

2. Theoretische Grundlagen

Das Phänomen des Zweiphotonenzerfalles (2E1) wurde schon von Maria Göppert-Mayer zu Beginn der Entwicklung der Quantenmechanik diskutiert [1,17]. Bei diesem Prozeß handelt es sich um einen Übergang zwischen zwei Quantenzuständen bei dem zwei Photonen gleichzeitig ausgesendet werden. Während die Summe der Photonenenergien konstant ist und der Übergangsenergie entspricht, haben die einzelnen Photonen eine kontinuierliche Energieverteilung. Auf die besondere Bedeutung des 2E1-Zerfalles für atomare Strukturuntersuchungen wurde schon im vorangegangenen Kapitel eingegangen, so daß im folgenden eine kurze theoretische Beschreibung des Prozesses folgen soll.

Die Wahrscheinlichkeit für die spontane Emission zweier Photonen ω_1 und ω_2 , wobei ein Photon im Frequenzintervall $[\omega_1, \omega_1 + d\omega]$ liegt, berechnet sich nach Ref. [18]:

$$A(\omega_1) d\omega = \frac{\omega_1 \omega_2}{(2\pi)^3 c^2} |M_{fi}|^2 d\omega \quad (2.1)$$

wobei M_{fi} das Matrixelement des 2E1-Zerfalls ist.

$$M_{fi} = \sum_{n=2} \left[\frac{\langle f \| D_1 \| n \rangle \langle n \| D_2 \| i \rangle}{\omega_{ni} + \omega_1} + \frac{\langle f \| D_2 \| n \rangle \langle n \| D_1 \| i \rangle}{\omega_{ni} + \omega_2} \right] \quad (2.2)$$

$|i\rangle$ repräsentiere den Anfangszustand, $|n\rangle$ und $|f\rangle$ den Zwischen- bzw. den Endzustand. D_i und ω_i steht für den Dipoloperator bzw. die Frequenz des Übergangs i . Die Differenzfrequenz im Nenner berechnet sich aus $\omega_{ni} = 2\pi / h(E_n - E_i)$.

Aus der Spektralverteilung (2.1) läßt sich durch Integration über die Frequenz ω_1 die totale Emissionswahrscheinlichkeit A_T berechnen:

$$A_T = \frac{1}{2} \int_0^{\omega_{if}} A(\omega_1) d\omega_1 \quad (2.3)$$

Der auftretende Faktor $1/2$ berücksichtigt die doppelte Zählung des Photons ω_1 im Frequenzintervall $[0, \omega_{if}]$. Der Kehrwert von (2.3) stellt die mittlere Lebensdauer τ des Niveaus dar.

Neben der Summation über unendlich viele Zwischenzustände treten noch weitere mathematische Schwierigkeiten bei der Berechnung des 2E1-Zerfalles auf, die vom jeweilig untersuchten System abhängen und deshalb auch getrennt diskutiert werden sollen.

Neben der kontinuierlichen Energieverteilung weisen die beiden ausgesendeten Photonen beim 2E1-Prozeß eine Winkelverteilung gemäß $(1 + \cos^2\theta)$ auf (Abbildung 2.1), wobei θ den

Winkel zwischen den Photonen bezeichne. Aufgrund dieser Charakteristik sind prinzipiell alle Winkel zwischen den beiden Photonen möglich, bevorzugt werden allerdings 0° und 180° , was experimentell in Ref. [7] bestätigt wurde.

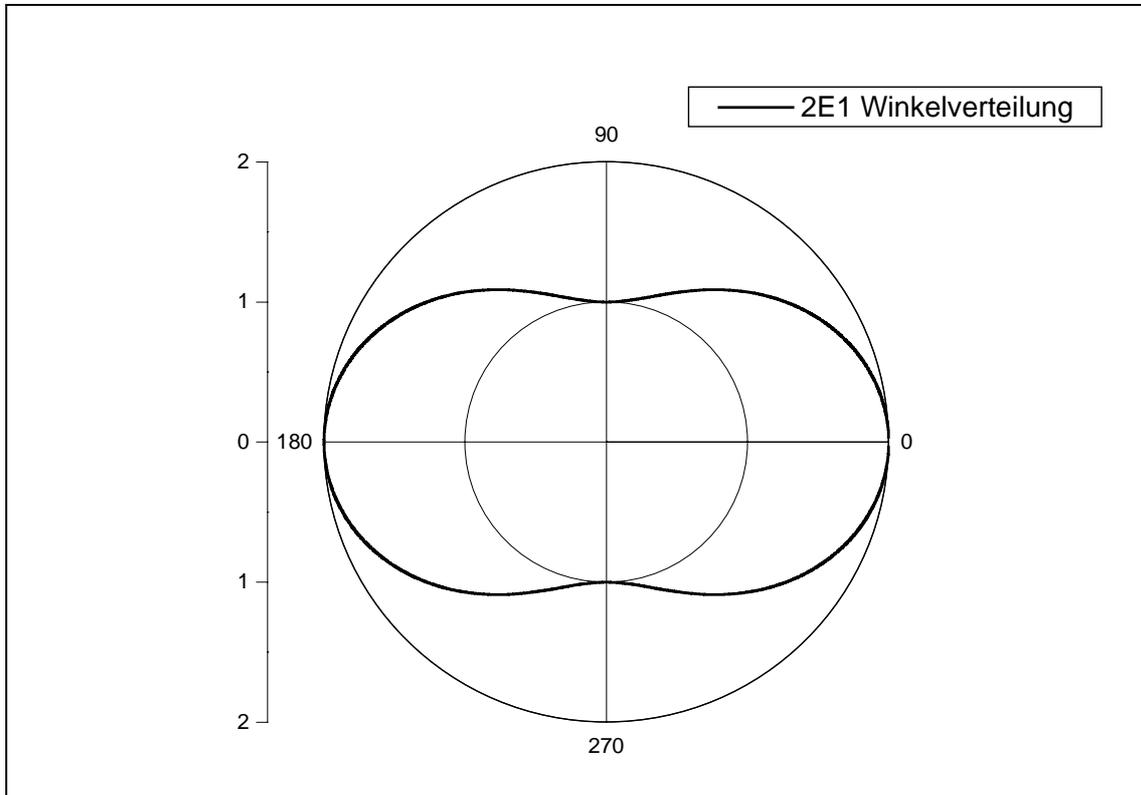


Abb. 2.1 $(1 + \cos^2\theta)$ Winkelverteilung der beim 2E1-Zerfall ausgesendeten Photonen. Ausgangs- und Endzustand ist jeweils ein s-Zustand.

2.1 2E1-Zerfall in wasserstoffähnlichen Ionen

Ein typisches Niveauschema für wasserstoffähnliche Systeme wird in Abbildung 2.2 gezeigt. Zusätzlich sind noch die Skalierungen der Zerfallskanäle bezüglich der Kernladungszahl Z angegeben. Systeme mit niedriger Kernladungszahl Z können theoretisch gut mit Hilfe des LS-Kopplungsschemas beschrieben werden. Unter dieser Annahme sind die einzigen erlaubten Einphotonenübergänge aus den angeregten L-Zuständen die Lyman- α -Übergänge $2^2P_{3/2}$ bzw. $2^2P_{1/2} \rightarrow 1^2S_{1/2}$. Andere Einphotonenübergänge in den Grundzustand sind aufgrund von Paritäts- und Drehimpulserhaltung streng verboten. Daher kann der metastabile Zustand $2^2S_{1/2}$ (fast) ausschließlich über den diskutierten 2E1-Übergang zerfallen. Bei schweren Systemen, die durch die relativistische jj -Kopplung beschrieben werden, kann der $2^2S_{1/2}$ auch

über die Emission magnetischer Dipolstrahlung (M1-Strahlung) zerfallen, was einem Spinflip-Übergang entspricht. Aufgrund der angegebenen Z -Abhängigkeit des Konkurrenzprozesses stellt der 2E1-Zerfall den dominanten Kanal für leichte Systeme dar, während der $2^2S_{1/2}$ Zustand in schweren Systemen ($Z > 50$) fast ausschließlich über M1-Strahlung zerfällt.

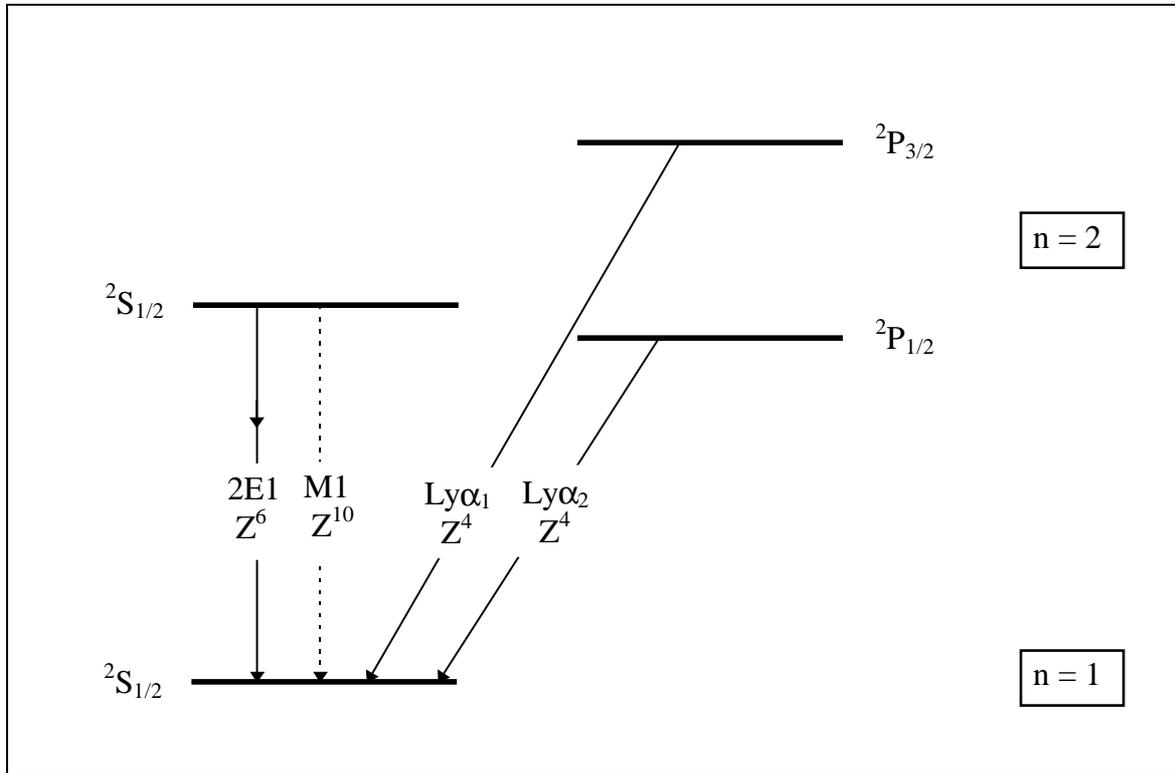


Abb 2.2 Schematische Darstellung der niedrigsten angeregten Zustände und deren Zerfallskanäle in H-ähnlichen Ionen [19]

Zahlenbeispiele der Übergangsraten A_T für die verschiedenen Übergänge in wasserstoffähnlichem Nickel sind in Tabelle 2.1 angegeben. Die Übergangsrate für $Ly\alpha$ -Strahlung wurde der Ref. [9], diejenigen für den 2E1 bzw. M1-Zerfall der Ref. [20] entnommen.

Übergang	A_T (1/s)
$Ly\alpha_{1,2}$	$3,846 \cdot 10^{14}$
M1	$7,734 \cdot 10^8$
2E1	$3,864 \cdot 10^9$

Tab. 2.1 Zerfallsraten A_T in H-ähnlichem Nickel ($Z = 28$) aus Ref. [9,20]

Breit und Teller [21] schätzten als erste die Zerfallsrate A_T des $^2S_{1/2}$ -Zustandes in Wasserstoff ab. Im Rahmen einer nichtrelativistischen Rechnung wurde das Matrixelement (Gleichung 2.2) näherungsweise berechnet, indem man dieses in einen Anteil von gebundenen und Kontinuumszuständen aufspaltete und zum anderen diese nur in den führenden Ordnungen einer Entwicklung nach der reduzierten Photonenenergie ω/ω_{if} auswertete (siehe auch [22]).

Mit Einführung des Ansatzes bei dem das Elektron in dem Coulombfeld mit Hilfe einer Greenfunktion beschrieben wird, konnte das Problem auch analytisch behandelt werden [23,24], da man die Spektralverteilung auf bekannte Gauß'sche hypergeometrische Funktionen zurückführen kann. Mit Erweiterungen dieser Beschreibung wurden von Florescu [25,26] auch beliebige 2E1-Übergänge aus höheren Quantenzuständen $ns \rightarrow 1s$ und $nd \rightarrow 1s$ untersucht.

Ein weiterer nichtrelativistischer Ansatz zur Lösung der Gleichung (2.1) wurde von Kelsey und Macek [27] auf der Basis der Störungstheorie zweiter Ordnung vorgeschlagen. Tung et al. [28] benutzten diesen Ansatz, um die inhomogene Schrödingergleichung zu lösen und mit den erhaltenen Lösungen für die Wellenfunktion das Matrixelement zu berechnen. Als Ergebnis läßt sich die 2E1-Übergangsrate mit Hilfe von mehrfachen parametrischen Differentiationen hypergeometrischer Funktionen darstellen. Hiermit lassen sich beliebige Übergänge von Zuständen $(n_1 l_1 m_1)$ nach $(n_2 l_2 m_2)$ für wasserstoffähnliche Ionen berechnen. Diese Rechnungen zeigen zum ersten Mal für Übergänge von Ausgangszuständen mit $n \geq 3$ für bestimmte Energien scharfe 'Resonanzstrukturen' in der Spektralverteilung, die realen Kaskadenprozessen entsprechen.

Eine weitere nichtrelativistische Methode zu Berechnung von Gleichung (2.1) wurde von Drake [29] eingeführt. Dieses Verfahren beruht im wesentlichen darauf, daß die unendliche Summation über alle Zwischenzustände ersetzt wird durch eine Summation über einen diskreten Satz von Pseudozuständen, der durch Diagonalisierung des Hamiltonoperators in einer finiten Basis der richtigen Symmetrie gefunden wurde. Schon wenige dieser Pseudozustände reichen aus, um das Ergebnis einer exakten nichtrelativistischen, aber viel umfangreicheren Rechnung von Klarsfeld zu reproduzieren. Dieses Verfahren zeichnet sich somit vor allem durch seine leichte numerische Implementierung und Schnelligkeit aus.

Alle bisherigen Rechnungen konnten stets nur eine gute Übereinstimmung mit experimentellen Daten bei leichten Systemen mit kleiner Kernladungszahl aufweisen, da sie alle in

nichtrelativistischer Näherung durchgeführt waren. Für schwere Systeme mit hohem Z werden aber gerade relativistische Korrekturen wichtig.

Einen ersten Ansatz zur Lösung von Gleichung (2.1) unter Berücksichtigung der relativistischen Korrekturen wurde von Johnson [30] und Parpia [20] gemacht. Sie wenden eine Greenfunktion zur Lösung der Diracgleichung an, deren Lösungen zur Berechnung der Matrixelemente Eingang finden. Wie die Rechnungen deutlich zeigen, wird der Konkurrenzprozeß, die Emission eines M1-Photons, immer dominierender für sehr schwere Systeme [20]. Goldman und Drake [18] verwenden die Finite-Basis-Methode für ihre relativistische Rechnung. Durch Verwendung generalisierter Laguerrefunktionen als Basissatz der Wellenfunktionen [31] zur Lösung der Diracgleichung läßt sich dieses Verfahren in seiner Genauigkeit weit über die bis dahin übliche numerische Präzision steigern.

2.2 2E1-Zerfall in heliumähnlichen Ionen

In Abbildung 2.3 werden die niedrigsten angeregten Zustände in heliumähnlichen Ionen schematisch dargestellt. Aufgrund der beiden unterschiedlichen Kopplungsmöglichkeiten der beiden Elektronenspins gibt es für die Hauptquantenzahl $n = 2$ zwei S-Zustände. Der $1s2s\ ^3S_1$ -Zustand zerfällt hauptsächlich durch Aussendung eines M1-Photons, da der 2E1-Prozeß wegen des notwendigen Spinflips zu vernachlässigen ist.

Allgemein muß für einen Einphotonenübergang mit dem Drehimpuls l von einem Ausgangszustand mit Gesamtdrehimpuls J_i in einen Endzustand mit J_f erfüllt sein:

$$|J_i - J_f| \leq l \leq |J_i + J_f| \quad (2.4)$$

wobei $J_i = 0 \rightarrow J_f = 0$ streng verboten ist. Somit kann der $1s2s\ ^1S_0$ ebenso wie der $1s2p\ ^3P_0$ Zustand nur durch simultane Emission zweier Photonen in den Grundzustand $1s^2\ ^1S_0$ zerfallen. Während im ersten Fall zwei E1-Photonen emittiert werden, handelt es sich im zweiten Fall um die simultane Aussendung eines E1- und eines M1-Photons. Aufgrund der Tatsache, daß M1-Übergänge in der Atomphysik nur eine kleine Wahrscheinlichkeit besitzen, wird der E1M1-Zerfall des $1s2p\ ^3P_0$ Zustandes ebenfalls nur sehr selten auftreten. Auf die Problematik im Hinblick auf das Experiment mit heliumähnlichen Gold soll dort eingegangen werden.

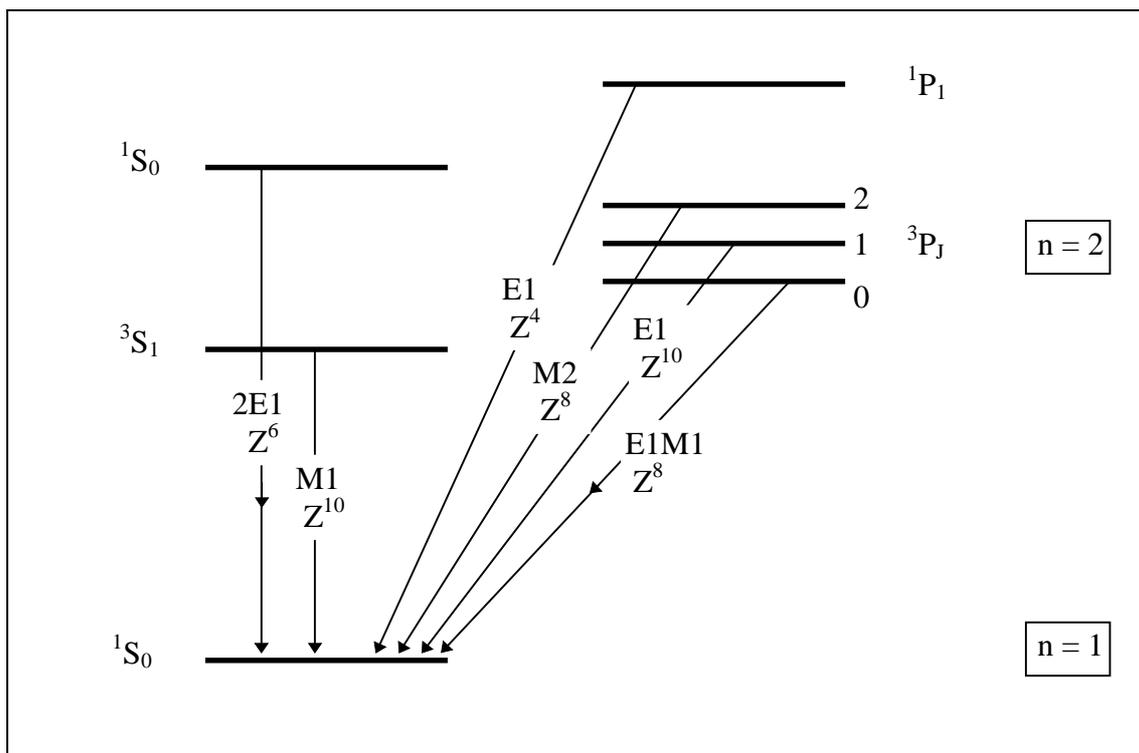


Abb. 2.3 Schematische Darstellung der niedrigsten angeregten Zustände sowie deren Zerfallskanäle in He-ähnlichen Ionen [19]

Die Berechnung des $2E1$ -Prozesses in heliumähnlichen Ionen gestaltet sich konzeptionell schwieriger aufgrund der Natur des Zweielektronensystemes mit seiner im Vergleich zum Einelektronensystem zusätzlich auftretenden Elektron-Elektron-Wechselwirkung. Eine erste Abschätzung der Lebensdauer des $1s2s$ $1S_0$ Zustandes in Helium erhielt Dalgarno [32] durch eine explizite Summierung über die Oszillatorenstärken der diskreten und kontinuierlichen Zwischenzustände. Dieses Ergebnis wurde auch von Victor [33] mit Hilfe einer zeitabhängigen gekoppelten Hartree-Fock Näherung gefunden. Weitere nichtrelativistische Rechnungen bis zu einer Kernladungszahl $Z = 34$ (Krypton) wurden von Drake [29,34] mit einem finiten Basissatz von Pseudowellenfunktionen durchgeführt (siehe Kapitel 2.1).

Erst kürzlich wurde eine relativistische 'configuration-interaction' Rechnung [13] für Ionen mit $Z \leq 92$ (Uran) veröffentlicht, die auch die Retardierung des Dipoloperators berücksichtigt. Derevianko und Johnson bestimmen ihre Wellenfunktionen mit einer Variationsrechnung, indem sie nach Extrema des Erwartungswertes des 'no-pair' Hamiltonoperators optimieren, der sowohl die Coulomb- als auch die Breitwechselwirkung berücksichtigt.

Schon für die leichtesten Systeme Wasserstoff und Helium lassen sich starke Abweichungen untereinander feststellen. In Abbildung 2.4 sind die 2E1-Verteilungen für Wasserstoff [18] und Helium [34] als Funktion der normierten Übergangsenergie $\hbar\omega/\Delta E_{2E1}$ dargestellt, wobei diese im Maximum auf die relative Höhe Eins normiert wurden. Durch die Elektron-Elektron-Wechselwirkung sind die Wellenfunktionen der Zustände im Helium gegenüber denen im Wasserstoff geändert, was seinen Niederschlag in der Energieverteilung nach Gleichung 2.1 finden muß. In den Zähler des Matrixelementes (Gleichung 2.2) gehen die Wellenfunktionen direkt ein, so daß dieser für die beiden Ionen verschieden ist. Da aber die Energieeigenwerte der Zustände (Erwartungswerte des Hamiltonoperators) ebenfalls von den Wellenfunktionen abhängen, ändert sich damit auch der Nenner des Matrixelementes.

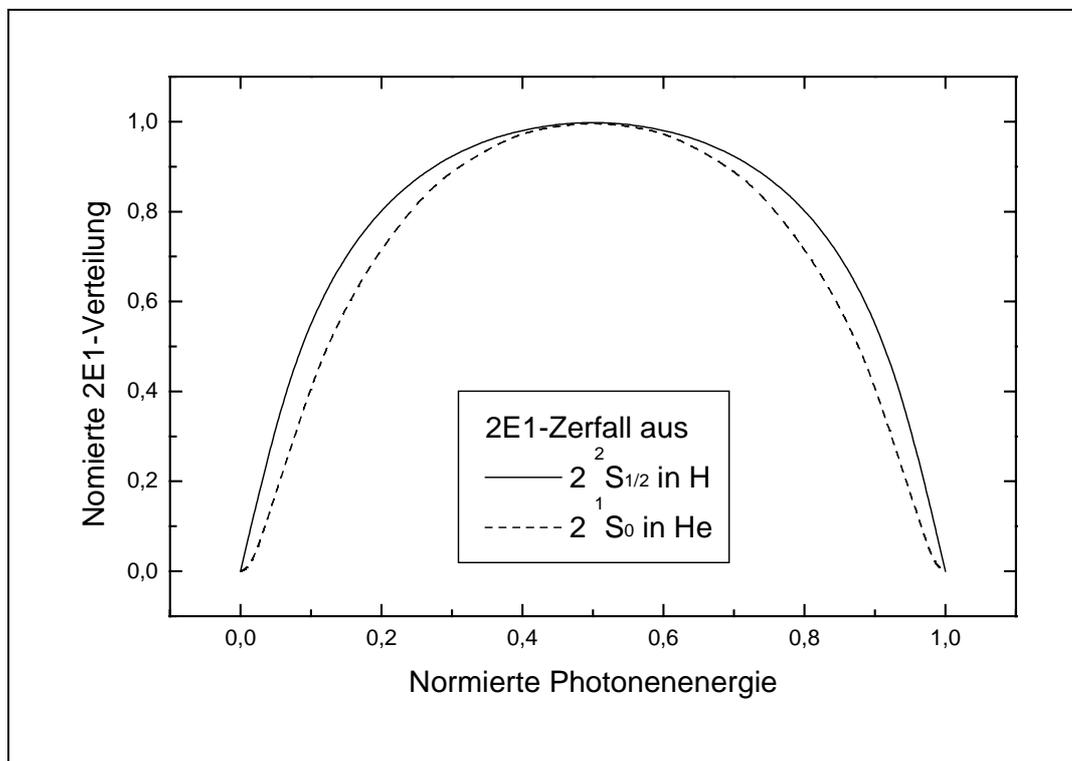


Abb. 2.4 Normierte Energieverteilung für den 2E1-Prozeß in Wasserstoff und Helium.

Weitere Erläuterungen siehe Text.

2.3 Abhängigkeit des 2E1-Zerfalles von der Kernladungszahl Z

Wie relativistische Rechnungen zeigen, besitzen die Spektralverteilungen des Zweiphotonenzerfalles in H- und He-ähnlichen Ionen ein unterschiedliches Verhalten bezüglich der Kernladungszahl Z . Abbildung 2.5 zeigt die analog zu Abbildung 2.4 normierten Spektralverteilungen des 2E1-Zerfalls in verschiedenen Ionen.

In wasserstoffähnlichen Systemen ist eine starke Abnahme der Intensität in den Flanken für größeres Z zu verzeichnen, wohingegen bei heliumähnlichen Systemen erst ein Ansteigen der Intensität in den Flanken bis zu einem $Z \approx 20$, dann aber wieder eine Abnahme zu beobachten ist. Dieses Verhalten steht im Zusammenhang zu den Unterschieden im Skalierungsverhalten für die verschiedenen intermediären Energieniveaus der Hauptquantenzahl n bezüglich der Kernladungszahl Z . Eine grobe Abschätzung der Ankopplung durch virtuelle Photonen an $n = 2$ und $n > 2$ Zwischenzustände macht dies deutlich. Für H-ähnliche Ionen besitzt die 2s-2p Energieaufspaltung aufgrund des relativistischen Effektes der Feinstrukturaufspaltung eine Z^4 Abhängigkeit. Für die Energieaufspaltung zwischen verschiedenen n -Schalen wurde eine Z^2 Abhängigkeit gefunden. Bei Vernachlässigung der Matrixelemente im Zähler von Gleichung (2.2) nimmt für H-ähnliche Ionen die 2s2p-Kopplung gegenüber der 2snp-Kopplung für größeres Z ab, da $\Delta E(n=2) / \Delta E(n>2) \propto Z^2$ ist. Dies hat zur Folge, daß die Ankopplung der virtuellen Photonen stärker an Zwischenzustände mit $n > 2$ erfolgt. Die Übergangsenergie wird somit für größeres Z immer symmetrischer auf die beiden ausgesendeten Photonen verteilt, was sich in dem stärkeren Abfall der Intensität in den Flanken manifestiert. Für leichte He-ähnliche Systeme wird die 2s2p Energieaufspaltung durch die Elektron-Elektron-Wechselwirkung bestimmt, die eine lineare Z -Abhängigkeit aufweist. Für diese Ionen bis Calcium ($Z = 20$) wird somit die 2s2p Kopplung wichtiger als die 2snp-Kopplung für größeres Z , da $\Delta E(n=2) / \Delta E(n>2) \propto 1/Z$ ist. Die asymmetrische Aufteilung der Übergangsenergie auf die ausgesendeten Photonen wird somit immer wahrscheinlicher, was gerade zu einer Zunahme der Intensität in den Flanken führt. Ab $Z > 20$ dominiert die Feinstrukturaufspaltung den Beitrag zur Aufspaltung der $n = 2$ Zustände, analog zu den H-ähnlichen Ionen. Somit werden Spektralverteilungen für schwere H- und He-ähnliche Ionen für größeres Z immer ähnlicher.

Wie eine Rechnung von Derevianko und Johnson für Uran gezeigt hat [13], sind die Spektralverteilungen für die H- und He-ähnliche Ionen dieses Elements nahezu identisch. Somit können für sehr schwere Ionen aus der Bestimmung der Spektralverteilung für He-ähnliche

Systeme Aussagen über die Spektralverteilung von H-ähnlichen Systemen abgeleitet werden, obwohl die letztere aufgrund des dominierenden M1-Zerfalles des Ausgangszustandes mit heutigen Experimentiermethoden nicht untersucht werden kann.

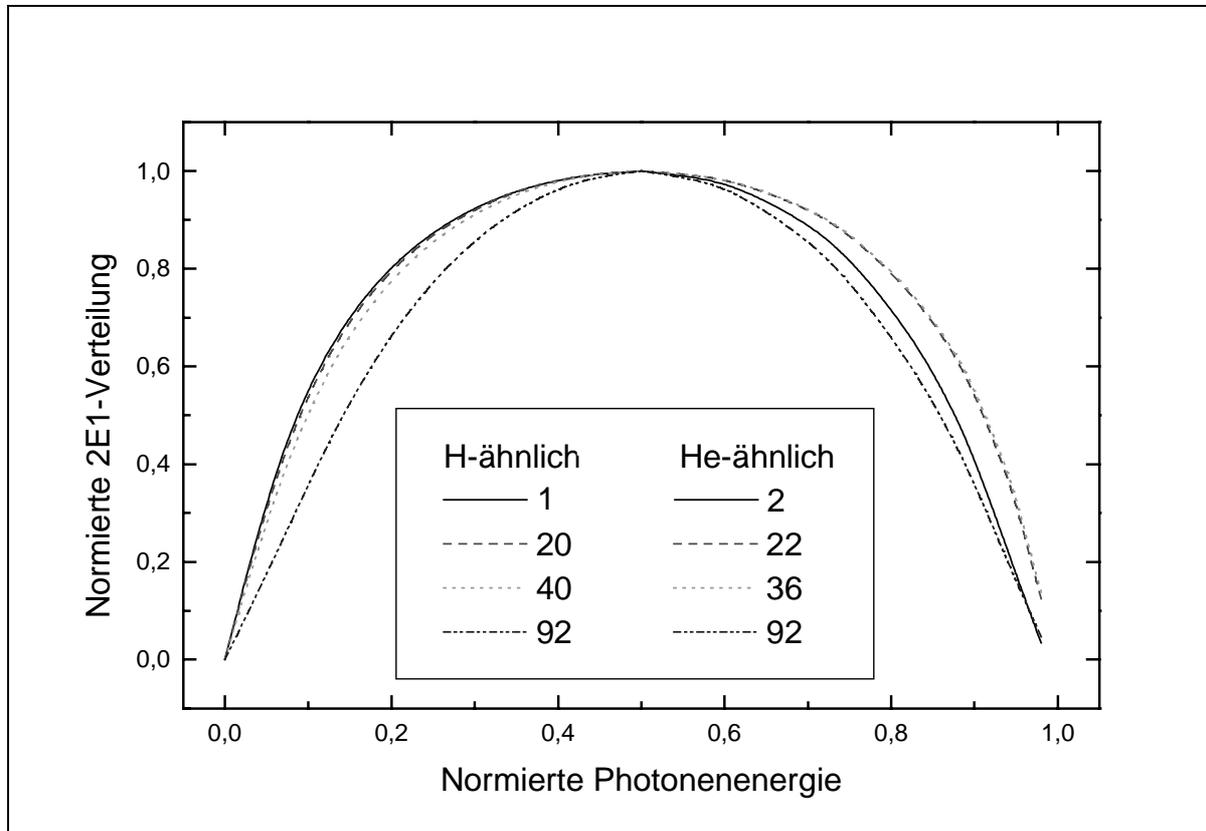


Abb. 2.5 Normierte Spektralverteilungen des 2E1-Zerfalls links für H- [5] und rechts für He-ähnliche Ionen [13] als Funktion der normierten Übergangsenergie

2.4 2E1-Zerfall in Ionen mit Innerschalenvakanzen

Obwohl Göppert-Mayer ihre Theorie des Zweiphotonenzerfalles schon 1931 veröffentlichte, wurde diese erst 1973 durch Freund [35] auf Atome mit einer K-Vakanz angewendet. In einer nichtrelativistischen Eielektronennäherung konnte er für Kupfer zeigen, daß die 2E1-Emissionsrate ca. 10^{-6} der erlaubten E1-Rate beträgt und somit prinzipiell gemessen werden kann. Das Problem der erforderlichen Summation über das Matrixelement $M\left(\left(\vec{p} \cdot \vec{A}\right)^2\right)$ löste Freund dadurch, daß er die Summation über nichtbesetzte gebundene Zustände auf eine Integration über Kontinuumszustände zurückführte [36]. Die zu berechnenden Matrixelemente für Kontinuumszustände stimmen jedoch mit denen für den Absorptionswirkungsquerschnitt

überein, der auch experimentell zugänglich war. Auf diese Arbeit folgten mehrere nicht-relativistische Rechnungen in Dipolnäherung [37-39], die aber alle noch stärkere Diskrepanzen zu den jeweiligen Experimenten zeigten.

Ein gewisser Durchbruch im Verständnis des 2E1-Zerfalls in Atomen mit einer Innerschalenvakanz gelang erst Guo [15]. Im Rahmen einer Formulierung des Problems in der Quantenelektrodynamik (QED) konnte er zeigen, daß diese Problem in einem effektiven Einteilchennäherung formuliert werden kann, das formal dem des wasserstoffähnlichen Ions gleicht. Die einzigen Unterschiede liegen nur in dem Potential, das auf das Elektron wirkt, und das Verfahren der Summation über Anfangs- und Mittelung über Endzustände. Von entscheidender Wichtigkeit ist aber sein Nachweis, daß innerhalb dieser Formulierung das Pauli-Prinzip eine Summation über gebundene, besetzte Zustände nicht verbietet. Dies letzte Ergebnis hat vor allem für die Übergänge mit Ausgangszuständen mit $n > 2$ weitreichende Konsequenzen. Sie müssen ähnlich, wie Tung et al. [28] und Florescu et al. [25] für wasserstoffähnliche Ionen gezeigt haben, eine "Zwischenzustands-Resonanzstruktur", d.h. einen starken Anstieg der 2E1-Rate, bei bestimmten Energien zeigen, die einer möglichen Kaskade entsprechen.

Neuere relativistische "self-consistent-field" (SCF) Rechnungen, die alle Multipole des Strahlungsfeldes berücksichtigen, konnten für Silber und Molybdän durchgeführt werden [40,41]. Die unendliche Summe über alle Matrixelemente M_{fi} wird mit Hilfe eines Verfahrens von Brown et al. [42] auf die Lösung eines Satzes von Differentialgleichungen zurückgeführt. Darüber hinaus haben Tong et al. [41] die relativistischen und Vielelektroneneffekte systematisch untersucht. Vor allem zwei Ergebnisse sind in Hinblick auf die vorliegende Arbeit von Interesse:

1. Für einen gegebenen 2E1-Übergang (z.B. $2s \rightarrow 1s$) wird das Verhältnis der Zerfallsraten A_T von Ionen mit einer Innerschalenvakanz zu wasserstoffähnlichen Ionen für größere Kernladungszahl Z immer größer, d.h. die Zerfallsraten nähern sich immer mehr an. Dies kann mit der Tatsache erklärt werden, daß die Innerschalenwellenfunktionen des Ions mit einer Vakanz für große Kernladungszahlen Z aufgrund der viel stärkeren Coulombkraft immer stärker relativistischen Einflüssen unterworfen werden, was sie immer H-ähnlicher werden läßt.
2. Die 2E1-Zerfallsrate für ein Ion mit Innerschalenvakanz ist stets kleiner als die Zerfallsrate für das entsprechende H-ähnliche Ion. Die Ursache für dieses Verhalten liegt darin begründet, daß zum einen innere Schalen in Vielelektronensystemen durch die Relativistik

kompakter, äußere Schalen durch die Abschirmung durch innere Elektronen (sog. Screening) hingegen erweitert sind im Vergleich zu den H-ähnlichen Wellenfunktionen, was insgesamt eine Reduktion des Überlapps bewirkt.

2.5 Erzeugungsmechanismen der Ausgangszustände des 2E1-Zerfalles

In diesem Kapitel sollen die elementaren Prozesse zur Besetzung von angeregten Zuständen untersucht werden, die geeignet sind, die Ausgangszustände der 2E1-Prozesse in verschiedenen Systemen zu besetzen. In den beiden nachfolgenden Kapiteln 3 und 4 wird der Zweiphotonenzerfall in Wenigelektronensystemen untersucht. Hierbei wird der Ausgangszustand des 2E1-Zerfalles durch Stoß eines hochgeladenen Ions (Nickel, Gold) mit Atomen in einem Festkörpertarget besetzt. Die in Frage kommenden Elementarprozesse sollen im folgenden kurz diskutiert werden. Hingegen wird in Kapitel 5 der Zweiphotonenzerfall in einem Viel-elektronensystem mit einer K-Vakanz (Silber) untersucht. Diese K-Vakanz kann u.a. durch Einfang eines Hüllenelektrons der K-Schale in den Kern (Electron capture, EC) produziert werden. Dieser Mechanismus soll am Beispiel des Silbers gezeigt werden.

2.5.1 Einfang quasifreier Elektronen

Eine wichtige Gruppe von Elementarprozessen beim Stoß eines hochgeladenen Ions mit einem Festkörpertarget ist der Einfang sog. quasifreier Elektronen. Im Unterschied zur Rekombination freier Elektronen handelt es sich hierbei um Einfangprozesse relativ schwach gebundener Targetelektronen. Ist im Schwerpunktsystem der beiden Stoßpartner die Geschwindigkeit der Targetelektronen relativ zur Projektilgeschwindigkeit vernachlässigbar klein, so spricht man von quasifreien Elektronen [43]. Diese Bedingung ist vor allem für stark asymmetrische Stoßsysteme erfüllt, bei dem ein schweres Projektil mit großer Kernladungszahl Z_P und hoher Geschwindigkeit auf ein leichtes Target (kleines Z_T) trifft.

2.5.1.1 Strahlender Elektroneneinfang (REC)

Bei diesem Prozeß wird ein schwach gebundenes Targetelektron aufgrund der Wechselwirkung mit dem Strahlungsfeld in eine Leerstelle des Projektilions eingefangen [44]. Die dabei freiwerdende Energie wird unter Aussendung eines Photons abgestrahlt, d.h. es handelt

sich hierbei um den zeitinvertierten Photoeffekt [45]. Eine schematische Darstellung des REC (Radiative Electron Capture) kann Abbildung 2.6 entnommen werden.

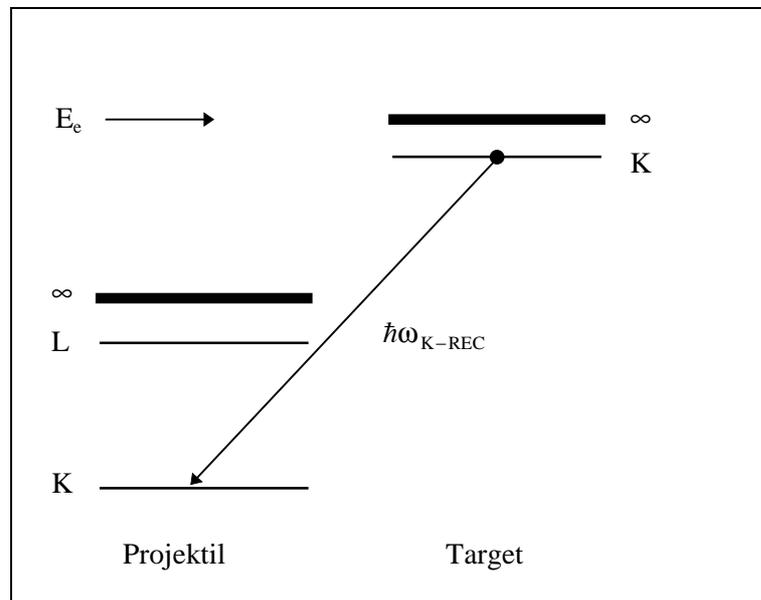


Abb. 2.6 Schema des Radiativen Einfangs am Beispiel des K-REC in ein nacktes Projektil.

Die Energie des ausgesendeten Photons (im nichtrelativistischen Fall) ist bestimmt durch die Bindungsenergie $E_{\text{bind}}^{\text{P}}$ des transferierten Elektrons im Projektil, die kinetische Energie des Targetelektrons E_e relativ zum Projektil und die Impulsverteilung (Comptonprofil) $m_e \vec{v} \vec{v}_i$ des schwach gebundenen Elektrons [44]:

$$\hbar \omega = E_e + E_{\text{bind}}^{\text{P}} - E_{\text{bind}}^{\text{T}} + m_e \vec{v} \vec{v}_i \quad (2.5)$$

Die ersten drei Terme in Gleichung (2.5) repräsentieren die energetische Lage, während der letzte Term die Breite der REC-Photonenlinie bestimmt.

Ein zum REC analoger Prozeß existiert auch für den Einfang freier Elektronen, der als Radiative Rekombination (RR) bezeichnet wird. Aus älteren theoretischen Arbeiten [46,47] zur Bestimmung von RR-Wirkungsquerschnitten läßt sich ein Skalierungsverhalten des Wirkungsquerschnittes des REC bezüglich der Kernladungszahl des Projektils Z_{P} und des Targets Z_{T} , der Geschwindigkeit v und der Hauptquantenzahl des Endzustandes n_f ableiten:

$$\sigma^{\text{REC}} \propto Z_{\text{P}}^5 Z_{\text{T}} v^{-5} n_f^{-3} \quad (2.6)$$

Aus Gleichung (2.6) läßt sich leicht ableiten, daß der Radiative Einfang bei gegebenem Stoßsystem und -geschwindigkeit vor allem in niedrig angeregte Zustände mit kleiner Hauptquantenzahl n_f erfolgt.

2.5.1.2 Resonanter Elektroneneinfang (RTE)

Der Prozeß des Resonanten Elektroneneinfangs beruht auf der Elektron-Elektron-Wechselwirkung zwischen dem Target- und Projektilektron [48]. Dieser soll anhand des KLL-RTE in wasserstoffähnlichen Ionen, siehe Abbildung 2.7, schematisch dargestellt werden. Die Bezeichnung der Resonanzen erfolgt in Auger-Notation. Im Elementarprozeß selbst wird keine Strahlung emittiert, dieser führt aber zu doppelt angeregten Zuständen, die dann radiativ relaxieren können.

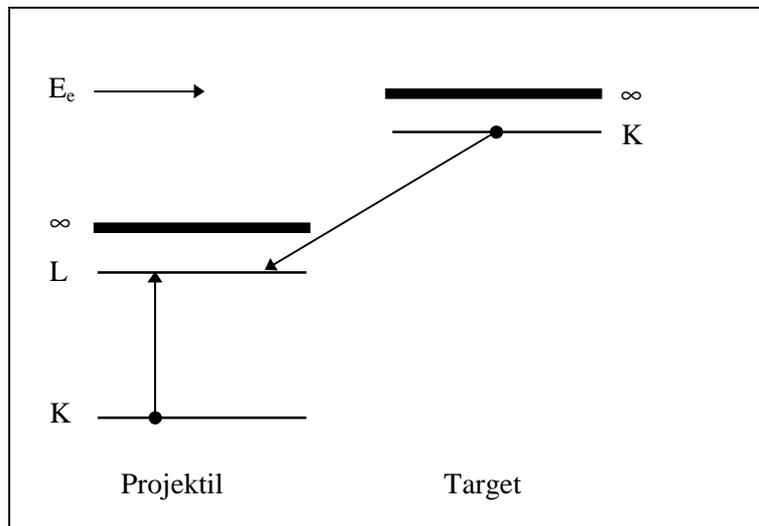


Abb. 2.7 Schema des Resonanten Elektroneneinfangs am Beispiel des KLL-RTE in H-ähnlichen Ionen

Das einzige Elektron des Projektils befindet sich vor dem Stoß im $1s$ Grundzustand. Die bei dem Einfang des Targetelektrons in die L-Schale des Projektils freiwerdende Energie wird auf das schon vorhandene Projektilektron übertragen, so daß dieses in die L-Schale angeregt wird, dies entspricht einem zeitinvertierten Augerprozeß. Hierbei entsteht ein doppelt angeregter Zustand, der durch Aussendung von Photonen und/oder Augerelektronen zerfällt, wobei letzterer Zerfallskanal für die in dieser Arbeit betrachteten sehr schweren Systemen nahezu vernachlässigt werden kann.

Auf der Grundlage der Skalierung der Energieniveaus in wasserstoffähnlichen Systemen ist eine grobe Abschätzung der Resonanzenergien sehr leicht möglich. Im Falle des KLL-RTE lautet die Resonanzbedingung:

$$E_e = -E_K + 2(E_K - E_L) \approx 0,5 R Z^2 \quad (2.7)$$

E_e stellt die kinetische Energie des Targetelektrons im Projektilsystem dar. E_K bzw. E_L stehen für die Bindungsenergien der K- und L-Schale im Projektil. R bezeichnet die Rydbergkonstante von 13,6 eV. Für Goldionen ergibt die rechte Seite von Gleichung (2.7) 42,4 keV. Somit benötigen die Goldionen ($Z = 79$) ungefähr eine kinetische Energie von umgerechnet 77,9 MeV/u um einen KLL-RTE-Prozeß zu ermöglichen.

Bei stark asymmetrischen Stoßsystemen mit schnellen, schweren Projektilen und leichten Targets läßt sich der Wirkungsquerschnitt des Resonanten Elektroneneinfangs von quasifreien Elektronen (RTE) auf den Wirkungsquerschnitt des Resonanten Elektroneneinfangs von freien Elektronen, der sog. Dielektrischen Rekombination (DR), zurückführen [48]. Der KLL-RTE Wirkungsquerschnitt besitzt ein Maximum von ca. 1 kbarn bei $Z_P \approx 30$, speziell für größere Kernladungszahlen Z_P von schweren Projektilen läßt sich folgendes Skalierungsverhalten finden [49]:

$$\sigma^{\text{RTE}} \propto Z_P^{-1} \quad (2.8)$$

Für schwere Projektilen nimmt somit der Wirkungsquerschnitt stetig ab.

2.5.2 Coulombeinfang (NRC)

Die Elektroneneinfangprozesse dieser Klasse sind auf die Wechselwirkung des Coulombpotentials des Projektils mit den Targetelektronen zurückzuführen. Vor allem bei schweren Targets tritt ein weiterer Einfangprozeß hinzu, bei dem keine Strahlung im Elementarprozeß emittiert wird (Nonradiative Electron Capture). Die beim Einfang freiwerdende Energie wird in kinetische Energie der beiden Stoßpartner konvertiert. Der Wirkungsquerschnitt für den Nichtradiativen Einfang läßt sich näherungsweise für vollständig ionisierten Ionen mit Hilfe der Oppenheimer-Brinkmann-Kramers (OBK) Näherung [50] berechnen. Obwohl diese OBK-Näherung im Vergleich zu den experimentellen Ergebnissen um Faktoren zu große Vorhersagen liefert [51], lassen sich trotzdem die wesentlichen Skalierungseigenschaften erkennen:

$$\sigma^{\text{NRC}} \propto Z_P^5 Z_T^5 n_f^{-3} v^{-12} \quad (2.9)$$

Für schwere Targets und kleine Geschwindigkeiten wird bei stark asymmetrischen Stoßsystemen der NRC der dominante Einfangprozeß in völlig ionisierten Ionen, vgl. Ref. [52]. Die Elektronen werden hauptsächlich in solche Projektilzustände eingefangen, für die nach Ref. [53] gilt:

$$E_f \approx E_{\text{kin}} + E_i \quad (2.10)$$

Daher erfolgt der Elektroneneinfang in hochangeregte Projektilzustände, die über Emission von Photonen radiativ in den Grundzustand übergehen. Eine direkte Besetzung von niedrigangeregten Zuständen ist mit diesem Prozeß daher kaum zu realisieren.

2.5.3 Anregung (EXC)

Bei der Projektilanregung (Excitation, EXC) werden die Projektilelektronen durch die Wechselwirkung mit dem Coulombpotential des Targets in höherenergetische Zustände angeregt. Die Wirkungsquerschnitte können mit Hilfe der zeitabhängigen Störungstheorie (Semi-classical Coulomb Approximation, SCA) für asymmetrische Stoßsysteme berechnet werden. Die nachfolgende Skalierung bezüglich der Kernladungszahlen (für gleiches Verhältnis von Projektilgeschwindigkeit zu Bindungsenergie) wurde der Referenz [54] entnommen.

$$\sigma^{\text{EXC}} \propto Z_T^2 Z_P^{-4} f(E_{\text{kin}}/\Delta E_{if}) \quad (2.11)$$

Die Energieskalierung des Anregungsquerschnittes besitzt ein Maximum bei der Energie ΔE_{if} , die nötig ist, ein Elektron vom Anfangszustand i in den Endzustand f anzuregen.

$$\sigma^{\text{EXC}} \propto \begin{cases} E_{\text{kin}}^4, & \text{für } E_{\text{kin}} < \Delta E_{if} \\ E_{\text{kin}}^{-1}, & \text{für } E_{\text{kin}} > \Delta E_{if} \end{cases} \quad (2.12)$$

Der Wirkungsquerschnitt besitzt ein Maximum bei Stoßenergien, die der jeweiligen Anregungsenergie ΔE_{if} entsprechen.

Um eine für das Experiment sehr interessante Eigenschaft zu diskutieren, soll zuerst der Adiabasiereparameter $\eta = E_{\text{kin}} / E_{\text{bind}}^K$ als Verhältnis der kinetischen Energie des Ions zu der Bindungsenergie des anzuregenden Elektrons (hier: K-Elektron) definiert werden. Im Bereich adiabatischer Stöße ($\eta < 1$) dominiert der Monopolanteil der Störung den Anregungsprozeß. Im Gegensatz hierzu gewinnen bei höheren kinetischen Energien ($\eta \geq 1$) höhere Multipolanteile der Störung (Dipol, Quadrupol, etc.) immer größere Bedeutung [55]. Somit läßt sich sagen, daß für niedrige kinetische Energien vor allem $s \rightarrow s$ Übergänge, für hohe Energien

vorrangig $s \rightarrow p$ Übergänge stattfinden werden [55]. Für das Beispiel der Goldionen bedeutet dies, daß zum Erhalt der $1s \rightarrow 2s$ Anregung die kinetische Energie der Ionen kleiner als ca. 168 MeV/u gewählt werden muß.

2.5.4 Nichtresonanter Elektroneneinfang und Anregung (NTE)

Bei diesem Projektilumladungsprozeß kommt es zu einem unkorrelierten Auftreten von Projektilanregung (Kapitel 2.5.3) und kinematischen Elektroneneinfang (Kapitel 2.5.2), für eine Übersicht siehe z.B. Ref. [56]. Der Wirkungsquerschnitt durch die stoßparameterabhängigen Wahrscheinlichkeiten für Einfang $P_{\text{Cap}}(b)$ und Anregung $P_{\text{Exc}}(b)$ berechnen [48]:

$$\sigma^{\text{NTE}} = 2\pi \int P_{\text{Exc}}(b) P_{\text{Cap}}(b) b \, db \quad (2.13)$$

Im weiteren Verlauf wird sich auf den im Experiment vorherrschenden Prozeß der Projektil K-Schalenanregung mit simultanem Elektroneneinfang beschränkt. Wie Rechnungen [57] zeigen, fällt der Anregungsquerschnitt für Stoßparameter b größer als der K-Schalenbahnradius steil ab und tragen zu dem Prozeß nicht wesentlich bei. Die Wahrscheinlichkeit für den Elektroneneinfang bleibt nahezu konstant für Stoßparameter innerhalb des Bahnradius der Schale, in der das Elektron eingefangen wird. Daher läßt sich Gleichung (2.13) in zwei Faktoren zerlegen [56]:

$$\sigma^{\text{NTE}} = \bar{P}_{\text{Cap}} \sigma^{\text{Exc}} \quad (2.14)$$

Der erste Faktor repräsentiert die über den K-Schalenradius gemittelte Elektroneneinfangswahrscheinlichkeit, der zweite Faktor den Anregungsquerschnitt für K-Schalenanregung. Daher verursacht die Verwendung schwerer Targets eine Zunahme des NTE-Wirkungsquerschnittes, da sowohl die Anregungs- als auch die Einfangswahrscheinlichkeit mit größerem Z_T stark zunehmen.

2.5.5 Vergleich der totalen Wirkungsquerschnitte

Nachdem in den vorangegangenen Kapiteln die einzelnen Prozesse beschrieben wurden, soll nun die Größe der Wirkungsquerschnitte für zwei unterschiedliche Targets (Kohlenstoff, Aluminium) gegenübergestellt werden. Alle Werte in Tabelle 2.2 beziehen sich auf eine Energie von 84 MeV/u ($\eta \cong 0,5$) der heliumähnlichen Goldionen, bei der die KLL-RTE-Resonanz gerade ein Maximum im Wirkungsquerschnitt besitzt (Kapitel 2.5.1.2). Anhand der in den einzelnen Kapiteln diskutierten Skalierungsregeln wurden aus vorliegenden Rechnungen, die

für andere Stoßsysteme durchgeführt wurden, Wirkungsquerschnitte für die einzelnen Prozesse abgeschätzt. Für RTE wurden die Daten von Ref. [58] für die Dielektronische Rekombination (DR) herangezogen, die entsprechend [59] in einen Wirkungsquerschnitt für RTE umgerechnet wurden. Für die weiteren Prozesse REC [46], EXC [57] und NRC [60] wurden die Werte entsprechend dem untersuchten Stoßsystem umskaliert.

Prozeß	C-Target	Al-Target
RTE	16 b	25 b
EXC	70 b	320 b
L-REC	70 b	105 b
NRC	3 b	45 b

Tab. 2.2 Abschätzung der totalen Wirkungsquerschnitte für Stöße von Au^{77+} -Ionen der Energie 85 MeV/u mit C- und Al-Targets zur Besetzung des $1s2s\ ^1S_0$ Zustandes.

Abschließend soll anhand der Skalierungsregeln in den vorangegangenen Kapiteln die Abhängigkeit der Wirkungsquerschnitte von der Projektilgeschwindigkeit untersucht werden. In den Abbildungen 2.8 und 2.9 sind jeweils die Wirkungsquerschnitte zur Besetzung des $1s2s\ ^1S_0$ Zustandes bzw. aller anderen Zustände, die Anlaß zu Konkurrenzprozessen geben, für die verschiedenen Prozesse dargestellt. So bezeichne EXC 2s den Wirkungsquerschnitt der Anregung in den $1s2s\ ^1S_0$ Zustand, EXC total hingegen den totalen Besetzungsquerschnitt. Für die anderen Prozesse gilt analoges. Durch geeignete Wahl der Projektilgeschwindigkeit soll (unter den beschriebenen) der Prozeß gefunden werden, der sich einerseits durch eine hohe Besetzung des $1s2s\ ^1S_0$ Zustandes und andererseits durch eine möglichst niedrige Besetzung aller anderen Zustände auszeichnet. Ein wichtiges Unterscheidungsmerkmal für die verschiedenen Besetzungsmechanismen ist die benötigte Ionensorte vor der Wechselwirkung, um nach dem Prozeß heliumähnliche Ionen zu erhalten. Während der Anregungsprozeß EXC von heliumähnlichen Ionen ausgeht, müssen für Anregung und Einfang (RTE), Nichtstrahlender Einfang (NRC) und strahlender Einfang (REC) wasserstoffähnliche Ionen vom Beschleuniger zur Verfügung gestellt werden. Im Hinblick auf die Untersuchung des Zweiphotonenzerfalles in heliumähnlichem Gold, sucht man nach dem effektivsten Besetzungsmechanismus für den $1s2s\ ^1S_0$ Zustand. Wie man den Abbildungen 2.8 (Kohlenstoff-

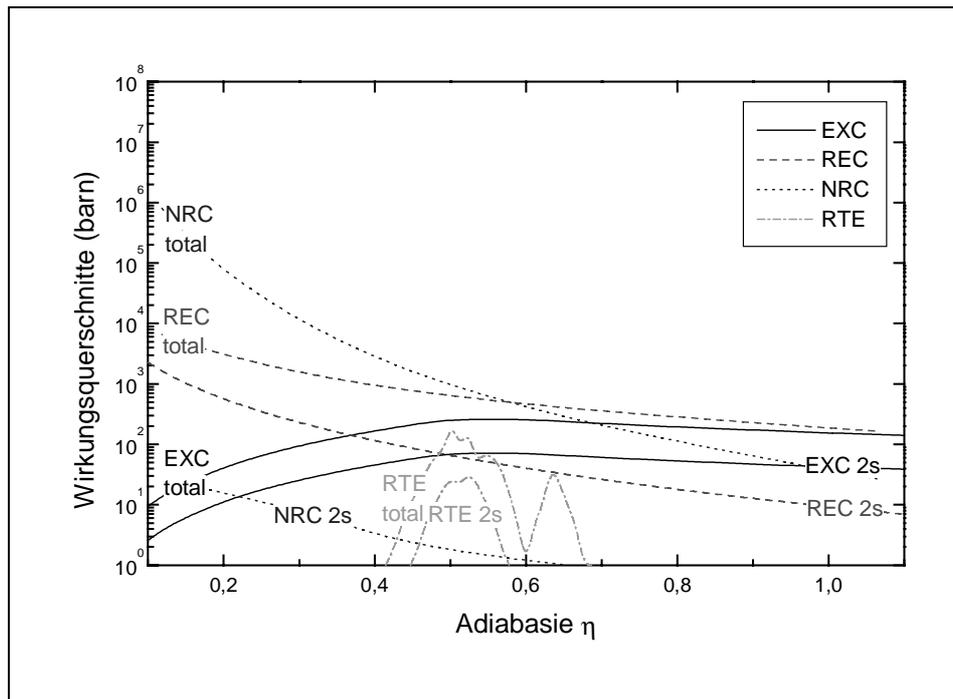


Abb. 2.8 Besetzungswahrscheinlichkeit des $1s2s \ ^1S_0$ Zustandes in heliumähnlichem Gold für die angegebenen Prozesse beim Stoß mit einem Kohlenstofftarget.

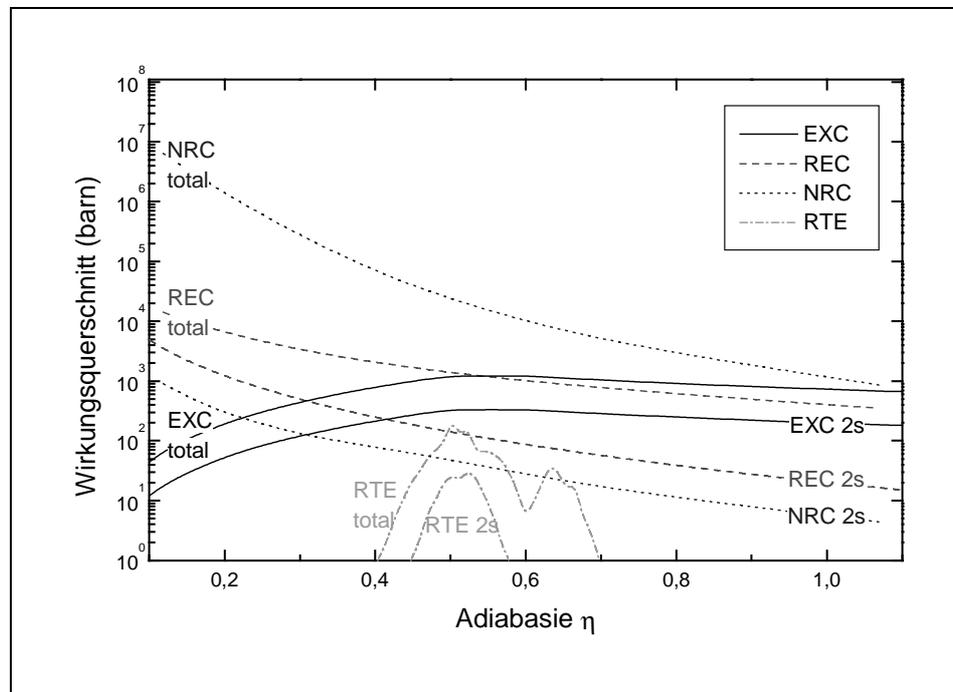


Abb. 2.9 Besetzungswahrscheinlichkeit des $1s2s \ ^1S_0$ Zustandes in heliumähnlichem Gold für die angegebenen Prozesse beim Stoß mit einem Aluminiumtarget.

Target) und 2.9 (Aluminiumtarget) entnehmen kann, bietet sich überhalb eines Adiabasiereparameters $\eta > 0,5$ die Anregung eines Elektrons im heliumähnlichen System als effektivster Prozeß an. Desweiteren lassen sich heliumähnliche Goldionen mit Hilfe des Schwerionensynchrotrons SIS bei der angegebenen kinetischen Energie sehr effizient produzieren. Für einen Adiabasiereparameter $\eta < 0,5$ wäre es günstiger den Ausgangszustand des 2E1-Zerfalles über REC zu bevölkern, aber in diesem Geschwindigkeitsbereich lassen sich wasserstoff(!)-ähnliche Ionen nur mit einer sehr kleinen Effizienz direkt von SIS erzeugen. Nach Abwägung der Besetzungsquerschnitte und der Produktionsraten für die Ionen ist davon auszugehen, daß die Anregung heliumähnlicher Ionen der effektivste Weg zur Untersuchung des 2E1-Zerfalles in He-ähnlichem Gold darstellt. Abschließend sei bemerkt, daß es sich bei den angegebenen Werten um (z.T. grobe) Abschätzungen handelt, die im wesentlichen die Größenordnung angeben sollen. Speziell im Fall des NRC ist der Wirkungsquerschnitt mit einer Unsicherheit von einem Faktor Zwei behaftet.

2.6 Erzeugung einer K-Schalenvakanz in Atomen

In diesem Kapitel wird kurz eine elegante Methode erläutert, mit der man K-Schalenvakanzen in Vielelektronensystemen (Atomen) erzeugen kann. Dies ist vor allem im Hinblick auf Kapitel 5 wichtig, in dem Zweiphotonenübergänge zwischen Zuständen des Silberatoms untersucht werden sollen.

Eine effektive Methode zur Erzeugung von Atomen mit Innerschalenvakanzen ist die Verwendung von radioaktiven Quellen bestimmter Isotope, die ausschließlich über Elektroneneinfang (in den Kern) zerfallen. Um K-Schalenvakanzen in Silberatomen zu generieren, wurde in diesem Experiment eine radioaktive Quelle des Cadmiumisotops mit der Massenzahl 109 verwendet (siehe Abbildung 2.10). Bei dem Zerfall dieses Isotops können zwei unterschiedliche Prozesse ein Elektron aus der K-Schale entfernen. Zum einen durch Elektroneneinfang in den Kern (Electron capture, EC) aus der K-Schale (81,5 Prozent der Zerfälle, [61]), zum anderen wird im nachfolgenden Zerfall des isomeren $(7/2+)$ -Zustandes in den Grundzustand $(1/2+)$ des Kernes von Ag-109 bei 41,7 Prozent der Zerfälle die Überschussenergie auf ein K-Elektron übertragen, das hierdurch emittiert wird (K-Elektronenkonversion, internal conversion IC). Aufgrund der kurzen Halbwertszeit des Cadmiumisotops 109 von

462,6 Tagen kann mit einer relativ kleinen Menge eine ausreichende Produktion von Silberionen mit einer K-Schalenvakanz erwartet werden.

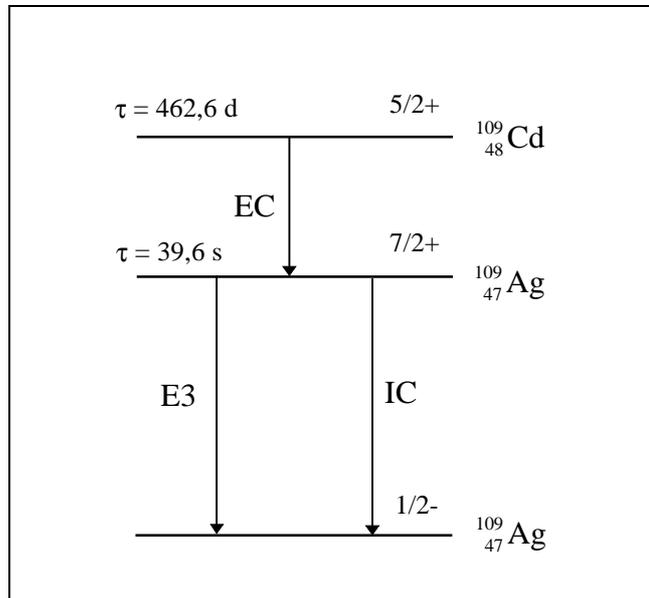


Abb. 2.10 Zerfallschema für den Grundzustand des Cd-109-Kerns [61]