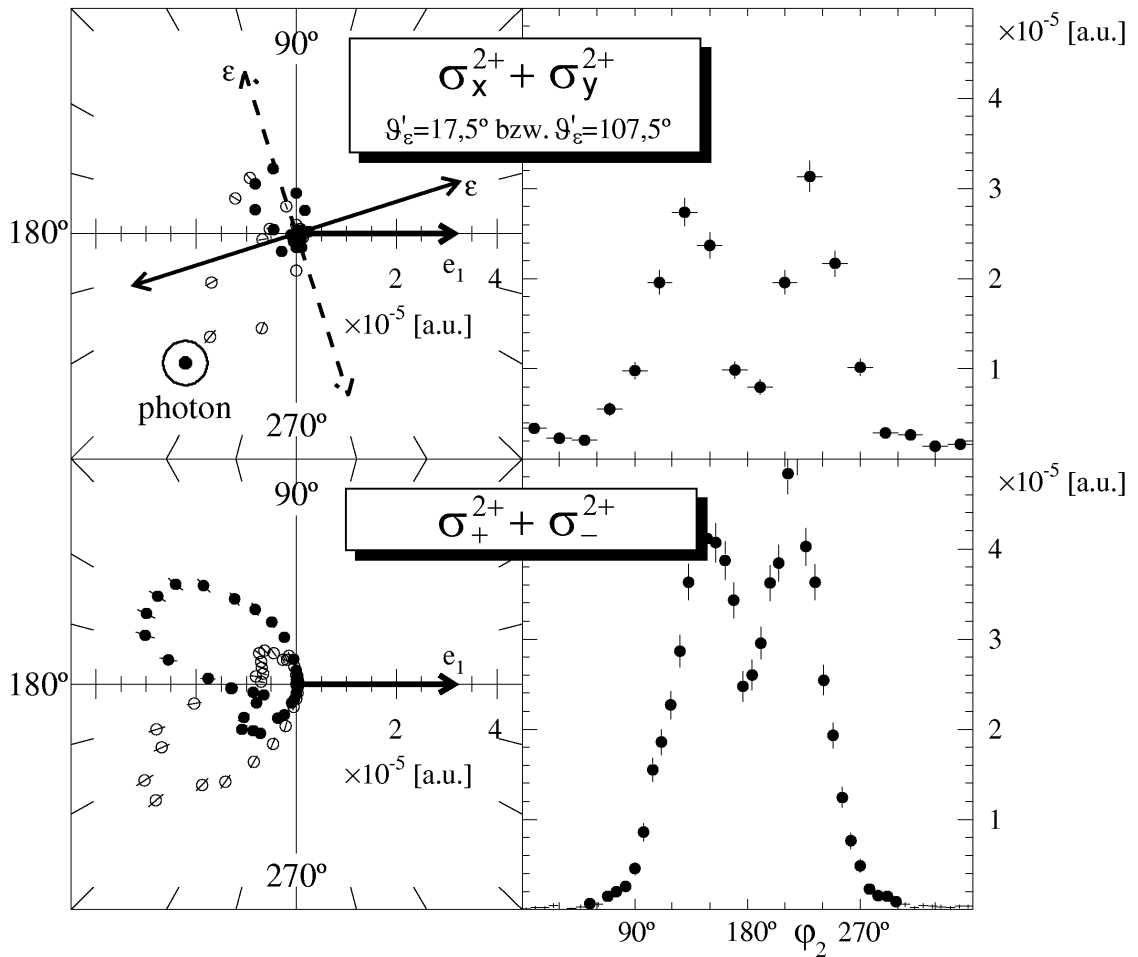


Abbildung 5.13: $5DCS(\varphi_2)$ für $E_\gamma = 99\text{ eV}$ und $E_1 \in [12\text{ eV}; 14\text{ eV}]$. Oben: Wirkungsquerschnitte der Photoionisation mit linear polarisiertem Licht für einen festen Winkel $\vartheta'_\epsilon = 17,5^\circ$ zwischen der Polarisationsachse (ϵ) und dem ersten Elektron und der dazu senkrechten Konfiguration (gestrichelter ϵ -Feldvektor). Unten: Rechts- (offene Punkte) sowie links zirkular polarisiertes Licht (volle Punkte). Linke Seite: Winkelspektren; rechte Seite: Summe jeweils beider Wirkungsquerschnitte „ $d^5\sigma_x^{2+} + d^5\sigma_y^{2+}$ “ bzw. „ $d^5\sigma_+^{2+} + d^5\sigma_-^{2+}$ “. Spektren dieses Typs bei anderer Energieaufteilung sind in Anhang A.4 zu finden.

Der Schluß der Betrachtung bei $E_\gamma = 99\text{ eV}$ ist dem Verhalten des Dichroismus in Abhängigkeit von der Energieaufteilung gewidmet. Dieser funktionale Zusammenhang ist für einzelne ausgewählte Zwischenwinkel φ_2 analog der Darstellung aus Abb. 5.1 aufge-

tragen und dient somit unter anderem dem Vergleich mit den dort vorgestellten experimentellen Resultaten von Viefhaus *et al.* Die Energieaufteilung ist dazu auf die Überschußenergie E_{ex} normiert, um einen Vergleich bei verschiedenen Photonenenergien zu ermöglichen⁸. Desweiteren ist der Verlauf des CD auch nach der theoretischen Vorhersage des 3C-Modells von Berakdar in Geschwindigkeitsform mit einem Anfangszustand des Hylleraas-Typs und nach der CCC-Methode, berechnet in Geschwindigkeitsform, abgebildet.

Der zirkulare Dichroismus verschleiert zwar Detaillkenntnisse, die aus den Winkelspektren der einzelnen Polarisationszustände hervorgehen⁹, an dieser Stelle dient er aber vor allem als systematischer Test der Messung. Die Berechnung der Differenz $d^5\sigma_+^{2+} - d^5\sigma_-^{2+}$ an der Stelle φ_2 ist theoretisch aus Gründen der Symmetrie gleich der Differenz $d^5\sigma_-^{2+} - d^5\sigma_+^{2+}$ an der Stelle $2\pi - \varphi_2$. Beide Differenzen sind aber aufgrund der unterschiedlichen Zwischenwinkel statistisch unabhängig. In Abb. 5.14 sind jeweils beide Differenzen gebildet und deren Unterschied als systematischer Fehler zu dem statistischen Fehler addiert. In den Fehlerbalken spiegelt sich also sowohl die statistische Signifikanz als auch die Symmetrie der Verteilung und somit letztlich die Genauigkeit des Impulsnullpunkts in der y-Richtung wieder.

Man findet, daß eine Übereinstimmung des Vorzeichens im CD zwischen Theorie und diesen experimentellen Daten für alle Winkel vorliegt. Darüber hinaus stimmen auch die Vorzeichen der experimentellen Befunde von Viefhaus *et al.* mit denen dieser Messung außer bei dem Zwischenwinkel von 85° überein¹⁰. Über den Verlauf des CD kann bei diesem Winkel aufgrund der geringen statistischen Signifikanz keine relevante Aussage gemacht werden.

Während sich anhand der experimentellen Befunde erkennen läßt, daß der Dichroismus unabhängig von dem ausgesuchten Winkel für den asymmetrischen Fall gegen null tendiert, zeigen die Resultate der Theorie keineswegs einen einheitlichen Verlauf unabhängig vom Winkel. In den Fällen kleiner Winkel $\varphi_2 \leq 125^\circ$ nimmt der CD bis zur maximal berechneten Energie $E_1 = 19,5 \text{ eV}$ monoton zu. Im Fall $\varphi_2 = 150^\circ$ sind sich die Theorien nicht einig, nach den 3C-Resultaten fällt der CD leicht am rechten Ende des Spektrums, nach der CCC-Rechnung hat er das Maximum bei $19,5 \text{ eV}$ noch nicht erreicht. Für $\varphi_2 = 175^\circ$ fällt er über den gesamten Energiebereich monoton. Die experimentellen Datenpunkte lassen kritisch betrachtet aber auch erkennen, daß eine Aussage über das Verhalten des CD für den sehr asymmetrischen Fall am rechten Spektrumrand aufgrund großer statistischer Fehler, vgl. Abb. 5.3, nicht eindeutig belegbar ist.

Unter 175° trägt vor allem die Winkelauflösung und der systematische Fehler zu den großen Fehlerbalken bei.

⁸Die Auftragung des CD und der Winkelverteilung in Abb. 5.1 ist aufgrund einer anderen Koordinatendefinition nicht konsistent mit der hier gewählten. Der Winkel wird nach [7] dort im mathematisch negativen Sinn aufgetragen, das Vorzeichen des CD kehrt sich dadurch in Abb. 5.1 um.

⁹Daß bei der Subtraktion Information verloren geht, kann leicht anhand der 2C-Rechnung gesehen werden. Obwohl die Winkelverteilung eine sehr unterschiedliche Charakteristik verglichen mit den anderen Resultaten aufweist, zeigt der CD doch einen ähnlichen Verlauf.

¹⁰Für $\varphi_2 = 85^\circ$ wird auch durch die Theorie eine Vorzeichenumkehr des CD bei $E_{\text{ex}} = 14,5 \text{ eV}$ erwartet, vgl. Abb. 5.1.

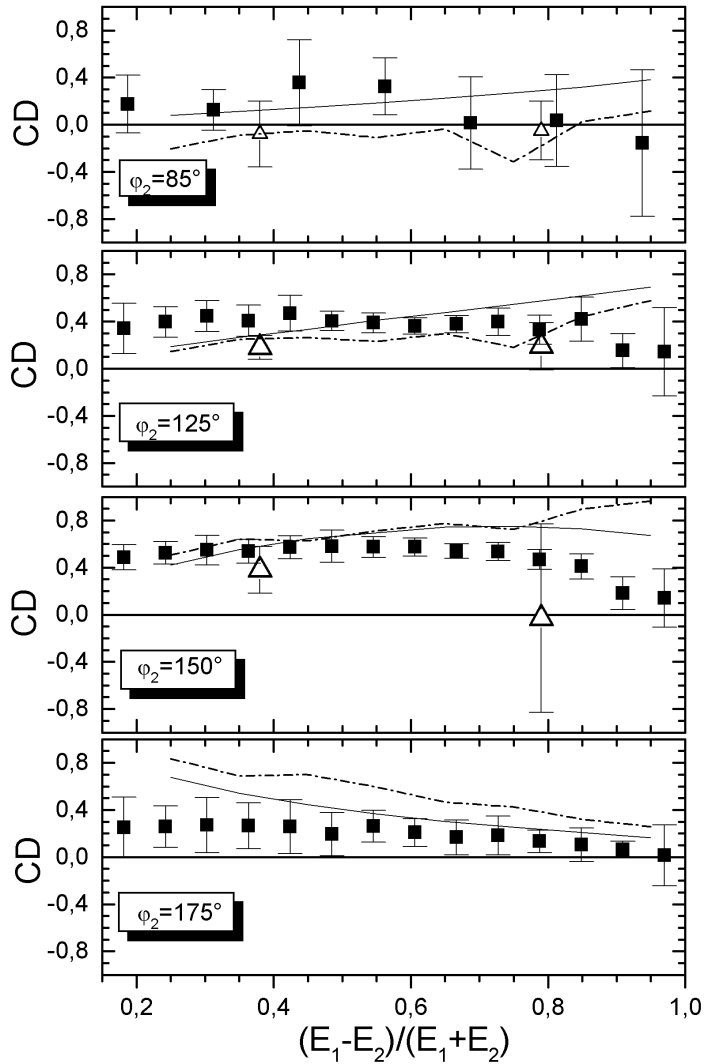


Abbildung 5.14: Normierter fünffach differentieller CD als Funktion von $(E_1 - E_2)/E_{\text{ex}}$ bei 99 eV. Das Fenster um φ_2 variiert um den nominellen Wert jeweils $\pm 10^\circ$. Die Quadrate sind die Resultate dieser Messung, die Dreiecke entsprechen den Ergebnissen aus [7], vgl. Abb. 5.1. Die Linien sind theoretische Ergebnisse für 99 eV Überschußenergie: 3C mit Hylleraas-Anfangszuständen berechnet in Geschwindigkeitsform (durchgezogen) und CCC berechnet in Geschwindigkeitsform (strichpunktiert).

5.5 Elektronenwinkelverteilung 174eV

Die folgenden Spektren bei der Photonenenergie 174eV sind dieselben ausgewählten Abbildungen der Winkelverteilung des zweiten Elektrons wie die des letzten Abschnitts. Beginnend mit der Übersichtsdarstellung der Winkelverteilung in Abhängigkeit von der

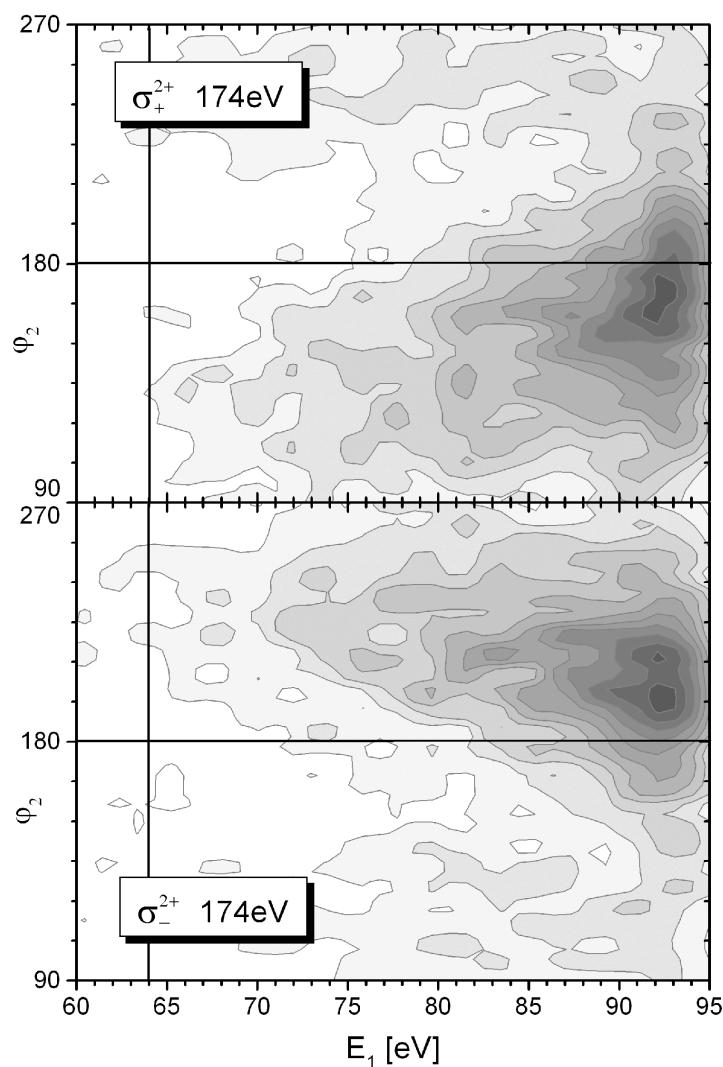


Abbildung 5.15: 5DCS als 2D-Funktion von E_1 und φ_2 bei 174eV, oben σ_+ , unten σ_- . Die senkrechte Linie markiert die untere Grenze des Nachweisintervalls.

Elektronenenergieaufteilung zeigt sich durch die experimentellen Befunde das Resultat der ersten Messung qualitativ bestätigt: Die Winkelverteilung der Elektronen weist bei gleichmäßigerer Energieaufteilung $E_1 < 85$ eV eine stärkere Asymmetrie auf. Am rechten Rand des Spektrums wird eine Tendenz zu entgegengesetzt gerichteter Emissionscharakteristik ($\varphi_2 = 180^\circ$) erkennbar. Bei dieser Energie ist der Befund jedoch signifikanter als bei 99 eV, da die relative Energieauflösung $\Delta E_1/E_1$ besser ist und das Spektrum somit wesentlich weiter an die Grenze asymmetrischer Energieaufteilung heranreicht, vgl. Abb. 5.4. Der Vergleich der Photoionisations-Wirkungsquerschnitte links und rechts zirkularer Pola-

risation zeigt wiederum im Rahmen der statistischen Abweichung eine genügende Symmetrie, so daß von einer Eichung des Mittelpunkts mit hinreichender Genauigkeit auszugehen ist.

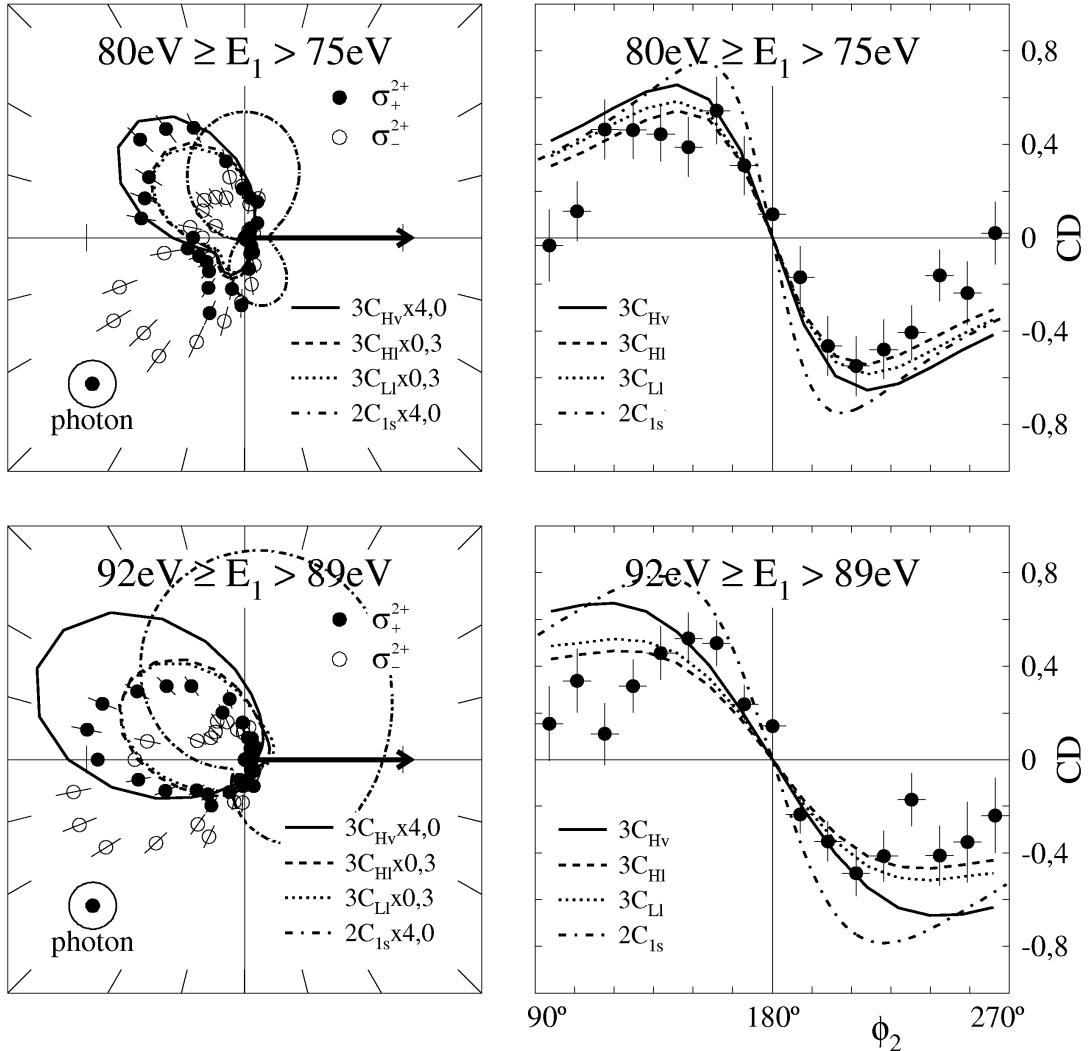


Abbildung 5.16: $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ links und CD rechts für $E_\gamma = 174\text{eV}$, $E_1 = 80\text{eV}$ oben und 92eV unten. Die vollen Punkte markieren die Meßdaten für LCP die offenen für RCP. Zum Vergleich sind für links zirkulare Polarisation eingezeichnet: Drei 3C-Rechnungen von Berakdar, davon zwei mit einem Anfangszustand vom Hylleraas-Typ in Geschwindigkeits- (durchgezogene Linie) und Längenform (gestrichelt) und eine vom Le Sech-Typ in Längenform (punktirierte Linie); eine 2C-Rechnung von Keller mit zwei 1s-Grundzuständen in Geschwindigkeitsform (strichpunktirierte Linie). Spektren dieses Typs bei anderer Energieaufteilung sind in Anhang A.3 zu finden.

Die eindimensionalen Spektren sind um ein weiteres Resultat nach der 3C-Theorie ergänzt. Hierbei handelt es sich um einen Hylleraas-Ansatz in Längenform. Vergleicht man die verschiedenen Ergebnisse dieser Theorie, wird noch deutlicher als im Fall von 99

eV, daß der verwendete Anfangszustand keinen bedeutenden Einfluß auf das Resultat hat. Hingegen bleibt eine große Diskrepanz zwischen den Resultaten aus der Längen- und der Geschwindigkeitsform. Weiterhin ist zum Vergleich erneut das theoretische Ergebnis aus der 2C-Rechnung von Keller abgebildet. CCC-Daten liegen bei der Energie von 174 eV nicht vor.

Bei $E_\gamma = 174$ eV zeigt sich über den gesamten Nachweisbereich eine bessere Übereinstimmung des Experiments und der Theorien, wenn man von dem Resultat der 2C-Rechnung absieht. Die Annäherung der Ergebnisse liegt zum einen daran, daß sich die „Keulen“ der experimentell bestimmten Winkelverteilung stärker aufrichten, das Maximum der Winkelverteilung also nicht so sehr in entgegengesetzter Richtung weist. Dies sorgt vor allem im Fall $E_1 < 85$ eV für eine bessere Übereinstimmung der Resultate. Andererseits trägt dazu bei, daß die theoretische Winkelverteilung im Bereich des Zwischenwinkels um 180° einen größeren Wirkungsquerschnitt voraussagt als im Fall der 99 eV. Der Knoten an dieser Stelle ist bei 174 eV nicht so ausgeprägt. Diese Tendenz zeigt sich in allen gezeigten Winkelspektren unabhängig von der Energieaufteilung, siehe Anhang A.3. Aber besonders im Fall $E_1 \rightarrow E_{\text{ex}}$ weist die Emissioncharakteristik des zweiten Elektrons daher auch in den theoretischen Resultaten stärker in entgegengesetzte Richtung und bewirkt somit eine deutlich bessere Übereinstimmung beider Ergebnisse.

Die bessere Übereinstimmung der experimentell und theoretisch bestimmten Wirkungsquerschnitte spiegelt sich auch in dem Vergleich des CD wieder. Man erkennt sowohl an der Steilheit des Nulldurchgangs als auch an dem Maximalwert dieser Größe, daß sich die Resultate angenähert haben.

Dieser Befund bestätigt sich ebenso bei Betrachtung der Abb. 5.17. Die festgehaltenen Zwischenwinkel sind von den Winkeln aus Abb. 5.14 etwas verschieden, ein Vergleich kann dennoch angestellt werden. Zu beachten ist auch, daß das gezeigte Energieintervall bei einer Asymmetrie von 0,35 beginnt, also nicht ganz so nah an den Fall symmetrischer Energieaufteilung heranreicht wie Abb. 5.14. Wie bei $E_\gamma = 99$ eV gilt auch hier: Das Vorzeichen des CD stimmt an allen Stellen mit dem theoretisch vorhergesagten überein. Auch bei dieser Energie reicht die Nachweisstatistik bei $\varphi_2 = 85^\circ$ nicht aus, um eine Aussage über den Verlauf des Dichroismus an dieser Stelle machen zu können. Bei allen übrigen Zwischenwinkeln fällt der Absolutwert des CD etwas geringer aus als bei der niedrigeren Energie. Die Übereinstimmung mit der Theorie ist auch in diesem Spektrum erkennbar besser als bei 99 eV Photonenenergie.

Interessant ist das Verhalten des CD am rechten Rand des Spektrums. Hier kann auch anhand der experimentell ermittelten Daten keine einheitliche Aussage für alle Zwischenwinkel gefunden werden. Für 120° kann keine Abnahme des Dichroismus verzeichnet werden, was qualitativ auch den theoretischen Prognosen entspricht. Obgleich bei einem Zwischenwinkel von 144° der CD für $E_1 \rightarrow 95$ eV fällt, zeichnet sich hier kein völliges Verschwinden ab.

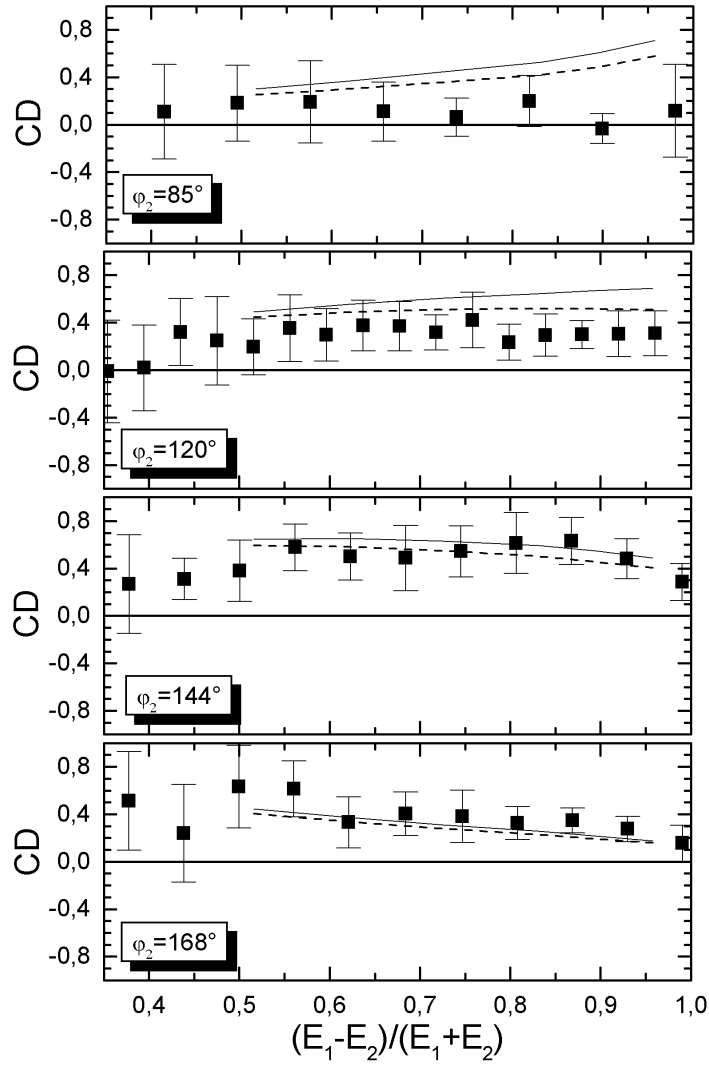


Abbildung 5.17: Normierter fünffach differentieller CD als Funktion von $(E_1 - E_2)/(E_1 + E_2)$ bei 174 eV. Das Fenster um φ_2 variiert um den nominellen Wert jeweils $\pm 10^\circ$. Die Linien sind Ergebnisse der 3C-Theorie für 174 eV Überschußenergie mit Hylleraas-Anfangszustand berechnet in Geschwindigkeitsform (durchgezogen) und mit Le Sech-Anfangszuständen in Längenform (gestrichelt).

5.6 Interpretation und Schlußfolgerung

Für den Vergleich aller Spektren aus der Photodoppelionisation mit rechts und links zirkular polarisiertem Licht kann keine signifikante Abweichung von einer Spiegelsymmetrie bezüglich der horizontalen Ebene (x-y) festgestellt werden. Dies wird als Beleg für die Richtigkeit der Eichung des Ionenimpulses in y-Richtung gewertet und unter anderem durch den Nulldurchgang des CD bei 180° bestätigt. Außerdem zeigt die Variation des Nullpunkts in x-Richtung keinen wesentlichen Einfluß auf die Winkelverteilung der Elektronen, vgl. Anhang A.5. Ein systematischer Fehler durch eine falsche Eichung des Ionenimpulsnullpunkts wird somit ausgeschlossen. Die Auflösung der Impulsverteilung spielt für die Lage des Maximums in der Winkelverteilung keine Rolle, sie führt nur zu einer Verbreiterung der Verteilung.

Es wird somit davon ausgegangen, daß die Abweichung der experimentell ermittelten Winkelverteilung von den theoretischen Vorhersagen durch Bray *et al.* bzw. Berakdar nicht im Rahmen der Auflösung und des statistischen Fehlers liegt. Darüber hinaus war der Polarisationszustand zu jedem Zeitpunkt der Messung unter Kontrolle. Eine Untersuchung des Einflusses der linearen Anteile zeigt, daß dieser gegenüber dem statistischen Fehler vernachlässigbar ist.

Die Ursachen für die Diskrepanz zwischen Theorie und Experiment haben demnach eine andere Ursache.

Die Untersuchung des CD als Funktion der Energieaufteilung ist zu diesem Zweck nicht sehr aufschlußreich, da die Differenzbildung eine Reduktion der Information bewirkt und wesentliche Charakteristika der Winkelverteilung somit verschleiert werden. Zudem sorgt die Fehlerfortpflanzung an einer Stelle, an der beide Wirkungsquerschnitte sehr klein — und damit die statistischen Fehler sehr groß — werden, dafür, daß auch der CD stark fehlerbehaftet ist. Diese Aussage gilt insbesondere für das Vorzeichen des Dichroismus an einer solchen Stelle¹¹.

Auch die Frage, ob der CD prinzipiell für $|\mathbf{k}_1| \rightarrow 0$ stetig verschwindet, läßt sich aus diesen Gründen nicht eindeutig beantworten. Der experimentelle Befund aus Abb. 5.17, der sich in dieser Diskussion aufgrund der relativen Energieauflösung nur auf die Ergebnisse bei $E_\gamma = 174\text{ eV}$ stützt, gibt einen Hinweis darauf, daß der CD unter bestimmten Winkeln auch noch bis an die Grenze asymmetrischer Energieaufteilung einen endlichen Wert behält. Eine Schlußfolgerung ist daraus jedoch schwerlich zu ziehen, da kein einheitliches Verhalten unter allen Winkeln gefunden werden konnte und auch die Fehlerbalken in Abb. 5.17 keine eindeutige Aussage über die Tendenz erlauben. Erneut ist die Betrachtung der Winkelverteilung aus Anhang A.3 aufschlußreicher: Die experimentellen Resultate lassen erkennen, daß eine Angleichung der Wirkungsquerschnitte aus beiden Polarisationsrichtungen unter zunehmender Asymmetrie der Energieaufteilung erfolgt. Die theoretische Vorhersage, daß der CD bei Zwischenwinkel $\varphi_2 < 120$ bzw. $\varphi_2 > 240$ wächst, konnte experimentell hingegen nicht bestätigt werden.

¹¹Damit ist zum Beispiel die Vorzeichenumkehr die unter 85° zwischen $E_{\text{ex}} = 14,5\text{ eV}$ und 20 eV gefunden wurde gemeint. Berakdar sagte in [4] eine weitere Vorzeichenumkehr unter 90° bei einer Energie von etwa $E_{\text{ex}} = 35\text{ eV}$ voraus. Findet man, wie in diesem Fall, eine signifikante Eichabhängigkeit der theoretischen Ergebnisse, dann ist die Winkelabhängigkeit der Vorzeichenumkehr ebenfalls stark fehlerbehaftet

Der CD zeigt jedoch ein anderes Phänomen: Man kann erkennen, daß die Nulldurchgänge für beide Photonenenergien eine unterschiedliche Steilheit in Abhängigkeit der Energieaufteilung sowohl in den experimentellen Daten als auch den verschiedenen Theorien aufweist. Die Extrema verschieben sich, unabhängig von der Absoluthöhe, bei zunehmender Asymmetrie von 180° weg. Dieser Verlauf spiegelt die Aufhebung der Auswahlregel (II) wieder, die eine Nullstelle im Wirkungsquerschnitt für $\mathbf{k}_1 = -\mathbf{k}_2$ fordert.

Für eine systematischere Untersuchung ist es also nützlich, sich mit der Interpretation der Winkelverteilung zu befassen. Als erstes wird die 2C-Rechnung von Keller [73] zur Untersuchung der „post collision interaction“-Effekte (PCI) auf die Entwicklung des Endzustands herangezogen. Dieses Modell bedient sich des Produkts zweier 1s-Zustände und eines effektiven (abgeschirmten) Potentials zur Beschreibung des Anfangszustands. Für den Endzustand werden zwei ebene Wellen angesetzt, siehe Abschnitt 2.2.3.2, deren Wechselwirkung durch einen einfachen Korrekturfaktor Rechnung getragen wird. Damit ist nicht zu erwarten, daß diese Theorie in der Lage sein wird, den dynamischen Teil der Reaktion in geeignetem Maß zu erfassen. Die Winkelverteilung zeigt daher auch, unabhängig von der Energieaufteilung, eine stärkere Orientierung der Elektronen zu kleinen Zwischenwinkeln als das experimentelle Resultat. Das wird insbesondere bei asymmetrischer Energieaufteilung und gleicher Emissionsrichtung der Elektronen erkennbar¹². Ein Modell ohne „dynamische“ Wechselwirkung der Elektronen — weder im gebundenen Zustand noch nach der Absorption des Photons — liefert also kein befriedigendes Resultat. Insbesondere ist hier aber die Beschreibung des Endzustandsraums für die deutliche Abweichung der Verteilung verantwortlich.

Dieser Sachverhalt wird, wenn durch Hinzunahme der Elektron-Elektron-Wechselwirkung in Form eines dritten Coulomb-Korrekturterms (3C) die Winkelverteilung eine deutlich andere Charakteristik erhält. Die Emission der Elektronen ist nun stärker in entgegengesetzter Richtung orientiert und somit dem experimentellen Resultat ähnlicher. Darüber hinaus wird durch Verwendung von Hylleraas- und Le Sech-Anfangszuständen auch versucht, die Elektronenkorrelation im Anfangszustand zu berücksichtigen. Man findet zwar eine Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts von der Wahl des Anfangszustands, jedoch kann anhand dieses theoretischen Modells keine eindeutige Aussage bezüglich dessen Genauigkeit gemacht werden. Die Untersuchung der Eichabhängigkeit des Ergebnisses zeigt nämlich, daß das Matrixelement mit diesem Ansatz keine eindeutige Lösung liefert. Sowohl die Form der Verteilung als auch die Absoluthöhe ändern sich dramatisch bei Übergang von der Längenform zur Geschwindigkeitsform¹³. Dabei ist unklar, welcher Beitrag zu der Inkonsistenz von der Näherung des verwendeten Anfangs- bzw. Endzustands herrührt. Eine isolierte Untersuchung des Anfangszustands ist somit nicht möglich.

¹²Auswahlregel (III), Seite 39, bleibt hier unberührt, da diese auch den gleichen Impulsbetrag beider Elektronen voraussetzt. Die Argumentation für diese Auswahlregel ist aus mathematischer Sicht, die Symmetrie des Matrixelements, woraus die Einhaltung der Regel auch für dieses stark vereinfachte Modell resultiert.

¹³An dieser Stelle sei nochmals darauf hingewiesen, daß aus Rechnungen zur Photodoppelionisation mit linear polarisiertem Licht bekannt ist, daß die Absoluthöhe des Wirkungsquerschnitts nicht zuverlässig wiedergegeben wird, siehe Abschnitt 2.2.3.2.

Ein anderer Aspekt dieser Messung wird deutlich, wenn man zum Vergleich die Photodoppelionisation von Helium mit linear polarisiertem Licht heranzieht. Hier konnte eine bessere Übereinstimmung zwischen der 3C-Rechnung und den experimentellen Daten gefunden werden¹⁴ [25, 69]. Die Ursache dafür liegt allein in der stärkeren Fixierung des Wirkungsquerschnitts aufgrund der zahlreicheren Nullstellen. Betrachtet man die Auswahlregeln (I) bis (IV) auf Seite 39, so ist festzustellen, daß zwei der vier Knoten, (I) und (IV), an denen der Wirkungsquerschnitt verschwindet, auf einer Symmetrie bezüglich der Polarisationsachse beruhen. Fallen diese zwei Auswahlregeln bei Übergang zu zirkularer Polarisation weg, kann die Dynamik der Reaktion wesentlich detaillierter anhand der Winkelverteilung getestet werden, da nur noch die Nullstellen bei $\varphi_2 = 0^\circ$ und 180° als Auswirkung der Auswahlregeln bestehen. Diese Knoten findet man auch in den vorgestellten Meßdaten bestätigt. Bei ungleicher Energieaufteilung entfallen weiterhin auch diese Nullstellen, so daß hier der Wirkungsquerschnitt nahezu frei von symmetriebedingten Restriktionen allein durch die Dynamik der Reaktion beherrscht wird¹⁵. In diesem Sinn ermöglicht die Untersuchung zirkularer Polarisation eine deutlich stringenteren Untersuchungsmöglichkeit, als es die lineare Polarisation kann. Abweichungen zwischen Experiment und Theorie treten hier stärker in Erscheinung.

Eine deutlich bessere Übereinstimmung zeigt der Vergleich der Meßdaten und der 3C-Rechnung bei der Photonenenergie von 174 eV¹⁶. Bei der Gegenüberstellung beider Energien findet man, daß die experimentelle Winkelverteilung eine andere Form annimmt. Die Tendenz zu entgegengesetzter Emission beider Elektronen ist hier weit weniger stark ausgeprägt¹⁷. Man kann an dieser Stelle wiederum im Sinne der PCI argumentieren. Bei $E_{\text{ex}} = 20$ eV ist die Wechselwirkungszeit der auseinanderlaufenden Elektronen länger, deren Abstoßung durch die langreichweitigen Coulomb-Potentiale folglich stärker. Dieses Argument greift auch bei der Interpretation der Energieverteilung eines Elektrons bei geringer Überschußenergie nach Abb. 2.10. Das Maximum bei gleicher Energieaufteilung bestätigt die Tendenz der Elektronen, die Endzustandskonfiguration der größtmöglichen Relativgeschwindigkeit zu wählen.

Dieser phänomenologischen Argumentation folgt auch die Wannier-Theorie. Wie aber schon in Abschnitt 2.4 bemerkt wurde, steht zu der Konfiguration entgegengesetzt gleicher Elektronenimpulse mit einem Ion, das sich auf dem Sattel beider Elektronenpotentiale befindet, die Auswahlregel (II) in Konkurrenz, die in der Winkelverteilung an derselben Stelle ein Loch erzeugt. Die Auswahlregel verlangt aus der Sicht der Jakobi-Koordinaten, daß der Schwerpunkt der Elektronen — und damit auch das Ion — eine Bewegung senkrecht zu deren Relativimpuls ausführt. In der Ebene senkrecht zur Propagationsrichtung

¹⁴Ogleich die Gegenüberstellung mit der 2SC-Rechnung von Pont und Shakeshaft ein noch befriedigendes Ergebnis erbrachte.

¹⁵Die Nullstellen im Fall gleicher Energieaufteilung setzen sich für zunehmend asymmetrische Energieaufteilung in einem Minimum stetig fort, so daß auch hier die Auswirkungen der Auswahlregeln erkennbar bleiben.

¹⁶Hierin nicht enthalten ist eine Aussage über die Absoluthöhe der Wirkungsquerschnitte.

¹⁷Dies trifft auch zu, wenn man den Fall großer Asymmetrie $E_1 = 19,5$ eV, $E_2 = 0,5$ eV ausklammert der aufgrund der Impuls- bzw. Energieauflösung des langsamen Elektrons als kritisch betrachtet werden muß.

des Lichts gibt es im Fall linearer Polarisation dafür zwei mögliche Richtungen¹⁸. Bei der Verwendung zirkular polarisierten Lichts erzeugt die Festlegung des Photonenspins bei nicht gleicher Energieaufteilung zusätzlich eine Asymmetrie in der Winkelverteilung. In Jakobi-Koordinaten bedeutet das, daß die Richtung, in der das Ion den Potentialsattel beider Elektronen verläßt, nicht frei wählbar ist, sondern daß aufgrund des festgehaltenen Drehimpulses eine Vorzugsrichtung existiert. Dies kann man sich anhand der Impulsverteilung des Ions in den Abbildungen 5.5 und 5.6 verdeutlichen. In diesem Modell lautet der Befund der Messung, daß rechtshändige Helizität (σ_+) immer zu einem rechtshändigen System führt: Aufgespannt durch den Impulsvektor der Photons, den Relativvektor der Elektronenbewegung und der Schwerpunktsbewegung.

Das Ergebnis der CCC-Rechnung von Kheifets und Bray [2, 84] kann nach den vorliegenden Ergebnissen für zirkulare Polarisation bei 99 eV nicht bestätigt werden, obgleich die Winkelverteilung der Rechnung eine etwas ausgeprägtere Rückwärtsorientierung bei der Elektronen aufweist als die 3C-Rechnung und damit dem experimentellen Resultat ähnlicher ist. Vergleiche der Doppelionisation bei linearer Polarisation mit den experimentellen Daten von Bräuning *et al.* zeigen hingegen, daß im Rahmen des Meßfehlers neben der Absoluthöhe der Wirkungsquerschnitte auch die Winkelverteilung in sehr guter Übereinstimmung stehen¹⁹, siehe Anhang B. Für diese Messung gilt: Neben der Abweichung der Winkelverteilungen tritt zudem noch eine Differenz in der Absoluthöhe der Wirkungsquerschnitte auf, die in Abhängigkeit von der Energieaufteilung variiert. Stellt man die Normierungsverfahren gegenüber, erkennt man, daß diese Diskrepanz der Absolutwerte nur an der Variation des theoretischen Wirkungsquerschnitts liegen kann: Aufgrund der Vorgehensweise bei der Absolutnormierung des Experiments ist die Konstanz des Wirkungsquerschnitts in Abhängigkeit der Energieaufteilung gewährleistet. Die Absoluthöhe des theoretischen Wirkungsquerschnitts ist nicht ab initio korrekt. Es zeigt sich, daß es im Fall kleinerer Überschußenergien, einer Normierung des einfach differentiellen Wirkungsquerschnitts $d\sigma^{2+}/dE_1$ bedarf, da dieser (absolut) schlechter wird, je größer sein Anteil am totalen Wirkungsquerschnitt an der Stelle gleicher Energieaufteilung [27] ist. Wie Abb. 2.10 zeigt, ist das für $E_{\text{ex}} < 130$ eV und daher insbesondere bei 20 eV der Fall. Die Integration über die Winkelvariable φ_2 in den Spektren A.7 und A.8 zeigt hingegen, daß der Wirkungsquerschnitt $d^4\sigma^{2+}/(\sin(\vartheta_1)d\vartheta_1d\Omega_2dE_1)$ nicht flach ist, sondern zu symmetrischer Energieaufteilung hin abnimmt. Die Ursache kann nach geschilderter Normierung nur durch einer Abhängigkeit des 5DCS von einer der fixen Variablen ϑ_1 oder ϑ_2 begründet werden.

Die vorgestellte Rechnung enthält einen 20-parametrigen Anfangszustand vom Hylleraas-Typ [166, 27]. Eine systematische Untersuchung der Winkelabhängigkeit von dem verwendeten Anfangszustand liegt für diesen Prozeß nicht vor. Die Erkenntnisse aus Abschnitt 2.2.4 deuten aber an, daß die Eichinvarianz durch Hinzunahme weiterer Para-

¹⁸Die Winkelverteilungen in Anhang B zeigt, daß auch bei linearer Polarisation das zweite Elektron in einer Vorzugsrichtung emittiert wird. Grund dafür ist hier die Auswahlregel (IV), die in den Fällen eines Winkels $\vartheta'_1 \in]0^\circ; 90^\circ[$ eine symmetrische Verteilung verhindert.

¹⁹Natürlich gilt auch hier wieder, daß die Signifikanz dieses Befunds durch die Einschränkung der Auswahlregeln reduziert wird. Daher ist gerade in diesem Fall der Vergleich bei zirkularer Polarisation als zwingenderer Test geboten.

meter stets eine Verbesserung erfährt. Dabei zeigt sich, daß die Verwendung von Hylleraas-Funktionen eine schnellere Übereinstimmung der Ergebnisse liefert. Dies kann dahingehend gedeutet werden, daß elliptische Koordinaten allgemein eine angemessenere Basis zur Beschreibung der Elektron-Elektron-Wechselwirkung zu bieten scheinen. Jedoch zeigt es auch, daß man im Prinzip mit jedem strukturell noch so unterschiedlichen Funktionstyp in der Lage ist, die Lösungen dieser Rechnung konvergieren zu lassen.

Jedoch bleibt dadurch die Anschauung des Photoabsorptionsprozesses unabhängig davon, daß für den Fall zirkularer Polarisation keine befriedigende Übereinstimmung gefunden werden konnte, auf der Strecke. Die Entscheidungsmöglichkeit darüber, welche Korrelation der Anfangszustand beinhalten muß, um die Natur eines Mehrelektronenatoms angemessen zu beschreiben, geht verloren.

Die Diskrepanz zwischen den theoretischen Modellen und den Meßwerten stellt jedoch nur einen Aspekt dieser Untersuchung dar. Eine ganz andere Frage wird durch die in Abb. 5.13 dargestellten Summen-Wirkungsquerschnitte unpolarisierten Lichts aufgeworfen. Hier bestätigt der Vergleich der gemessenen Wirkungsquerschnitte bei zirkularer und linearer Polarisation bei 99 eV ebenfalls, daß die Orientierung der Elektronen im zirkularen Fall stärker in entgegengesetzter Richtung weist, siehe Anhang A.4. Ein Vergleich der theoretischen Ergebnisse von Berakdar für die Summen-Wirkungsquerschnitte beider Polarisationsformen zeigt hingegen eine Übereinstimmung [6]. Dies ist nicht verwunderlich, liegt der Rechnung genau derselbe störungstheoretische Ansatz zugrunde wie der Ableitung in Abschnitt 2.5. Alle theoretischen Überlegungen basieren dabei auf der Dipolnäherung. Diese ist zugleich die dem Vergleich der Summen einzige zugrunde liegende Näherung²⁰. Daraus resultiert, daß entweder die Dipolnäherung bzw. das störungstheoretische Matrixelement allgemein oder gar die elektrodynamische Beschreibung des Lichts unzureichend ist, sofern die gezeigte Abweichung nicht das Ergebnis aus einem unbekannten systematischen Fehler in einer der Messungen ist. Ein solcher systematischer Fehler ist trotz aller durchgeführten, zum Teil hier ausführlich diskutierten Tests niemals vollständig auszuschließen.

Wenn sich aber diese Resultate in weiteren Messungen bestätigen lassen, dann liegt darin ein Ansatzpunkt vor, die Vollständigkeit der quantenmechanischen Theorie in Frage zu stellen und nach neuen Erkenntnissen zu forschen. So ergibt sich daraus zum Beispiel die Frage: Gibt es eine höhere Ordnung im Atom, auf die die Abweichung zurückzuführen ist, die nicht in störungstheoretischen Modellen des Photon-Atom-Hamiltonian Berücksichtigung findet und die über die Coulombwechselwirkung beider Elektronen im Grundzustand hinaus eine Korrelation bedingt?

Abschließend bleibt festzustellen, daß es mit Hilfe von COLTRIMS erstmals gelang, fünffach differentielle Winkelspektren der Photodoppelionisation mit zirkular polarisiertem an Helium zu gewinnen. Diese Messung hat somit eine neue Möglichkeit eröffnet, theoretische Modelle im Bezug auf den Prozeß der Photoabsorption noch eingehenderen Prüfungen zu unterziehen. Es zeigt sich aber auch, daß wir noch weit davon entfernt sind, einen Prozeß wie die Photodoppelionisation von Helium zu verstehen.

²⁰Ein Fehler in (2.69) basierend auf der Wahl genäherter Anfangs- oder Endzustandsbeschreibungen kann daher ausgeschlossen werden.

Kapitel 6

Ausblick

Eine Fortsetzung der Experimente zur Photodoppelionisation von Helium durch zirkular polarisiertes Licht ist nach den dargelegten Resultaten und Schlußfolgerungen ein logischer Schritt, dem Verständnis von der Dynamik von Mehrelektronensystemen näherzukommen. Eine solche Messung wurde daher kürzlich unter verbesserten Bedingungen durchgeführt. Die Auswertung ist zum gegebenen Zeitpunkt noch nicht begonnen. Die Fortführung der Messungen ist dabei durch mehrere Fragestellungen motiviert: Die gewonnen Erkenntnisse dieses Experiments fordern zu einer Wiederholung der Messung bei derselben Energie auf, um erstens eine experimentelle Bestätigung des Resultats zu erlangen. Weiterhin sollte möglichst die vollständige Vermessung des Endzustandsraums angestrebt werden. Das heißt: Außer dem Rückstoßion ist es sinnvoll, auch eines der Elektronen mit vollem Raumwinkel nachzuweisen. Unter verbesserten experimentellen Bedingungen, das heißt der Zuhilfenahme der COLTRIMS-Technologie mit überlagertem Solenoidmagnetfeld, wie sie in Abschnitt 3.17 Abb. 3.16 vorgestellt wurde, bietet sich eine solche Möglichkeit. Für diese Technologie ist die unabhängige Messung der Ionen- wie auch der Elektronenflugzeit unabdingbar. Hierfür wird ein unabhängiges Referenzsignal des Beschleunigers, also ein Strahlpulssignal benötigt. Es kommt für die Erweiterung des Experiments daher nur der sogenannten Single-Bunch-Modus in Frage. Der Preis ist eine geringere Strahlausbeute und somit bei gleicher Meßzeit eine schlechtere Statistik¹. Die Ergebnisse dieses Experiment haben jedoch gezeigt, daß die statistische Signifikanz ausreichend war und nur in Bereichen sehr geringer Wirkungsquerschnitte tatsächlich eine Verlängerung der Meßzeit erfordert.

Die Vorteile einer solchen Messung sind dagegen entscheidender:

- Durch die zusätzliche Bestimmung einer weiteren Komponente (der Elektronenflugzeit) ist diese Messung einfach überbestimmt. Dadurch bietet sich die Möglichkeit eines systematischen Tests, zum Beispiel die direkte Kontrolle der Energieauflösung.
- Durch die direkte Elektronenimpulsmessung wird die Auflösung erheblich verbessert: Die Elektronenimpulse können in Flugzeitrichtung mit einer Auflösung $\Delta k_{x1} < 0,02$ a.u. nachgewiesen werden, die Impulsauflösung in den Ortskomponenten ist abhängig von der Zyklotronfrequenz der Elektronen im Magnetfeld und deren Flugzeit und erreicht im günstigsten Fall ebenfalls den Wert $\Delta k_{y1} = \Delta k_{z1} < 0,02$ a.u.

¹Dies wird zum Teil durch den größeren Nachweisraumwinkel kompensiert.

Dadurch ist eine Aussage über das Verhalten der Winkelverteilung bei asymmetrischer Energieaufteilung dichter an der Schwelle möglich, denn insgesamt wird dadurch die Energieauflösung um etwa die Hälfte auf $\Delta E_1 < \pm 0,75$ eV verbessert.

- Die Daten ermöglichen eine integrale Normierung auf den totalen Wirkungsquerschnitt. Diese ist somit völlig unabhängig von Winkelverteilungen. Man kann daher integralere Wirkungsquerschnitte, beispielsweise den dreifach differentiellen Wirkungsquerschnitt in der Darstellung nach (2.64) dahingehend überprüfen, ob möglicherweise auch hier eine Diskrepanz zu Ergebnissen linearer Polarisation auftaucht.
- Die Messung schließt den Fall symmetrischer Energieaufteilung ein, man kann auch an dieser Stelle systematische Untersuchungen anstreben. Es ist dann insbesondere möglich, die Energieverteilung des ersten Elektrons absolut zu testen.
- Mit den vollständigen Daten über den Impulsraum wird erstmals der Vergleich der Wirkungsquerschnitte in Jakobi-Koordinaten möglich. Dadurch kann die Gültigkeit der Wannier-Theorie bei dieser Energie auch für zirkular polarisiertes Licht überprüft werden. Auch hier gilt, daß aufgrund wegfallender Auswahlregeln ein wesentlich stringenterer Test der Theorie ermöglicht wird.
- Anhand der gewonnenen Daten kann erstmals eine vollständige Parametrisierung des Photodoppelsonisations-Wirkungsquerschnitts zirkularer Polarisation nach dem Modell von Malegat *et al.* erfolgen. Dies erleichtert insbesondere im Bereich gleicher Energieaufteilung den direkten Vergleich mit den Parametern aus der Analyse der Photodoppelsonisation mit linear polarisiertem Licht.

Das Experiment ist dahingehend erweiterbar, daß gleichzeitig, das heißt unter den gleichen experimentellen Bedingungen, eine Messung der Photodoppelsonisation mit Licht linearer Polarisation durchgeführt wird. Ein direkter Vergleich der Wirkungsquerschnitte bietet dann eine Kontrollmöglichkeit, um systematische Fehler aufzudecken beziehungsweise ausschließen zu können.

Weiterhin bleibt — wie auch in dieser Messung — unter Anwendung der verbesserten Technik die vollständige Kontrolle über den Polarisationszustand erhalten. Die Stokes-Parameter lassen sich sogar mit einem absolut kleineren Fehler ermitteln, da ein größerer Raumwinkelbereich auch für Ereignisse der Einfachionisation zur Verfügung steht.

Ein konsequenter nächster Schritt ist, die Versuchsreihe zur Photodoppelsonisation von Helium durch zirkular polarisiertes Licht mit anderen Photonenenergien fortzusetzen. Dabei scheint der Bereich niedrigerer Energien nach den hier vorgestellten Befunden der interessantere zu sein. Erhoffte Erkenntnisse beziehen sich wiederum auf Fragestellungen zur Winkelverteilung und den Einfluß der PCI sowie auf das Verhalten nahe der Doppelsonisationsschwelle im Hinblick auf den Vergleich mit dem Wannier-Modell. Hier bietet sich aus zahlreichen systematischen Untersuchungen im Fall linearer Polarisation ein breites Spektrum an Vergleichsmöglichkeiten sowohl integraler als auch differentieller Messungen [90, 167, 25, 83, 168, 26, 101].

Eine weitere Perspektive bietet die Untersuchung der Photoionisation an Molekülen. Die Einsatzmöglichkeit der COLTRIMS-Technologie wurde auf diesem Gebiet bereits durch Experimente zur Dissoziation von H_2 , D_2 und N_2 -Molekülen in schnellen Stößen mit Protonen und He^{1+} -Ionen sowie in der Photoionisation von D_2 -Molekülen erfolgreich unter Beweis gestellt [143, 169]. Multi-Hit-Fähigkeit der Detektoren vorausgesetzt, bietet die Technologie die Möglichkeit, die Winkelverteilung der Elektronen in Abhängigkeit der Orientierung der Molekülachse zur Zeit der Absorption zu untersuchen. Dazu werden beide Fragmente des Coulomb-explodierenden Moleküls auf einem Detektor und die Elektronen koinzident auf dem zweiten Detektor nachgewiesen. Es konnte unter Beweis gestellt werden, daß unter entsprechendem Aufwand bis zu 10 Elektronen koinzident nachgewiesen und die zugehörigen Ortsinformationen reproduziert werden können [170].

Weiterführende Untersuchungen könnten sich auf die Auswirkung zirkularer Polarisation in solchen Photoionisationsprozessen an Molekülen konzentrieren. Diese Idee ist allerdings nicht neu. Der CD wurde schon in Messungen von Photoelektronen-Emissionsspektren an orientierten Molekülen [105] und an orientierten freien Atomen [106] nachgewiesen. Der CD setzt auch hier drei nicht koplanare Vektoren voraus, die ein Koordinatensystem aufspannen und somit eine Händigkeit ins Spiel bringen, vgl. Abb. 1.1. Der Unterschied besteht darin, daß einer der Vektoren durch die Orientierung des (hetero-) Moleküls definiert wird. Der CD kann daher hier schon in differentiellen Einfachionisationsmessungen ohne Koinzidenz nachgewiesen werden. Eine technologische Problematik besteht bei den aktuellen Messungen jedoch in der Ausrichtung des Targets. Zum Beispiel werden bei der Verwendung von Molekülen oder Atomen in der Gasphase Verfahren des optischen Pumpens verwendet. Ein anderer Weg zur Erzeugung orientierter Targetmoleküle ist die Adsorption auf Metalloberflächen [108, 171]. Diese Untersuchungen sind oftmals ungenau, da an solchen Präparaten Störeffekte auftreten. Bei der optischen Ausrichtung ist die Orientierung oftmals unzureichend und im Fall der Untersuchung an Adsorbaten kommt es vielfach zu Phänomenen der Oberflächenstreuung und sogar zu Beiträgen durch metall-optische Einflüsse [171]. Abweichungen des CD von theoretischen ab initio-Rechnungen wurden dann dazu genutzt, diese Einflüsse genauer zu untersuchen [12].

Mittels COLTRIMS kann man, wie in den zitierten Messungen bereits gezeigt werden konnte, auch an freien Molekülen Messungen durchführen und durch den koinzidenten Nachweis der ionischen Fragmente die Orientierung im Nachhinein bestimmen, ohne dabei störende Einflüsse auf die eigentliche Messung auszuüben. Die Messung in dieser Form ist gleichzeitig wesentlich präziser, da auch die Orientierung jederzeit kontrolliert werden kann. Somit wäre die systematische Untersuchung des Einflusses beispielsweise metall-optischer Beiträge theoriefrei möglich, andererseits bietet sich die Möglichkeit, den unverfälschten CD dem Vergleich mit theoretischen Ergebnissen zu unterziehen.

Nun sind die Möglichkeiten fundamentaler Tests durch Photoionisationsexperimente in Zusammenhang mit chiralen Symmetrien an dieser Stelle noch nicht erschöpft. Schon seit längerem werden Absorptionsmessungen von zirkular polarisiertem Licht an chiralen Molekülen durchgeführt [104]. Diesen Untersuchungen liegen Frage nach der Ursachen optischer Aktivität und letztendlich auch nach einem Wechselwirkungsmechanismus zwischen molekularer Chiralität und organischem Leben zugrunde [12].

Die optische Aktivität chiraler Moleküle, also die Drehung der Polarisationsrichtung, be-

dingt die Induktion von elektrischen und magnetischen Momenten, die senkrecht zu den induzierenden Feldern des Lichts stehen. Die Übergangswahrscheinlichkeit des Moleküls von einem Zustand in einen anderen wird, wie auch in der Atomphysik, in zeitabhängiger Störungsrechnung ermittelt. Man ist allerdings von einer exakten Beschreibung der Zustände hier noch weiter entfernt. Die Quelle der optischen Aktivität ist in der Sprache der Quantenmechanik eine Interferenz der induzierten magnetischen und elektrischen Momente [12]. Der CD ist auch hier die Differenz der Amplitudenquadrate beider Polarisationsrichtungen.

Während die Absorptionsmessungen sich aber weitestgehend darauf beschränken Niveauübergänge in den komplexen Molekülen zu identifizieren², um diese dann Modellrechnungen gegenüberzustellen, wäre die Systematik einer Untersuchung der Photoionisation mit Fragmentation darauf ausgerichtet, wieder einmal mehr die Dynamik im Molekül zu erforschen. Jedoch sind bei der Durchführung eines solchen Experiments einige technologische Schwierigkeiten zu erwarten. Es wird erforderlich sein, ein Molekül mit wenigen Elektronen zu finden, das nach der Dissoziation in möglichst wenige Bruchstücke zerfällt, so daß die Orientierung vor der Absorption noch eindeutig rekonstruiert werden kann. Drei Atome sind immer koplanar, daher benötigt man für die Händigkeit eines Moleküls jedoch mindestens eine Anzahl von vier Atomen, siehe Abb. 1.1. Wird für ein solches Molekül vorausgesetzt, daß es nach Absorption des Photons vollständig aufbricht, ist der Nachweis von wenigstens drei ionischen Fragmenten erforderlich, um die Orientierung bestimmen zu können. Einfacher wird die Bestimmung, wenn das Molekül aus verschiedenen Atome zusammengesetzt ist. Aufgrund der Massenunterschiede kann mit Hilfe der Rückstoßionenimpulsspektroskopie eine klare Flugzeittrennung der einzelnen Fragmente erfolgen. Totzeitprobleme des Detektors wären somit irrelevant. Im Fall gleicher Atome ist für eine eindeutige Rekonstruktion die Messung der Impulse aller vier Ionen notwendig³. Jedoch weiß man zum Beispiel von Ammoniak (NH_3), daß es eine endliche Wahrscheinlichkeit für das Umlappen der Symmetrie durch Tunneln eines der Atome durch die Ebene der drei anderen gibt [172]. In diesem Fall wäre daher nicht ohne zusätzliche Präparationsmaßnahmen auszukommen. Außerdem würden bei einer vollständigen Fragmentation wenigstens drei oder mehr Elektronen im Kontinuum enden. In diesem Fall sind hohe Anforderungen an die Multihit-Fähigkeit des Elektronendetektors gestellt.

Legt man ein komplexeres Molekül zugrunde, das aus einer größeren Anzahl an Atomen besteht, dann kann dadurch eine spontane Symmetrienumkehrung vermieden werden. Nimmt man an, daß dieses in zwei geladene Bruchstücke zerfällt, dann ist es prinzipiell möglich, die Bruchstelle sowie die Startimpulse der Bruchstücke zu rekonstruieren, unabhängig davon, ob das Molekül in gleiche oder ungleiche Hälften aufbricht⁴. In diesem

²Die Messung des CD in Absorptionsspektren stellt bei komplexen Molekülen oftmals die einzige Möglichkeit dar, klare molekulare Resonanzstrukturen aus nahezu strukturlosen Bändern herauszuholen [12].

³Für eine Rekonstruktion wird angenommen, daß es nicht notwendig ist, die gekoppelten Differentialgleichungen für die Bewegung der sich gegenseitig abstoßenden Teilchen zu lösen. Bei bekannten Bindungswinkeln, wird für jedes einzelne Fragment in erster Näherung eine geometrische Rekonstruktion vorgenommen. Hierbei wird ein ortsfester Ladungsschwerpunkt aus den jeweils übrigen drei Atomen angenommen, von dem sich das einzelne Teilchen geradlinig entfernt.

⁴Die Orientierung der Achse ist zwar nicht unmittelbar aus der Verteilung erkennbar, da das Modell punktförmiger geladener Teilchen möglicherweise nicht mehr genau genug ist, um die auftretenden

Fall ist allerdings fraglich, ob die Verteilung zweier koinzident nachgewiesenen Elektronen aus einer Vielzahl an Bindungselektronen bereits Informationen über das kollektive Verhalten oder die Korrelation aller Elektronen preisgibt.

Die Fragen hinter der Suche nach dynamischen Strukturen sind jedoch spannend genug um Experimente der Art, wie sie hier vorgeschlagen wurden anzugehen. An die Fragen, die teilweise auch als Motivation am Anfang dieser Arbeit standen, sei daher hier nochmals erinnert: Hat die zirkulare Polarisation Einfluß auf die Ionisationswahrscheinlichkeit chiraler Moleküle? Welche Ursache gibt es für die chirale Anordnung der Atome? Findet man Strukturen in den differentiellen Photoemissionspektren, die Hinweise auf eine Korrelation oder innere Ordnung in der Elektronenbewegung vor der Ionisation also im gebundenen Molekül liefern? Und hängen diese etwa mit der Orientierung oder Händigkeit des Moleküls zusammen? Was ist die Ursache für die scheinbar so offensichtliche Asymmetrie in der „lebendigen Natur“? Liegt an dieser Stelle möglicherweise, entgegen aller theoretischer Modelle, eine ganz fundamentale Symmetriebrechung zugrunde?

Coulomb-Kräfte, die zur Abstoßung führen, zu beschreiben. Jedoch ist die Anordnung der Atome fest und die Orientierung der Startimpulse somit immer eindeutig mit der Molekülachse verknüpft. Das Aufbrechen muß daher nur einmal simuliert werden.

Anhang A

Fünffach differentielle Wirkungsquerschnitte

A.1 Zweidimensionale Elektronenimpulsverteilung für 99 eV

Die folgenden Spektren zeigen die fünffach differentiellen Wirkungsquerschnitte $d^5\sigma^{2+}/(d\vartheta_1 dk_{y1} d\vartheta_2 dk_{x2} dk_{y2})$ als Funktion der Elektronenimpulsverteilung in der x-y-Ebene senrecht zur Strahlausbreitungsrichtung für 99 eV Photonenenergie. Der Wirkungsquerschnitt ist in willkürlichen Einheiten aufgetragen, die Spektren sind nicht zueinander normiert. Im Gegensatz zu den Spektren in Abb. 5.5 werden hier neben den Verteilungen in koplanarer Geometrie $\vartheta_1 = \vartheta_2 = 90^\circ$ auch die Impulsverteilungen der langsamen Elektronen mit Winkeln ϑ_2 von $(30 \pm 10)^\circ$, $(60 \pm 10)^\circ$, $(120 \pm 10)^\circ$ und $(150 \pm 10)^\circ$ gegen die Strahlachse vorgestellt. Der Winkel sowie die Polarisationsrichtung des Lichts sind jeweils in den Spektren ausgewiesen. Alle übrigen Komponenten werden wie in Abb. 5.5 festgehalten: Für das gemessene Elektron, in der Darstellung durch einen Pfeil nach rechts markiert, gilt $\vartheta_1 = 90^\circ$, $k_{y1} = 0$ und $k_{x1} \in [0,92; 1,21]$. Die Kreise deuten jeweils den maximal möglichen Impuls des langsamen Elektrons an. Diese Kreise sind Schnitte in der x-y-Ebene durch eine Impulskugel vom Radius $(2E_{\text{ex}} - \mathbf{k}_1^2)^{1/2}$. Für stark vorwärts oder rückwärts orientierte Elektronen nimmt der Impulsbetrag in z-Richtung zu, der Kreis in der x-y-Ebene wird daher kleiner. Der Überhang der Verteilung außerhalb der markierten Kreise gibt die Impulsunschärfe wieder und entspricht der Verbreiterung der Energieverteilung auf linken Seite des Nachweisintervalls, siehe Abb. 5.3.

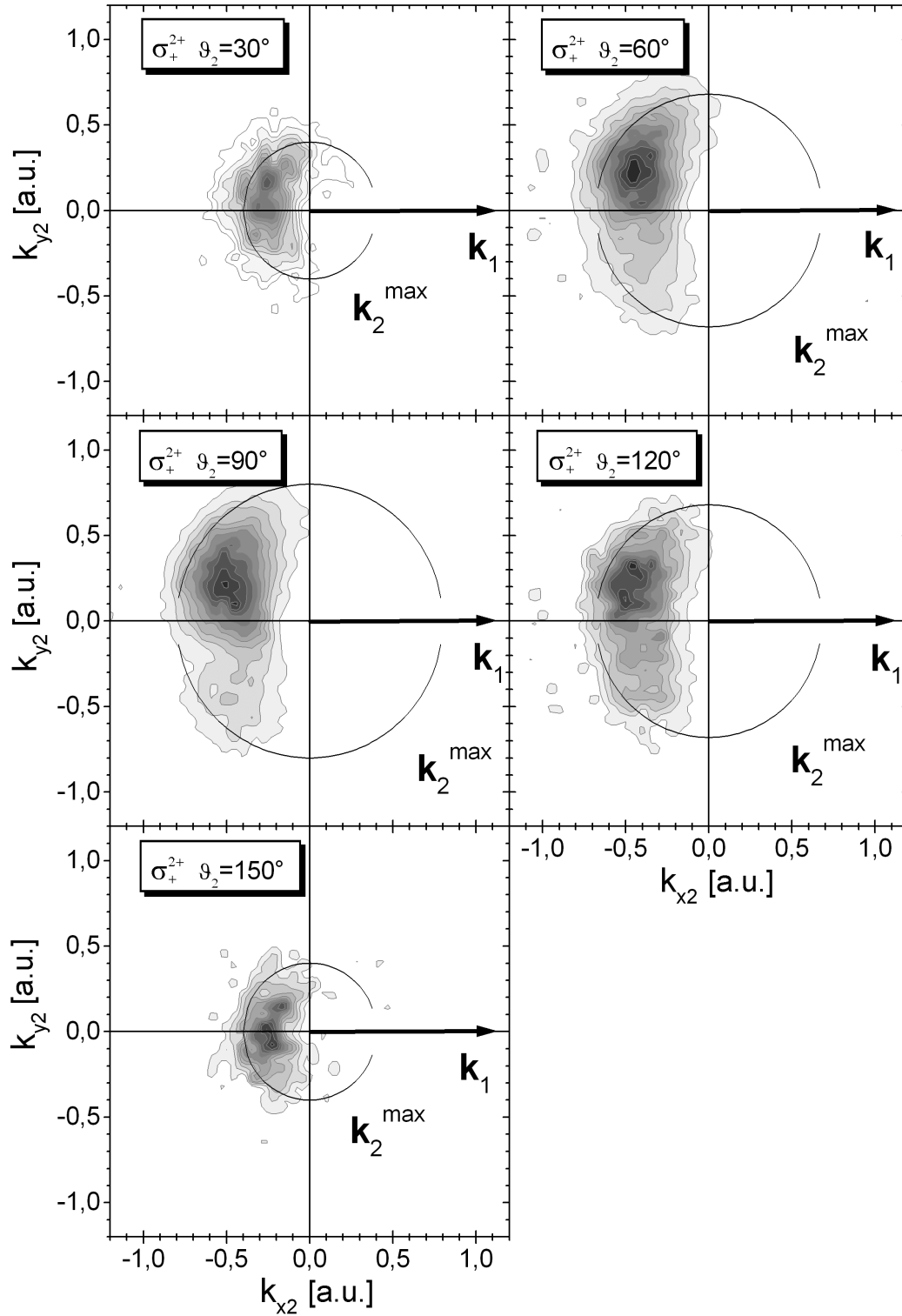


Abbildung A.1: Fünffach differentielle Wirkungsquerschnitte $d^5\sigma^{2+}/(d\vartheta_1 dk_{y1} d\vartheta_2 dk_{x2} dk_{y2})$ als Funktion von dk_{x2} und dk_{y2} , für $E_\gamma = 99 \text{ eV}$ und LCP. ϑ_2 wurde gemäß der Indizierung variiert. Die Kreise markieren jeweils den maximal möglichen Impuls $|\mathbf{k}_2|$. Für die festgehaltenen Komponenten gilt: $\vartheta_1 = (90 \pm 10)^\circ$, $k_{y1} = 0$, $k_{x1} \in [0,92; 1,21]$. Eingehende Diskussion der Spektren siehe Seite 109.

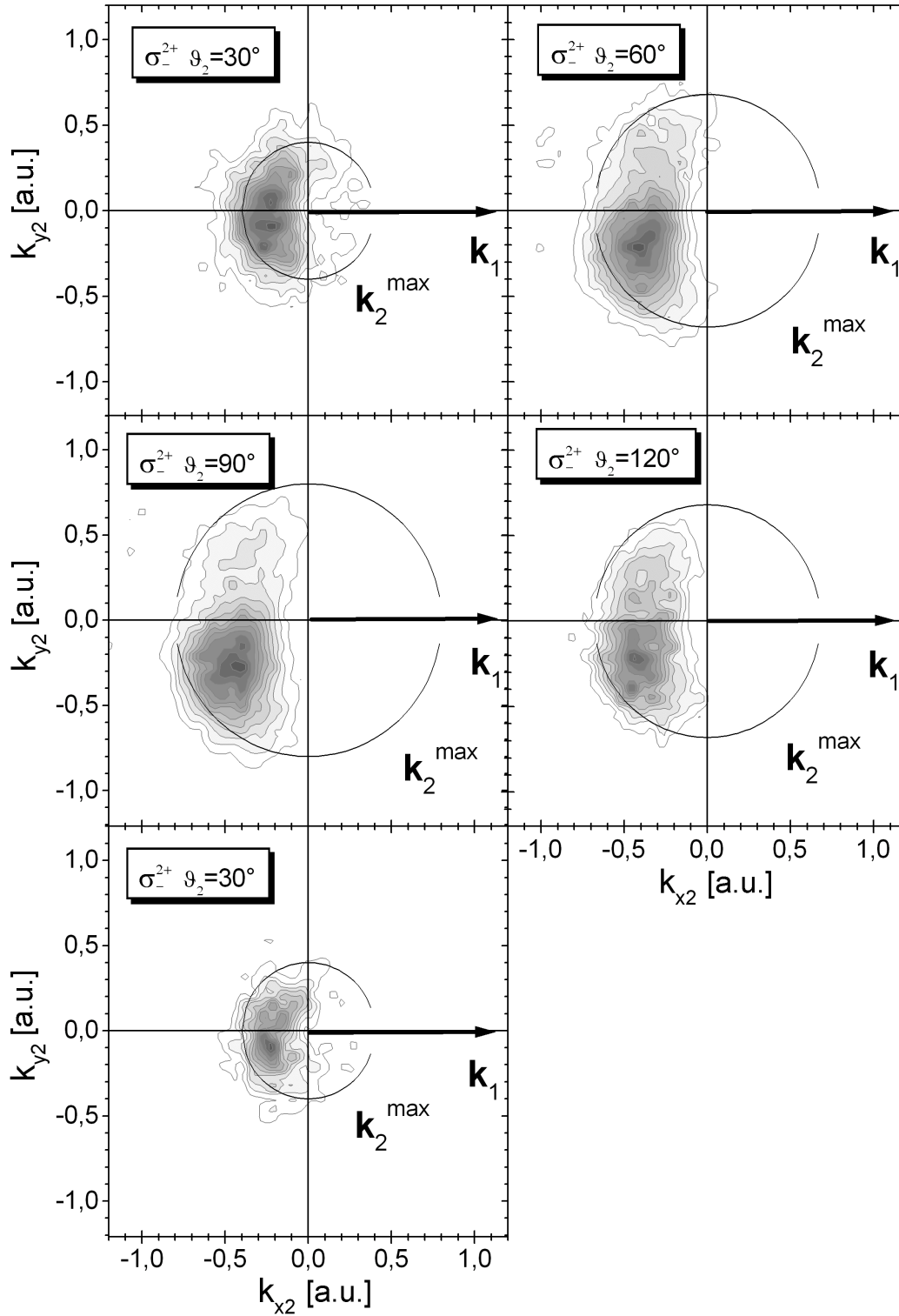


Abbildung A.2: Fünffach differenzielle Wirkungsquerschnitte $d^5\sigma^{2+}/(d\vartheta_1 dk_{y1} d\vartheta_2 dk_{x2} dk_{y2})$ als Funktion von dk_{x2} und dk_{y2} , für $E_\gamma = 99$ eV und RCP. ϑ_2 wurde gemäß der Indizierung variiert. Die Kreise markieren jeweils den maximal möglichen Impuls $|\mathbf{k}_2|$. Für die festgehaltenen Komponenten gilt: $\vartheta_1 = (90 \pm 10)^\circ$, $k_{y1} = 0$, $k_{x1} \in [0,92; 1,21]$. Eingehende Diskussion der Spektren siehe Seite 109.

A.2 Winkelverteilung für 99 eV

Im folgenden ist der fünffach differentielle Wirkungsquerschnitt $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ jeweils in der linken Spalte und der zirkulare Dichroismus in der rechten Spalte als Funktion der Winkelverteilung des langsamen Elektrons φ_2 für verschiedene Geometrien und Energieverteilungen zusammengestellt. Der Winkel des langsamen Elektrons gegen die z-Achse ϑ_2 variiert von $(30 \pm 10)^\circ$ bis $(150 \pm 10)^\circ$. Für das gemessene Elektron, in der Darstellung durch einen Pfeil nach rechts markiert, gilt $\vartheta_1 = (90 \pm 10)^\circ$. Die vollen Punkte markieren die Meßdaten für links zirkular polarisiertes Licht, die offenen Punkte entstammen der Messung mit rechts zirkular polarisiertem Licht. Die Spektren sind absolut normiert, die Wirkungsquerschnitte werden in atomaren Einheiten angegeben. Die Spektren für verschieden ϑ_2 zeigen nicht denselben Ausschnitt, in Vorwärts- wie in Rückwärtsrichtung fallen die Wirkungsquerschnitte kleiner aus als unter 90° zur Strahlachse. Eine Doppelseite umfaßt jeweils das gesamte nachgewiesene Energieintervall in 1 eV-Schritten. Die Spektren für $\vartheta_2 = 90^\circ$ enthalten eine theoretische CCC-Rechnung nach Bray *et al.* in Geschwindigkeitsform.

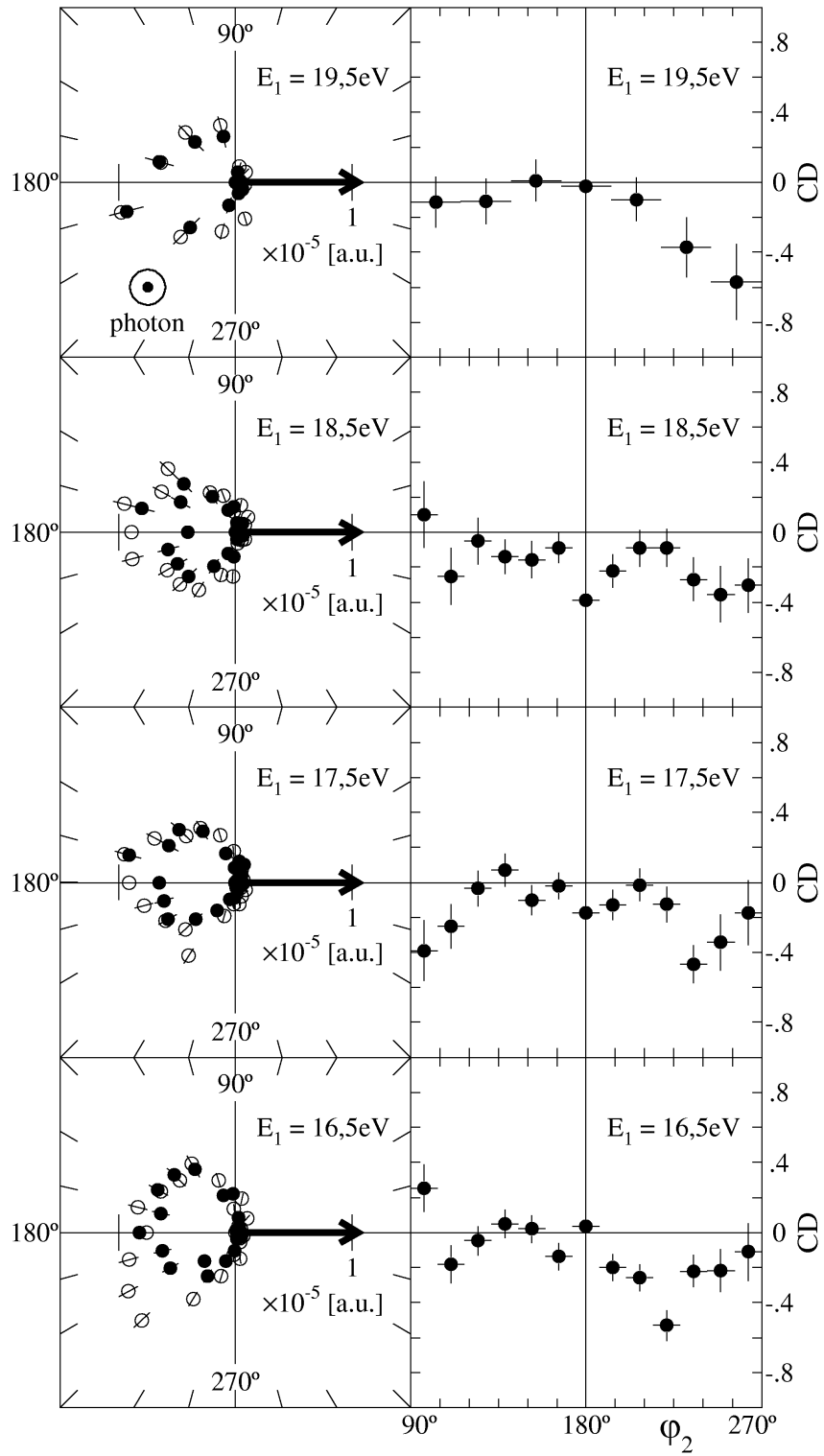


Abbildung A.3: $E_\gamma = 99\text{eV}$, $\vartheta_1 = 90^\circ$, $\vartheta_2 = 30^\circ$: Fünffach differentieller Wirkungsquerschnitt $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ (linkeSpalte) und CD (rechteSpalte) als Funktion von φ_2 und E_1 . Eingehende Diskussion der Spektren siehe Seiten 113 und 116.

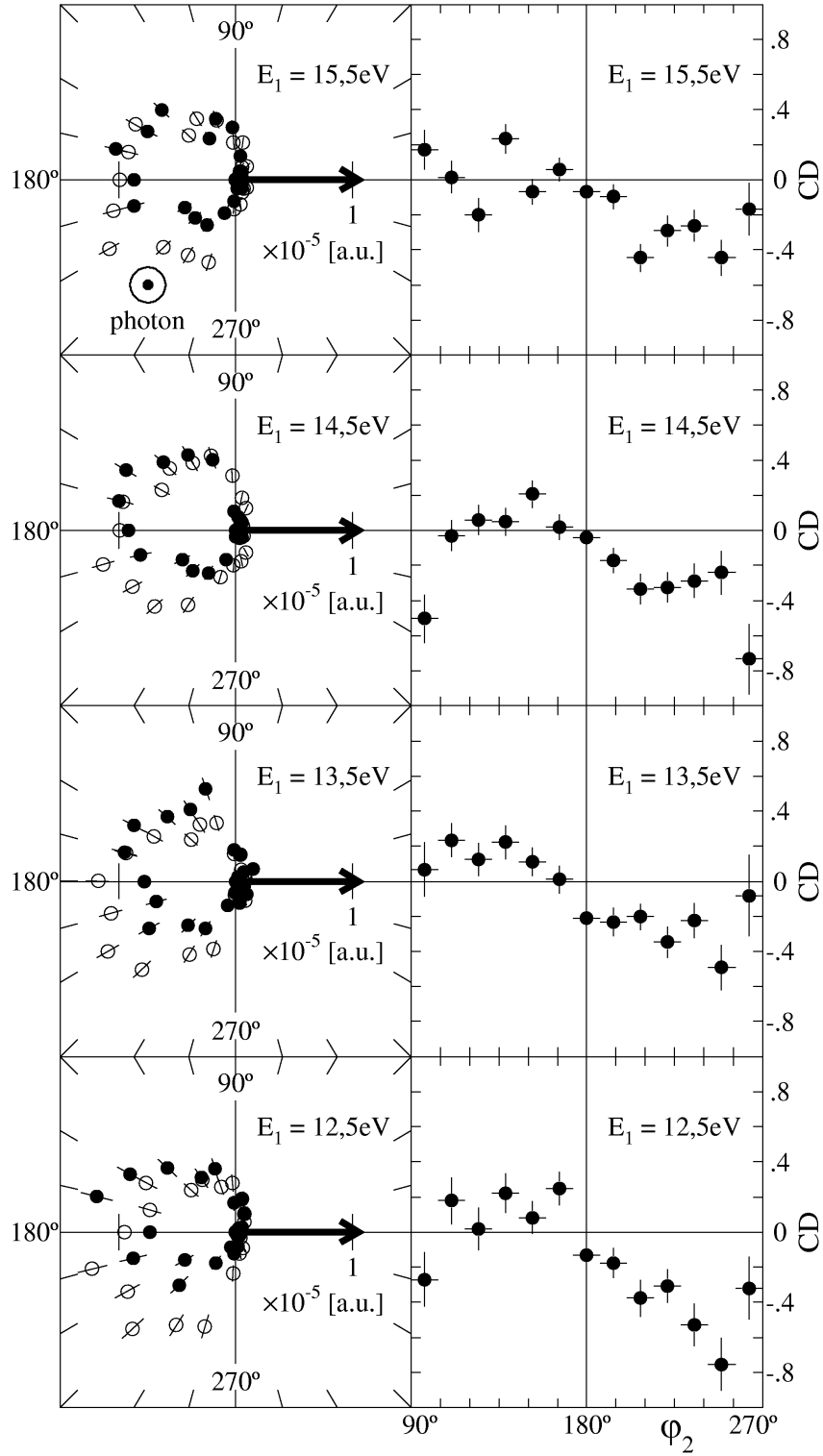


Abbildung A.4: $E_\gamma = 99\text{eV}$, $\vartheta_1 = 90^\circ$, $\vartheta_2 = 30^\circ$: Fünffach differentieller Wirkungsquerschnitt $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ (linkeSpalte) und CD (rechteSpalte) als Funktion von φ_2 und E_1 . Eingehende Diskussion der Spektren siehe Seiten 113 und 116.

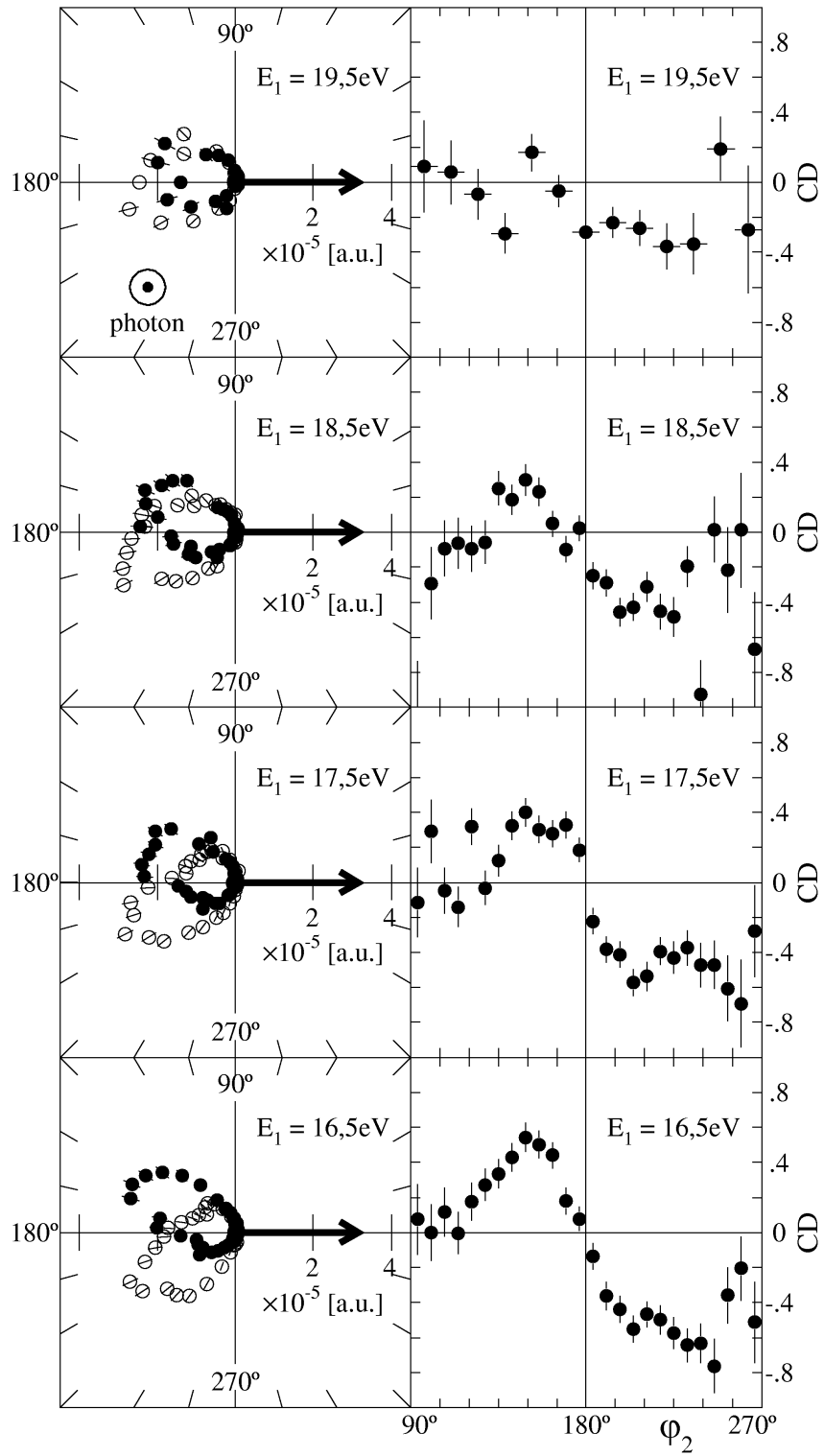


Abbildung A.5: $E_\gamma = 99\text{eV}$, $\vartheta_1 = 90^\circ$, $\vartheta_2 = 60^\circ$: Fünffach differentieller Wirkungsquerschnitt $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ (linkeSpalte) und CD (rechteSpalte) als Funktion von φ_2 und E_1 . Eingehende Diskussion der Spektren siehe Seiten 113 und 116.

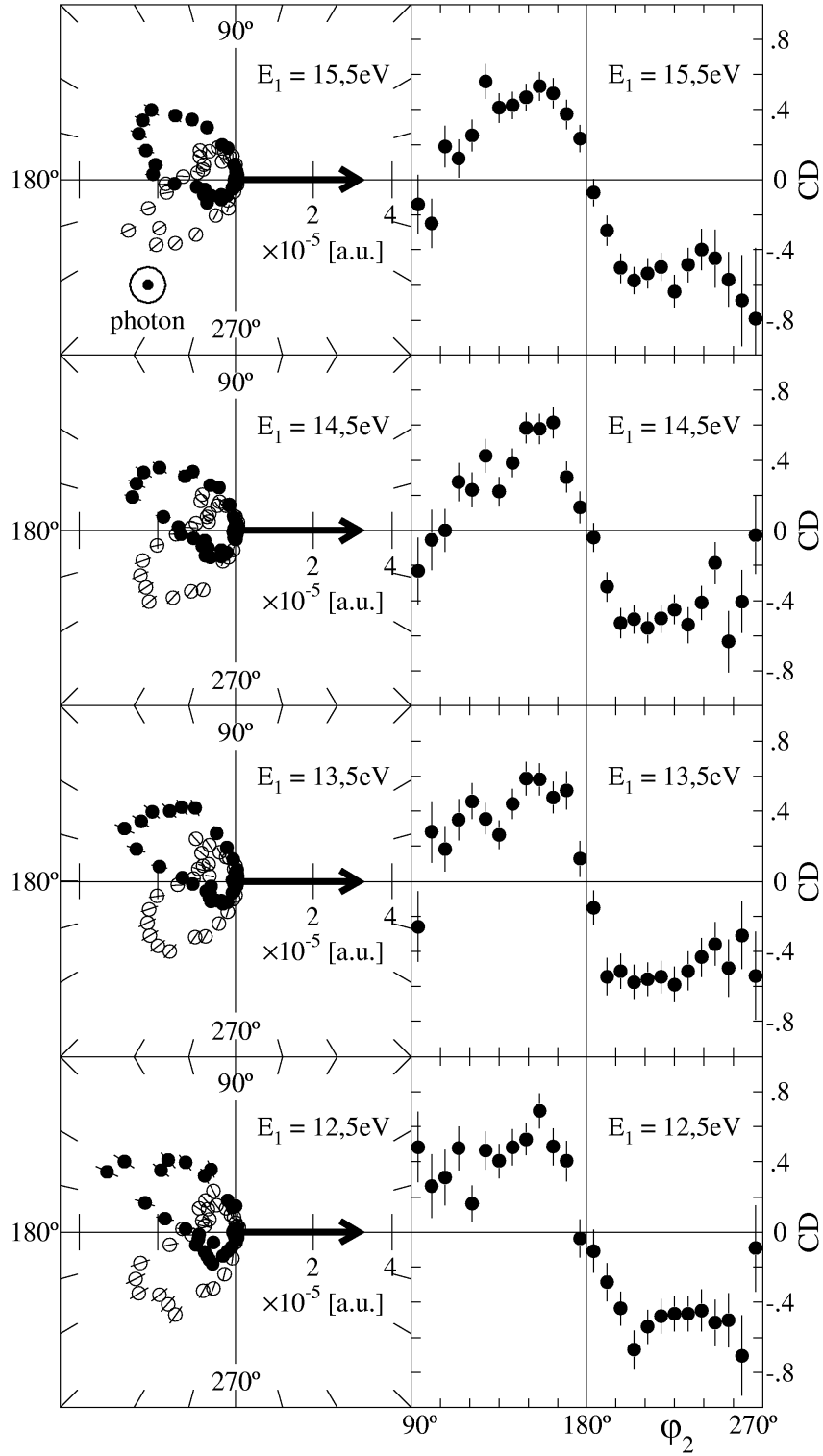


Abbildung A.6: $E_\gamma = 99\text{eV}$, $\vartheta_1 = 90^\circ$, $\vartheta_2 = 60^\circ$: Fünffach differentieller Wirkungsquerschnitt $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ (linkeSpalte) und CD (rechteSpalte) als Funktion von φ_2 und E_1 . Eingehende Diskussion der Spektren siehe Seiten 113 und 116.

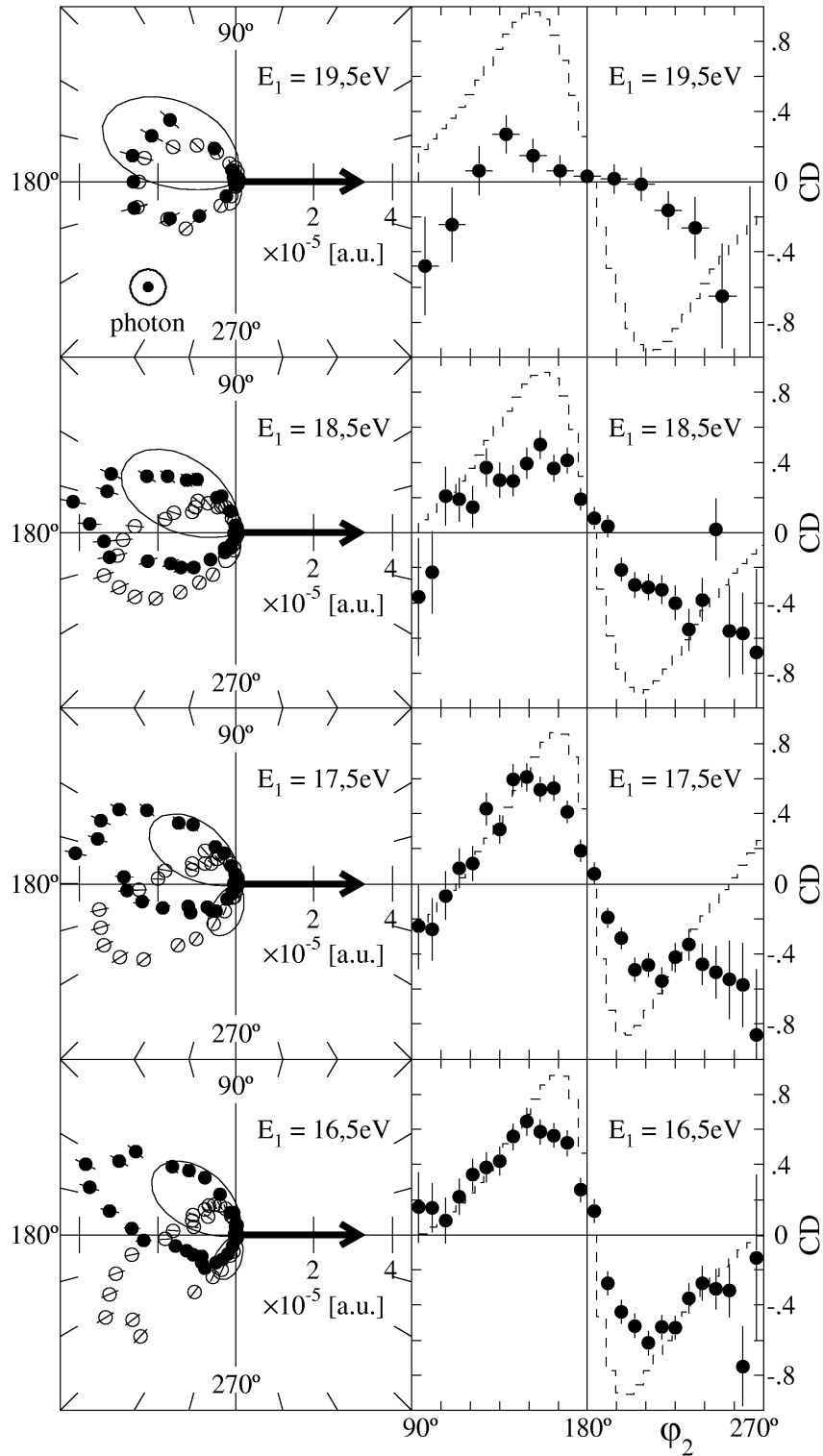
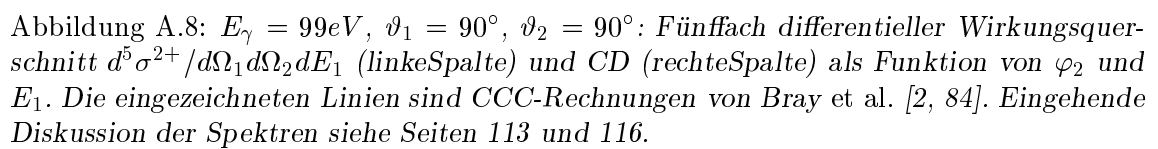


Abbildung A.7: $E_\gamma = 99\text{eV}$, $\vartheta_1 = 90^\circ$, $\vartheta_2 = 90^\circ$: Fünffach differentieller Wirkungsquerschnitt $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ (linkeSpalte) und CD (rechteSpalte) als Funktion von φ_2 und E_1 . Die eingezeichneten Linien sind CCC-Rechnungen von Bray et al. [2, 84]. Eingehende Diskussion der Spektren siehe Seiten 113 und 116.



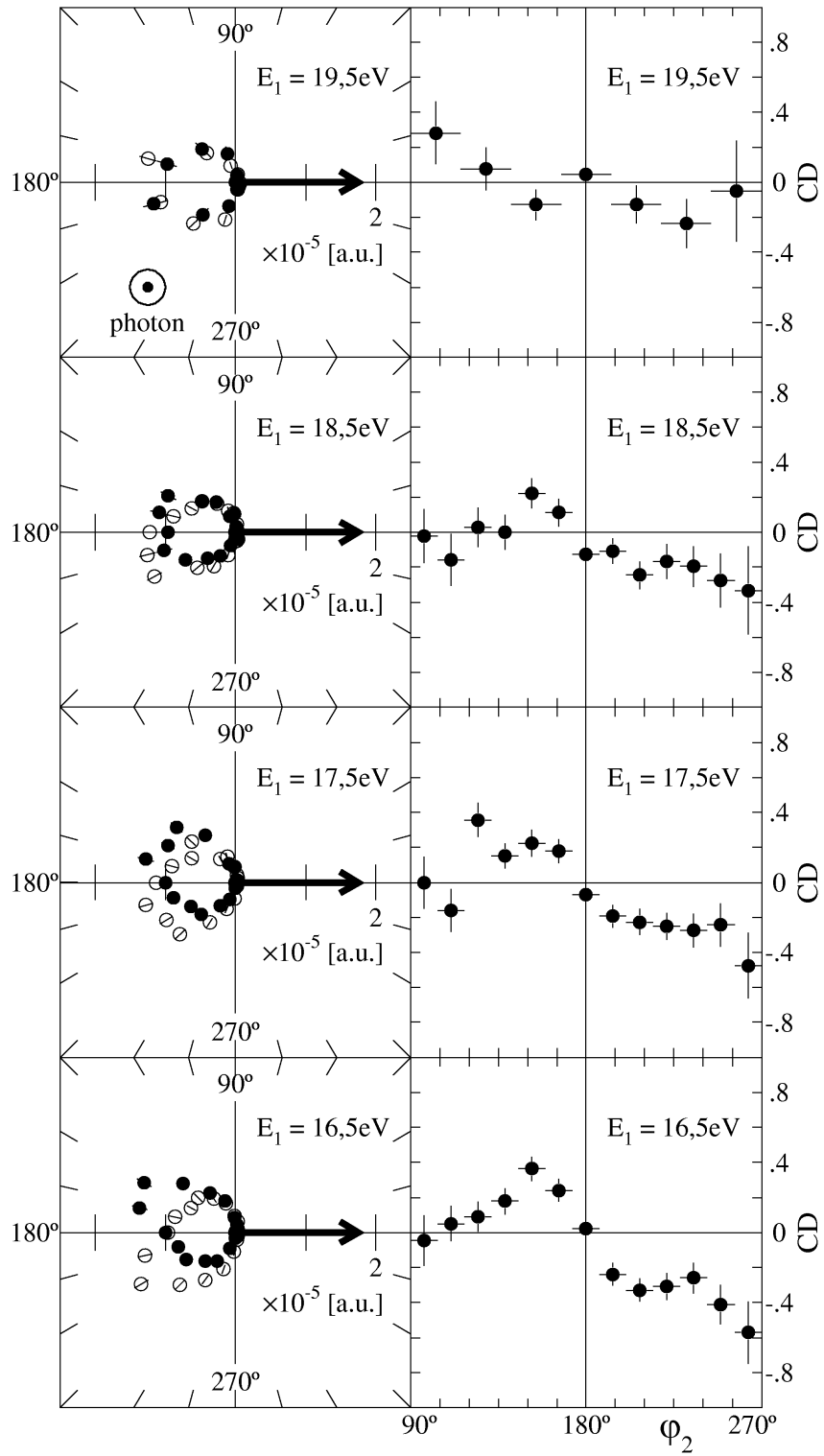


Abbildung A.9: $E_\gamma = 99\text{eV}$, $\vartheta_1 = 90^\circ$, $\vartheta_2 = 120^\circ$: Fünffach differentieller Wirkungsquerschnitt $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ (linkeSpalte) und CD (rechteSpalte) als Funktion von φ_2 und E_1 . Eingehende Diskussion der Spektren siehe Seiten 113 und 116.

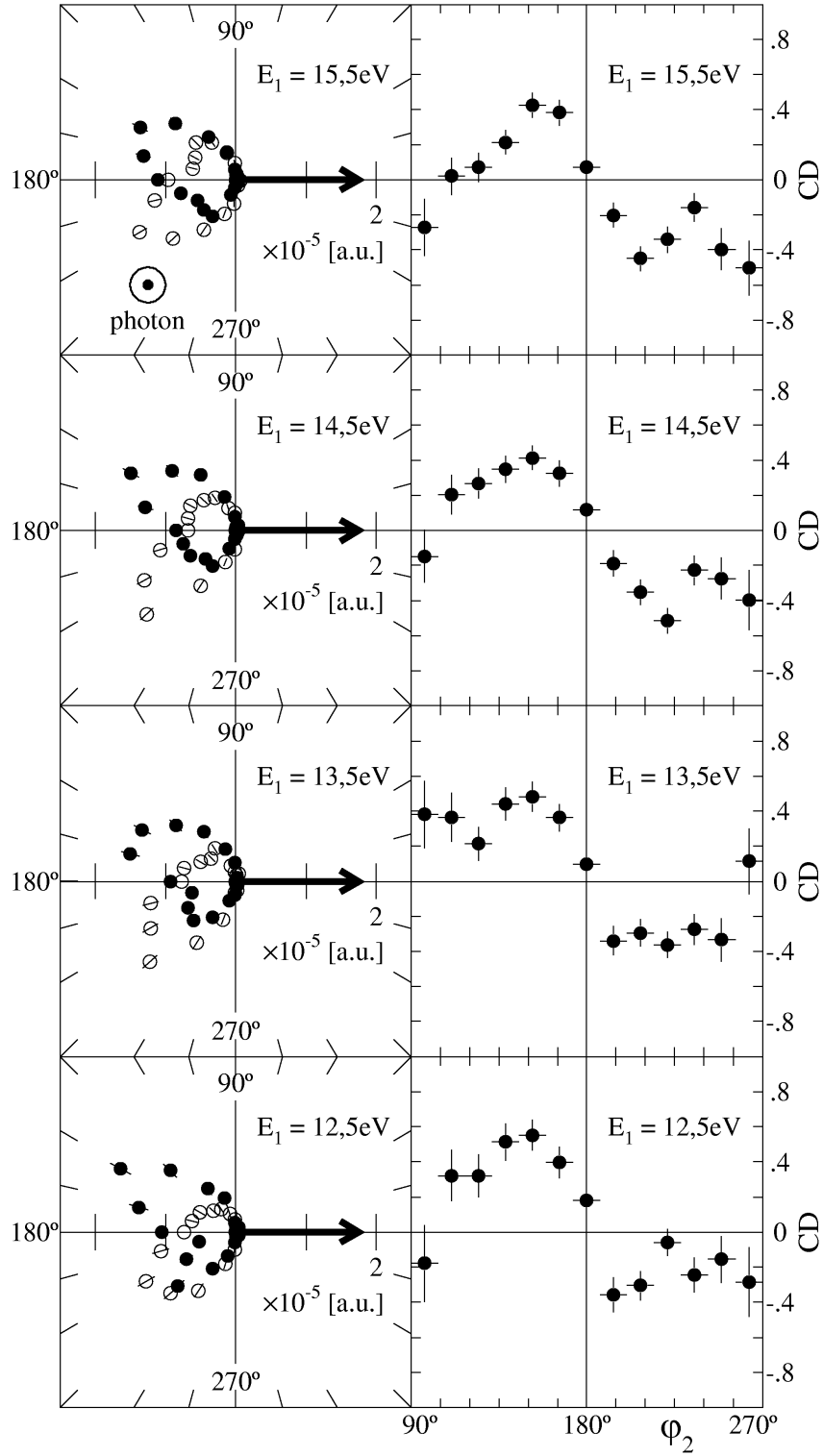


Abbildung A.10: $E_\gamma = 99\text{ eV}$, $\vartheta_1 = 90^\circ$, $\vartheta_2 = 120^\circ$: Fünffach differentieller Wirkungsquerschnitt $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ (linke Spalte) und CD (rechte Spalte) als Funktion von φ_2 und E_1 . Eingehende Diskussion der Spektren siehe Seiten 113 und 116.

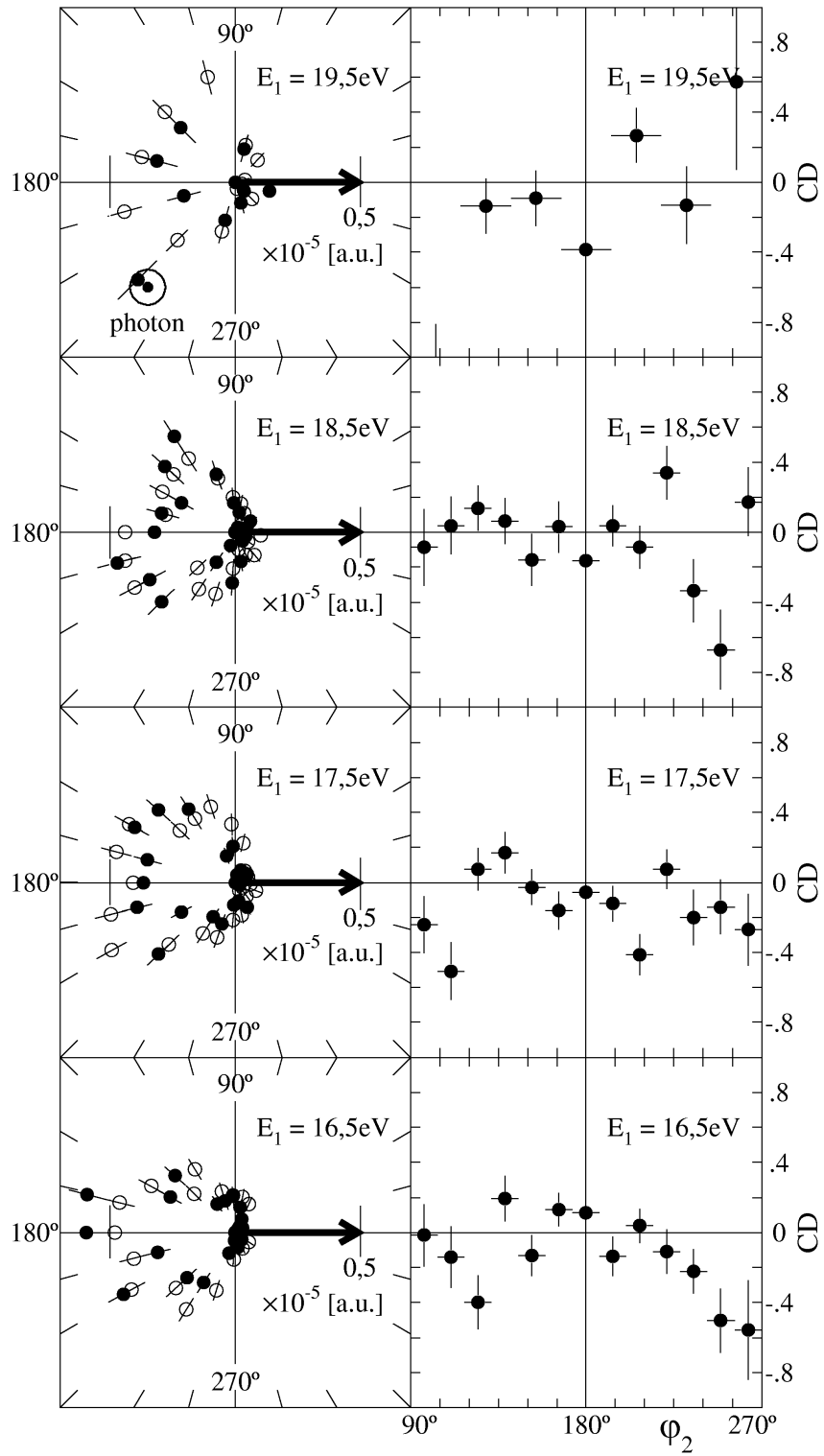


Abbildung A.11: $E_\gamma = 99\text{eV}$, $\vartheta_1 = 90^\circ$, $\vartheta_2 = 150^\circ$: Fünffach differentieller Wirkungsquerschnitt $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ (linkeSpalte) und CD (rechteSpalte) als Funktion von φ_2 und E_1 . Eingehende Diskussion der Spektren siehe Seiten 113 und 116.

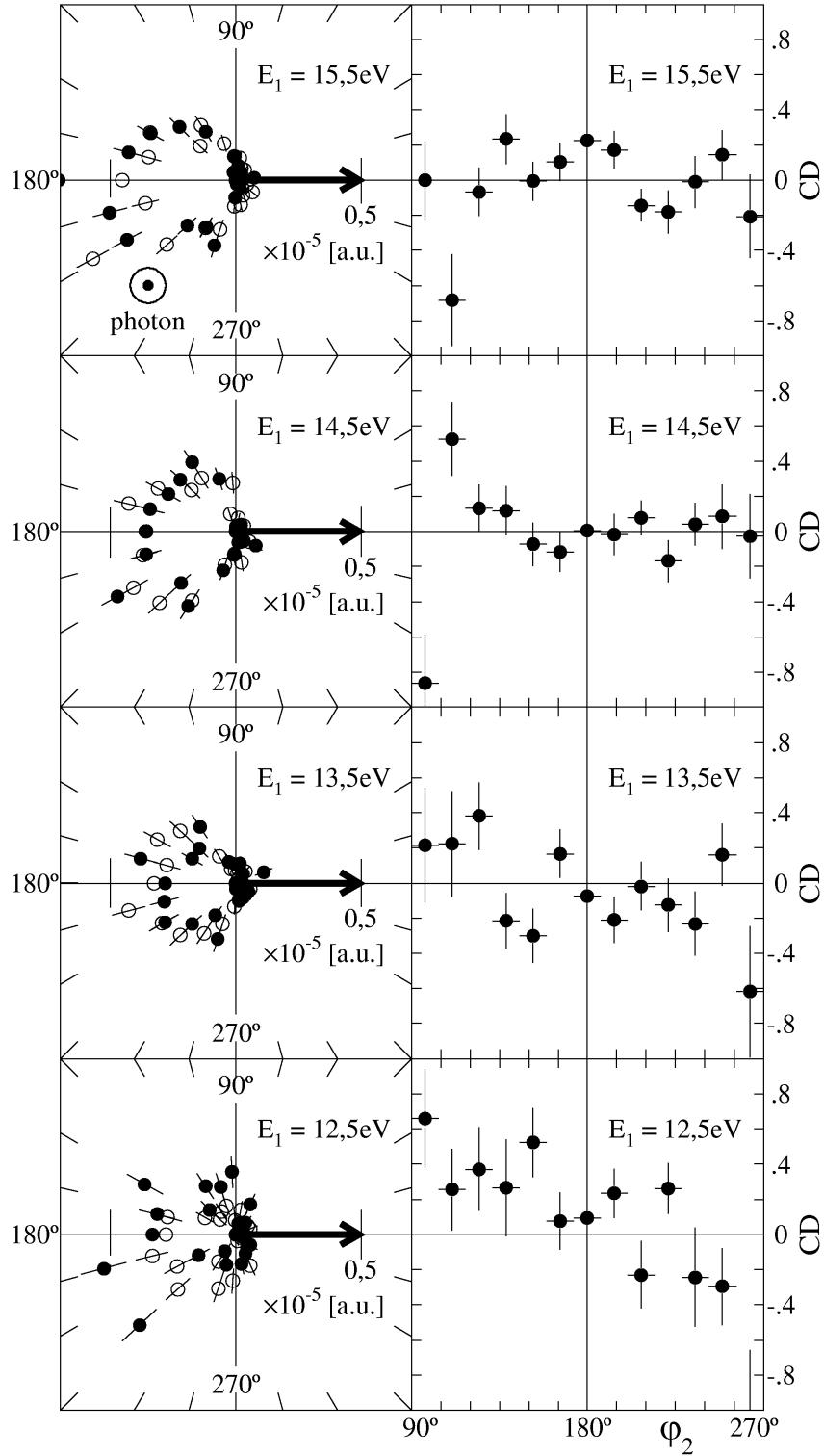


Abbildung A.12: $E_\gamma = 99\text{ eV}$, $\vartheta_1 = 90^\circ$, $\vartheta_2 = 150^\circ$: Fünffach differenzieller Wirkungsquerschnitt $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ (linke Spalte) und CD (rechte Spalte) als Funktion von φ_2 und E_1 . Eingehende Diskussion der Spektren siehe Seiten 113 und 116.

A.3 Winkelverteilung für 174 eV

In diesem Abschnitt ist der fünffach differentielle Wirkungsquerschnitt $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ in der linken Spalte und der zirkulare Dichroismus in der rechten Spalte als Funktion der Winkelverteilung des langsamen Elektrons φ_2 für verschiedene Geometrien und Energieverteilungen zusammengestellt. Das langsame Elektron und das gemessene Elektron, in der Darstellung durch einen Pfeil nach rechts markiert, werden mit $\vartheta_1 = \vartheta_2 = (90 \pm 10)^\circ$ festgehalten. Die vollen Punkte markieren die Meßdaten für links zirkular polarisiertes Licht, die offenen Punkte entstammen der Messung mit rechts zirkular polarisiertem Licht. Die Spektren sind nicht normiert, die Wirkungsquerschnitte sind in willkürlichen Einheiten angegeben. Die Doppelseite umfaßt das gesamte nachgewiesene Energieintervall in 5 eV-Schritten.

Die Spektren enthalten eine theoretische 3C-Rechnung von Berakdar mit Hylleraas-Anfangszustand in Längenform.

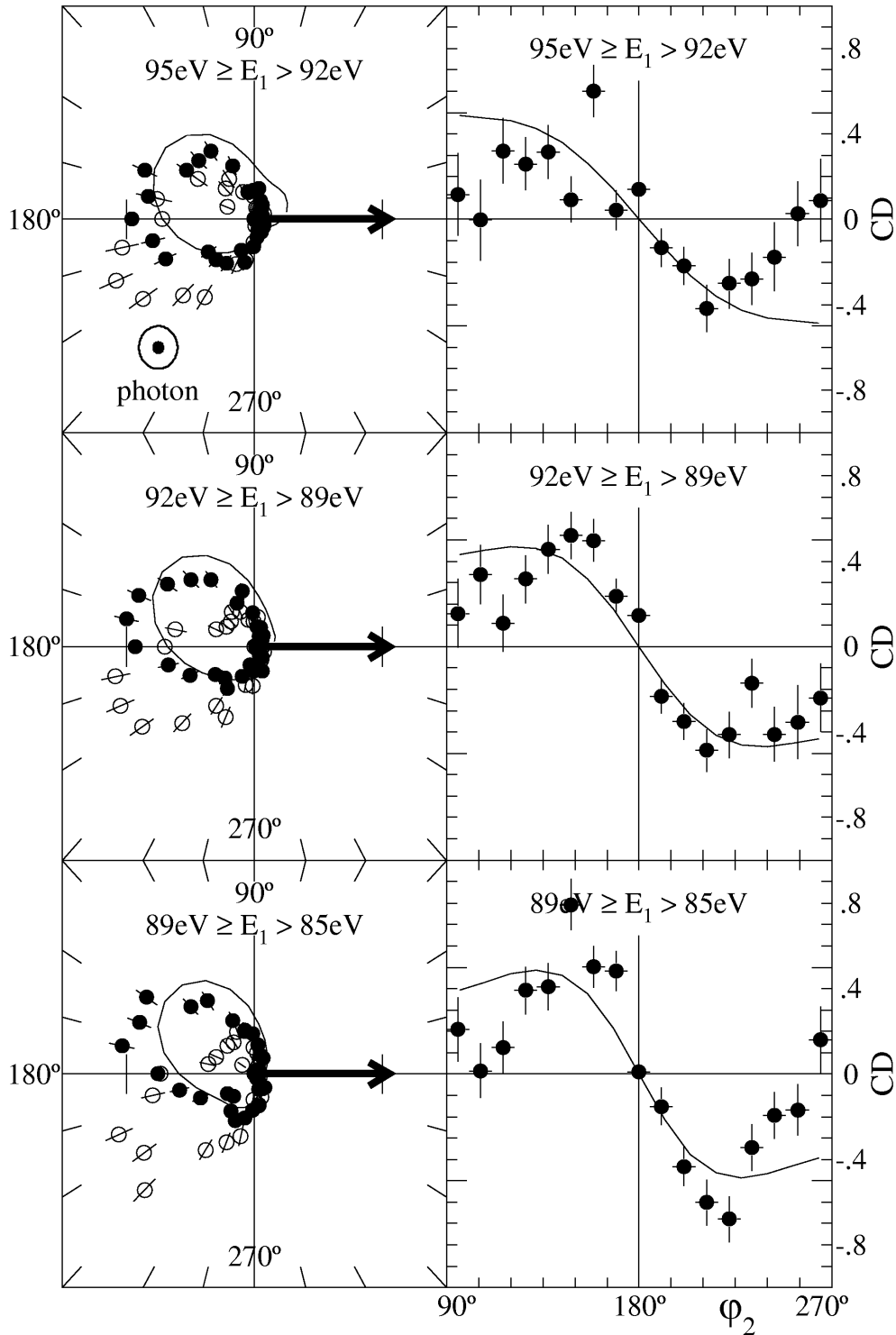


Abbildung A.13: $E_\gamma = 174\text{eV}$, $\vartheta_1 = 90^\circ$, $\vartheta_2 = 90^\circ$: Fünffach differentieller Wirkungsquerschnitt $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ (linkeSpalte) und CD (rechteSpalte) als Funktion von φ_2 und E_1 . Die eingezeichneten Linien sind 3C-Rechnungen mit Anfangszuständen vom Hylleraas-Typ in Längenform von Berakdar et al. [4]. Eingehende Diskussion der Spektren siehe Seite 123.

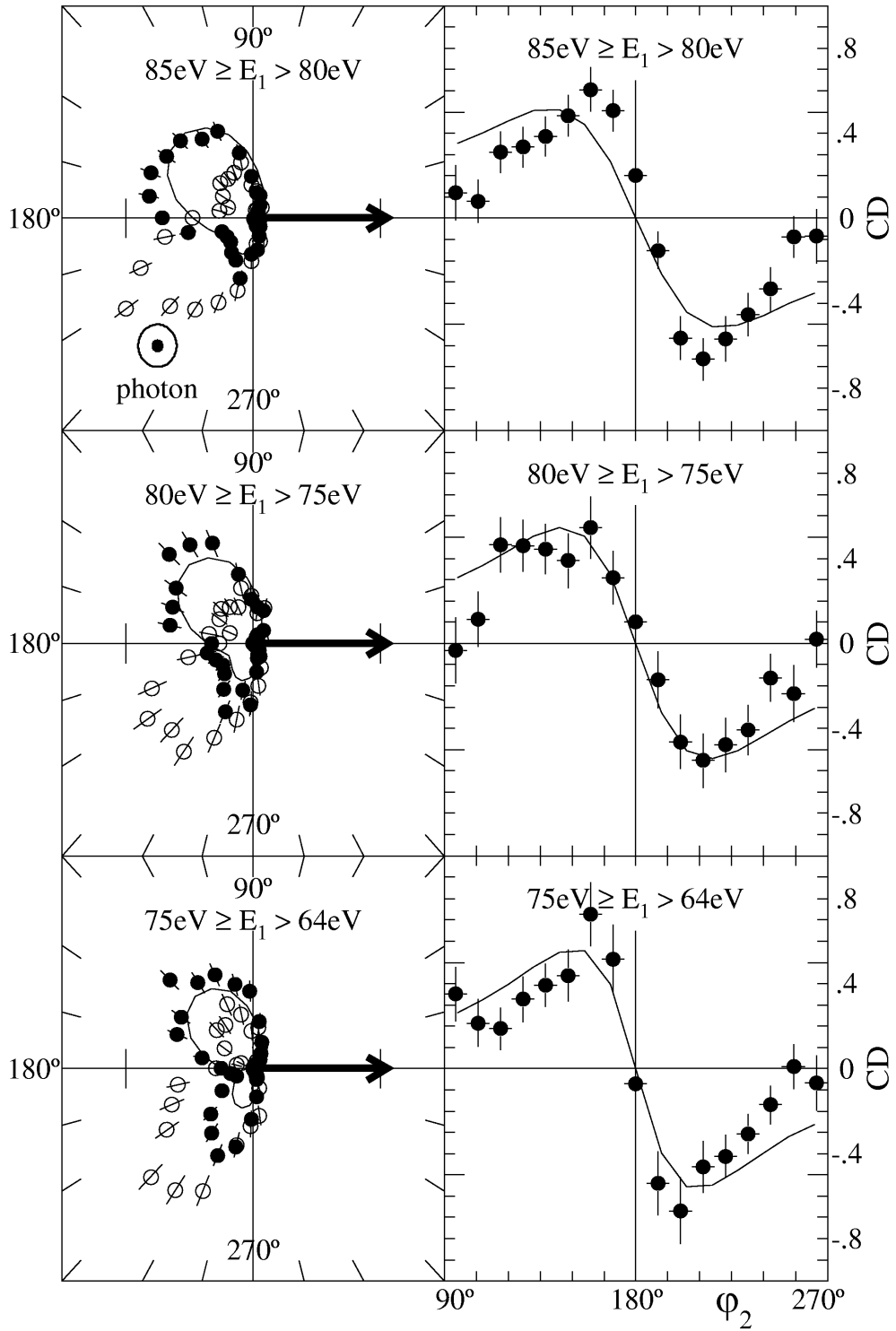


Abbildung A.14: $E_\gamma = 174\text{eV}$, $\vartheta_1 = 90^\circ$, $\vartheta_2 = 90^\circ$: Fünffach differentieller Wirkungsquerschnitt $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ (linke Spalte) und CD (rechte Spalte) als Funktion von φ_2 und E_1 . Die eingezeichneten Linien sind 3C-Rechnungen mit Anfangszuständen vom Hylleraas-Typ in Längenform von Berakdar et al. [4]. Eingehende Diskussion der Spektren siehe Seite 123.

A.4 Vergleich $d^5\sigma_x^{2+} + d^5\sigma_y^{2+}$ und $d^5\sigma_+^{2+} + d^5\sigma_-^{2+}$

In diesem Abschnitt werden die Summen der differentiellen Wirkungsquerschnitte aus der Photodoppelionisation mit zirkular polarisiertem Licht $d^5\sigma_x^{2+} + d^5\sigma_y^{2+}$ denen aus der Photodoppelionisation mit linear polarisiertem Licht $d^5\sigma_+^{2+} + d^5\sigma_-^{2+}$ jeweils für $E_\gamma = 99\text{eV}$ als Funktion von φ_2 gegenübergestellt. Auf der linken Seite sind jeweils die einzelnen Wirkungsquerschnitte in einem Polarspektrum abgebildet, rechts ist die Summe linear gegen den Winkel aufgetragen. Die Summe der Wirkungsquerschnitte wurde zur Kontrolle der Konsistenz im Fall linearer Polarisation über jeweils drei verschiedene Zwischenwinkel zwischen dem schnelleren Elektron (e_1), nach rechts festgehalten, und dem Polarisationsachsenpaar (ϵ) gebildet. Abbildungen a) - c): $\vartheta'_\epsilon = 17,5^\circ$ bzw. $107,5^\circ$, 30° bzw. 120° und 40° bzw. 130° . Die vollen Punkte gehören zu der Polarisationsrichtung, die durch den durchgezogenen Doppelpfeil markiert ist. Die offenen Punkte entsprechen der Verteilung bei einer Polarisation entlang des gestrichelten Pfeils. Aufgrund der Rotationssymmetrie im Bezug auf die Polarisationsachse ist der Wirkungsquerschnitt über den Winkel φ'_1 aufintegriert. Abbildung d): Wirkungsquerschnitte aus der Photodoppelionisation mit links (offene Punkte) sowie rechts zirkular polarisiertem Licht (volle Punkte). Hier gilt $\vartheta_1 = \vartheta_2 = (90 \pm 10)^\circ$.

Alle Spektren sind absolut normiert und in atomaren Einheiten geeicht. Die Spektren wurden für die Energien $E_1 \in [12\text{ eV}; 14\text{ eV}]$, $[14\text{ eV}; 16\text{ eV}]$, $[16\text{ eV}; 18\text{ eV}]$ und $[18\text{ eV}; 20\text{ eV}]$ berechnet.

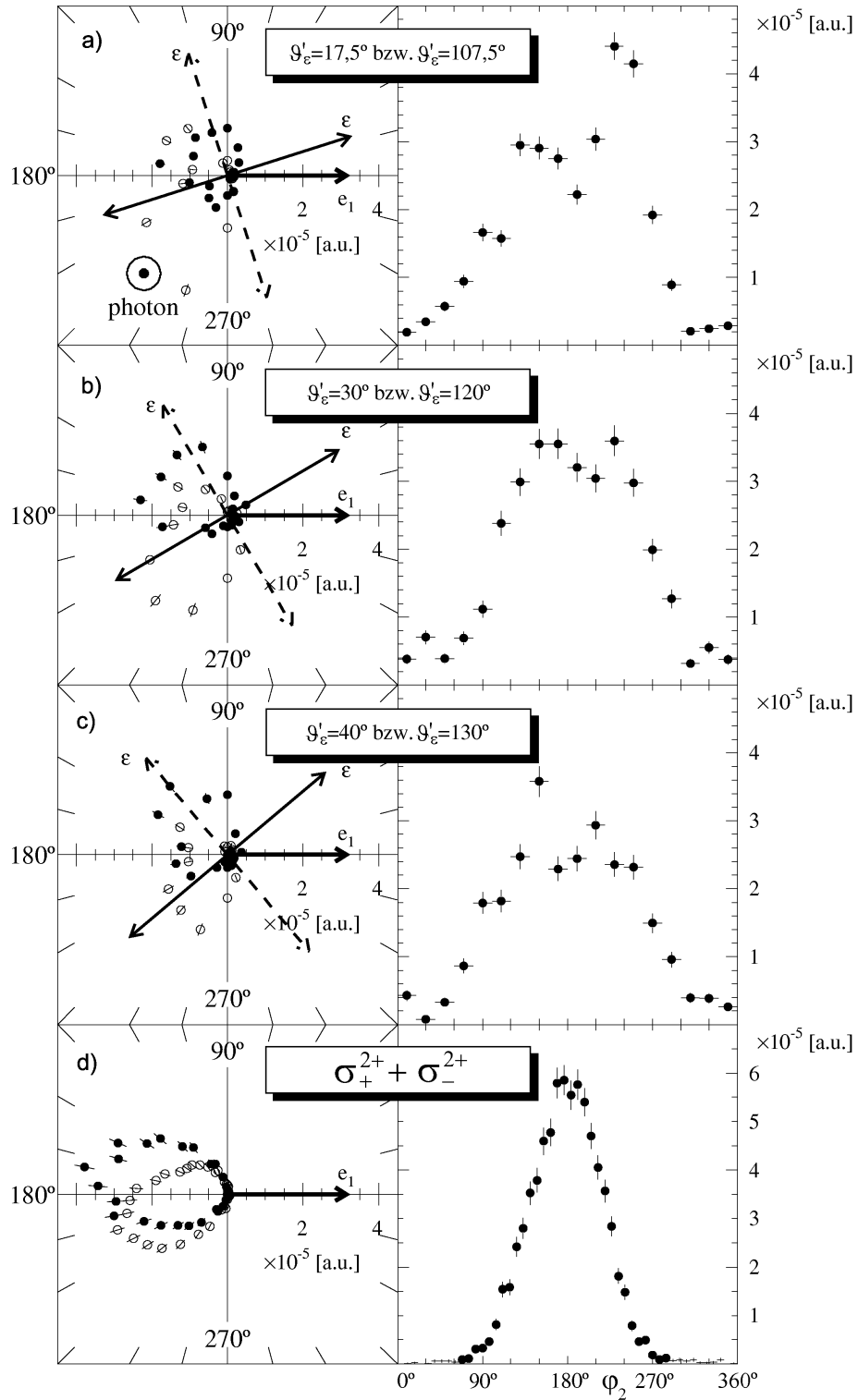


Abbildung A.15: $E_\gamma = 99\text{eV}$, $E_1 = 18 - 20\text{eV}$. Links: Fünffach differentieller Wirkungsquerschnitt $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ für a)-c) lineare Polarisation als Funktion von ϑ'_2 bzw. d) zirkulare Polarisation in Ebene senkrecht zu $\mathbf{k}_\gamma$ als Funktion von φ_2 . Rechts: $d^5\sigma_x^{2+} + d^5\sigma_y^{2+}$ bzw. $d^5\sigma_+^{2+} + d^5\sigma_-^{2+}$. Weitere Erläuterung siehe Seite 119.

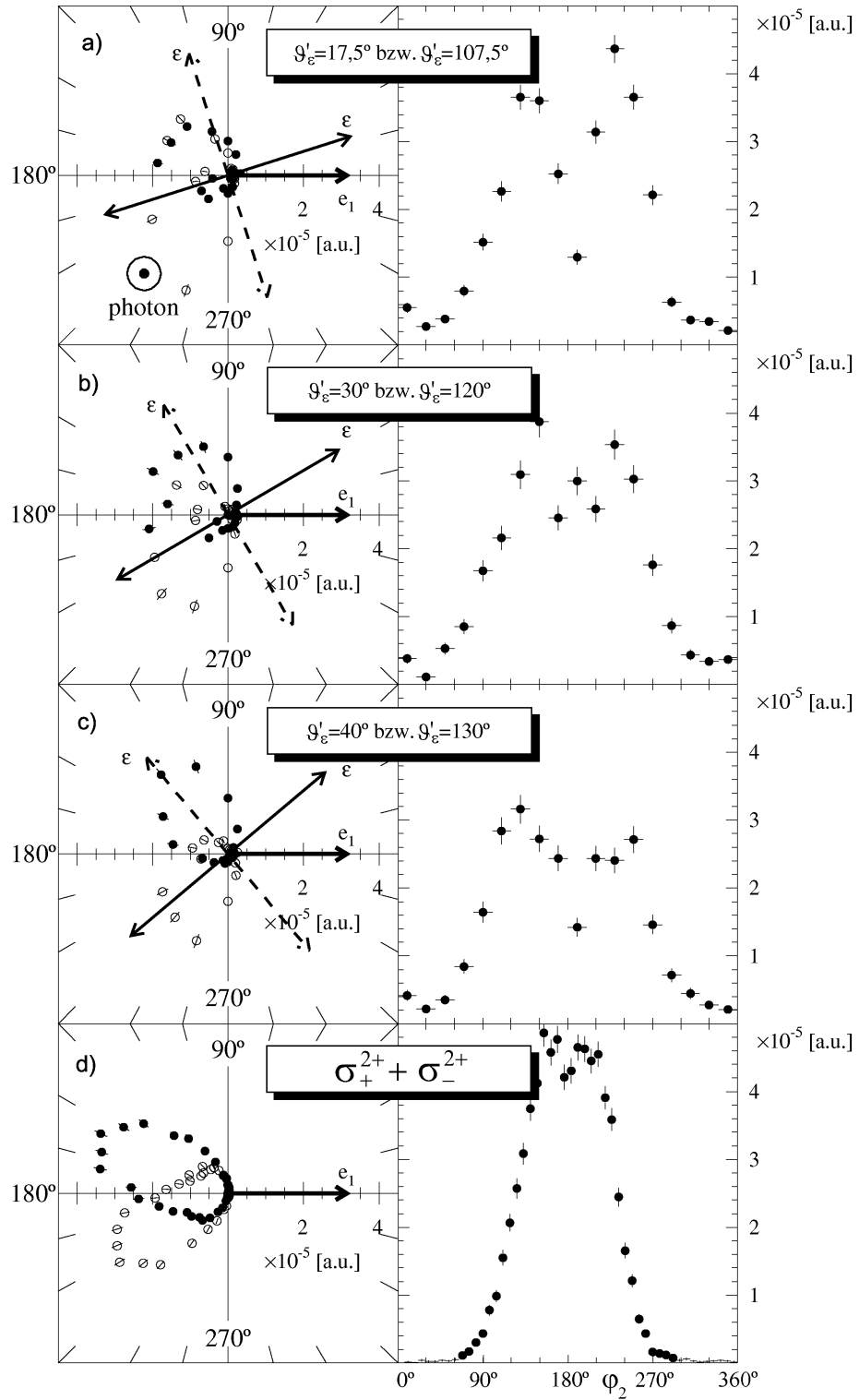


Abbildung A.16: $E_\gamma = 99\text{eV}$, $E_1 = 16 - 18\text{eV}$. Links: Fünffach differentieller Wirkungsquerschnitt $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ für a)-c) lineare Polarisation als Funktion von ϑ'_2 bzw. d) zirkulare Polarisation in Ebene senkrecht zu $\mathbf{k}_\gamma$ als Funktion von φ_2 . Rechts: $d^5\sigma_x^{2+} + d^5\sigma_y^{2+}$ bzw. $d^5\sigma_+^{2+} + d^5\sigma_-^{2+}$. Weitere Erläuterung siehe Seite 119.

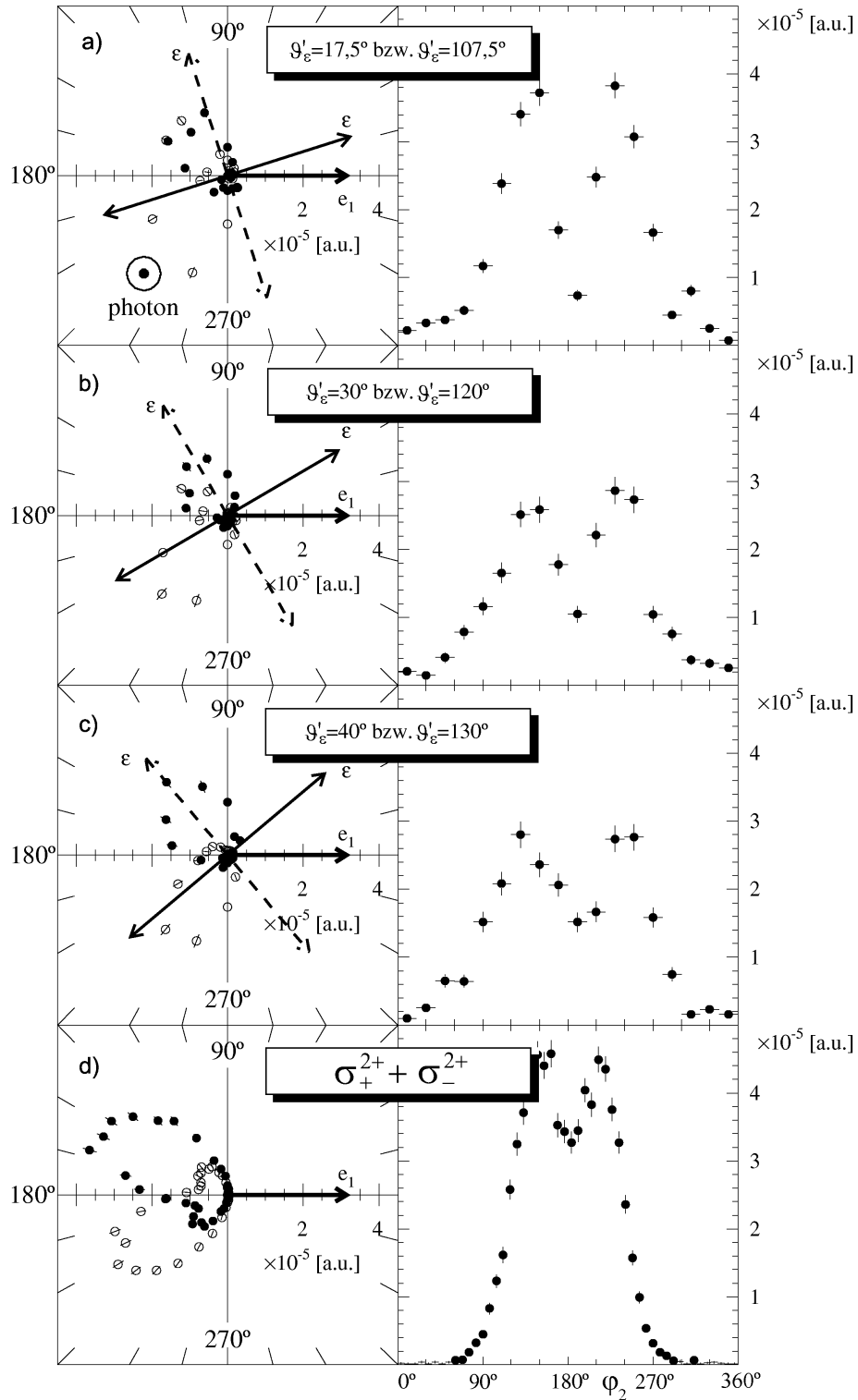


Abbildung A.17: $E_\gamma = 99\text{eV}$, $E_1 = 14 - 16\text{eV}$. Links: Fünffach differentieller Wirkungsquerschnitt $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ für a)-c) lineare Polarisation als Funktion von ϑ'_2 bzw. d) zirkulare Polarisation in Ebene senkrecht zu $\mathbf{k}_\gamma$ als Funktion von φ_2 . Rechts: $d^5\sigma_x^{2+} + d^5\sigma_y^{2+}$ bzw. $d^5\sigma_+^{2+} + d^5\sigma_-^{2+}$. Weitere Erläuterung siehe Seite 119.

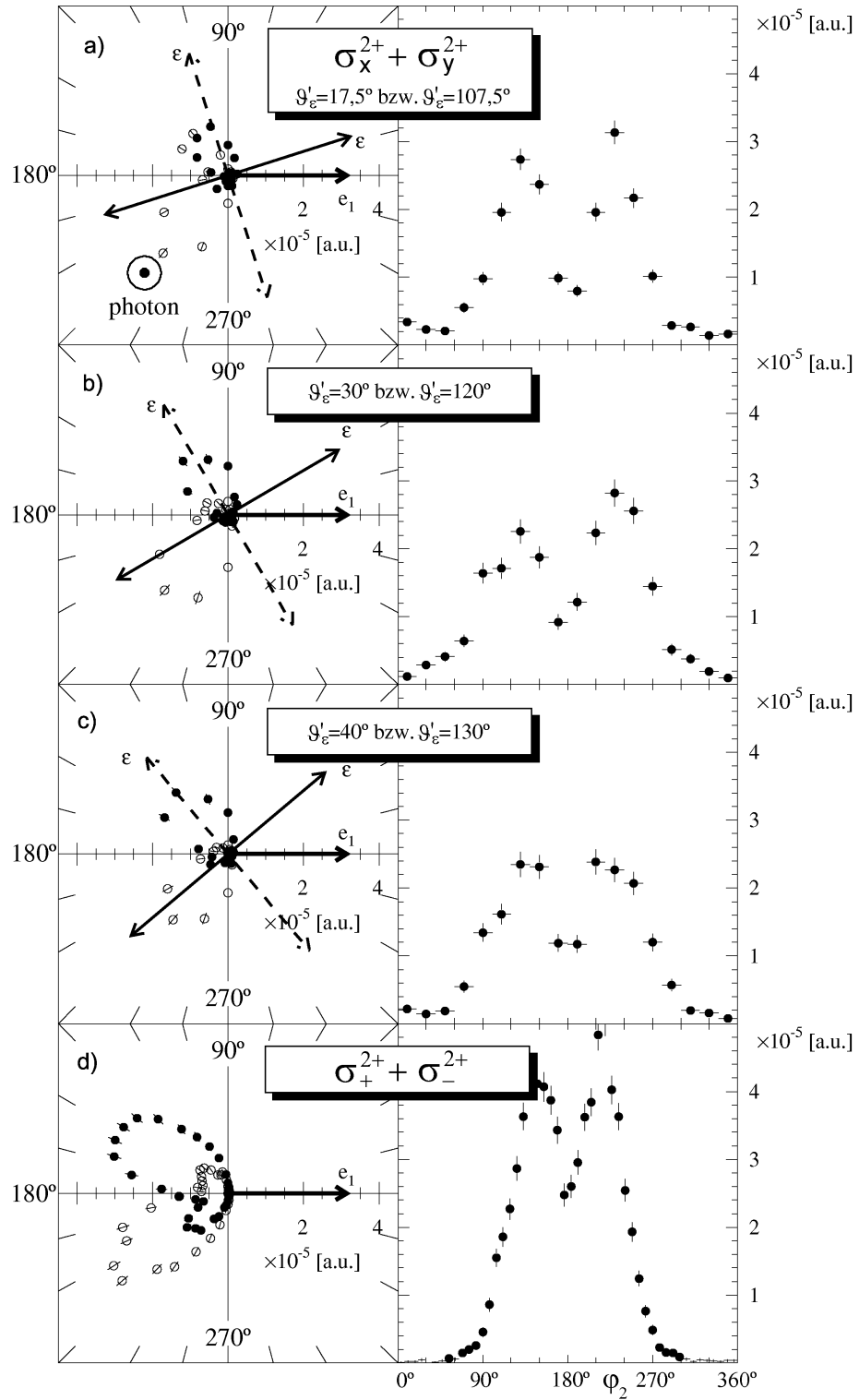


Abbildung A.18: $E_\gamma = 99\text{eV}$, $E_1 = 12 - 14\text{eV}$. Links: Fünffach differentieller Wirkungsquerschnitt $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ für a)-c) lineare Polarisation als Funktion von ϑ'_2 bzw. d) zirkulare Polarisation in Ebene senkrecht zu $\mathbf{k}_\gamma$ als Funktion von φ_2 . Rechts: $d^5\sigma_X^{2+} + d^5\sigma_Y^{2+}$ bzw. $d^5\sigma_+^{2+} + d^5\sigma_-^{2+}$. Weitere Erläuterung siehe Seite 119.

A.5 Einfluß des Ionenimpulsnullpunkts auf die Winkelverteilung

Auf der rechten Seite ist der fünffach differentielle Wirkungsquerschnitt $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ als Funktion der Winkelverteilung des langsamen Elektrons φ_2 für verschiedene Eichungen des Ionenimpulsnullpunkts dargestellt. Es gilt wieder koplanare Geometrie $\vartheta_1 = \vartheta_2 = (90 \pm 10)^\circ$ und das schnelle Elektron wird nach rechts festgehalten. Die Abhängigkeit wird für den gesamten Nachweisbereich in 1 eV-Schritten dargestellt.

Die durchgezogenen Linien markieren die mittlere Verteilung, die zum Nominalwert des Ionenimpulsnullpunkts gehört. Die gestrichelten Linien stellen die Winkelverteilung zu Nullpunkten dar, die jeweils gleichzeitig um $\pm 0,05$ a.u. in jeder Raumrichtung verschoben sind. Die Spektren enthalten desweiteren die theoretische CCC-Rechnung nach Bray *et al.* in Geschwindigkeitsform, die als punktierte Linie eingezeichnet ist. Es ist jeweils nur die Verteilung für links zirkular polarisiertes Licht abgebildet. Die Spektren sind absolut normiert, die Wirkungsquerschnitte werden in atomaren Einheiten angegeben.

Anmerkung: Die Amplitude der Variation von $\pm 0,05$ a.u. entspricht etwa der aus den Eichmessungen zu erwartenden Unsicherheit.

Die Verteilung wurde ebenfalls für die Variation des Nullpunkts nur in der x-Koordinate um ebenfalls $\pm 0,05$ a.u. untersucht. Dabei wurde keine wesentliche Änderung des Verhaltens gegenüber dem Dargestellten festgestellt.

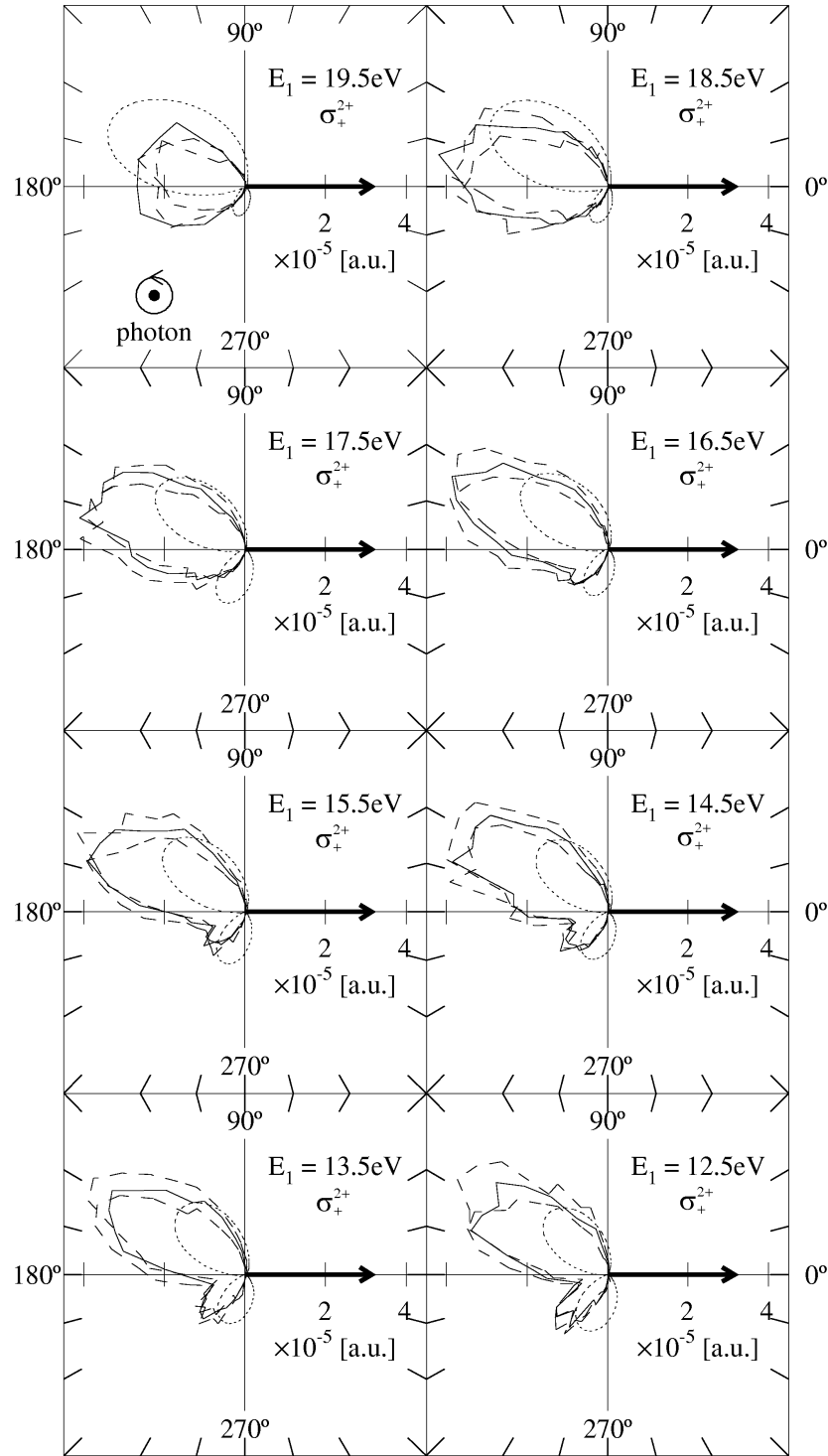


Abbildung A.19: $E_\gamma = 99\text{eV}$, $\vartheta_1 = 90^\circ$, $\vartheta_2 = 90^\circ$: Abhängigkeit des fünffach differentiellen Wirkungsquerschnitts $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1$ vom Ionenimpulsnullpunkt im Fall LCP. Die durchgezogene Linie entspricht der verwendeten Eichung, die gestrichelten Linien geben den maximalen Fehler wieder, die punktierte Linie entspricht der CCC-Rechnung nach Bray et al. [2, 84].

Anhang B

Ausgesuchte Winkelverteilungen linearer Polarisation

Die folgende Abbildung zeigt eine Auswahl an Winkelspektren aus der Photoionisation bei 99 eV mit linear polarisiertem Licht. Die Spektren sind entnommen aus [27]. Sie zeigen den differentiellen Wirkungsquerschnitt in der Winkelverteilung des zweiten Elektrons bezüglich des Polarwinkels ϑ'_2 , aufgetragen gegen die Polarisationsachse. Diese ist horizontal ausgerichtet. Die Verteilung ist bezüglich des Azimutalwinkels rotationssymmetrisch und daher über diese Koordinate integriert. Es handelt sich somit um einen dreifach differentiellen Wirkungsquerschnitt $d^3\sigma^{2+}/(\sin(\vartheta'_1)d\vartheta'_1 \sin(\vartheta'_2)d\vartheta'_2 dE_1)$. Eines der Elektronen wird in der Richtung des Pfeils festgehalten, die zugehörige Energie ist jeweils in der Abbildung ausgewiesen. Es variieren die Energieaufteilung von $E_1 = E_2$ bis $E_1 = 17$ eV und der Winkel des ersten Elektrons bezüglich der Polarisationsachse von $\vartheta'_1 = 0^\circ$ bis 90° . Die Spektren enthalten neben den gemessenen Daten auch eine Rechnung von Bray *et al.* nach der convergent-close-coupling-Methode. Die Rechnung ist in allen drei Eichungen durchgeführt, die Ergebnisse sind aber aufgrund der guten Übereinstimmung kaum in den Spektren unterscheidbar.

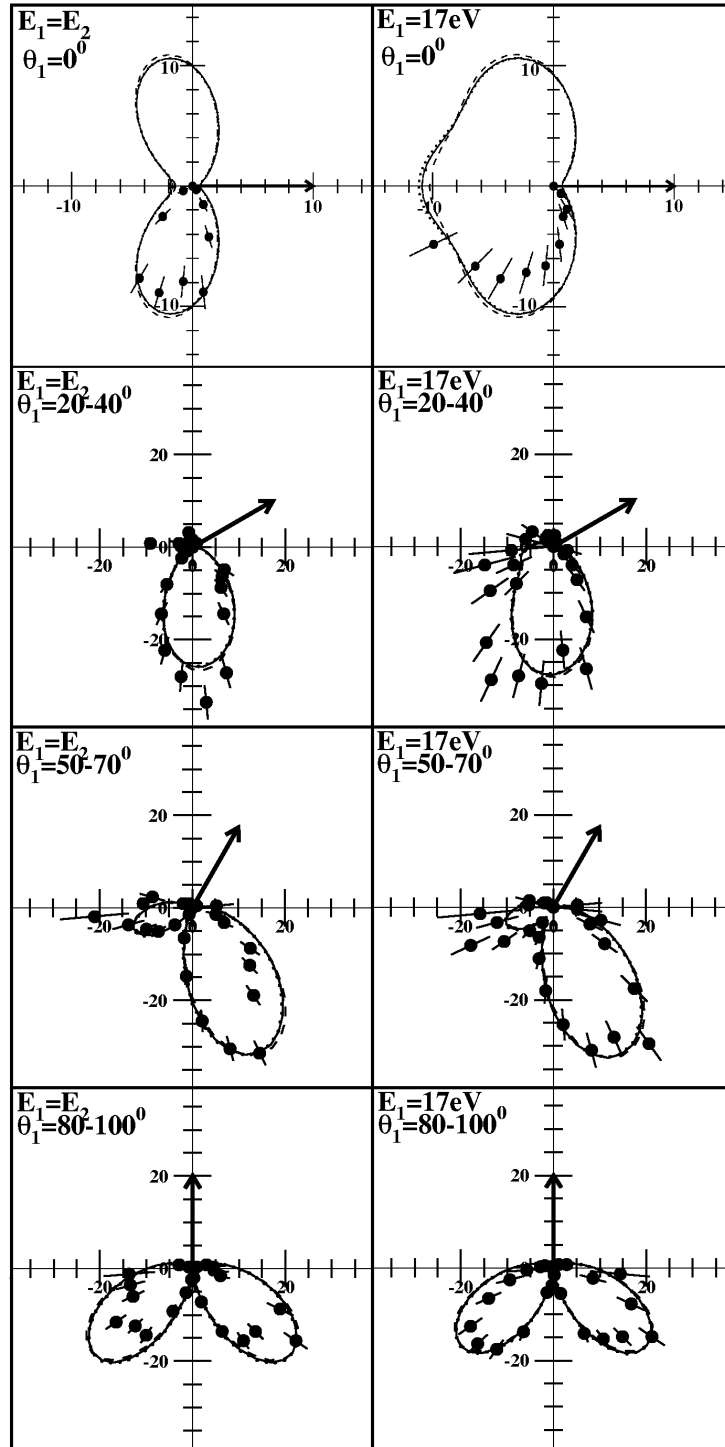


Abbildung B.1: $d^3\sigma^{2+}/(\sin(\vartheta'_1)d\vartheta'_1\sin(\vartheta'_2)d\vartheta'_2dE_1)$, dreifach differentieller Wirkungsquerschnitt als Funktion von ϑ'_2 aus der Photodoppelionisation mit linear polarisiertem Licht bei $E_\gamma = 99 \text{ eV}$. Experimentelle Daten von Bräuning et al. aus [27]. Theoretische Kurve: CCC-Rechnung nach Bray et al. [84].

Anhang C

Parametrisierung

C.1 Parametrisierung nach Klar und Fehr

Eine detaillierte Ableitung des hier diskutierten Ergebnisses sowie die konkrete Darstellung der Parameter ist der Referenz [95] und weiteren darin aufgeführten Referenzen zu entnehmen.

Die Symmetrieanahmen, die der folgenden Parametrisierung zugrunde liegen, sind:

- Der Anfangszustand ist aufgrund der Annahme eines nicht orientierten Targetatoms rotationsinvariant,
- für den Endzustand gilt dieselbe Rotationssymmetrie, daraus resultiert jeweils die Summation über alle magnetischen Unterzustände, vgl. (2.42),
- die Elektronenspins werden separiert und nicht in die Betrachtung einbezogen,
- im Fall linearer Polarisation wird die Polarisationsrichtung als Symmetrieachse festgehalten $\hat{\mathbf{P}} = \hat{\mathbf{e}}_z$, damit entfällt explizit die Abhängigkeit von $\hat{\mathbf{P}}$ in allen Termen,
- im Fall zirkularer Polarisation wird die Strahlachse als Symmetrieachse (z-Richtung) gewählt, siehe Abb. 2.7.

Diese Annahmen ermöglichen die Beschreibung des Wirkungsquerschnitts mittels skalarer rotationsinvarianter Funktionen, die von den Emissionsrichtungen der Elektronen abhängen. Eine solche Funktion läßt sich durch die bipolaren harmonischen Funktionen ($B_{l_a l_b}(E_1, E_2)$) darstellen

$$\frac{d^5 \sigma^{2+}}{d\hat{\mathbf{k}}_1 d\hat{\mathbf{k}}_2 dE_1} = \frac{1}{16\pi^2} \frac{d\sigma^{2+}}{dE_1} \left[1 + \sum_l \alpha_l P_l(\hat{\mathbf{k}}_1 \cdot \hat{\mathbf{k}}_2) + \sum_{l_1 l_2} \beta_{l_1 l_2} B_{20}^{l_1 l_2}(\hat{\mathbf{k}}_1, \hat{\mathbf{k}}_2) \right]. \quad (\text{C.1})$$

Diese Partialwellenzerlegung teilt den Prozeß der Photoionisation formal in zwei Summanden auf: Einen kinematischen Anteil, der die Multipolanteile der Wechselwirkung des

Photons mit den Elektronen beinhaltet und den dynamischen Anteil der Elektron-Elektron-Wechselwirkung, der durch die Coulombkräfte verursacht wird. Ersterer wird durch die Anisotropie-Koeffizienten $\beta_{l_1 l_2} = B_{l_1 l_2}/A_0$ mit $A_0 = \frac{1}{16\pi^2} \frac{d\sigma^{2+}}{dE_1}$ parametrisiert, der zweite durch die Koeffizienten $\alpha_l = A_l(E_1, E_2)/A_0$. Die Abhängigkeit von der Energieaufteilung wird nicht explizit durch die Parametrisierung erfaßt und kann aus der Summe herausgezogen werden. Damit ist der einfach differentielle Querschnitt $d\sigma^{2+}/dE_1(E_1)$ im Prinzip als zusätzlicher Parameter isoliert.

Die Gleichung gewinnt durch Reduktion auf einige Spezialfälle an Übersichtlichkeit: (C.1) zeigt eine deutliche Analogie zu (2.62), wo die Multipolanteile α_l zu dem sogenannten β -Parameter reduziert sind. Die Winkelfunktionen $B_{20}^{l_1 l_2}$ sind im Fall der Einfachionisation bis auf das Legendrepolynom $P_2(\cos \vartheta)$ reduziert und der Elektron-Elektron-Wechselwirkungsterm entfällt hier ganz. Im Fall der Doppelionisation erhält man zum Beispiel durch Integration über $\mathbf{k}_2$ den Ausdruck (2.64).

Diese Darstellung ist aufgrund der Symmetrieanahmen nicht allgemein, wie dies (2.60) im Fall der Einfachionisation war. Der Übergang zu zirkularer Polarisation bedeutet zunächst die Änderung der Symmetrie und verlangt den Einsatz eines komplizierten Tensorkalküls. Dieser liefert letztlich einen zusätzlichen Term $\pm \sum_{l_1 l_2} \gamma_l B_{10}^{ll}$. Das positive Vorzeichen hierin ergibt den Wirkungsquerschnitt für links zirkulare, das negative den für rechts zirkulare Polarisation.

$$\begin{aligned} \frac{d^5 \sigma_{\pm}^{2+}}{d\hat{\mathbf{k}}_1 d\hat{\mathbf{k}}_2 dE_1} = \frac{1}{16\pi^2} \frac{d\sigma^{2+}}{dE_1} \left[1 + \sum_l \alpha_l P_l(\hat{\mathbf{k}}_1 \cdot \hat{\mathbf{k}}_2) \right. \\ \left. - \frac{1}{2} \sum_{l_1 l_2} \beta_{l_1 l_2} B_{20}^{l_1 l_2}(\hat{\mathbf{k}}_1, \hat{\mathbf{k}}_2) \right. \\ \left. \pm \sum_{l_1 l_2} \gamma_{l_1 l_2} B_{10}^{l_1 l_2}(\hat{\mathbf{k}}_1, \hat{\mathbf{k}}_2) \right]. \quad (\text{C.2}) \end{aligned}$$

Der Anisotropieparameter $\beta_{l_1 l_2}$ unterscheidet sich von dem der linearen Polarisation um einen Faktor $-1/2$. Denselben Zusammenhang findet man auch in dem Übergang von (2.62) nach (2.61) in Abschnitt 2.4.1. Die Darstellung des fünffach differentiellen Wirkungsquerschnitts enthält demnach zwei Parametersätze im Fall linearer Polarisation und drei im Fall zirkularer Polarisation. Damit läßt sich die Winkelverteilung zirkularer Polarisation nicht aus den Ergebnissen linearer deduzieren. Umgekehrt gilt jedoch, daß sich die volle Information über die Winkelverteilung der Photoionisation mit linear polarisiertem Licht aus der Parametrisierung der mit zirkularem Licht gewonnenen Daten simulieren lassen.

Aus (C.2) erhält man direkt den Ausdruck des zirkularen Dichroismus¹

$$\Delta = \frac{1}{8\pi^2} \frac{d\sigma^{2+}}{dE_1} \sum_{l_1 l_2} \gamma_{l_1 l_2} B_{10}^{l_1 l_2}(\hat{\mathbf{k}}_1, \hat{\mathbf{k}}_2) / (d^5 \sigma_+^{2+} - d^5 \sigma_-^{2+}). \quad (\text{C.3})$$

Es kann gezeigt werden, daß sich diese Summe ohne Beschränkung der Allgemeinheit auf gleiche Drehimpulsquantenzahlen $l_1 = l_2$ reduzieren läßt [4]. Dies geht unter anderem aus

¹an dieser Stelle wird auf die Ausführung der Normierung des Ausdrucks (2.65) zugunsten der Übersichtlichkeit des Results verzichtet

der Forderung nach Paritätserhaltung hervor. Die Interpretation dieses Ergebnisses wird anhand einer exemplarisch gewählten Funktion B_{10}^{11} in Abschnitt 2.5 ausführlich diskutiert.

C.2 Parametrisierung nach Malegat *et al.*

Ähnlich wie in Abschnitt C.1 zerlegen die Autoren in [97] die stationäre Endzustandsfunktion in (nicht bekannte) Lösungskanäle mit einem entsprechenden Satz Quantenzahlen L_n, M_{L_n}, π_n und S_n und stellen mit Hilfe bipolar harmonischer Funktionen das Matrixelement (2.42) in einer Summe derselben Zerlegung dar. Ein wesentlicher methodischer Unterschied dieser Parametrisierung liegt in der Wahl zweier Koordinatensysteme $\mathcal{O}'$ und $\mathcal{O}''$, die durch die Vektoren $\hat{\mathbf{k}}_1 = \hat{\mathbf{e}}'_x$ bzw. $\hat{\mathbf{k}}_2 = \hat{\mathbf{e}}''_x$ festgelegt werden. Dadurch wird eine Symmetrie impliziert, die die Darstellung des Wirkungsquerschnitts stark vereinfacht. Die Trennung des Ausdrucks erfolgt wiederum in einen dynamischen Anteil $\mathcal{M}(E_1/E_2, \vartheta_{12})$, abhängig von der Energieaufteilung der Elektronen und deren Zwischenwinkel, und in einen kinematischen Anteil, abhängig von deren Emissionswinkeln im Laborsystem $\vartheta_1^{(')}, \varphi_1^{(')}, \vartheta_2^{(')}, \varphi_2^{(')2}$.

Für den im Fall linearer Polarisation ($\hat{\mathbf{P}} = \hat{\mathbf{e}}_z$) ergibt sich folgender Zusammenhang

$$\begin{aligned} \frac{d^5\sigma^{2+}}{d\Omega'_1 d\Omega'_2 dE_1} = 4\pi^2 \alpha E_\gamma |\mathbf{k}_1| |\mathbf{k}_2| \left[\begin{aligned} & \left(\cos \vartheta'_1 + \cos \vartheta'_2 \right)^2 |\mathcal{M}_0^g|^2 \\ & + \left(\cos \vartheta'_1 - \cos \vartheta'_2 \right)^2 |\mathcal{M}_0^u|^2 \\ & - 2 \left(\cos^2 \vartheta'_1 - \cos^2 \vartheta'_2 \right) \text{Re}(\mathcal{M}_0^g \mathcal{M}_0^{u*}) \end{aligned} \right]. \quad (\text{C.4}) \end{aligned}$$

Hierin sind die $\mathcal{M}_0^{g,u}$ die aus dem oben skizzierten Verfahren gewonnenen Matrixelemente, hier mit der Projektion auf die Quantenzahl $M_L = 0$. Es handelt sich dabei um komplexwertige Funktionen von ϑ_{12} und E_1/E_2 . Sie unterscheiden sich in ihren Symmetrieeigenschaften im Bezug auf den Elektronenaustausch, indiziert durch gerade (g) und ungerade (u). Für das Interesse an der konkreten mathematischen Darstellung der Koeffizienten wird wiederum auf die Referenz verwiesen.

Auch bei diesem Ansatz erhält man ein übersichtlicheres Resultat, das dann von einzelnen Parametern abhängt, in der Reduktion des Wirkungsquerschnitt auf Spezialfälle: $|\mathcal{M}_0^g|^2$ läßt sich aufgrund der Symmetrieeigenschaft im Fall gleicher Energieaufteilung der Elektronen leicht isolieren. Hier entfallen alle Terme, die $\mathcal{M}_0^u(E_1 = E_2 = E) \equiv 0$ enthalten:

$$\frac{d^5\sigma^{2+}}{d\Omega'_1 d\Omega'_2 dE_1} = 4\pi^2 \alpha E_\gamma |\mathbf{k}_1| |\mathbf{k}_2| (\cos \vartheta'_1 + \cos \vartheta'_2)^2 |\mathcal{M}_0^g(E, \vartheta'_{12})|^2. \quad (\text{C.5})$$

Für die Darstellung zirkularer Polarisation in dem Koordinatensystem mit $\hat{\mathbf{k}}_\gamma = \hat{\mathbf{e}}_z$ werden durch $\epsilon = \epsilon_0(\hat{\mathbf{e}}_x \pm \hat{\mathbf{e}}_y)$ die Projektionen auf die Zustände mit den Quantenzahlen $M = \pm 1$ selektiert. Für die Matrixelemente gilt dabei die einfache, aber wichtige Beziehung $\mathcal{M}_{+1}^{g,u} = \mathcal{M}_{-1}^{g,u} = -\mathcal{M}_0^{g,u}$. Diese erlaubt es, da die imaginären Amplituden in allen Termen nur quadratisch vorkommen, die Indizes wegzulassen und die Ergebnisse linearer

²Die Indizierung ist auf die Wahl des Koordinatensystems bezogen, siehe Abb. 2.7. Diese hängt von der Polarisation ab und ist daher nicht von vornherein festgelegt.

mit denen zirkularer Polarisation zu vergleichen. Der Doppelionisationsquerschnitt erhält in dieser Parametrisierung die Gestalt³

$$\begin{aligned} \frac{d^5\sigma_{\pm}^{2+}}{d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1} = 4\pi^2\alpha E_\gamma |\mathbf{k}_1||\mathbf{k}_2| \Big[& \left(\sin^2\vartheta_1 + \sin^2\vartheta_2 + 2\sin\vartheta_1\sin\vartheta_2\cos(\varphi_2 - \varphi_1) \right) |\mathcal{M}^g|^2 \\ & + \left(\sin^2\vartheta_1 + \sin^2\vartheta_2 - 2\sin\vartheta_1\sin\vartheta_2\cos(\varphi_2 - \varphi_1) \right) |\mathcal{M}^u|^2 \\ & - 2\left(\sin^2\vartheta_1 - \sin^2\vartheta_2 \right) \text{Re}(\mathcal{M}^g\mathcal{M}^{u*}) \\ & \pm 4\sin\vartheta_1\sin\vartheta_2\sin(\varphi_2 - \varphi_1)\text{Im}(\mathcal{M}^g\mathcal{M}^{u*}) \Big]. \quad (\text{C.6}) \end{aligned}$$

Man findet auch in dieser Parameterdarstellung von Malegat *et al.*, daß in der Photoionisation mit zirkular polarisiertem Licht eine Information enthalten ist, die der linearen Polarisation nicht entnommen werden konnte: der Imaginärteil des Mischterms. Auch hier kann der Zirkular-Dichroismus Δ angegeben werden, er enthält wie oben als einzigen Parameter den neu hinzugekommenen Summanden⁴

$$\Delta = 32\pi^2\alpha E_\gamma |\mathbf{k}_1||\mathbf{k}_2| \sin\vartheta_1\sin\vartheta_2\sin(\varphi_2 - \varphi_1)\text{Im}(\mathcal{M}^g\mathcal{M}^{u*})/(d^5\sigma_+^{2+} - d^5\sigma_-^{2+}). \quad (\text{C.7})$$

Ein ähnlicher Ausdruck ist bereits bei der Ableitung des Dichroismus in Abschnitt 2.5, (2.70) aus den Übergangsamplituden in der kartesischen Basisdarstellung erschienen.

Man kann hier für die Übergangsamplituden $\mathcal{M}^g = Ge^{i\eta}$ und $\mathcal{M}^u = Ue^{i\chi}$ mit den Phasen η bzw. χ , ansetzen. Dann sagt aber (C.6) bzw. (C.4) noch mehr aus: Sind aus der Messung des Wirkungsquerschnitts bei der Verwendung linear polarisierten Lichts die „Parameter-Funktionen“ $|\mathcal{M}^g|^2$, $|\mathcal{M}^u|^2$ und $\text{Re}(\mathcal{M}^g\mathcal{M}^{u*}) = GU\cos(\eta - \chi)$ bekannt, kann man daraus auch den Betrag des Dichroismus berechnen $\Delta \propto \text{Im}(\mathcal{M}^g\mathcal{M}^{u*}) = GU\sin(\eta - \chi)$, ohne explizit Kenntnis von den Phasen zu erlangen. Als einzige Unbekannte bleibt demnach die Aussage über das Vorzeichen des Dichroismus unbestimmt.

Im Fall gleicher Energieaufteilung gilt auch hier, daß alle Terme, die eine ungerade Amplitude enthalten, entfallen. Insbesondere gilt dies für den CD, der bekanntermaßen aus Symmetriegründen bei gleicher Energieaufteilung verschwinden muß. (C.6) wird zu

$$\begin{aligned} \frac{d^5\sigma_{\pm}^{2+}}{d\Omega_1 d\Omega_2 dE} = 4\pi^2\alpha E_\gamma |\mathbf{k}_1||\mathbf{k}_2| \Big(& \sin^2\vartheta_1 + \sin^2\vartheta_2 + 2\sin\vartheta_1\sin\vartheta_2\cos(\varphi_2 - \varphi_1) \Big) \\ & \times |\mathcal{M}^g(E, \vartheta_{12})|^2. \quad (\text{C.8}) \end{aligned}$$

In diesem Spezialfall ist ein direkter Vergleich der Messung linearer und zirkularer Polarisation allein durch das Extrahieren der Amplituden $\mathcal{M}^g = -\mathcal{M}_0^{g,u}$ möglich. In der Praxis hat sich daher die Bestimmung der Parameter aus Daten der Photodoppelionisation mit linearer Polarisation bisher auf den Spezialfall gleicher Energieaufteilung beschränkt,

³Diese Darstellung hebt durch eine einfache Umstellung des in [97] angegebenen Ausdrucks, den wesentlichen Unterschied einer zusätzlichen Parameterabhängigkeit im Vergleich zu (C.4) hervor.

⁴Ebenfalls ohne die Normierung auszuführen.

(C.5). Mit der Zusatzannahme, daß die Abhängigkeit der $|\mathcal{M}|^2$ von dem Zwischenwinkel durch eine Gaußkurve beschrieben wird, deren Maximum bei $\vartheta_{12} = 180$ liegt, wird als Parameter oftmals die Halbwertsbreite des Fits angegeben [26, 168, 83, 97, 173]. Diese Annahme entspricht einer Konstellation, in der die Elektronen aufgrund der Coulomb-Abstoßung entgegengesetzt auseinanderlaufen, welche für Energien nahe der Doppelionisationsschwelle durch das Wannier-Modell bestätigt werden kann [31, 30, 32]⁵. Man findet in der Theorie und dem Experiment übereinstimmend, daß die Breite der Fit-Kurve mit wachsender Energie zunimmt. Unstrittig ist hierbei jedoch, daß die Annahme einer Gaußverteilung nicht gerechtfertigt ist, da diese die Abhängigkeit von ϑ_{12} nicht exakt wiedergibt [168, 97, 82].

Im nächsten Schritt kann mit Hilfe einer sehr viel größeren Datenmenge angestrebt werden, die Abhängigkeit der Parameter von der Energieaufteilung und der Winkelabhängigkeit systematisch zu untersuchen. Im Fall asymmetrischer Energieaufteilung wird die Parametrisierung um zwei zusätzliche Funktionen erweitert (C.4), im Fall zirkularer Polarisation kommt die Unbestimmtheit eines Vorzeichens hinzu (C.4). Der fünffach differentielle Wirkungsquerschnitt wird nach diesem Modell also auf die Darstellung drei verschiedener Parameterfunktionen $|\mathcal{M}^g|^2$, $|\mathcal{M}^u|^2$ und $Re(\mathcal{M}^g \mathcal{M}^{u*})$, die jeweils von den zwei Variablen ϑ_{12} und E_1/E_2 abhängen, reduziert.

⁵Zu diesem Bestreben steht jedoch die Auswahlregel (II) (Abschnitt 2.2.3.2) in Konkurrenz, die in der Winkelverteilung an dieser Stelle ein Loch erzeugt. Hier werden die Einflüsse der zwei dominierenden Beiträge zu der Winkelverteilung bei geringen Energien direkt sichtbar, die kinematischen Auswahlregeln und die Endzustandskorrelation.

Anhang D

Legende

Es werden im folgenden häufig verwendete Zeichen, Indizes und Exponenten, sowie technische Abkürzungen zusammengefaßt. Darüber hinaus auftretende Symbole, etc. sind an entsprechender Stelle im Text erklärt:

Zeichen	Bedeutung
$E_{e,1,2,\text{ion},\gamma,\text{ex}}$	Energie
$\mathbf{r}, r, r_{x,y,z}, \mathbf{R}$	Ortsvektor, -betrag, -komponenten, Relativortsvektor
$\mathbf{k}, k, k_{x,y,z,r,R,e,1,2,\text{ion},\gamma}$	Impulsvektor, -betrag, -komponenten
m_e, M_{ion}	Masse
$\vartheta, \varphi, \Omega$	Polarkoordinaten, Raumwinkel
$\sigma_{+, -, x, y, \text{tot}, l, v, a}^{1+, 2+}$	Wirkungsquerschnitt (nur incl. Index oben)
ϵ, ϵ	elektrischer Feldvektor, Amplitude
ζ	Phasenwinkel elektromagnetischer Wellen
$\mathbf{S}_{\text{Stokes}}, S_{1,2,3}, \tilde{S}_1$	Stokes-Vektor, Stokes-Parameter
$I_{+, -, l, r, x, y, \text{tot}, \text{unpol}}$	Strahlungsintensität
$\sigma_{+, -, x, y}$	Polarisationszustand (ausschließlich Index unten)
P	Polarisationsgrad
$\mathbf{E}, E$	elektrisches Feld, Feldstärke
c_0	Vakuum-Lichtgeschwindigkeit
e_0	Elementarladung
ϵ_0	Influenzkonstante
$\hbar$	Plancksches Wirkungsquantum
k	Boltzmann-Konstante
α	Feinstrukturkonstante
β	Anisotropieparameter
Δ	zirkularer Dichroismus
Exponent	Bedeutung
1+	Einfachionisation
2+	Doppelionisation

Index	Bedeutung
i, j	allgemeiner Laufindex
i, f, k, j	Anfangs-, End- und Zwischenzustände
l, v, a	Längen-, Geschwindigkeits-, Beschleunigungsform
$e, 1, 2$	Elektron(-en)
ion	Rückstoßion
γ	Photon
ex	Überschuß(-energie)
x, y, z	kartesische Koordinaten
r, R	Schwerpunkts-, Relativkoordinate
det	Detektorkoordinaten
$l, r, 0$	sphärische Polarisationskoordinaten, optische Definition
$+, -, 0$	sphärische Polarisationskoordinaten, quantenmechanische Definition
tot	„total“

techn. Abkürzung	Bedeutung
RCP	„Right Circularly Polarized“
LCP	„Left Circularly Polarized“
CD	„Circular Dichroism“
MCP	„Micro Channel Plate“
TAC	„Time to Analog Converter“
ADC	„Analog Digital Converter“
BL	„Beamline“
COLTRIMS	„Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy“
DCS	„Differential Cross Section“

Es werden, immer wenn Einheiten im Text oder Abbildungen nicht explizit angegeben sind, **atomare Einheiten** [a.u.] vorausgesetzt. Atomare Einheiten werden definiert durch:

$$e_0 = \hbar = m_e = \alpha c_0 = 1.$$

Folgende **Koordinaten** werden verwendet und an angegebener Stelle definiert:

- Kartesischen Koordinaten (x,y,z), siehe Seite 84.
- Jakobikoordinaten: Im Zusammenhang mit der Wannier-Theorie, siehe Seite 33.
- Strahlsystemkoordinaten ($\vartheta, \varphi, \Omega$): Im Zusammenhang mit der Parametrisierung, siehe Seiten 36 (und 169).
- Polarisationskoordinaten ($\vartheta', \varphi', \Omega'$): Im Zusammenhang mit der Parametrisierung, siehe Seiten 36 (und 169).
- Detektorkoordinatensystem ($\vartheta_{\text{det}}, \varphi_{\text{det}}$): Im Zusammenhang mit der Impulseichung, siehe Seite 88.

Abbildungsverzeichnis

1.1	Symmetrie und Händigkeit	9
2.1	Eichabhängigkeit verschiedener MBPT-Beiträge zum Ratio σ^{2+}/σ^{1+}	24
2.2	2SC- und 3C-Theorie im Vergleich mit experimentellen Daten	30
2.3	Verhältnis σ^{2+}/σ^{1+} in verschiedenen CCC-Rechnungen	32
2.4	Jakobi-Koordinaten	33
2.5	Energieaufteilung in Relativ- und Schwerpunktsbewegung der Elektronen .	35
2.6	Impulsverteilung in Jakobi-Koordinaten	36
2.7	Koordinatendefinition für zirkulare und lineare Polarisierung	36
2.8	Winkelverteilung der Einfachionisation in Abhängigkeit des β -Parameters .	38
2.9	β -Parameter-Abhängigkeit von der Energie eines Elektrons	40
2.10	$d\sigma^{2+}/dE_1(E_1)$, theoretisch	41
3.1	Der elektromagnetische Spektralbereich eines Synchrotrons	48
3.2	Schematische Darstellung eines Synchrotrons	49
3.3	Geometrische Charakteristik der Synchrotronstrahlung	49
3.4	Spektrale Charakteristik der Strahlstärke	51
3.5	Intensitätsverteilung und Polarisationsgrad in Abhängigkeit des Beobach- tungswinkels	52
3.6	Lineare und zirkulare Polarisationsanteile an einem Ablenkmagneten . . .	53
3.7	Schematische Darstellung einer Wiggler- oder Undulatorstruktur	55
3.8	Vergleich der Strahldivergenz verschiedener Strukturen	56
3.9	Undulatorspektrum für verschiedene Polschuhabstände	57
3.10	Gekreuzter Undulator	58
3.11	Polarisationsrichtungen für verschiedene Undulator-Phasendifferenzen . . .	58
3.12	Anordnung der Monochromatorkomponenten	59
3.13	Das Speedratio für den Helium-Ultraschalljet nach [140]	63
3.14	Zweistufiger Gasjet	64
3.15	Simulation der Auswirkung einer Gitterstruktur auf die Ortsauflösung . . .	68
3.16	Rückstoßionenimpuls-Spektrometer mit Solenoidmagnetfeld	70
3.17	Ortsempfindliche Elektronenvervielfachung mit einem MCP	72
3.18	Nachweiseffizienz von He^{1+} -Ionen als Funktion der kinetischen Energie . . .	72
3.19	Ortsempfindliche Anoden	74
4.1	Polarisationsgrad und Brillanz des Undulators BL 28A aus [153]	77
4.2	Monochromator der Photon Factory, BL 28A nach [152]	77

4.3	Erste Harmonische des Undulatorspektrums in der 99 eV-Einstellung	78
4.4	Erste Harmonische des Undulatorspektrums in der 174 eV-Einstellung	78
4.5	Kalibrierung der Monochromatoreinstellung: $\text{He}^{**}(2s2p)$ -Resonanz	79
4.6	Kalibrierung der Monochromatoreinstellung: $\text{Kr}^*(3d_{3/2,5/2})$ -Resonanzen . .	79
4.7	Die COLTRIMS-Apparatur	84
4.8	Simulation des Elektronennachweises	84
4.9	Simulation des Rückstoßionenimpuls-Spektrometers	85
4.10	Blockschaltbild der Datenaufnahmeelektronik	86
4.11	Entzerrung der Ortsabbildung	88
4.12	Rohspektrum der He^{1+} - und der He^{2+} -Flugzeiten	89
4.13	Rohspektrum der He^{2+} -Flugzeit	89
4.14	Elektronendetektor-Polarkoordinaten	90
4.15	Abbildungsfehler des Elektronen- und des Ionendetektors	91
4.16	Rückstoßionenimpuls-Auflösung	94
4.17	Fehlerfortpflanzung der Rückstoßionenimpulsauflösung nach k_{x1}	97
4.18	Einfachionisationswirkungsquerschnitt $d^2\sigma^{1+}/d\Omega_e$ bei $E_\gamma = 99 \text{ eV}$	98
4.19	Einfachionisationswirkungsquerschnitt $d^2\sigma^{1+}/d\Omega_e$ bei $E_\gamma = 174 \text{ eV}$	99
4.20	Untergrundabzug anhand des Zeitspektrums	100
5.1	Erster 5DCS und CD aus [7]	103
5.2	Detektorausleuchtung als Funktion der Elektronenenergie bei $E_\gamma = 99 \text{ eV}$ und $E_\gamma = 174 \text{ eV}$	106
5.3	Energieverteilung des gemessenen Elektrons bei $E_\gamma = 99 \text{ eV}$	107
5.4	Energieverteilung des gemessenen Elektrons bei $E_\gamma = 174 \text{ eV}$	108
5.5	$d^5\sigma^{2+}/(d\vartheta_1 dk_{y1} d\vartheta_2 dK_{x\text{ion}} dK_{y\text{ion}})$ und $d^5\sigma^{2+}/(d\vartheta_1 dk_{y1} d\vartheta_2 dk_{x2} dk_{y2})$ für $E_\gamma = 99 \text{ eV}$	110
5.6	$d^5\sigma^{2+}/(d\vartheta_1 dk_{y1} d\vartheta_2 dK_{x\text{ion}} dK_{y\text{ion}})$ und $d^5\sigma^{2+}/(d\vartheta_1 dk_{y1} d\vartheta_2 dk_{x2} dk_{y2})$ für $E_\gamma = 174 \text{ eV}$	111
5.7	$d^2\sigma^{2+}(K_{z\text{ion}})/(d\vartheta_1 dK_{z\text{ion}})$ bei $E_\gamma = 99 \text{ eV}$	112
5.8	$d^2\sigma^{2+}(K_{z\text{ion}})/(d\vartheta_1 dK_{z\text{ion}})$ bei $E_\gamma = 174 \text{ eV}$	112
5.9	5DCS als 2D-Funktion von E_1 und φ_2 bei 99 eV	114
5.10	5DCS im Vergleich: linear und zirkular polarisiertes Licht bei 99 eV	117
5.11	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ und CD für $E_\gamma = 99 \text{ eV}$, $E_1 = 12,5 \text{ eV}$ und $18,5 \text{ eV}$.	118
5.12	Konsistenz der Theorien anhand $d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$	119
5.13	Summe „ $T_x + T_y$ “ im Vergleich mit „ $T_+ + T_-$ “ für $E_\gamma = 99 \text{ eV}$	120
5.14	CD als Funktion der Energieaufteilung für verschiedene φ_2 , $E_\gamma = 99 \text{ eV}$. .	122
5.15	5DCS als 2D-Funktion von E_1 und φ_2 bei 174 eV	123
5.16	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ und CD für $E_\gamma = 174 \text{ eV}$, $E_1 = 80 \text{ eV}$ und 92 eV . .	124
5.17	CD als Funktion der Energieaufteilung für verschiedene φ_2 , $E_\gamma = 174 \text{ eV}$. .	126
A.1	$d^5\sigma^{2+}/(d\vartheta_1 dk_{y1} d\vartheta_2 dk_{x2} dk_{y2})$ für verschiedene ϑ_2 , $E_\gamma = 99 \text{ eV}$, LCP	140
A.2	$d^5\sigma^{2+}/(d\vartheta_1 dk_{y1} d\vartheta_2 dk_{x2} dk_{y2})$ für verschiedene ϑ_2 , $E_\gamma = 99 \text{ eV}$, RCP	141
A.3	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ für $E_\gamma = 99 \text{ eV}$ bei $\vartheta_2 = 30^\circ$	144
A.4	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ für $E_\gamma = 99 \text{ eV}$ bei $\vartheta_2 = 30^\circ$	145
A.5	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ für $E_\gamma = 99 \text{ eV}$ bei $\vartheta_2 = 60^\circ$	146

A.6	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ für $E_\gamma = 99\text{eV}$ bei $\vartheta_2 = 60^\circ$	147
A.7	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ für $E_\gamma = 99\text{eV}$ bei $\vartheta_2 = 90^\circ$	148
A.8	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ für $E_\gamma = 99\text{eV}$ bei $\vartheta_2 = 90^\circ$	149
A.9	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ für $E_\gamma = 99\text{eV}$ bei $\vartheta_2 = 120^\circ$	150
A.10	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ für $E_\gamma = 99\text{eV}$ bei $\vartheta_2 = 120^\circ$	151
A.11	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ für $E_\gamma = 99\text{eV}$ bei $\vartheta_2 = 150^\circ$	152
A.12	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ für $E_\gamma = 99\text{eV}$ bei $\vartheta_2 = 150^\circ$	153
A.13	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ für $E_\gamma = 174\text{eV}$ bei $\vartheta_2 = 90^\circ$	156
A.14	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ für $E_\gamma = 174\text{eV}$ bei $\vartheta_2 = 90^\circ$	157
A.15	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ für $E_\gamma = 99\text{eV}$ bei $E_1 = 19\text{eV}$	160
A.16	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ für $E_\gamma = 99\text{eV}$ bei $E_1 = 17\text{eV}$	161
A.17	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ für $E_\gamma = 99\text{eV}$ bei $E_1 = 15\text{eV}$	162
A.18	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$ für $E_\gamma = 99\text{eV}$ bei $E_1 = 13\text{eV}$	163
A.19	$d^5\sigma^{2+}/d\Omega_1 d\Omega_2 dE_1(\varphi_2)$: Einfluß der Ionenimpuls-Nullpunktseichung	165
B.1	$d^3\sigma^{2+}/(\sin(\vartheta'_1)d\vartheta'_1 \sin(\vartheta'_2)d\vartheta'_2 dE_1)$ für $E_\gamma = 99\text{eV}$ bei linearer Polarisation	168

Literaturverzeichnis

- [1] A. Kheifets und I. Bray. *Phys. Rev.*, A98:2590, 1998.
- [2] I. Bray. *Phys. Rev.*, A57:2590, 1998.
- [3] J. Berakdar and H. Klar. *Phys. Rev. Lett.*, 69:1175, 1992.
- [4] J. Berakdar, H. Klar, A. Huetz und P. Selles. *J. Phys.*, B26:1463, 1993.
- [5] J. Berakdar. *J. Phys.*, B31:3167, 1998.
- [6] J. Berakdar. *submitted to Phys. Rev.*, A, 1998.
- [7] J. Viefhaus, L. Avaldi, G. Snell, M. Wiedenhöft, R. Hentges, A. Rüdel, F. Schäfers, D. Menke, U. Heinzmann, A. Engels, J. Berakdar, H. Klar und U. Becker. *Phys. Rev. Lett.*, 77:3975, 1996.
- [8] K. Bethge und U.E. Schröder. *Elementarteilchen und Wechselwirkungen*. Wissenschaftliche Buchgesellschaft, Darmstadt, 1991.
- [9] A. Einstein. In *Geometrie und Erfahrung*.
- [10] A. Einstein, B. Podolski und N. Rosen. *Phys. Rev.*, 47:777, 1935.
- [11] V. Mergel. *Dissertation*, Universität Frankfurt/Main, 1996.
- [12] G. Schönhense und J. Hormes. In U. Becker und D.A. Shirley, Herausgeber, *VUV and Soft X-Ray Photoionization*, Seiten 607-652, Plenum Press, New York, 1996.
- [13] L. Spielberger, O. Jagutzki, R. Dörner, J. Ullrich, U. Meyer, V. Mergel, M. Unverzagt, M. Damrau, T. Vogt, I. Ali, Kh. Khayyat, D. Bahr, H.G. Schmidt, R. Frahm und H. Schmidt-Böcking. *Phys. Rev. Lett.*, 74:4615, 1995.
- [14] L. Spielberger, O. Jagutzki, B. Krässig, U. Meyer, Kh. Khayyat, V. Mergel, Th. Tschentscher, Th. Buslaps, H. Bräuning, R. Dörner, T. Vogt, M. Achler, J. Ullrich, D.S. Gemmel und H. Schmidt-Böcking. *Phys. Rev. Lett.*, 76:4685, 1996.
- [15] L. Spielberger. *Dissertation*, Universität Frankfurt/Main, 1996.
- [16] L. Spielberger, H. Bräuning, A. Muthig, J.Z. Tang, J. Wang, Y. Qui, R. Dörner, O. Jagutzki, Th. Tschentscher, V. Honkimäki, V. Mergel, M. Achler, Th. Weber, Kh. Khayyat, J. Burgdörfer, J.H. McGuire and H. Schmidt-Böcking. *Phys. Rev.*, A59:371, 1999.

- [17] P. Eisenberger. *Phys. Rev.*, A2:1678, 1970.
- [18] L.H. Thomas. *Proc. Roy. Soc.*, A114:561, 1927.
- [19] V. Mergel, R. Dörner, M. Achler, Kh. Khayyat, S. Lencinas, J. Euler, O. Jagutzki, S. Nüttgens, M. Unverzagt, L. Spielberger, W. Wu, R. Ali, J. Ullrich, H. Cederquist, A. Salin, R.E. Olson, Dž. Belkić, C.L. Cocke und H. Schmidt-Böcking. *Phys. Rev. Lett.*, 79:387, 1997.
- [20] V. Mergel, R. Dörner, O. Jagutzki und H. Schmidt-Böcking. *Phys. Bl.*, 54:822, 1998.
- [21] Kh. Khayyat. *Dissertation*, Universität Frankfurt/Main, 1998.
- [22] Kh. Khayyat, T. Weber, R. Dörner, M. Achler, V. Mergel, L. Spielberger, O. Jagutzki, U. Meyer, J. Ullrich, R. Moshhammer, W. Schmitt, H. Knudsen, U. Mikkelsen, P. Aggerholm, E. Uggerhoej, S.P. Moeller, V.D. Rodriguez, S.F.C. O'Rourke, R.E. Olson, P.D. Fainstein, J.H. McGuire und H. Schmidt-Böcking. *J. Phys.*, B32:L73, 1999.
- [23] J. Ullrich, R. Moshhammer und R. Dörner. *Phys. Bl.*, 54:140, 1998.
- [24] O. Schwarzkopf *et al.*. *Jahresbericht BESSY.*, Seite123, 1996.
- [25] T. Vogt. *Diplomarbeit*, Universität Frankfurt/Main, 1996.
- [26] R. Dörner, H. Bräuning, J.M. Feagin, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, T. Vogt, H. Khemliche, M.H. Prior, J. Ullrich, C.L. Cocke und H. Schmidt-Böcking. *Phys. Rev.*, A57:1074, 1998.
- [27] H. Bräuning, R. Dörner, C.L. Cocke, M.H. Prior, B. Krässig, A.S. Kheifets, I. Bray, A. Bräuning-Demian, K. Carnes, S. Dreuil, V. Mergel, P. Richard, J. Ullrich und H. Schmidt-Böcking. *Submitted to J. Phys.*, B, 1998.
- [28] G.H. Wannier. *Phys. Rev.*, 90:817, 1953.
- [29] J.M. Feagin. *J. Phys.*, B17:2433, 1984.
- [30] R. Peterkop. *J. Phys.*, B4:513, 1971.
- [31] A.R.P. Rau. *Phys. Rev.*, A4:207, 1971.
- [32] A.K. Kazanski und V.N. Ostrovsky. *J. Phys.*, B27:447, 1994.
- [33] J.M. Feagin. *J. Phys.*, B28:1495, 1995.
- [34] J.M. Feagin. *J. Phys.*, B29:L551, 1996.
- [35] M. Brauner, J.S. Briggs und H. Klar. *J. Phys.*, B22:2265, 1989.
- [36] F. Maubetsch und J.S. Briggs. *J. Phys.*, B26:1679, 1993.
- [37] F. Maubetsch und J.S. Briggs. *J. Phys.*, B27:4095, 1994.

- [38] J. Berakdar, H. Klar, M. Brauner und J.S. Briggs. *Z. Phys.*, 16:91, 1990.
- [39] F. Maulbetsch und J.S. Briggs. *J. Phys.*, B28:551, 1995.
- [40] S. Keller. *Nicht veröffentlichte Rechnung*, 1997.
- [41] I. Bray und A.T. Stelbovics. *Phys. Rev.*, A46:6995, 1992.
Phys. Rev. Lett., 70:746, 1993.
- [42] D.V. Fursa und I. Bray. *Phys. Rev.*, A52:1279, 1995.
- [43] D.V. Fursa und I. Bray. *J. Phys.*, B30:757, 1997.
- [44] D. Proulx und R. Shakeshaft. *Phys. Rev.*, A48:R875, 1993.
- [45] M. Pont und R. Shakeshaft. *Phys. Rev.*, A51:R2676, 1995.
- [46] M. Pont und R. Shakeshaft. *Phys. Rev.*, A54:1448, 1996.
- [47] V. Mergel, M. Achler, R. Dörner, Kh. Khayyat, T. Kambara, Y. Awaya, V. Zoran, B. Nyström, L. Spielberger, J.H. McGuire, J. Feagin, J. Berakdar, Y. Azuma und H. Schmidt-Böcking. *Phys. Rev. Lett.*, underlined 80:5301, 1998.
- [48] R.J. Jelitto. *Theoretische Physik 3: Elektrodynamik*. AULA-Verlag, Wiesbaden, 1987.
- [49] J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics*. J. Wiley, New York, 1967.
- [50] V. Schmidt. *Electron Spectrometry of Atoms using Synchrotron Radiation*. Cambridge University Press, Cambridge, 1997.
- [51] G. G. Stokes. *Trans. Cambridge Phil. Soc.*, 9:39, 1852. Reprinted: *Mathematical and physical papers, Vol. 3*. Cambridge University Press, Cambridge, 1904.
- [52] H. Haken, H.C. Wolf. *Atom- und Quantenphysik*. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1987.
- [53] R.J. Jelitto. *Theoretische Physik 5: Quantenmechanik II*. AULA-Verlag, Wiesbaden, 1987.
- [54] W. Greiner. *Quantenmechanik Teil 1: .* Harri Deutsch-Verlag, Frankfurt, 1989.
- [55] E. Fermi. *Nuclear Physics*. University of Chicago Press, Chicago, 1950.
- [56] R.H. Pratt, A. Ron und H.K. Tseng. *Rev. Mod. Phys.*, 45:273, 1973.
- [57] Y.S. Kim, R.H. Pratt, A. Ron und H.K. Tseng. *Phys. Rev.*, A22:567, 1980.
- [58] A. Bechler, R.H. Pratt. *Phys. Rev.*, A39:1774, 1989.
- [59] M.A. Kornberg und J.E. Miraglia. *Phys. Rev.*, A52:2915, 1995.

- [60] B. Krässig, M. Jung, D.S. Gemmel, E.P. Kanter, T. LeBrun, S.H. Southworth und L. Young *Phys. Rev. Lett.*, 15:4736, 1995.
- [61] M. Jung, B. Krässig, D.S. Gemmel, E.P. Kanter, T. LeBrun, S.H. Southworth und L. Young. *Phys. Rev.*, A54:2127, 1996.
- [62] I.P. Grant *J. Phys.*, B7:1458, 1974.
- [63] S.P. Lucey, J. Rasch, C.T. Whelan und H.R. Walters. *J. Phys.*, B31:1237, 1998.
- [64] J.H. McGuire. *Electron Correlation Dynamics in Atomic Collisions*. Cambridge University Press, Cambridge, 1997.
- [65] K.A. Brückner. *Phys. Rev.*, 100:36, 1955.
- [66] J. Goldstone. *Proc. Royal Soc.*, A239:237, 1957.
- [67] T. Åberg. *Photoionization and other Probes of Many Electron Interactions*. Herausgeber, F.J. Willeumier. Seite 49 ff, Plenum Press, New York, 1976.
- [68] S.L. Carter H.P. Kelly. *Phys. Rev.*, A24:170, 1981.
- [69] F. Maubetsch, M. Pont, J.S. Briggs und R. Shakeshaft. *J. Phys.*, B28:L341, 1995.
- [70] D.R. Hartree. *The Calculation of Atomic Structures*. John Willey & Sons, New York, 1957.
- [71] Clementi und Roetti. *At. Data. Nucl.*, 14:177.
- [72] E.A. Hylleraas. *Z. Phys.*, 54:347, 1929.
- [73] S. Keller. *Private Mitteilung*, 1998.
- [74] S. Chandrasekhar, und G. Herzberg. *Phys. Rev.*, 98:1050, 1955.
- [75] G.W.F. Drake. *Nucl. Inst. Meth.*, B31:7, 1988.
- [76] C. Le Sech. *J. Phys.*, B30:L47, 1997.
- [77] L.D.A. Siebbeles, und C. Le Sech. *J. Phys.*, B27:4443, 1994.
- [78] T. Kato. *Trans. Am. Math. Soc.*, 70:212, 1951.
- [79] Z. Teng und R. Shakeshaft. *Phys. Rev.*, A49:3597, 1994.
- [80] K. Frankowski und C.L. Pekeris. *Phys. Rev.*, 146:46, 1966.
- [81] J. Botero, J.H. Macek. *Phys. Rev. Lett.*, 68:576, 1992.
- [82] V. Schmidt. *XXth International Conference on the Physics of photonic, electronic and atomic Collisions*, Invited Papers, Seite 85, 1997.

- [83] G. Dawber, L. Avaldi, A.G. McConkey, H. Rojas, M.A. McDonald und G.C. King. *J. Phys.*, B28:L271, 1995.
- [84] A. Kheifets und I. Bray. *Phys. Rev. Lett.*, 81:4588, 1998.
- [85] M.J. Brunger, S.J. Buckman, L.J. Allen, I.E. McCarthy, K. Ratnavelu. *J. Phys.*, B25:1823, 1992.
- [86] J. Röder, H. Ehrhardt, I. Bray und D.V. Fursa. *J. Phys.*, B29:L421, 1996.
J. Röder, H. Ehrhardt, I. Bray, D.V. Fursa und I.E. McCarthy. *J. Phys.*, B29:2103, 1996.
- [87] I. Bray und D.V. Fursa. *Phys. Rev.*, A54:2991, 1996.
Phys. Rev. Lett., 76:2674, 1996.
- [88] K. Jung, R. Müller-Fiedler, P. Schlemmer, H. Ehrhardt und H. Klar. *J. Phys.*, B18:2955, 1985.
- [89] A. Kheifets und I. Bray. *Phys. Rev.*, A57:R995, 1996.
- [90] R. Dörner, J.M. Feagin, C.L. Cocke, H. Bräuning, O. Jagutzki, M. Jung, E.P. Kanter, H. Khemliche, S. Kravis, V. Mergel, M.H. Prior, H. Schmidt-Böcking, L. Spielberger, J. Ullrich, M. Unverzagt und T. Vogt. *Phys. Rev. Lett.*, 77:1024, 1996.
- [91] H.A. Bethe und E.E. Salpeter. *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms*. New York Academic Press, New York, 1957.
- [92] J. Cooper und R.N. Zare. *J. chem. Phys.*, 48:942, 1968.
- [93] V.L. Jacobs. *Phys. Rev.*, A3:289, 1971.
- [94] V.L. Jacobs. *J. Phys.*, B5:2257, 1972.
- [95] H. Klar und M. Fehr. *Z. Phys.*, D23:295, 1991.
- [96] A. Huetz, P. Selles, D. Waymel und J. Mazeau. *J. Phys.*, B24:1917, 1991.
- [97] L. Malegat, P. Selles und A. Huetz. *J. Phys.*, B30:251, 1997; B30:263, 1997.
- [98] U. Fano. *Rev. Mod. Phys.*, 29:74, 1957.
- [99] V. Schmidt. *Photoionization of Atoms using Synchrotron Radiation. Rep. Proc. Phys.*, 55:1483, 1992.
- [100] C.N. Yang. *Phys. Rev.*, 74:764, 1948.
- [101] H. Bräuning, R. Dörner, C.L. Cocke, M.H. Prior, B. Krässig, A. Bräuning-Demian, K. Carnes, S. Dreuil, V. Mergel, P. Richard, J. Ullrich und H. Schmidt-Böcking. *J. Phys.*, B30:L649, 1997.
- [102] R. Wehlitz, F. Heiser, O. Hemmers, B. Langer, A. Menzel und U. Becker. *Phys. Rev. Lett.*, 67:3764, 1991.

- [103] R.L. Dubs, S.N. Dixit und V. McKoy. *Phys. Rev.*, B32:8389, 1985.
- [104] K.P. Gross und O. Schnepf. *Chem. Phys. Lett.*, 36:531, 1975.
- [105] J.R. Applin, M.G. White, T.M. Orlando und S.L. Anderson. *J. Chem. Phys.*, 85:6803, 1986.
- [106] L.E. Cuéllar, C.S. Feigerle, H.S. Carman, Jr., und R.N. Compton. *Phys. Rev.*, A43:6437, 1992.
- [107] A. Yagishita. *XXth International Conference on the Physics of photonic, electronic and atomic Collisions*, Invited Papers, Seite 149, 1997.
- [108] C. Westphal, J. Bansmann, M. Getzlaff und G. Schönhense. *Phys. Rev. Lett.*, 63:151, 1989.
- [109] V. Saile. *23. IFF Ferienkurs, Vorlesungsskript*. KFA Jülich, 1992.
- [110] J. Lamor. *Phil. Mag.*, 44:503, 1897.
- [111] D. H. Tornbouliau und P. L. Hartman. *Phys. Rev.*, 102:1423, 1956.
- [112] D. Ivanenko und J. Pomeranchuk. *Phys. Rev.*, 65:343, 1944.
- [113] J. Schwinger. *Phys. Rev.*, 70:798, 1946.
- [114] J. Schwinger. *Phys. Rev.*, 75:1912, 1949.
- [115] J. Liouville. *Journal de Math.*, 3:349, 1838.
- [116] Z. Hussain, W.R.A. Huff, S.A. Kellar, E.J. Moler, P.A. Heimann, W. McKinney, M.R. Howells, J.B. Kortright, M.A. Rice, C. Cummings, T. Lauritzen, J.P. McKean, S.C. Irick, F.J. Palomares, R.X. Ynzunza, Z. Wang, G. Andronaco, N. Hartman, E.D. Tober, H. Wu, Y. Zheng, A. Adamson, A.T. Young, H. Daimon, H.A. Padmore, C.S. Fadley, D.A. Shirley. *ALS Beamline Information*.
- [117] Advanced Light Source – Home Page: *Characteristics of the Advanced Light Source*. <http://www-als.lbl.gov/als/workshops/alscharacter.html>.
- [118] W. Peatman, C. Carbone, W. Gudat, W. Heinen, P. Kuske, J. Pflüger, F. Schäfers und T. Schroeter. *Rev. Sci. Instr.*, 60:1445, 1989.
- [119] R.P. Feynman, R.B. Leighton und M. Sands. *The Feynman lectures on physics, Vol.1*. Addison Wesley, Reading MA, 1964.
- [120] C. Kittel. *Introduction to Solid State Physics*. J. Wiley, New York, 1986.
- [121] A. Gaupp und W. Peatman. *23. IFF Ferienkurs, Vorlesungsskript*. KFA Jülich, 1992.
- [122] J. Ullrich und H. Schmidt-Böcking. *Phys. Lett.*, A125:193, 1987.

- [123] R. Ali, V. Frohne, C.L. Cocke, M. Stöckli und M.L.A. Raphaelian. *Phys. Rev. Lett.*, 69:2491, 1992.
- [124] O. Jagutzki. *Dissertation*, Universität Frankfurt/Main, 1994.
- [125] V. Mergel. *Diplomarbeit*, Universität Frankfurt/Main, 1994.
- [126] V. Mergel, R. Dörner, J. Ullrich, O. Jagutzki, S. Lencinas, S. Nüttgens, L. Spielberger, M. Unverzagt, C.L. Cocke, R.E. Olson, M. Schulz, U. Buck und H. Schmidt-Böcking. *Nucl. Instr. Meth.*, 98:593, 1995.
- [127] J. Ullrich, R. Moshhammer, M. Unverzagt, W. Schmitt, P. Jardin, R.E. Olson, R. Dörner, V. Mergel und H. Schmidt-Böcking. *Nucl. Instr. Meth.*, B98:375, 1995.
- [128] R. Dörner, V. Mergel, R. Ali, U. Buck, C.L. Cocke, K. Froschauer, O. Jagutzki, S. Lencinas, W.E. Meyerhof, S. Nüttgens, R.E. Olson, H. Schmidt-Böcking, L. Spielberger, K. Tökesi, J. Ullrich, M. Unverzagt, und W. Wu. *Nucl. Instr. Meth.*, B98:367, 1995.
- [129] H. Schmidt-Böcking, M. Achler, Y. Awaya, C.L. Cocke, R. Dörner, O. Jagutzki, T. Kambara, K. Khayyat, V. Mergel, R. Moshhammer, W. Schmitt, L. Spielberger, K. Ullmann-Pfleger, J. Ullrich und M. Unverzagt. In A. Yagishita und T. Sasaki, Herausgeber, *Atomic and Molecular Photoionization*, Seiten 11–20, Tokyo, Japan, 1996. Universal Academy Press, Inc.
- [130] V. Mergel und H. Schmidt-Böcking. *Deutsche Patent Nr.* 196 04 472.3, 1996.
- [131] R. Moshhammer, J. Ullrich, M. Unverzagt, W. Schmitt, P. Jardin, R.E. Olson, R. Dörner, V. Mergel und H. Schmidt-Böcking. *Nucl. Instr. Meth.*, B107:62, 1996.
- [132] R. Moshhammer, M. Unverzagt, W. Schmitt, J. Ullrich und H. Schmidt-Böcking. *Nucl. Instr. Meth.*, B108:425, 1996.
- [133] R. Dörner, V. Mergel, L. Spielberger, M. Achler, Kh. Khayyat, T. Vogt, H. Bräuning, O. Jagutzki, T. Weber, J. Ullrich, r. Moshhammer, M. Unverzagt, W. Schmitt, H. Khemliche, M.H. Prior, C.L. Cocke, J. Fagin, R.E. Olson und H. Schmidt-Böcking. *Nucl. Instr. Meth.*, B124:225, 1997.
- [134] J. Ullrich, R. Moshhammer, R. Dörner, O. Jagutzki, V. Mergel, H. Schmidt-Böcking und L. Spielberger. *J. Phys.*, B30:2917, 1997.
- [135] H. Kollmus, W. Schmitt, R. Moshhammer, M. Unverzagt und J. Ullrich. *Nucl. Instr. Meth.*, B124:377, 1997.
- [136] B. El Marij, A. Duguet, A. Lahmam-Bennani, M. Lecas und H.F. Wellenstein. *J. Phys.*, B28:L733, 1995.
- [137] J.H. Moore, M.A. Coplan, T.L. Skillman, Jr. und E.D. Brooks III. *Rev. Sci. Instr.*, 49:463, 1978.

- [138] J.P. Toennies und k. Winkelmann. *J. Chem. Phys.*, **66**:3965, 1977.
- [139] D.R. Miller. *Free Jet Sources*. G. Scoles, Herausgeber, in *Atomic and Molecular Beam Methods*, Seiten 14–53 Oxford Univrsity Press, Oxford/New York, 1988.
- [140] G. Brusdeylins, J.P. Toennies und R. Vollmer. *XII. Symposium on Molecular Beams.*, Book of Abstracts, Perugia, 1989.
- [141] H.T. Schmidt, H. Cederquist, R. Schuch, L. Bagge, A. Källberg, J. Hilke, K.-G. Rensfeld, V. Mergel, M. Achler, R. Dörner, L. Spielberger, O. Jagutzki, H. Schmidt-Böcking, J. Ullrich, H. Reich, M. Unverzagt, W. Schmitt und R. Moshammer. *XXth International Conference on the Physics of photonic, electronic and atomic Collisions*, Book of Abstracts, FR180, 1997.
- [142] Kh. Khayyat, M. Achler, V. Mergel, O. Jagutzki, L Spielberger, R. Dörner, J. Ullrich, M. Unverzagt, R. Moshhammer, E. Zanger, T. Schwab, C. Freudenberger und H. Schmidt-Böcking. In H. Schmidt-Böcking und P. Seyler-Dielmann, Herausgeber, *IKF-Jahresbericht*, Frankfurt, 1995.
- [143] I. Ali. *Dissertation*, Universität Frankfurt/Main, 1997.
- [144] D.L. Williams, F.H. Read, N.J. Bowring. *XVIIIth International Conference on the Physics of photonic, electronic and atomic Collisions*, Book of Abstracts, Vol. II, Seite 811 (TU137), 1993.
- [145] P. Schagen. *Image Tubes with Channel Electron Multiplication*, in *Advances in Imaging Pick-up and Display*, Vol.1, Seiten 1–69. New York Academic Press, New York, 1974.
- [146] J.L. Wiza. *Nucl. Instr. Meth.*, **162**:587, 1979.
- [147] VALVO GmbH. *Microchannel Plates, Produktbeschreibung*, VALVO GmbH, 1984.
- [148] M. Unverzagt. *Diplomarbeit*, Universität Frankfurt/Main, 1992.
- [149] J.H.D. Eland. *Meas. Sci. Technol.*, **5**:1501, 1994.
- [150] O. Jagutzki, V. Mergel, K. Ullmann-Pfleger, L. Spielberger, U. Meyer, R. Doerner und H. Schmidt-Böcking. *Fast position and time resolved read-out of micro-channel-plates with the delay-line technique for single particle and photon detection* Proceedings of SPIE, Vol. I. *Imaging Spectrometry IV* 43. Anual Meeting, San Diego, 1998.
- [151] M. Achler, Kh. Khayyat, V. Mergel, O. Jagutzki, L Spielberger, R. Dörner, J. Ullrich, M. Unverzagt, R. Moshhammer, E. Zanger, T. Schwab, C. Freudenberger und H. Schmidt-Böcking. In H. Schmidt-Böcking und P. Seyler-Dielmann, Herausgeber, *IKF-Jahresbericht*, Frankfurt, 1995.
- [152] Y. Kagoshima, S. Muto, T. Miyahara, T. Koide, S. Yamamoto und H. Kitamura. *Rev. Sci. Instrum.*, **63**:1289, 1992.

- [153] S. Yamamoto, T. Shioya, S. Sasaki und H. Kitamura. *Rev. Sci. Instrum.*, 60:1834, 1989.
- [154] H. Kimura, T. Miyahara, Y. Goto, K. Mayama, M. Yanagihara und M. Yamamoto. *Rev. Sci. Instrum.*, 66:1920, 1995.
- [155] T. Koide, T. Shidara und M. Yuri. *Nucl. Instr. Meth.*, A336:368, 1993.
- [156] T. Koide. *Private Mitteilung.*, 1998.
- [157] M. Domke, K. Schulz, G. Remmers, G. Kaindl und D. Wintgen. *Phys. Rev.*, A53:1424, 1996.
- [158] Photon Factory – Home Page: *Parameters of the PF Storage Ring*. <http://pinecone.kek.jp/general/pfring.html>.
- [159] K. Ullmann-Pfleger. *Diplomarbeit*, Universität Frankfurt/Main, 1989.
- [160] CERN Program Library. PAW version 2.08/14.
- [161] J.A.R. Samson, Z.X. He, L. Yin, G.N. Haddad. *J. Phys.*, B27:887, 1994.
- [162] J.M. Bizeau und F. Wuilleumier. *J. Electron Spectrosc. Related Phenom.*, 71:205, 1995.
- [163] J.A.R. Samson, W.C. Stolte, Z.X. He, J.N. Cutler und Y. Lu. *Phys. Rev.*, A57:1906, 1998.
- [164] J.M. Feagin. *Unveröffentlichte Resultate*, 1997.
- [165] S.J. Schaphorst, B. Krässig, O. Schwarzkopf, N. Scherer, V. Schmidt, P. Lablanquie, L. Andrie, J. Mazeau und A. Huetz. *J. Electron Spectrosc. Related Phenom.*, 71:205, 1995.
- [166] J.F. Hart und G. Herzberg. *Phys. Rev.*, 106:79, 1957.
- [167] R. Dörner, T. Vogt, V. Mergel, H. Khemliche, S. Kravis, C.L. Cocke, J. Ullrich, M. Unverzagt, L. Spielberger, M. Damrau, O. Jagutzki, I. Ali, B. Weaver, K. Ullmann, C.C. Hsu, M. Jung, E.P. Kanter, B. Sonntag, M.H. Prior, E. Rotenberg, J. Denlinger, T. Warwick, S.T. Manson und H. Schmidt-Böcking. *Phys. Rev. Lett.*, 76:2654, 1996.
- [168] O. Schwarzkopf, B. Krässig, J. Elmiger und V. Schmidt. *Phys. Rev. Lett.*, 70:3008, 1993.
- [169] R. Dörner, H. Bräuning, O. Jagutzki, V. Mergel, M. Achler, R. Moshhammer, J.M. Feagin, T. Osipov, A. Bräuning-Demian, L. Spielberger, J.H. McGuire, M.H. Prior, N. Berrah, J. Bozek, C.L. Cocke und H. Schmidt-Böcking. *Phys. Rev. Lett.*, 81:5776, 1998.
- [170] R. Moshhammer. *Private Mitteilung*, 1999.

- [171] A. Oelsner. *Dissertation*, Universität Mainz, 1998.
- [172] K.H. Gericke. *Private Mitteilung*, 1999.
- [173] O. Schwarzkopf und V. Schmidt. *J. Phys.*, B28:2847, 1995; B29:1877, 1996.

It is an important and popular fact that things are not always what they seem. For instance, on the planet Earth, man had always assumed that he was more intelligent than dolphins because he had achieved so much — the wheel, New York, wars and so on — while all the dolphins had ever done was muck about in the water having a good time. But conversely, the dolphins had always believed that they were far more intelligent than man — for precisely the same reason.

Douglas Adams

Danksagung

Dem ist nicht viel hinzuzufügen — außer vielleicht, daß Physiker hier eine Ausnahme bilden. Möglicherweise sind sie die intelligentesten Lebewesen auf der Erde — daß sie sich von der Spezies Mensch unterscheiden steht für so manch einen Nichtphysiker ohnehin außer Frage — , da sie es offenbar zu verstehen scheinen, die Gegenwart zu genießen und Freude am Schaffen „bedeutender Dinge“ zu empfinden.

Dies gilt zumindest für all die, die das Glück haben in einer Umgebung wie dieser am IKF arbeiten zu dürfen. Ich danke den Herren Direktoren Prof. Dr. Bethge und Prof. Dr. Stock für die Aufnahme ins Institut für Kernphysik.

Dafür gilt mein Dank auch allen wissenschaftlichen, technischen und verwaltungstechnischen Mitarbeiter, deren Namen aufzuzählen ich vermeide, da ich fürchte nicht allen gerecht zu werden. Ihre Arbeit und ihre Hilfe in zahllosen Fragen und Angelegenheiten ist die Grundlage für allen Erfolg. Ich schätze jedoch am meisten das Gefühl des Miteinander, das mir in allen Begegnungen entgegengebracht wurde.

Dank sei all den „Schmibös“, die diese Atmosphäre geprägt haben.

Danke Horst. Du bist die Quelle aller Ideen. Du verstehst aufs Vortrefflichste nicht nur, für die Sache zu begeistern, sondern auch immer den Menschen einen Platz einzuräumen.

Danke Lothar, Ottmar, Lutz, Klaus, Alkis, Kurt, Angela, Khaldoun, Totti, Imad, Harald, Feras, Marc, Walter, Wolfgang, Joachim, Robert, Ekrem, Oli, Steffen, Jürgen, Alexandra, Andreas, Andreas, Christina, Uwe, Mirco, Achim, Viktorija,

Ich übernehme keine Gewähr für die Vollständigkeit der Aufzählung all derer, die mir über zahlreiche Probleme technischer und menschlicher Natur hinweghelfen, ist doch die Anzahl der Studenten, Doktoranden und Postdocs inzwischen zu unüberschaubarer Größe herangewachsen.

Danke Ihr Freunde in der Ferne. Danke Tadashi für eine schöne Zeit am RIKEN. Danke Yoshiro für die vielen „fancy dinners“, *So Long, and Thanks for All the Fish!*

Spezieller Dank sei an Dich Reinhard gerichtet, da Du nicht vor mir fliehen konntest. Du hast mit einer Eselsgeduld alle meine Fragen und Kommentare über Dich ergehen lassen und Du hast mir mit Deiner Erfahrung viele Ein- und Durchblicke verschafft.

Noch etwas spezieller ist der Dank an Dich Volker. Uns verbindet inzwischen zuviel (Sushi), um hier an alles zu erinnern.

Siggi und Claudia, das Studium hat uns zusammengebracht. Und obgleich sich unsere Wege trennten, bleibt zum Glück eine Menge mehr als nur Erinnerung. Ich freu' mich drauf.

Danke allen Freunden, die mir das Nachhausekommen immer wieder leicht gemacht haben.

Danke Cordula für alle Geduld und Liebe. Wir haben eine anstrengende Zeit überwunden und ich finde, wir haben das gut hingekriegt. Ich blicke mit Freude darauf zurück.

Danke Mama und Papa. Danke für alle Werte jenseits der Physik. Ich habe sie nicht vergessen und weiß was ich Euch dafür schulde.

Lebenslauf

Matthias Achler, geboren am 25. November 1966 in Frankfurt am Main.

- | | |
|---------------------|--|
| Juli 1972 - Juli 76 | Grundschule (Arndtschule in Frankfurt am Main) |
| Juli 76 - Juli 85 | Gymnasium (Liebigschule in Frankfurt am Main) |
| 18.6.85 | Abitur |
| Sept. 85 - Feb. 88 | Berufsausbildung zum Mechaniker bei der Fa. Niedecker GmbH in Frankfurt am Main |
| 17.4.86 | Zwischenprüfung |
| 28.1.88 | Abschlußprüfung |
| März 88 - Okt. 89 | Wehrdienst als Fernmeldesprecher in Hof an der Saale
Fortlaufend Teilzeitarbeitsverträge bei der Firma Niedecker GmbH als Mechaniker und technischer Zeichner |
| Okt. 89 - Jan. 95 | Studium der Physik an der Johann Wolfgang Goethe-Universität, Frankfurt am Main |
| 21.10.92 | Vordiplom Physik |
| März 90 - Nov. 93 | Befristete Arbeitsverträge als technischer Zeichner und Softwarebetreuer bei den Firmen Niedecker GmbH und Sony-Music-Entertainment GmbH |
| Okt. 93 - Sept. 94 | Diplomarbeit am Physikalischen Institut der Johann Wolfgang Goethe-Universität mit dem Titel: „Entwicklung eines Rastergenerators für die Ultraschallmikroskopie und -holographie“ |
| Okt. 93 - Feb. 95 | Anstellung als studentische Hilfskraft in der Praktikumsbetreuung an der Johann Wolfgang Goethe-Universität |
| 30.1.95 | Diplom auf dem Gebiet der Festkörperphysik |
| seit 1.2.95 | Promotionsarbeit am Institut für Kernphysik der Johann Wolfgang Goethe-Universität |
| 1.2.95 - 30.6.97 | Graduiertenstipendium der Johann Wolfgang Goethe-Universität |
| seit 1.7.97 | Anstellung als wissenschaftlicher Mitarbeiter an der Johann Wolfgang Goethe-Universität |

Forschungsaufenthalte im Ausland

- | | | |
|---------------|----------|---|
| August 96 | 2 Wochen | CERN, Genf/Schweiz |
| 11.96 - 12.96 | 4 Wochen | KEK/Photonfactory, Tsukuba/Japan |
| 3.97 - 4.97 | 7 Wochen | Institute for Chemical and Physical Research (RIKEN), Tokyo/Japan |
| 8.97 - 9.97 | 4 Wochen | Lawrence Berkeley Laboratory (LBL) Berkeley/USA |
| 11.98 - 12.98 | 5 Wochen | KEK/Photonfactory, Tsukuba/Japan |