

Spinaufgelöste Elektronenspektroskopie zur vollständigen Charakterisierung von Photoionisation und Augerzerfall

Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades
der Fakultät für Physik
der Universität Bielefeld

vorgelegt von
Bernd Schmidtke
aus Hannover

April 2001

1. Gutachter Prof. Dr. U. Heinzmann
 2. Gutachter Prof. Dr. G. Baum
 3. Gutachter Prof. Dr. V. Schmidt
- Tag der mündlichen Prüfung: 21.05.2001

Teile der vorliegenden Arbeit sind veröffentlicht in:

- **On the impossibility to perform a complete valence-shell photoionization experiment with closed shell atoms**, B. Schmidtke, N.A. Cherepkov, M. Drescher, and U. Heinzmann, *J. Phys. B* **33** (2000) 2451
- **Testing the feasibility of a complete Auger decay experiment by spin- and angle-resolved electron spectroscopy on Xe-N₄O_{2,3}O_{2,3}³P₁**, B. Schmidtke, T. Khalil, M. Drescher, N. Müller, N.M. Kabachnik, and U. Heinzmann, *J. Phys. B* **33** (2000) 5225
- **The Kr-M_{4,5}N₁N_{2,3}¹P₁ Auger decay: measurement of the transferred spin polarization and analysis of Auger amplitudes**, B. Schmidtke, T. Khalil, M. Drescher, N. Müller, N.M. Kabachnik, and U. Heinzmann, submitted to *J. Phys. B* (2001)

Weitere Publikationen im Umfeld dieser Arbeit:

- **Dynamische Spinpolarisation der 4d-Photoelektronen von I₂-Molekülen im Vergleich mit Xenon**, B. Schmidtke, M. Drescher, G. Snell, U. Heinzmann und U. Becker, *Verhandl. DPG (VI) 34*, Heidelberg (1999) und **Spin polarization of the 4d-photoelectrons of I₂-molecules after excitation by linearly and circularly polarized radiation**, B. Schmidtke, M. Drescher, G. Snell, J. Viefhaus, U. Heinzmann, and U. Becker, *Proc. 22nd Int. Conf. on Photonic, Electronic and Atomic Collisions*, Sendai (1999)
- **Dynamically induced spin polarization of resonant Auger electrons**, U. Hergenhahn, G. Snell, M. Drescher, B. Schmidtke, N. Müller, U. Heinzmann, M. Wiedenhöft, and U. Becker, *Phys. Rev. Lett.* **82** (1999) 5020
- **Sudden interchannel interaction in the Tl 6p ionization above 5d threshold**, G. Prümper, B. Zimmermann, B. Langer, J. Viefhaus, R. Hentges, N.A. Cherepkov, B. Schmidtke, M. Drescher, U. Heinzmann, and H. Kleinpoppen, *Phys. Rev. Lett.* **85** (2000) 5074
- **Asymmetry in photoelectron emission from chiral molecules induced by circularly polarized light**, N. Böwering, T. Lischke, B. Schmidtke, N. Müller, T. Khalil, and U. Heinzmann, *Phys. Rev. Lett.* **86** (2001) 1187
- **Interchannel interaction vs. relativistic effects: Xe 5p photoionization revisited**, B. Zimmermann, G. Snell, B. Schmidtke, M. Drescher, N. Müller, U. Heinzmann, and U. Becker, submitted to *Phys. Rev. Lett.* (2001)

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	5
2.1	Die quantenmechanische Beschreibung	6
2.1.1	Der Photoeffekt	6
2.1.2	Der Augerzerfall	8
2.1.3	Näherungsmodelle	10
2.2	Die experimentellen Meßgrößen	12
2.2.1	Koordinatensystem und generelle Symmetrien	13
2.2.2	Parametrisierungen der Meßgrößen	15
3	Die Redundanz unter den fünf dynamischen Parametern der Photoionisation am Beispiel $\text{Xe}-(5p_{3/2})^{-1}$	21
3.1	Die vorhandenen Meßdaten	21
3.2	Die Abhängigkeit unter den dynamischen Parametern	23
3.2.1	Die Gleichungen für die dynamischen Parameter	23
3.2.2	Der Existenzbeweis	24
3.2.3	Die Methode zur Matrixelementbestimmung	26
3.2.4	Die explizite Form der Beziehung	30
3.3	Die erneute Diskussion von Dipolmatrixelementen	31
3.3.1	Neubewertung des Experiments	31
3.3.2	Diskussion im 4-Parameter-Modell	33
3.3.3	Diskussion im 3-Parameter-Modell	36
3.3.4	Fehlerberechnung	38

4	Experimenteller Aufbau	41
4.1	Experimenteller Gesamtaufbau	41
4.1.1	Messungen im Laborkoordinatensystem	42
4.1.2	Messungen im elektronenfesten Koordinatensystem	44
4.2	Die drehbare Vakuumkammer	46
4.3	Das elektronenoptische Abbildungssystem	47
4.4	Meßzyklus für Spinpolarisationsmessungen	50
5	Der Xenon-$N_4O_{2,3}O_{2,3}{}^3P_1$-Augerzerfall	51
5.1	Coulombmatrixelemente des Übergangs	51
5.2	Die Abhängigkeit unter den intrinsischen Parametern	53
5.3	Meßergebnisse	53
5.3.1	Referenzmessung am Xe- $N_5O_{2,3}O_{2,3}{}^1S_0$ -Zerfall	54
5.3.2	Messung am Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}{}^3P_1$ -Zerfall	56
5.4	Diskussion der Meßergebnisse	58
5.4.1	Intrinsische Parameter	58
5.4.2	Coulombmatrixelemente	61
6	Die Krypton-$M_{4,5}N_1N_{2,3}{}^1P_1$-Augerzerfälle	65
6.1	Definition der Coulombmatrixelemente	65
6.2	Die Abhängigkeit unter den intrinsischen Parametern	67
6.3	Meßergebnisse	69
6.3.1	Referenzmessung an den Kr- $M_{4,5}N_{2,3}N_{2,3}{}^1S_0$ -Zerfällen	71
6.3.2	Messung an den Kr- $M_{4,5}N_1N_{2,3}{}^1P_1$ -Zerfällen	74
6.4	Diskussion der Meßergebnisse	76
7	Zusammenfassung und Ausblick	87
A	Der Zusammenhang zwischen den intrinsischen Parametern und Matrixelementen	91
B	Apparative Neu- und Weiterentwicklungen	93
B.1	Die drehbare Vakuumapparatur	93
B.2	Das mikrocontrollergesteuerte Spannungsversorgungssystem	97

C Korrekturverfahren zur Spinpolarisation	105
C.1 Untergrundkorrektur für den Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}{}^3P_1$ -Zerfall	105
C.2 Korrekturverfahren für die Spinpolarisation der Kr-Augerzerfälle . . .	108
C.2.1 Apparative Asymmetrien	108
C.2.2 Drehung des Spinpolarisationsvektors	112
C.2.3 Analyse der Meßdaten auf höhere Multipol-Effekte	114
C.2.4 Bewertung der verschiedenen Korrekturverfahren	117
Literaturverzeichnis	119
Abkürzungsverzeichnis	127
Danksagung und Eidesstattliche Erklärung	129
Lebenslauf	131

Kapitel 1

Einleitung

Elektronen und Photonen sind elementare Bestandteile unserer Welt, die in nahezu allen Formen von Materie in großer Zahl vorkommen und in hohem Grade mit ihr wechselwirken. Das Studium von Atomen oder Molekülen unter Lichteinwirkung ist eines der ältesten Gebiete der Atomphysik. Die dabei auftretenden Teilchen sind neben den positiv geladenen Ionen und Photoelektronen, die durch den Photoeffekt beschrieben werden, auch die aus dem Folgeprozeß des Augereffektes stammenden Augerelektronen und Fluoreszenzphotonen [1–3].

Als Lichtquelle für spektroskopische Untersuchungen vom ultravioletten bis in den Röntgenbereich ist die bereits Ende der 40er Jahre entdeckte Synchrotronstrahlung nach wie vor aufgrund der freien Abstimbarkeit in diesem Wellenlängenbereich sehr gut geeignet [4,5]. Mit der Entwicklung moderner Speicherringe der dritten Generation in den 90er Jahren stehen heute Undulatoren zur Verfügung, die beliebig polarisierte Strahlung bei gleichzeitig hohen Flußraten und kleinem Divergenzwinkel erzeugen können [6, S.1] [7, S.249].

Die wichtigsten experimentellen Methoden lassen sich entsprechend des Nachweises der verschiedenen Reaktionsprodukte gliedern in Photoabsorptionsmessungen [8, S.14], die Photoelektronen-, Augerelektronen- und Fluoreszenzphotonenspektroskopie [9–12], sowie Koinzidenztechniken, bei denen zwei Teilchen gleichzeitig nachgewiesen und deren Korrelationen bestimmt werden [13]. Ferner unterscheidet man Untersuchungen an polarisierten und unpolarisierten Systemen. Die in dieser Arbeit angewandte spinaufgelöste Elektronenspektroskopie an freien — also unpolarisierten — Atomen zeichnet sich dadurch aus, daß sich der Nachweis nur auf ein einziges Reaktionsprodukt — das Elektron — beschränkt, dabei aber auf alle Eigenschaften dieses Teilchens als Teilsystem sensitiv ist [14].

Die Basis für die theoretische Interpretation atomphysikalischer Experimente bildet die Quantenmechanik. Da sich die Bewegungsgleichungen jedoch nur für einfachste Systeme (Zweikörperprobleme) analytisch exakt lösen lassen, ist man auf Näherungen angewiesen, die eine ausreichende Vereinfachung des mathematischen Problems

liefern und eine numerische Lösung ermöglichen. Solche Näherungsmodelle erfordern ein physikalisches Verständnis der wesentlichen Mechanismen und müssen anhand des Experiments überprüft werden. Der bestmögliche Vergleich zwischen Theorie und Experiment wird erreicht durch die experimentelle Bestimmung einzelner Matrixelemente, die im Rahmen der Quantenmechanik die am weitesten aufgeschlüsselten Parameter der Beschreibung eines jeden Wechselwirkungsprozesses sind. Eine entscheidende Rolle spielt dabei die Zahl der verschiedenen Matrixelemente, die ein bestimmtes Modell benötigt. Liefert ein Experiment genügend unabhängige Meßgrößen, so daß eine Bestimmung aller Matrixelemente ermöglicht wird, so spricht man von einem quantenmechanisch vollständigen Experiment [15] [16, S.162].

Die oben genannten experimentellen Methoden wurden im Rahmen dieses Konzeptes bereits vielfach angewandt, um Dipolmatrixelemente des Photoionisationsprozesses zu bestimmen. Einige Schlüsselexperimente hierzu sind [17–22] zur spinaufgelösten Spektroskopie an Photoelektronen, [23–25] zur winkelaufgelösten Messung an Photoelektronen in Kombination mit Augerelektronen beziehungsweise Fluoreszenzphotonen, sowie [26–28] zu entsprechenden Koinzidenzmessungen. Erste Experimente an polarisierten Atomen gibt es ebenfalls seit kurzem [29–31].

Deutlich jünger sind Untersuchungen bezüglich der Fragestellung nach einer quantenmechanisch vollständigen Charakterisierung des Augerprozesses durch die Bestimmung von Coulombmatrixelementen. Erste Experimente hierzu sind bereits unter Anwendung verschiedener spininsensitiver Meßmethoden auf die Untersuchung von Augerelektronen gemacht worden [32–34]. Während spinaufgelöste Untersuchungen an Augerelektronen aus freien Atomen bereits früher in einigen Experimenten durchgeführt worden sind [35–42], ist eine systematische Anwendung winkel- und spinaufgelöster Elektronenspektroskopie unter Nutzung moderner Undulatorstrahlung an Speicherringen der dritten Generation im Hinblick auf die Frage nach einer vollständigen Beschreibung des Augerzerfalls der Gegenstand dieser Arbeit.

Untersucht wurden dazu die Zerfälle $N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_1$ an Xenon- sowie $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$ und $M_5N_1N_{2,3}^1P_1$ an Kryptonatomen. Im Laufe dieser Arbeit stellte sich überraschenderweise heraus, daß die mit dieser Methode zugänglichen Parameter nicht — wie bisher allgemein angenommen wurde — voneinander unabhängig sind, sondern durch eine aus der Theorie ableitbare Beziehung miteinander verknüpft sind. Als Folge dieser Verknüpfung reicht daher die Anzahl unabhängiger Meßgrößen nicht für ein vollständiges Experiment im Rahmen eines allgemeinen relativistischen Modells mit fünf Parametern aus. Um Aussagen über die Matrixelemente gewinnen zu können, kann daher nicht auf die zusätzliche Annahme einer vernachlässigbaren relativistischen Phasendifferenz verzichtet werden. Diese Erkenntnis ist von fundamentaler Bedeutung und überträgt sich auch auf den Fall der Photoionisation, so daß eine kritische Neubewertung des als Präzedenz geltenden Experimentes zur Xe- $(5p)^{-1}$ -Photoionisation, durchgeführt in Jahre 1984 von Ch. Heckenkamp et al. [20,21], erforderlich wurde, die ebenfalls Bestandteil dieser Arbeit ist.

Ein weiterer wesentlicher Teil dieser Arbeit war der Aufbau einer Meßapparatur für den winkel- und spinaufgelösten Elektronennachweis. Auch im Hinblick auf weitere über diese Arbeit hinausgehende Messungen war es meine Aufgabe, eine transportable Vakuumkammer zu konstruieren, die unter Meßbedingungen um zwei orthogonale Achsen drehbar ist und somit beliebige Detektoren unter nahezu jedem Raumwinkel (Θ, Φ) positionieren kann.

Diese Arbeit ist wie folgt gegliedert: In Kapitel 2 beschreibe ich die theoretischen Grundlagen, zur Winkelverteilung und Spinpolarisation von Auger- und Photoelektronen. Kapitel 3 behandelt die Neubewertung der $\text{Xe}(5p)^{-1}$ -Photoionisation und beschreibt die mathematische Methode, mit der zunächst der Beweis für die Existenz einer Beziehung zwischen den dynamischen Parametern der Photoionisation erbracht werden konnte [43], der dann kurz darauf die Entdeckung der expliziten Gleichung durch N.A. Cherepkov nach sich zog. Die Ergebnisse dieses Diskussionsteils sind in Ref. [44] bereits veröffentlicht.

In Kapitel 4 stelle ich den experimentellen Aufbau vor, der für die Messungen zum Augerzerfall an Xenon und Krypton am Berliner Elektronenspeicherring BESSY-II verwendet wurde. Die Kapitel 5 und 6 enthalten die zugehörigen Meßergebnisse sowie die ausführliche Diskussion von Coulombmatrixelementen. Dabei sind analog zum Photoionisationsfall die Beziehungen zwischen den Meßgrößen miteinbezogen, die hierzu von N.M. Kabachnik für den jeweiligen Augerübergang explizit hergeleitet wurden. Die Ergebnisse dieser Abschnitte sind ebenfalls bereits veröffentlicht in [45,46] und [47–50].

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

Die Wechselwirkung eines freien Atoms mit Licht kann bei nicht allzu großen Feldstärken im Rahmen eines semiklassischen Modells beschrieben werden [51, S.155]. Dabei wird das Atom quantenmechanisch beschrieben, während das Licht als klassisches elektromagnetisches Feld betrachtet wird, das als äußere Störung auf das Atom wirkt. Als Folge dieser Störung kann die Elektronenhülle des Atoms Energie aus dem Strahlungsfeld absorbieren und dadurch ihren elektronischen Zustand ändern, wobei es zum Photoeffekt und zum Augerzerfall kommen kann [10]. Die ausgesandten Elektronen beider Effekte lassen sich aufgrund des unterschiedlichen Verhaltens ihrer kinetischen Energie bezüglich der Photonenenergie $h\nu$ unterscheiden. Zum einen werden *Photoelektronen* freigesetzt:



Die kinetische Energie der Photoelektronen entspricht der Differenz zwischen der Photonen- und Bindungsenergie [8, S.2]. Die Bindungsenergie E_{Bind} ist dabei der Betrag der kleinsten Energie, die für die Ionisation benötigt wird:

$$h\nu - [E(A^+) - E(A)] = h\nu - E_{\text{Bind}} = E_{\text{kin}}^{\text{Photo}} \quad (2.2)$$

Des Weiteren können bei Photonenenergien, die ausreichend groß sind, um Inner-schalenlöcher im Atom A zu erzeugen, neben Photoelektronen auch *Augerelektronen* beobachtet werden. Die kinetische Energie der Augerelektronen ist unabhängig von der einfallenden Strahlung und daher charakteristisch für das untersuchte Element:



Die Energieerhaltung fordert hierbei

$$h\nu - [E(A^{++}) - E(A)] = E_{\text{kin}}^{\text{Photo}} + E_{\text{kin}}^{\text{Auger}} = h\nu - E_{\text{Bind}} + E_{\text{kin}}^{\text{Auger}} \quad (2.4)$$

Dabei entspricht $E(A^{++}) - E(A)$ gerade dem Energieaufwand für eine Doppelionisation [52, S.18].

2.1 Die quantenmechanische Beschreibung

Schwere Atome wie zum Beispiel Xenon ($Z=54$) bestehen aus vielen Elektronen, die sich im Coulombpotential des Atomkerns befinden. In erster Näherung kann man ein Atom im Rahmen des Zentralfeld-Modells beschreiben, wobei angenommen wird, daß sich die Elektronen unabhängig voneinander in einem effektiven kugelsymmetrischen Potential bewegen. Die Wellenfunktionen der Elektronenorbitale werden dabei mit dem Hartree-Fock-Verfahren (HF) berechnet, das die optimale Lösung unter dieser Bedingung liefert [53, S.18].

Viele beobachtbare Effekte wie zum Beispiel Satelliten-Anregungen oder Mehrfachionisation lassen sich jedoch nicht im Rahmen eines solchen stark vereinfachten Modells beschreiben. Um solche sogenannten *Korrelationseffekte* behandeln zu können, muß die gegenseitige Wechselwirkung der Hüllen-Elektronen untereinander durch ihre Coulombabstoßung berücksichtigt werden¹. Durch diese gegenseitige Wechselwirkung kommt es zu einer korrelierten Bewegung der Elektronen, wodurch das mathematische Problem der Lösung der Schrödinger- oder Dirac-Gleichung hochgradig kompliziert wird. Einen Überblick über die theoretischen Methoden, die von verschiedenen Theoretikern zur Berücksichtigung von Elektronenkorrelationen in Atomen entwickelt wurden, findet man in den Übersichtsartikeln von Starace [54] zur Photoionisation und Åberg und Howat [55] zur Theorie des Augereffektes.

2.1.1 Der Photoeffekt

Der Photoeffekt nach der Reaktion (2.1) wird störungstheoretisch behandelt, wobei die äußere Störung das elektromagnetische Feld ist. Unter der Voraussetzung, daß die Wellenlänge der Strahlung groß gegenüber atomaren Dimensionen ist, können höhere Terme einer Multipolentwicklung des Feldes vernachlässigt werden ($\exp i\vec{k}\vec{r} \approx 1$), so daß nur der Dipolterm beiträgt. Jüngste Experimente [56–59] zeigen allerdings, daß kleine Abweichungen ($< 10\%$) von der Dipolnäherung durchaus schon bei Photonenenergien von $h\nu \approx 250$ eV auftreten können.

Im Rahmen der Dipolnäherung ist der Störoperator der Photoionisation in Längsform durch den *Dipoloperator* \mathcal{D} gegeben. Der Übergang des Atoms vom Anfangszustand $|\Psi_i\rangle$ in den Endzustand $|\Psi_f\rangle$ ist damit durch das Dipolmatrixelement gegeben [60]:

$$\langle \Psi_f | \mathcal{D} | \Psi_i \rangle \quad \text{mit} \quad \mathcal{D} = -e \vec{\epsilon} \cdot \sum_i \vec{r}_i \quad (2.5)$$

$\vec{\epsilon}$ ist der Polarisationsvektor des Lichtes, e die Elektronenladung und \vec{r}_i die Ortskoordinaten der einzelnen Elektronen des Atoms. Die Wellenfunktion $|\Psi_i\rangle$ beschreibt normalerweise das Atom im Grundzustand und setzt sich aus den gebundenen

¹Streng genommen ist ein Anteil dieser Wechselwirkungen bereits im HF-Verfahren über das effektive Potential enthalten.

Ein-Elektronenorbitalen des Atoms zusammen. Der Endzustand $|\Psi_f\rangle$ hingegen beschreibt den Gesamtzustand des einfach geladenen Ions zusammen mit dem freigesetzten Photoelektron, wobei die Wellenfunktion des freien Elektrons ein spezieller Streuzustand ist [61, S.53], der sich nach Partialwellen zu verschiedenen Bahndrehimpulsen l entwickeln läßt [51, 468].

Obwohl die zur Berechnung von Dipolmatrixelementen benutzten Wellenfunktionen im allgemeinen in intermediärer oder jj-Kopplung verwendet werden und zur Beschreibung von Korrelationseffekten sogar Beimischungen aus verschiedener Konfigurationen enthalten, werden die Zustände $|\Psi_i\rangle$ normalerweise durch die Quantenzahlen des LS-Kopplungsfalls mit der Notation $^{2S+1}L_J$ charakterisiert, der dann den Hauptanteil am tatsächlichen Zustand ausmacht.

Die Dipolmatrixelemente (2.5) lassen sich weiter zerlegen und können über Kopplungskoeffizienten, die sich analytisch aus den Winkelanteilen der Wellenfunktionen $|\Psi\rangle$ berechnen lassen, durch die sogenannten reduzierten Dipolmatrixelemente \bar{D} ausgedrückt werden [62]:

$$\bar{D} = \langle J, \Pi; \epsilon, (l, \frac{1}{2}), j, \pi || \mathcal{D} || J_0, \Pi_0 \rangle \quad (2.6)$$

Dabei ist J der Gesamtdrehimpuls und Π die Parität des Ions A^+ ; j , l und $s = 1/2$ sind die Drehimpulse, π die Parität und ϵ die kinetische Energie des Photoelektrons; J_0 ist schließlich der Gesamtdrehimpuls und Π_0 die Parität des Atoms A der Reaktion (2.1). Die Drehimpuls- und Paritätserhaltung des Gesamtsystems erfordert:

$$L_\gamma + J_0 = J + j \quad (2.7)$$

$$\Pi_\gamma \cdot \Pi_0 = \Pi \cdot \pi \quad (2.8)$$

Dabei gilt für elektrische Dipolphotonen (E1-Photonen) $L_\gamma = 1$ und $\Pi_\gamma = -1$ [63, S.24]. Ferner gilt für Edelgase im Grundzustand $J_0 = 0$, daher folgt in diesem wichtigen Spezialfall für die Quantenzahl j die einfache Einschränkung:

$$|J - 1| \leq j \leq J + 1 \quad (2.9)$$

Des weiteren wird die Bahndrehimpulsquantenzahl l der auslaufenden Partialwelle durch die für Dipolübergänge allgemeingültige Auswahlregel

$$\Delta l = l_0 - l = \pm 1 \quad (2.10)$$

eingeschränkt, wobei l_0 der Bahndrehimpuls der Unterschale des Atoms A ist, aus der das Photoelektron entfernt wird. Entsprechend gilt für die Parität:

$$\pi = -\Pi_0 \cdot \Pi \quad (2.11)$$

Die reduzierten Dipolmatrixelemente (2.6), die sich letztendlich nur noch aus Integralen über die Radialteile von Ein-Elektronenorbitalen beziehungsweise emittierten

Partialwellen zusammensetzen, enthalten sämtliche Informationen über die dynamischen Eigenschaften des Photoionisationsprozesses, so daß sich im Rahmen der Quantenmechanik alle Observablen aus ihrer Kenntnis heraus berechnen lassen. Als komplexe Größe kann ein reduziertes Matrixelement durch seine reelle *Amplitude* und seine *Phase* ausgedrückt werden:

$$\bar{D} = D e^{i\delta} \quad (2.12)$$

Die Amplitudenquadrate D^2 charakterisieren die Wahrscheinlichkeit für die Emission einer bestimmten Partialwelle, während die Phasendifferenzen $\Delta_{ij} = \delta_i - \delta_j$ Interferenzerscheinungen beschreiben, zu denen es bei der kohärenten Überlagerung mehrerer Partialwellen kommt.

Physikalische Bedeutung für reale Observablen haben allein die Phasenverschiebungen emittierter Partialwellen gegeneinander — also die Phasendifferenzen Δ_{ij} — modulo 2π . Dahingegen hat der Gesamtwert einer einzelnen Phase δ_i nur eine theoretische Bedeutung, denn im Grenzfall $r \rightarrow \infty$ gleichen sich die Radialteile einer in einem reinen Coulombpotential propagierenden und einer im Feld eines Ions mit mehreren Elektronen emittierten Partialwelle einander an, bis sie sich im Limes nur noch durch die feste Phasenverschiebung δ unterscheiden. Der Gesamtwert δ charakterisiert daher den Unterschied zwischen einer Emission im reinen Coulombpotential und der Emission im tatsächlichen Potential des zurückbleibenden Ions [52, S.284].

2.1.2 Der Augerzerfall

Der experimentelle Befund, daß die kinetische Energie des Augerelektrons in (2.3) unabhängig von der Photonenenergie $h\nu$ ist, legt die Interpretation des Vorgangs als eine Abfolge zweier voneinander unabhängig ablaufender Prozesse nahe:



Dabei wird das Photoelektron im allgemeinen aus einer inneren Schale des Atoms ausgelöst und das Innerschalenloch A^{+*} zerfällt anschließend ohne Wechselwirkung mit dem Strahlungsfeld in den ionischen Endzustand A^{++} . Diese Auffassung wird in der Theorie durch das *Zweistufen-Modell* realisiert, welches strikt zwischen Anregungsprozeß und Augerzerfall unterscheidet [11].

Das Zweistufen-Modell ist eine Näherung und kann seine Gültigkeit in Ausnahmefällen verlieren. Hat beispielsweise das Photoelektron eine sehr geringe kinetische Energie, dann kann es zu einer Wechselwirkung der beiden emittierten Elektronen im Kontinuum kommen (PCI), wenn das schnellere Augerelektron das langsamere Photoelektron überholt [64]. Sind andererseits die kinetischen Energien beider Elektronen gleich groß, dann kann man experimentell nicht mehr zwischen ihnen

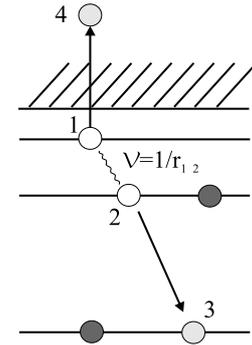
unterscheiden und es kommt zu einer kohärenten Überlagerung beider Prozesse und demzufolge zu Interferenzeffekten [65–67]. Eine allgemeingültige theoretische Beschreibung erfordert die Behandlung des Augerzerfalls als Einstufen-Prozeß, eingebettet in das Kontinuum der Doppelionisation [68, S.331].

Die den Augerzerfall — der für sich genommen auch in Abwesenheit eines elektromagnetischen Feldes, also ohne äußere Störung, stattfindet — vermittelnde Wechselwirkung ist die gegenseitige Coulombabstoßung der Elektronen untereinander. Insofern kann man bereits den einfachen Augerzerfall als Korrelationseffekt einstufen [52, S.14]. Der Operator, der den Augerzerfall beschreibt, ist der Hamiltonoperator \mathcal{H} des Systems selbst [11]. Im Rahmen des Zentralfeldmodells vereinfacht sich das entsprechende Übergangsmatrixelement zu:

$$\langle \Psi_f | \mathcal{H} - E | \Psi_i \rangle \approx \langle \Psi_f | \mathcal{V} | \Psi_i \rangle \quad \text{mit} \quad \mathcal{V} = \sum_{i>j} \frac{e^2}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} \quad (2.15)$$

$|\Psi_i\rangle$ beschreibt hier den Innerschalenlochzustand des einfach geladenen Ions und $|\Psi_f\rangle$ das doppelt geladene Ion zusammen mit dem emittierten Augerelektron.

Wenn $|\Psi_i\rangle$ und $|\Psi_f\rangle$ in reiner LS-Kopplung gegeben sind, reduziert sich der Coulomboperator \mathcal{V} weiter zu einem Zwei-Elektronen-Operator, der nur noch die Abstoßung zwischen den beiden beteiligten Elektronen i und j enthält und vier Elektronenorbitale miteinander verknüpft, wie die nebenstehende Abbildung schematisch verdeutlicht. Dies entspricht dem berühmten Wentzel-Ansatz von 1927 [69], mit dem sich viele Augerzerfälle ausreichend gut beschreiben lassen [11].



So wie das Dipolmatrixelement beim Photoeffekt läßt sich auch das Coulombmatrixelement (2.15) weiter zerlegen und letztendlich durch *reduzierte* Coulombmatrixelemente ausdrücken:

$$\bar{M} = \langle J_f, \Pi_f; (l, \frac{1}{2}), j, \pi | \mathcal{V} | J_0, \Pi_0 \rangle = M e^{i\delta} \quad (2.16)$$

wobei die Bedeutung von Amplitude M und Phase δ analog zum Photoeffekt, wie in Abschnitt 2.1.1 beschrieben, zu verstehen sind. J_f bezeichnet dabei den Gesamtdrehimpuls und Π_f die Parität des doppelt geladenen Ions A^{++} ; j , l und $s = 1/2$ sind die Drehimpulse, π die Parität des Augerelektrons; J_0 ist schließlich der Gesamtdrehimpuls und Π_0 die Parität des einfach geladenen Ions A^+ der Reaktion (2.14). In Analogie zum Photoeffekt erfordert die Drehimpuls- und Paritätserhaltung:

$$J_0 = J_f + j \quad (2.17)$$

$$\Pi_0 = \Pi_f \cdot \pi \quad (2.18)$$

Daher folgen für Augerübergänge die allgemeingültigen Auswahlregeln:

$$|J_0 - J_f| \leq j \leq J_0 + J_f \quad (2.19)$$

$$\pi = \Pi_0 \cdot \Pi_f \quad (2.20)$$

2.1.3 Näherungsmodelle

Wird die Spin-Bahn-Wechselwirkung in der Beschreibung der Wellenfunktionen sowohl im gebundenen Zustand, als auch im Kontinuum berücksichtigt, so erhält man diejenige Beschreibung, die in dieser Arbeit als relativistisches Modell bezeichnet und dabei als allgemeines Modell aufgefaßt wird [18]. Bedingt durch die Aufspaltung der Zustände ist die Zahl der für die vollständige Beschreibung eines Prozesses benötigten Matrixelemente grundsätzlich größer als in einem vereinfachten nichtrelativistischen Modell.

Beispielsweise erlauben die Dipolauswahlregeln (2.9)–(2.11) bei der Photoionisation an Edelgasen, die sich im Grundzustand befinden, zu gegebenem Gesamtdrehimpuls des zurückbleibenden Ions J nur Übergänge in drei verschiedene Kontinuumszustände (drei auslaufende Partialwellen) [60].

$$\begin{array}{rcl}
 & & \begin{array}{cc} l & j \end{array} \\
 n_0, l_0, J & \begin{array}{l} \nearrow \\ \rightarrow \\ \searrow \end{array} & \begin{array}{ccc} \epsilon, & l_0 - 1, & J - 1 \\ \epsilon, & l_0 - 1, & J \\ \epsilon, & l_0 + 1, & J + 1 \end{array}
 \end{array} \quad (2.21)$$

oder

$$\begin{array}{rcl}
 & & \begin{array}{cc} l & j \end{array} \\
 n_0, l_0, J & \begin{array}{l} \nearrow \\ \rightarrow \\ \searrow \end{array} & \begin{array}{ccc} \epsilon, & l_0 - 1, & J - 1 \\ \epsilon, & l_0 + 1, & J \\ \epsilon, & l_0 + 1, & J + 1 \end{array}
 \end{array} \quad (2.22)$$

Kann man im Experiment durch spektroskopisches Auflösen der Feinstruktur den ionischen Endzustand zu gegebenem J isolieren, dann werden demnach fünf reelle Größen (drei Amplituden und zwei Phasendifferenzen) für ein vollständiges Experiment benötigt.

Beim Augerzerfall ist die Zahl der beteiligten Partialwellen im relativistischen Modell nach Gleichung (2.19) durch $2J_f + 1$ beziehungsweise $2J_0 + 1$ gegeben, je nachdem welcher der beiden Drehimpulse der kleinere ist [70]. Für Übergänge mit ionischem Endzustand $J_f = 1$ führt dies, wie bei der Photoionisation an Edelgasen, auf insgesamt fünf verschiedene Amplituden und Phasendifferenzen für eine vollständige Beschreibung.

Vernachlässigung der relativistischen Phasendifferenz

Ist es in einem Experiment nicht möglich, fünf unabhängige Größen zu bestimmen, so muß man Näherungen einführen, welche die Zahl der Matrixelemente verringern, um überhaupt Aussagen über sie machen zu können. Die in diesem Zusammenhang kleinstmögliche Näherung besteht in der Annahme, daß die Phasenverschiebungen δ von Kontinuumszuständen mit unterschiedlichem j , aber zum demselben Bahndrehimpuls l , gleich groß sind. Dies ist gleichbedeutend mit der Aussage, daß die Differenzen zwischen zwei solchen Phasen verschwinden. In dieser Arbeit werde ich diese Phasendifferenzen als relativistisch $\Delta^{rel.}$ bezeichnen. Für das oben diskutierte Beispiel der Photoionisation an Edelgasen reduziert sich mit der Annahme $\Delta^{rel.} \approx 0$ die Zahl der für ein vollständiges Experiment benötigten Größen von fünf auf vier.

Physikalisch ist diese Näherung sinnvoll, da die Phasen der Matrixelemente mit gleichem Bahndrehimpuls l dieselbe Coulombstreuphase σ_l enthalten, die den Hauptanteil der gesamten Phasenverschiebung ausmacht [18]. Die gesamte Streuphase einer Partialwelle setzt sich aus der Coulombstreuphase σ_l und einem zusätzlichen durch Elektronenkorrelationen verursachten Teil δ_{lj} zusammen:

$$\delta_l = \sigma_l + \delta_{lj} - \frac{1}{2}l\pi \quad (2.23)$$

Bei der Bildung der Differenz hebt sich daher der durch σ_l gegebene Anteil weg. Diese Näherung ist als sehr schwach einzustufen, da die Spin-Bahn-Wechselwirkung im Kontinuum, von der ohnehin bereits nur kleine Korrekturen zu erwarten sind, immer noch durch unterschiedliche Amplituden zu verschiedenen Quantenzahlen j berücksichtigt werden.

Für die Xe-5*p*-Photoionisation wird diese Näherung durch MQDT-Rechnungen im diskreten Spektralbereich gestützt (siehe Referenzen in [18]). Ferner zeigen auch die RRPA-Rechnungen für den Fall der Xe-(4*d*)⁻¹-Photoionisation von Johnson und Cheng für beide Feinstrukturkomponenten eine verschwindende relativistische Phasendifferenz über den gesamten untersuchten Energiebereich [71,72].

Vernachlässigung der Spin-Bahn-Wechselwirkung im Kontinuum

Eine Vernachlässigung der Spin-Bahn-Wechselwirkung im Kontinuum bedeutet, daß die Wellenfunktionen des Kontinuumszustandes nicht mehr von j abhängen, was schon eine deutlich stärkere Einschränkung, als die oben diskutierte, ist. Demzufolge sind auch die Matrixelemente (2.6) — beziehungsweise (2.16) — nicht mehr von j abhängig und die Zahl der benötigten Matrixelemente reduziert sich entsprechend.

Für das Beispiel der Edelgas-Photoionisation besteht das vollständige Experiment damit in der Bestimmung zweier Amplituden und einer Phasendifferenz (drei statt fünf unabhängige Größen):

$$n_0, l_0 \begin{cases} \nearrow & \epsilon \quad l_0 - 1 \\ \searrow & \epsilon \quad l_0 + 1 \end{cases} \quad (2.24)$$

Dabei werden Zustände zu unterschiedlichem J bei der Photoionisation — beziehungsweise zu unterschiedlichem J_0 beim Augerzerfall — weiterhin getrennt behandelt und die Feinstruktur muß spektroskopisch aufgelöst werden.

Das Modell, welches diese Näherung beschreibt, ergibt sich physikalisch daraus, daß neben dem Gesamtdrehimpuls J auch der Gesamtbahndrehimpuls L und der Gesamtspin S echte Erhaltungsgrößen — d.h. „gute Quantenzahlen“ — sind. Es gelten damit zusätzliche Auswahlregeln für L und S , die zu der Reduktion der Matrixelemente führen, daher wird dieses Modell auch als *LSJ-Kopplung* bezeichnet [73].

Vernachlässigung der Spin-Bahn-Wechselwirkung

Vernachlässigt man die Spin-Bahn-Wechselwirkung komplett, dann geht auch die Abhängigkeit der Matrixelemente (2.6) von J — beziehungsweise (2.16) von J_0 beim Augerzerfall — verloren. Im Rahmen dieses Modells, das ich als *reine LS-Kopplung* bezeichnen möchte, wird überhaupt nicht mehr zwischen verschiedenen Feinstrukturkomponenten unterschieden, sondern der entsprechende elektronische Zustand ist durch L und S — beziehungsweise L_0 und S_0 — bereits eindeutig beschrieben. Experimentell kommt diese Beschreibung einer nicht mehr gegebenen spektroskopischen Auflösung der Feinstruktur gleich.

Dieses Modell stellt eine sehr starke Vereinfachung dar, denn in der Tat sollten sich die Matrixelemente der Photoionisation bezüglich verschiedener Feinstrukturkomponenten allein schon wegen der leicht verschiedenen Ionisationsenergie unterscheiden.

2.2 Die experimentellen Meßgrößen

Der in dieser Arbeit verwendete Zugang zu einer vollständigen Charakterisierung des Augerzerfalls ist die winkel- und spinaufgelöste Elektronenspektroskopie. Nachgewiesen werden diejenigen Elektronen, die von einem Ensemble vieler freier Atome unter Einwirkung eines Lichtstrahls unter einem festen Reaktionswinkel (Θ, Φ) emittiert werden, wobei ein Spektrometer dafür sorgt, daß ausschließlich Elektronen einer bestimmten kinetischen Energie akzeptiert werden. Mit einem spinsensitiven Detektor am Ende des elektronenoptischen Abbildungssystems werden die Elektronen über ein gewisses Zeitintervall nachgewiesen und akkumuliert. Die experimentellen Meßgrößen sind somit statistische Mittelwerte der Intensität $I(\Theta, \Phi)$ und des Spinpolarisationsvektors $\vec{P}(\Theta, \Phi)$ von Elektronen einer bestimmten kinetischen Energie. Gegenstand dieses Abschnitts ist es, die sich aufgrund der Symmetrie eines solchen Experimentes ergebende Parametrisierung dieser Meßgrößen zu diskutieren und den Zusammenhang zu den in 2.1 beschriebenen Matrixelementen darzustellen.

2.2.1 Koordinatensystem und generelle Symmetrien

In dieser Arbeit werden aufgrund der verschiedenen verwendeten Meßgeometrien die zwei in Abbildung 2.1 dargestellten Koordinatensysteme benutzt. Sie sind identisch zu den von Huang in Ref. [62] verwendeten Systemen und werden in dieser Arbeit als *Labor-* beziehungsweise *elektronenfestes* Koordinatensystem bezeichnet. Das Laborkoordinatensystem ist bezüglich der Richtung der einfallenden Strahlung orientiert, das elektronenfeste bezüglich der Emissionsrichtung der nachgewiesenen Elektronen. Die *Streuebene*² wird durch den Impulsvektor des emittierten Elektrons \vec{k} und die Ausbreitungsrichtung des Lichtstrahls $\vec{\gamma}$ aufgespannt; sie ist in Abbildung 2.1 grau unterlegt dargestellt. Der Winkel zwischen diesen beiden Vektoren ist der *Streuwinkel* Θ .

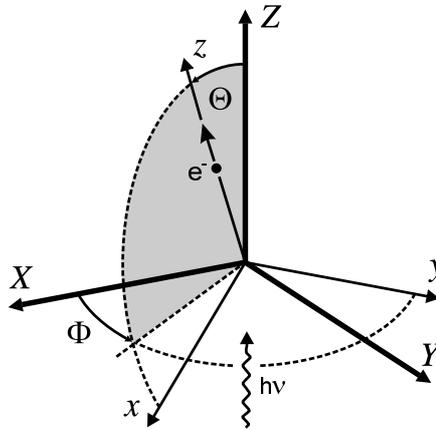


Abbildung 2.1: Labor- und elektronenfestes Koordinatensystem. Die Achsen des raumfesten Laborsystems werden mit Großbuchstaben X, Y, Z gekennzeichnet. Es wird grundsätzlich so orientiert, daß die Z -Achse mit der Ausbreitungsrichtung der einfallenden Synchrotronstrahlung zusammenfällt und die X -Achse der Horizontalen entspricht. Das elektronenfeste System geht aus dem raumfesten durch Drehung um die Eulerwinkel $(\Phi, \Theta, 0)$ hervor und wird mit Kleinbuchstaben x, y, z bezeichnet. Θ und Φ sind eindeutig festgelegt durch die Bedingung, daß die z -Achse in Emissionsrichtung und die x -Achse in der Streuebene liegt.

Davon zu unterscheiden ist die *Reaktionsebene*, die nur für zirkular und unpolariertes Licht ($S_1 = S_2 = 0$)³ mit der Streuebene identisch ist. Für linear polarisiertes Licht ($S_1^2 + S_2^2 = 1$) hingegen wird die Reaktionsebene durch den Polarisationsvektor des Lichtes $\vec{\epsilon}$ und \vec{k} aufgespannt ($\vec{\epsilon}$ definiert die Schwingungsebene des Feldstärkevektors). Entsprechend unterscheidet sich der *Reaktionswinkel* in diesem Fall vom

²Der Photoionisationsvorgang kann auch als inelastischer Streuprozess Photon \rightarrow Atom aufgefaßt werden, daher ist der Begriff Streuebene durchaus angebracht.

³Die Stokesparameter $S_1 \dots S_3$ sind wie in Ref. [74, S.554] definiert.

Streuwinkel. Der Reaktionswinkel wird durch $\vec{\epsilon}$ und \vec{k} gegeben und mit $\tilde{\Theta}$ bezeichnet. Die Begründung für die Definition der Reaktionsebene liegt in den Symmetrien, denen die Meßanordnung unterliegt:

- Rotationsymmetrie: Im Fall ($S_1 = S_2 = 0$) besteht Rotationsymmetrie um den Vektor $\vec{\gamma}$, im Fall ($S_1^2 + S_2^2 = 1$) hingegen um den Vektor $\vec{\epsilon}$. Die Reaktionsebene enthält also immer eine Achse, um die Rotationsymmetrie besteht. Daher können alle Meßgrößen nur noch von einem Winkel — dem Reaktionswinkel $\tilde{\Theta}$ — abhängen. Die Rotationsymmetrie wird in dem Moment aufgehoben, in dem sich die verwendete Strahlung gleichzeitig aus einem zirkular- oder unpolarisierten Anteil zusammen mit einem linear polarisierten Anteil zusammensetzt.
- Die Vorwärts-Rückwärts-Symmetrie bezüglich der Ausbreitungsrichtung $\vec{\gamma}$ des Lichtes. Diese folgt aus der Dipolnäherung, welche einen vernachlässigbar geringen Photonenimpuls impliziert. Mit höheren Photonenenergien, für die diese Näherung nicht mehr gilt, bricht diese Symmetrie zusammen.
- Die Spiegelsymmetrie bezüglich eines rechts- oder linkshändigen Koordinatensystems. Dies ist eine Folge der generellen Paritätserhaltung der elektromagnetischen Wechselwirkung [75, S.53].

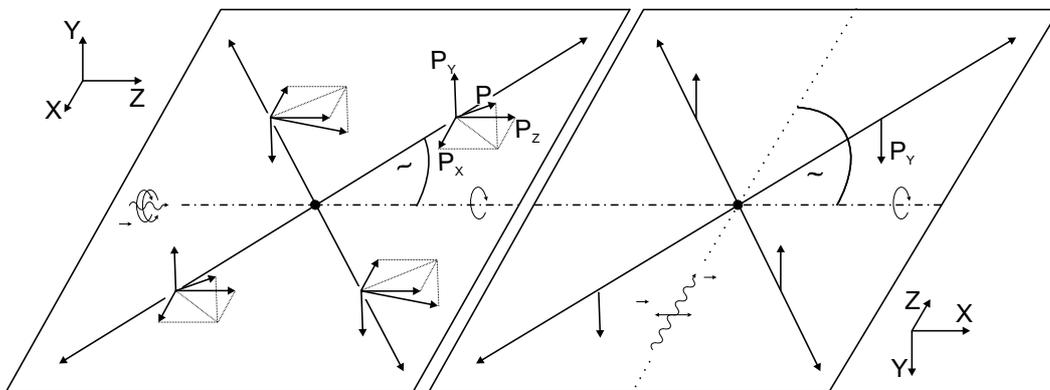


Abbildung 2.2: Links: Reaktionsebene für zirkular und unpolarisiertes Licht, alle drei Vektorkomponenten sind mit den Symmetrien a) und b) vereinbar, c) erlaubt P_x und P_z jedoch nur für zirkulares Licht. Rechts: Reaktionsebene für linear polarisiertes Licht, nur die Transversalkomponente P_y ist erlaubt, wie im unpolarisierten Fall [75, S.53].

Alle experimentellen Meßgrößen unterliegen grundsätzlich diesem Symmetrieverhalten. Daraus lassen sich einige generelle Schlußfolgerungen ziehen, die ich für eine vektorielle Observable — wie den Spinpolarisationsvektor \vec{P} , der im Mittelpunkt dieser Arbeit steht — im folgenden etwas ausführlicher schildern möchte: Abbildung

2.2 zeigt die Reaktionsebene für die beiden Fälle zirkular und linear polarisierter Strahlung. Sie ist so orientiert, daß sie im Laborkoordinatensystem die XZ -Ebene bildet. Zu einem beliebigen im ersten Quadranten vorgegebenen Vektor \vec{P} lassen sich über die Symmetrien a) und b) direkt die entsprechenden Vektoren in den anderen drei Quadranten erzeugen. Man erkennt im linken Teilbild für zirkular polarisiertes Licht, daß die Vektorkomponenten P_X und P_Y in jeweils benachbarten Quadranten unterschiedliches Vorzeichen haben müssen, während P_Z als einzige ihr Vorzeichen beibehält. Daraus folgt sofort, daß bei einer winkelintegralen Messung nur die longitudinale Komponente P_Z einen von Null verschiedenen Wert liefern kann und des weiteren, daß die transversale Komponente P_Y und die zweite Komponente in der Reaktionsebene P_X unter den Winkeln $\Theta = 0^\circ, \pm 90^\circ$ und 180° verschwinden müssen.

Im rechten Teilbild für linear polarisiertes Licht führt die veränderte Lage von γ und die damit assoziierte Symmetrie b) dazu, daß die Komponenten P_X und P_Z in der Reaktionsebene beide verschwinden müssen, um nicht im Widerspruch zur Rotationssymmetrie a) zu stehen. Bei Anregung mit linearem Licht kann also von vornherein nur die winkelaufgelöste transversale Komponente P_Y einen von Null verschiedenen Wert besitzen.

Des weiteren liefert die Spiegelsymmetrie c) noch eine zusätzliche wichtige Einschränkung für vektorielle Meßgrößen, die — wie auch der Spinpolarisationsvektor — eine vorzeichenbehaftete Orientierung besitzen. Wird dem System nämlich keine Orientierung aufgeprägt, dann ist die einzige Komponente, welche die Bedingung c) nicht verletzt, die transversale P_Y [75, S.53]. Da eine Orientierung nur für zirkular polarisiertes Licht vorliegt, folgt daraus, daß die Komponenten in der Reaktionsebene P_X und P_Z für unpolarisiertes Licht genauso wie für linear polarisiertes Licht verschwinden müssen.

2.2.2 Parametrisierungen der Meßgrößen

Da es sich bei den Systemen in den Reaktionen (2.1) beziehungsweise (2.13) und (2.14) jeweils um statistische Ensembles — also keine reinen Zustände — handelt, können sie im Rahmen des allgemeinen Dichtematrixformalismus beschrieben werden. Dabei wird jedes der Systeme $\gamma_{h\nu}$, A^{+*} , A^{++} , e_{Photo}^- und e_{Auger}^- — beziehungsweise Kombinationen dieser — durch eine Dichtematrix $\rho(J')$ zu gegebenem Drehimpuls J' beschrieben. Die eigentliche Stärke in dieser Beschreibung liegt in der Möglichkeit, die Projektion des Gesamtsystems auf ein beobachtetes Teilsystem durch Summation über die Variablen des unbeobachteten Teilsystems berechnen zu können. Eine gute und ausführliche Einführung in dieses theoretische Verfahren mit vielen Beispielen findet man in [76, Kap.2-4], eine moderne Zusammenstellung der wichtigen Relationen in [63, S.1].

Die Entwicklung der Dichtematrizen nach sogenannten irreduziblen Tensoroperatoren, die unter Drehungen ein definiertes Symmetrieverhalten besitzen, erlaubt

schließlich eine systematische Parametrisierung der Winkelabhängigkeiten der Ausdrücke für die Meßgrößen $I(\Theta, \Phi)$ und $\vec{P}(\Theta, \Phi)$. Die dabei auftretenden Parameter sind die statistischen Multipole $\rho_{kq}(J')$ mit dem Rang k ($k = 0 \dots 2J'$) und der Komponente q ($-k \leq q \leq +k$). Sie charakterisieren die Dynamik des jeweiligen Prozesses und sind Funktionen der in Abschnitt 2.1 beschriebenen reduzierten Matrixelemente beziehungsweise Amplituden und Phasendifferenzen. Im weiteren dieser Arbeit werden die folgenden Parametergruppen eine Rolle spielen:

- Die Zustandsmultipole des Photons ρ_{kq}^γ . Sie charakterisieren den Polarisationszustand der Strahlung und sind eindeutig durch die vier Stokesparameter festgelegt. Da die Messungen, die in dieser Arbeit vorgestellt werden, ausschließlich mit zirkular polarisierter Strahlung durchgeführt wurden, wird hiervon nur der Zirkularpolarisationsgrad P_{zirk} benötigt.
- Die *dynamischen* Parameter der Photoionisation. Sie beschreiben die Dynamik der Photoionisation und charakterisieren die Eigenschaften des Photoelektrons e_{Photo}^- bei Nichtbeobachtung des zurückbleibenden Ions $A^{+\ast}$.
- Die (reduzierten) Zustandsmultipole des Ions \mathcal{A}_{kq} . Sie beschreiben ebenfalls die Dynamik der Photoionisation, charakterisieren jedoch das zurückbleibende Ion $A^{+\ast}$, wobei das Photoelektron e_{Photo}^- unbeobachtet bleibt.
- Die *intrinsischen* Parameter des Augerzerfalls. Sie beschreiben die Dynamik des Augerzerfalls und charakterisieren das Augerelektron e_{Auger}^- , wobei das doppelt geladene Ion A^{++} nicht beobachtet wird.

Differentieller Wirkungsquerschnitt für Augerelektronen

Die Winkelverteilung für Augerelektronen aus der Reaktion (2.14) nach Anregung mit zirkular polarisierter Strahlung ist nach [63, S.111] durch den differentiellen Wirkungsquerschnitt gegeben:

$$\frac{dW(\Theta)}{d\Omega} = \frac{W_0}{4\pi} [1 + \alpha_2 \mathcal{A}_{20} P_2(\cos \Theta)] \quad (2.25)$$

Darin sind die Parameter W_0 und α_2 intrinsische Parameter, die die Dynamik des Augerzerfalls beschreiben und von den reduzierten Matrixelementen abhängen. P_2 ist das zweite Legendrepolynom: $P_2(x) = 3/2x^2 - 1/2$. W_0 ist proportional zur Wahrscheinlichkeit für das Stattfinden des untersuchten Übergangs, die durch die Summe der Absolutquadrate aller beteiligten Matrixelemente gegeben ist. Er beschreibt den winkelintegralen Wirkungsquerschnitt (es gilt $\int d\Omega W(\Theta) = W_0$) und hat als einziger absoluter Parameter eine Dimension ($1 \text{ Mbarn} = 10^{-22} \text{ m}^2$). Der zweite intrinsische Parameter α_2 ist ein Anisotropieparameter der Augeremission,

während der ionische Parameter \mathcal{A}_{20} ein Alignmentparameter des Anfangssystems A^{+*} ist.

Das Produkt $\alpha_2 \mathcal{A}_{20}$ in (2.25) skaliert die Dynamik in der Winkelverteilung der Augeremission. Durch die Randbedingung, daß der differentielle Wirkungsquerschnitt positiv sein muß, ergibt sich für den Wertebereich die Einschränkung $-1 \leq \alpha_2 \mathcal{A}_{20} \leq +2$. Dabei entspricht der Wert Null einer isotropen Winkelverteilung, während die beiden Extremfälle $\alpha_2 \mathcal{A}_{20} = +2$ und $\alpha_2 \mathcal{A}_{20} = -1$ einer $\sin^2 \Theta$ beziehungsweise einer $\cos^2 \Theta$ Verteilung entsprechen. Das zweite Legendrepolynom $P_2(\cos \Theta)$ hat eine Nullstelle bei dem Winkel $\Theta = 54.7^\circ$. Dieser Winkel wird als *magischer Winkel* bezeichnet, weil in diesem Fall die gemessene Intensität nicht mehr von $\alpha_2 \mathcal{A}_{20}$ abhängt.

Der Alignmentparameter \mathcal{A}_{20} ist eine spezielle Komponente des Satzes von reduzierten statistischen Multipolen \mathcal{A}_{kq} , die das Ion A^{+*} charakterisieren. Eine wichtige Eigenschaft der statistischen Multipole ist, daß sich der Rang k eines Systems bei einem Übergang als Konsequenz der Drehimpulserhaltung nicht ändern kann [63, S.12]. Ebenso bleiben die Komponenten q erhalten, werden jedoch bei der Drehung des Systems untereinander gemischt. Zusammen mit \mathcal{A}_{20} kann daher auch nur der zweite der Anisotropieparameter α_k mit $k = 2$ auftreten. Die Tatsache, daß in (2.25) nur \mathcal{A}_{20} auftritt, liegt zum einen an der Rotationsymmetrie ($\Rightarrow \mathcal{A}_{kq} = 0$ für $q \neq 0$) und der Paritätserhaltung ($\Rightarrow \mathcal{A}_{kq} = 0$ für k ungerade). Zum anderen ist der Rang der durch Dipolphotonen-Absorption erzeugten Multipole generell beschränkt ($\Rightarrow \mathcal{A}_{kq} = 0$ für $k > 2$) [77].

Es läßt sich zeigen, daß der Alignmentparameter \mathcal{A}_{20} proportional zum Quadrupolmoment der Ladungsverteilung des Ions A^{+*} ist, das durch eine unterschiedliche Besetzung der magnetischen Unterniveaus zu verschiedenem Betrag $|m|$ entsteht [77]. Ein Alignment besitzt daher keine Vorzugsrichtung (das Vorzeichen von \mathcal{A}_{20} bestimmt, ob die Ladungsverteilung prolat wie eine Zigarre oder oblat wie eine „Untertasse“ ist).

Spinpolarisation der Augerelektronen

Die zum differentiellen Wirkungsquerschnitt (2.25) analogen Ausdrücke für den Spinpolarisationsvektor lauten im Laborkoordinatensystem nach Anregung mit zirkular polarisierter Strahlung für Augerelektronen [78,79]:

$$P_X(\Theta) = \frac{\frac{3}{4} \mathcal{A}_{10} \gamma_1 \sin(2\Theta)}{1 + \mathcal{A}_{20} \alpha_2 P_2(\cos \Theta)} \quad (2.26)$$

$$P_Y(\Theta) = \frac{\mathcal{A}_{20} \xi_2 \sin(2\Theta)}{1 + \mathcal{A}_{20} \alpha_2 P_2(\cos \Theta)} \quad (2.27)$$

$$P_Z(\Theta) = \frac{\mathcal{A}_{10} \beta_1 + \mathcal{A}_{10} \gamma_1 P_2(\cos \Theta)}{1 + \mathcal{A}_{20} \alpha_2 P_2(\cos \Theta)} \quad (2.28)$$

β_1 , γ_1 und ξ_2 sind — analog zu α_2 — drei weitere intrinsische Parameter, die den Augerzerfall charakterisieren. Des weiteren tritt ein weiterer ionischer Parameter in P_X und P_Z auf: der Orientierungsparameter \mathcal{A}_{10} . Das Produkt $\gamma_1\mathcal{A}_{10}$ skaliert die Dynamik in der Winkelabhängigkeit der Spinpolarisationskomponenten in der Streuebene P_X und P_Z , während $\beta_1\mathcal{A}_{10}$ den winkelintegralen Spinpolarisationsanteil beschreibt, der nur in longitudinaler Richtung auftreten kann:

$$\int d\Omega [1 + \mathcal{A}_{20}\alpha_2 P_2(\cos \Theta)] P_Z(\Theta) = \mathcal{A}_{10}\beta_1 \quad (2.29)$$

Die Spinpolarisation, die durch β_1 und γ_1 beschrieben wird, wird als *transferierte* Spinpolarisation bezeichnet [80,81], da ihr physikalischer Ursprung als Polarisations-transfer vom Photon über das Ion A^{+*} auf das Augerelektron aufgefaßt werden kann. $\xi_2\mathcal{A}_{20}$ skaliert die Winkeldynamik der transversalen Spinpolarisationskomponente P_Y . Diese durch ξ_2 beschriebene Spinpolarisation wird als *dynamisch* bezeichnet [80,81], da ihr physikalischer Ursprung ein Interferenzeffekt zwischen verschiedenen auslaufenden Partialwellen ist.

Der Orientierungsparameter \mathcal{A}_{10} ist ein reduzierter statistischer Tensor mit dem Rang $k = 1$ und der Komponente $q = 0$. Er ist proportional zur Projektion des magnetischen Momentes des Ions A^{+*} auf die Z -Achse, das durch eine unterschiedliche Besetzungswahrscheinlichkeit der Unterniveaus zu verschiedenen magnetischen Quantenzahlen m verursacht wird [77]. Im Gegensatz zum Alignment besitzt eine Orientierung eine definierte Vorzugsrichtung — das Vorzeichen von \mathcal{A}_{10} definiert die Richtung des magnetischen Momentes.

Die Ausdrücke (2.26)–(2.28) genügen natürlich den allgemeinen Symmetriebedingungen aus Abschnitt 2.2.1. Eine transferierte Spinpolarisation in der Reaktionsebene kann nur auftreten, wenn das Anfangssystem eine Orientierung besitzt ($\mathcal{A}_{10} \neq 0$), die ihrerseits nur durch zirkular polarisiertes Licht erzeugt werden kann. Die dynamische Spinpolarisation hingegen tritt senkrecht zur Reaktionsebene auf und ist nicht an ein orientiertes System gebunden. Sie benötigt lediglich ein Alignment des Anfangssystems ($\mathcal{A}_{20} \neq 0$), das mit beliebig polarisiertem Licht erzeugt werden kann. In Analogie zum differentiellen Wirkungsquerschnitt lassen sich auch für die Größen $\beta_1\mathcal{A}_{10}$, $\gamma_1\mathcal{A}_{10}$ und $\xi_2\mathcal{A}_{20}$ Grenzwerte durch die Bedingung, daß der Betrag des Spinpolarisationsvektors kleiner als eins sein muß, ableiten [62].

Eine Transformation der Ausdrücke (2.26)–(2.28) in das elektronenfeste Koordinatensystem führt auf [82]:

$$P_x(\Theta) = \frac{\mathcal{A}_{10}\xi_1 \sin(\Theta)}{1 + \mathcal{A}_{20}\alpha_2 P_2(\cos \Theta)} \quad (2.30)$$

$$P_y(\Theta) = \frac{\mathcal{A}_{20}\xi_2 \sin(2\Theta)}{1 + \mathcal{A}_{20}\alpha_2 P_2(\cos \Theta)} \quad (2.31)$$

$$P_z(\Theta) = \frac{\mathcal{A}_{10}\delta_1 \cos(\Theta)}{1 + \mathcal{A}_{20}\alpha_2 P_2(\cos \Theta)} \quad (2.32)$$

Dabei werden zwei weitere intrinsische Parameter δ_1 und ξ_1 definiert, die eine Kombination aus β_1 und γ_1 sind:

$$\delta_1 = \beta_1 + \gamma_1 \quad \text{und} \quad \xi_1 = \frac{1}{2}\gamma_1 - \beta_1 \quad (2.33)$$

δ_1 beschreibt damit die Spinpolarisationskomponente in Richtung der Augeremission, ξ_1 die Komponente innerhalb der Reaktionsebene senkrecht dazu.

Tabelle 2.1: Intrinsische Parameter für Augerelektronen zu ionischem Endzustand 1S_0 für verschiedenen Anfangszustände L_0 und J_0 . Der ξ_2 -Parameter verschwindet grundsätzlich für 1S_0 -Endzustände.

L	J	β_1^a	γ_1^a	ϱ^b
0	1/2	0	0	0
1	1/2	-1/3	4/3	0
1	3/2	$\sqrt{5}/3$	$-2/3\sqrt{5}$	-1
2	3/2	$-1/\sqrt{5}$	$2/\sqrt{5}$	-1
2	5/2	$\sqrt{7/15}$	$-4/\sqrt{105}$	$-\sqrt{8/7}$

^a aus Ref. [83].

^b nur abhängig von L_0 , aus Ref. [84].

Die intrinsischen Parameter lassen sich durch die in Abschnitt 2.1.2 diskutierten Coulombmatrixelemente ausdrücken. Für den Spezialfall, daß der ionische Endzustand eine 1S_0 -Symmetrie besitzt und daher nur eine einzige auslaufende Partialwelle erlaubt ist, sind die intrinsischen Parameter durch rein geometrisch festgelegte Koppelungskoeffizienten festgelegt. In Tabelle 2.1 sind diese für verschiedene Lochzustände angegeben.

Differentieller Wirkungsquerschnitt und Spinpolarisation für Photoelektronen

Da die Meßgeometrie für den Nachweis von Photoelektronen dieselbe ist wie für den Nachweis von Augerelektronen, können die Aussagen bezüglich Symmetrie und Winkelabhängigkeit für Intensität und Spinpolarisation direkt übernommen werden. Der einzige formale Unterschied in der Herleitung der Ausdrücke besteht darin, daß an die Stelle der Multipole \mathcal{A}_{kq} , die Zustandsmultipole des Systems $h\nu + A$ treten, die im Falle freier Atome ausschließlich durch die Stokesparameter der Lichtstrahlung gegeben sind [63, S.45].

Die dynamischen Parameter der Photoionisation werden mit σ , β , A , α und ξ bezeichnet [14] und man erhält die Ausdrücke für den differentiellen Wirkungsquerschnitt und die Spinpolarisation für rein zirkular polarisierte Photonen, indem man

in 2.25 und (2.26-2.28) die folgenden Ersetzungen vornimmt:

$$W_0 \rightarrow \sigma \tag{2.34}$$

$$\mathcal{A}_{20}\alpha_2 \rightarrow -\frac{1}{2}\beta \tag{2.35}$$

$$\mathcal{A}_{10}\beta_1 \rightarrow A \tag{2.36}$$

$$\mathcal{A}_{10}\gamma_1 \rightarrow -\alpha \tag{2.37}$$

$$\mathcal{A}_{20}\xi_2 \rightarrow \xi \tag{2.38}$$

Kapitel 3

Die Redundanz unter den fünf dynamischen Parametern der Photoionisation am Beispiel $\text{Xe}-(5p_{3/2})^{-1}$

Für die $\text{Xe}-(5p_{3/2})^{-1}$ -Photoionisation erlauben die Auswahlregeln (2.9)–(2.11) die Emission der folgenden drei Partialwellen:

$$\text{Xe}(5p)^6 \ ^1S_0 + \gamma_{h\nu} \rightarrow \text{Xe}(5p)^5 \ ^2P_{3/2} + \begin{cases} \epsilon d_{5/2} & \rightarrow D_1, \delta_1 \\ \epsilon d_{3/2} & \rightarrow D_2, \delta_2 \\ \epsilon s_{1/2} & \rightarrow D_3, \delta_3 \end{cases} \quad (3.1)$$

Die fünf für die vollständige Beschreibung benötigten quantenmechanischen Größen sind die drei Amplituden und die zwei Phasendifferenzen, die mit D_1, D_2, D_3 beziehungsweise $\Delta^{ds} = \delta_1 - \delta_3, \Delta^{rel.} = \delta_1 - \delta_2$ bezeichnet werden [18,21]. Auf der anderen Seite sind durch die spinaufgelöste Analyse der Photoelektronen die fünf dynamischen Parameter σ, β, A, α und ξ zugänglich. Das vollständige Experiment sollte daher möglich sein, wenn alle diese fünf dynamischen Parameter voneinander unabhängig sind. Wie im folgenden gezeigt wird, ist dies jedoch nicht der Fall.

3.1 Die vorhandenen Meßdaten

In dem Experiment von Ch. Heckenkamp et al. (1984) [19–21] wurden die drei Parameter A, α und ξ entsprechend der Gleichungen (2.28) und (2.26) durch Messungen der Winkelverteilung der Komponenten P_Z und P_Y des Spinpolarisationsvektors der Photoelektronen nach Anregung mit zirkular polarisierter Strahlung in einem Energiebereich zwischen $13.8 \text{ eV} \leq h\nu \leq 25.7 \text{ eV}$ bestimmt. Zusammen mit den in

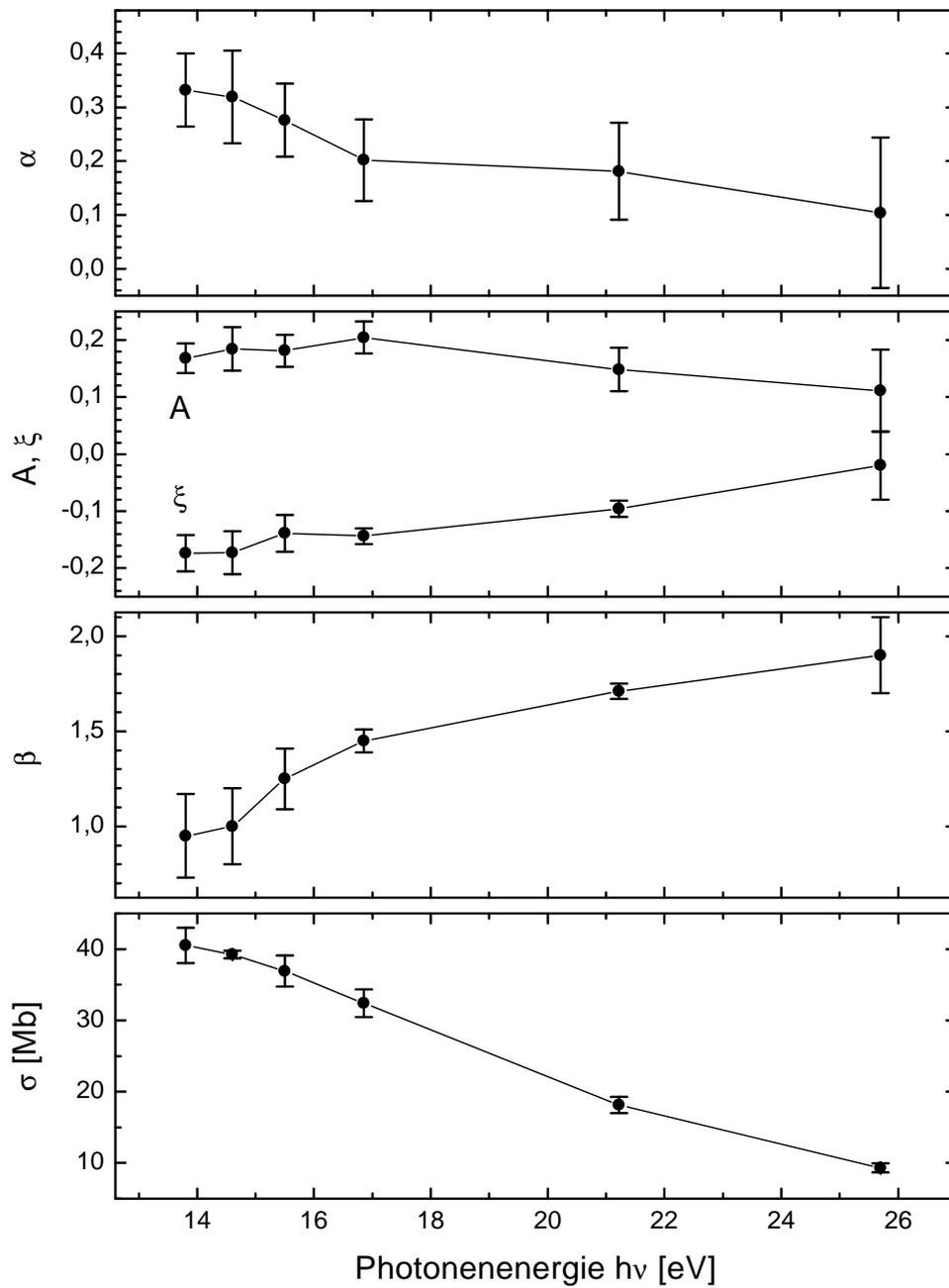


Abbildung 3.1: Die fünf dynamischen Parameter der $\text{Xe}-(5p_{3/2})^{-1}$ -Photoionisation des Experimentes Heckenkamp (1984) [19,20]. Die Meßwerte sind durch gerade Linien miteinander verbunden. Die Fehlergrenzen kennzeichnen den zweifachen statistischen Fehler gemäß der in Abschnitt 3.3.1 diskutierten Neubewertung.

Ref. [19] zitierten Literaturdaten für den partiellen Wirkungsquerschnitt σ und den Asymmetrieparameter β stehen daher experimentelle Werte für alle fünf dynamischen Parameter zur Verfügung. Diese sind in Abbildung 3.1 dargestellt.

3.2 Die Abhängigkeit unter den dynamischen Parametern

3.2.1 Die Gleichungen für die dynamischen Parameter

Die Ausdrücke für die dynamischen Parameter als Funktion der Dipolamplituden und Phasendifferenzen (3.1) für die Xe- $(5p_{3/2})^{-1}$ -Photoionisation lauten [21]:

$$\sigma = 4\pi^2 \alpha a_0^2 \omega \{D_1^2 + D_2^2 + D_3^2\} \quad (3.2)$$

$$\beta = \frac{4D_1^2 - 4D_2^2 + 6D_1D_2 \cos \Delta^{rel.}}{5 \{D_1^2 + D_2^2 + D_3^2\}} - \frac{2\sqrt{5}D_2D_3 \cos(\Delta^{ds} - \Delta^{rel.}) + 6\sqrt{5}D_1D_3 \cos \Delta^{ds}}{5 \{D_1^2 + D_2^2 + D_3^2\}} \quad (3.3)$$

$$A = \frac{7D_1^2 - 2D_2^2 - 5D_3^2 - 12D_1D_2 \cos \Delta^{rel.}}{10 \{D_1^2 + D_2^2 + D_3^2\}} \quad (3.4)$$

$$\alpha = \frac{4D_1^2 - 4D_2^2 + 6D_1D_2 \cos \Delta^{rel.} + 10\sqrt{5}D_2D_3 \cos(\Delta^{ds} - \Delta^{rel.})}{10 \{D_1^2 + D_2^2 + D_3^2\}} \quad (3.5)$$

$$\xi = \frac{15D_1D_2 \sin \Delta^{rel.} + 3\sqrt{5}D_2D_3 \sin(\Delta^{ds} - \Delta^{rel.})}{20 \{D_1^2 + D_2^2 + D_3^2\}} - \frac{6\sqrt{5}D_1D_3 \sin \Delta^{ds}}{20 \{D_1^2 + D_2^2 + D_3^2\}} \quad (3.6)$$

Darin ist $\alpha = 1/137$ die Feinstrukturkonstante, $a_0 = 5.29 \cdot 10^{-11}$ m der Bohr-Radius und ω die Photonenenergie in atomaren Einheiten.

Vorzeichenkonvention und Periodizität

Die Form der Ausdrücke (3.2)–(3.6) als Summe über quadratische Formen der Amplituden mit Sinus- oder Kosinusfunktionen der Phasendifferenzen als Interferenztermen ist allgemein, lediglich die Koeffizienten und die Zahl der vorkommenden Terme ist abhängig vom speziellen Übergang. Die im folgenden diskutierten Eigenschaften sind daher analog für alle Gleichungssysteme dieser Art gültig und nicht nur auf den Xe- $(5p_{3/2})^{-1}$ -Fall beschränkt.

Zunächst zeichnen sich die trigonometrischen Funktionen natürlich durch ihre 2π -Periodizität aus. Daher lassen sich Phasendifferenzen grundsätzlich nur modulo 2π

bestimmen, denn die Gleichungen (3.2)–(3.6) bleiben invariant gegenüber der Transformation:

$$\begin{aligned}\Delta^{rel.} &\rightarrow \Delta^{rel.} + 2\pi \\ \Delta^{ds} &\rightarrow \Delta^{ds} + 2\pi\end{aligned}\quad (3.7)$$

Ferner gehen die Gleichungen (3.2)–(3.6) unter den folgenden weiteren Transformationen in sich selbst über:

$$\text{und } \left. \begin{aligned}\Delta^{rel.} &\rightarrow \Delta^{rel.} + \pi \\ \Delta^{ds} &\rightarrow \Delta^{ds} + \pi\end{aligned}\right\} \text{ und } D_1 \rightarrow -D_1 \quad (3.8)$$

$$\Delta^{rel.} \rightarrow \Delta^{rel.} + \pi \text{ und } D_2 \rightarrow -D_2 \quad (3.9)$$

$$\Delta^{ds} \rightarrow \Delta^{ds} + \pi \text{ und } D_3 \rightarrow -D_3 \quad (3.10)$$

Das Vorzeichen einer Amplitude kann damit in eine Phasenverschiebung um π umgeformt werden und läßt sich grundsätzlich nicht aus einer Messung der dynamischen Parameter bestimmen. Es bedarf daher für die Diskussion von Matrixelementen einer zusätzlichen Vorzeichenkonvention. Bei allen Analysen von Matrixelementen in dieser Arbeit habe ich die Konvention positiver Amplituden getroffen. Bei der Photoionisation liefert in diesem Zusammenhang die Quantendefekttheorie (QDT) einen Ausweg, die Phasendifferenzen unterhalb der Ionisationsschwelle mit den spektroskopisch bestimmbaren Quantendefekten μ verbindet [17,18]: Die Phasendifferenzen sollten an der Ionisationsschwelle stetig verlaufen. Damit können die Vorzeichen der Amplituden festgelegt werden, wenn die zugehörigen Phasendifferenzen hinreichend genau bestimmt sind. Die Analyse in Ref. [18] ergab diesbezüglich unter der Annahme einer verschwindenden relativistischen Phasendifferenz positive Werte für alle drei Amplituden.

Des weiteren erkennt man an den Gleichungen (3.2)–(3.6), daß der ξ -Parameter aufgrund der Sinusterme vom Vorzeichen aller Phasendifferenzen abhängt:

$$\text{und } \left. \begin{aligned}\Delta^{rel.} &\rightarrow -\Delta^{rel.} \\ \Delta^{ds} &\rightarrow -\Delta^{ds}\end{aligned}\right\} \Leftrightarrow \xi \rightarrow -\xi \quad (3.11)$$

3.2.2 Der Existenzbeweis

Die nichtlinearen Gleichungen (3.2)–(3.6) können aufgefaßt werden als eine fünfdimensionale Abbildung, die die Größen $D_1, D_2, D_3, \Delta^{rel.}$ und Δ^{ds} in den Raum der dynamischen Parameter abbildet. Definieren wir diese Abbildung $\vec{f}: \mathcal{R}^5 \rightarrow \mathcal{R}^5$ durch

$$\vec{x} = \begin{bmatrix} D_1 \\ D_2 \\ D_3 \\ \Delta^{rel.} \\ \Delta^{ds} \end{bmatrix} \rightarrow \vec{f}(\vec{x}) = \begin{bmatrix} \sigma(\vec{x}) - \tilde{\sigma} \\ \beta(\vec{x}) - \tilde{\beta} \\ A(\vec{x}) - \tilde{A} \\ \alpha(\vec{x}) - \tilde{\alpha} \\ \xi(\vec{x}) - \tilde{\xi} \end{bmatrix}, \quad (3.12)$$

wobei $\tilde{\sigma}, \tilde{\beta}, \tilde{A}, \tilde{\alpha}, \tilde{\xi}$ die Meßwerte und $\sigma(\vec{x}), \beta(\vec{x}), A(\vec{x}), \alpha(\vec{x})$ und $\xi(\vec{x})$ die Funktionen (3.2)–(3.6) sind, dann transformiert sich das Gleichungssystem (3.2)–(3.6) in:

$$\vec{f}(\vec{x}) = \vec{0} \quad (3.13)$$

Diese Beziehung eignet sich für numerische Verfahren der Nullstellenbestimmung. Ferner benötigen wir die Jakobimatrix $\mathcal{J}_{\vec{f}}$ der Abbildung \vec{f} . Sie wird definiert durch:

$$(\mathcal{J}_{\vec{f}}(\vec{x}))_{ij} = \frac{\partial f_i(\vec{x})}{\partial x_j} \in \text{Mat}(5 \times 5) \quad ; \quad i = 1 \dots 5, j = 1 \dots 5 \quad (3.14)$$

Der allgemeine Umkehrsatz der Analysis im \mathcal{R}^n macht eine Aussage über die prinzipielle Invertierbarkeit der Abbildung \vec{f} . Für die Umkehrbarkeit gilt die sowohl notwendige als auch hinreichende Bedingung:

$$\det \mathcal{J}_{\vec{f}}(\vec{x}) \neq 0 \quad \Leftrightarrow \quad \vec{f}^{-1}(\vec{x}) \quad \text{existiert lokal in } \vec{x} \text{ und ist} \quad (3.15)$$

stetig differenzierbar.

Dieses auch als Satz über implizite Funktionen bezeichnete Theorem ist in der üblichen Standardliteratur der Mathematik zur Analysis in \mathcal{R}^n zu finden — zum Beispiel in Ref. [85, S.75] — und wird mit einer einfachen anschaulichen Überlegung auch verständlich: In erster Näherung kann \vec{f} in eine Taylorreihe bis zur ersten Ordnung entwickelt werden:

$$\vec{f}(\vec{x} + \Delta\vec{x}) = \vec{f}(\vec{x}) + \mathcal{J}_{\vec{f}}(\vec{x}) \cdot \Delta\vec{x} \quad , \quad (3.16)$$

wobei die Jakobimatrix $\mathcal{J}_{\vec{f}}$ in ihren Zeilen die Gradienten der einzelnen Komponenten von \vec{f} enthält. Eine verschwindende Determinante $\det \mathcal{J}_{\vec{f}} = 0$ bedeutet nichts anderes, als daß diese Gradienten linear abhängig sind. Das bedeutet, es muß einen Vektor $\Delta\vec{h}$ geben, der nicht durch die fünf Gradienten aufgespannt werden kann:

$$\mathcal{J}_{\vec{f}} \cdot \Delta\vec{h} = 0 \quad (3.17)$$

$\Delta\vec{h}$ ist dabei der Kern der Jakobimatrix $\mathcal{J}_{\vec{f}}$ und definiert die Richtung, entlang der \vec{f} in erster Näherung konstant bleibt.

Für den hier diskutierten Fall kann die Determinante $\det \mathcal{J}_{\vec{f}}$ mit Hilfe eines Mathematikprogramms (zum Beispiel Maple [86]) analytisch ausgerechnet werden und man gelangt zu dem überraschenden Ergebnis:

$$\det \mathcal{J}_{\vec{f}}(\vec{x}) = 0 \quad \forall \vec{x} \in \mathcal{R}^5 \quad , \quad (3.18)$$

und weiter:

$$\text{Rang} \mathcal{J}_{\vec{f}}(\vec{x}) \leq 4 \quad \forall \vec{x} \in \mathcal{R}^5 \quad , \quad (3.19)$$

wobei die Aussage $\text{Rang} \mathcal{J}_{\vec{f}} < 4$ nur für Spezialfälle gilt, wie zum Beispiel verschwindende Phasendifferenzen $\Delta^{rel.} = \Delta^{ds} = 0$.

Die Aussage (3.18) bedeutet nach Satz (3.15), daß \vec{f} nicht bijektiv ist, und zwar für kein $\vec{x} \in \mathcal{R}^5$. Des weiteren bedeutet die Aussage $\text{Rang } \mathcal{J}_{\vec{f}} = 4$, daß eine implizit definierte Kurve $\vec{g}(t)$ existiert:

$$\vec{g}: t \rightarrow \begin{bmatrix} D_1(t) \\ D_2(t) \\ D_3(t) \\ \Delta^{rel.}(t) \\ \Delta^{ds}(t) \end{bmatrix} \quad \text{mit } t \in \mathcal{R} \quad (3.20)$$

entlang der gilt:

$$\vec{f}(\vec{g}(t)) = \vec{0} \quad \forall t \in \mathcal{R} \quad (3.21)$$

Dabei ist t ein zunächst beliebiger freier Parameter, für den wir später die relativistische Phasendifferenz $\Delta^{rel.}$ wählen werden. Das bedeutet, die Lösung der Matrixelemente zu einem gegebenem Satz dynamischer Parameter bildet eine zusammenhängende Kurve in \mathcal{R}^5 . Auf der anderen Seite existiert wegen der Aussage (3.19) genau eine Gleichung, welche die dynamischen Parameter untereinander verknüpft. Das Gleichungssystem (3.2)–(3.6) ist zum einen unterbestimmt, da vier unabhängigen dynamische Parametern fünf Variablen gegenüberstehen, zum anderen allerdings gleichzeitig auch überbestimmt durch den fünften dynamischen Parameter, der aus einer unabhängigen Messung zur Verfügung steht.

Der hier geführte Existenzbeweis erfordert nicht die explizite Kenntnis dieser Gleichung und folgt aus den Gleichungen (3.2)–(3.6). Daraus ergibt sich die Schlußfolgerung, daß die fünf dynamischen Parameter nicht die komplette Information für ein vollständiges Experiment zur Xe-($5p_{3/2}$)⁻¹-Photoionisation beinhalten [43].

3.2.3 Die Methode zur Matrixelementbestimmung

Die Kurve $\vec{g}(t)$ zu gegebenem Satz von dynamischen Parametern $\tilde{\sigma}$, $\tilde{\beta}$, \tilde{A} , $\tilde{\alpha}$, $\tilde{\xi}$ mit Unsicherheiten $\delta\tilde{\sigma}$, $\delta\tilde{\beta}$, $\delta\tilde{A}$, $\delta\tilde{\alpha}$ und $\delta\tilde{\xi}$ läßt sich numerisch berechnen. Dazu benötigt man lediglich einen Minimierungsalgorithmus, zum Beispiel das konjugierte Gradientenverfahren, und ein Verfahren zur Lösung eines linearen Gleichungssystems, zum Beispiel LR-Zerlegung. Beides sind Standardverfahren der numerischen Mathematik und in der Literatur beschrieben [87, S.181] [88, S.420].

Da das Gleichungssystem (3.13) unterbestimmt ist, läßt sich eine Nullstellenbestimmung nicht durchführen — \vec{f}^{-1} existiert nicht. Dennoch ermöglicht die Formulierung als Minimierungsproblem zumindest das Auffinden von möglichen Lösungen. Dazu definieren wir die Funktion

$$\begin{aligned} \chi^2(\vec{x}) = & \left(\frac{\sigma(\vec{x}) - \tilde{\sigma}}{\delta\tilde{\sigma}} \right)^2 + \left(\frac{\beta(\vec{x}) - \tilde{\beta}}{\delta\tilde{\beta}} \right)^2 \\ & + \left(\frac{A(\vec{x}) - \tilde{A}}{\delta\tilde{A}} \right)^2 + \left(\frac{\alpha(\vec{x}) - \tilde{\alpha}}{\delta\tilde{\alpha}} \right)^2 + \left(\frac{\xi(\vec{x}) - \tilde{\xi}}{\delta\tilde{\xi}} \right)^2, \end{aligned} \quad (3.22)$$

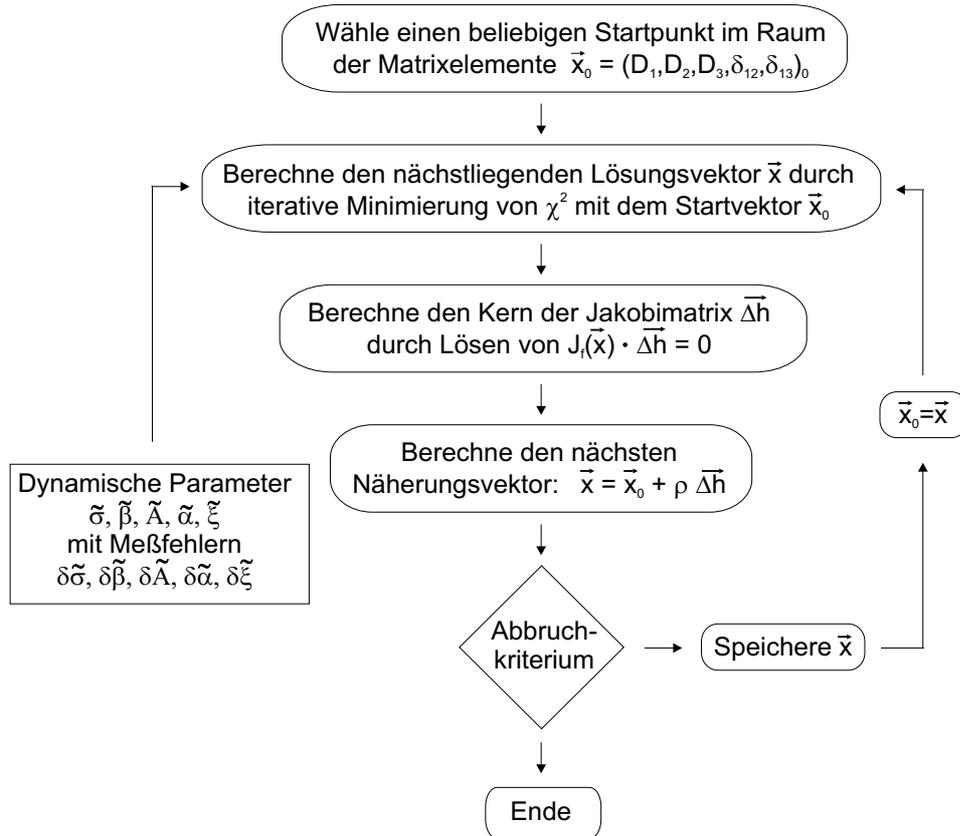


Abbildung 3.2: Vereinfachtes Schema zur numerischen Berechnung der zu einem bestimmten Satz dynamischer Parameter gehörenden Lösungskurve.

deren Nullstellen genau dort liegen, wo auch \vec{f} seine Nullstellen besitzt:

$$\Rightarrow \quad \chi^2(\vec{x}) = 0 \Leftrightarrow \vec{f}(\vec{x}) = \vec{0} \quad (3.23)$$

Die Größe χ^2 definiert die mittlere quadratische Abweichung der dynamischen Parameter von den gemessenen Werten $\tilde{\sigma}, \tilde{\beta}, \tilde{A}, \tilde{\alpha}, \tilde{\xi}$. Diejenige Kurve $\vec{g}(t)$, für die χ^2 ein Minimum annimmt, bezeichne ich als Lösungskurve oder einfach kurz als *Lösung*. Sie stellt die bestmögliche Wiedergabe der gemessenen dynamischen Parameter dar, die innerhalb der allgemeinen Beschreibung durch das relativistische Modell möglich ist (siehe Abschnitt 2.1.3). Läßt sich das Gleichungssystem (3.13) nicht exakt erfüllen, was aufgrund der Überbestimmtheit zu erwarten ist, so wird sich dies darin äußern, daß die Minima von χ^2 von Null verschieden sind. Der Wert des Minimums ist ein Maß dafür, wie gut die gemessenen dynamischen Parameter die Beziehung unter ihnen, die wir noch immer nicht explizit kennen müssen, erfüllen.

Die Berechnung der Lösungen erfolgt nach dem Schema in Abbildung 3.2, wobei ich zur Implementierung die Programmiersprache C verwendet habe. Entscheidend für

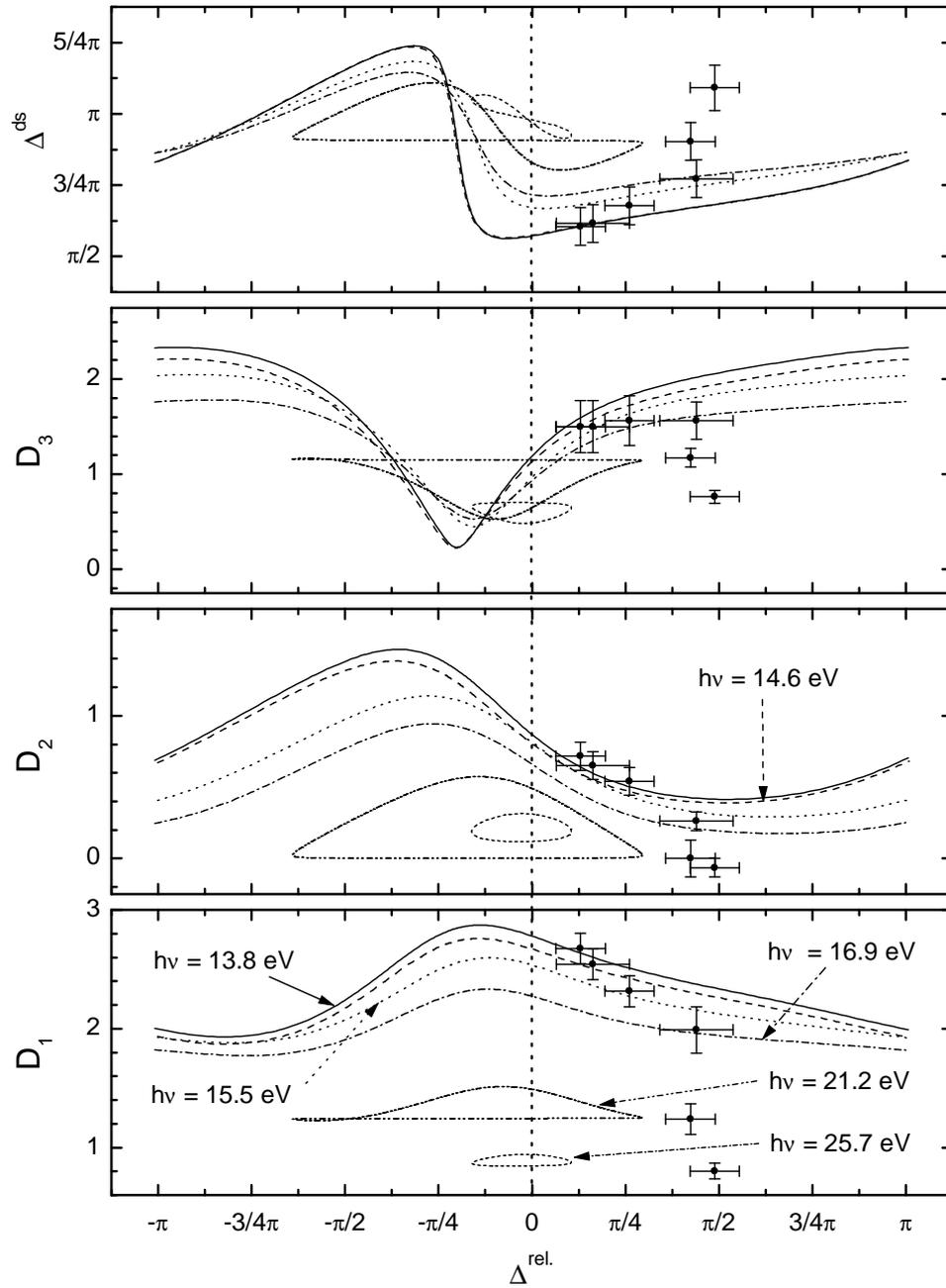


Abbildung 3.3: Linien: komplette Lösungskurven im Rahmen des relativistischen Modells entsprechend der Vorzeichenkonvention positiver Amplituden (siehe Abschnitt 3.2.1); Symbole: von Heckenkamp extrahierte Werte mit zweifachem statistischen Fehler [19,21].

das Funktionieren dieses Schemas ist ein gutes Konvergenzverhalten der Minimierungsmethode, was die Wahl eines guten Startwertes erfordert. Bei der Berechnung des Schrittes $\vec{x} = \vec{x}_0 + \rho \Delta \vec{h}$ bestimmt das Vorzeichen von ρ die Richtung und der Betrag die Schrittweite entlang der die Kurve $\vec{g}(t)$ durchlaufen wird. Natürlich stellt die erforderliche Rechenzeit eine untere Grenze für die minimal mögliche Schrittweite dar. In der Praxis läßt sich ein guter Wert für ρ durch Ausprobieren herausfinden und eine dynamische Anpassung an das Kurvenverhalten ist in der Regel nicht erforderlich. Des weiteren muß der Algorithmus die Periodizitätseigenschaften (3.7)–(3.10) berücksichtigen.

Die auf diese Weise aus den Meßdaten des Experimentes (siehe Abbildung (3.1)) berechneten Lösungen sind in Abbildung (3.3) dargestellt. Dabei wurde für den freien Parameter t die Phasendifferenz $\Delta^{rel.}$ zwischen den beiden Partialwellen $d_{3/2}$ und $d_{5/2}$ ausgewählt. Entlang der Ordinaten sind die Komponenten von $\vec{g}(\Delta^{rel.})$ (die Amplituden D_1 , D_2 , D_3 und die Phasendifferenz Δ^{ds}) aufgetragen. Jedem der fünf Sätze dynamischer Parameter zu den verschiedenen Photonenenergien ist damit eine Lösung zugeordnet.

Wie man in Abbildung (3.3) sieht, gibt es zwei grundsätzlich verschiedene Typen von Kurven, die ich als „geschlossen“ und „offen“ bezeichne. Eine offene Kurve zeichnet sich dadurch aus, daß es unter der Vorzeichenkonvention positiver Amplituden (siehe Abschnitt 3.2.1) zu beliebiger Phasendifferenz $\Delta^{rel.}$ genau eine eindeutige Lösung für den Vektor $\vec{g}(\Delta^{rel.})$ gibt. Eine geschlossene Kurve ist hingegen nur in einem begrenzten Intervall für $\Delta^{rel.}$ definiert und liefert dort zwei Lösungen für \vec{g} ¹. Die Lösungen zu den Energien $h\nu = 21.2$ eV und $h\nu = 25.7$ eV sind geschlossene, die anderen offene Kurven. Das Abbruchkriterium des Algorithmus in Abbildung 3.2 muß geschlossene und offene Lösungskurven behandeln können.

Mit steigender Photonenenergie ziehen sich die Lösungen immer enger zusammen, wie in Abbildung (3.3) gezeigt. Dadurch wird der mögliche Bereich für die Matrixelemente immer weiter eingeschränkt. Dieses Verhalten geht einher mit einem gegen den Grenzwert Zwei strebenden β -Parameter, woraus folgt, daß die Parameter A , α , und ξ gegen Null streben müssen (siehe Abbildung (3.1)).

Zusätzlich sind in Abbildung 3.3 die bisher von Heckenkamp et al. angegebenen Werte aus [19,21] eingetragen, für die die Existenz der Beziehung unter den dynamischen Parametern nicht berücksichtigt wurde. Man erkennt, daß diese Werte für die Photonenenergien, zu denen offene Kurven gehören ($h\nu = 13.8 \dots 16.9$ eV), der allgemeinen Lösung nicht widersprechen. Für die geschlossenen Lösungen ($h\nu = 21.2$ und 25.7 eV) liegen sie jedoch außerhalb des überhaupt für die relativistische Phase $\Delta^{rel.}$ möglichen Bereichs. Erklärbar wird dies dadurch, daß der von Heckenkamp benutzte Algorithmus offensichtlich auf diejenige Lösung zugelaufen ist, für die die Amplitude D_2 sehr klein wird. Im Grenzfall $D_2 \rightarrow 0$ verschwinden alle $\Delta^{rel.}$ abhängi-

¹Eine Ausnahme bilden die beiden Randpunkte dieses Intervalls, auf denen auch geschlossene Kurven nur eine eindeutige Lösung besitzen.

gen Terme aus dem Gleichungssystem (3.2)–(3.6), so daß die relativistische Phase vollkommen unbestimmbar wird. In Abschnitt 3.3.3 wird allerdings deutlich, daß die Lösung zu $D_2 \approx 0$ als unphysikalisch verworfen werden kann. Nicht nachvollziehbar bleibt hingegen das Zustandekommen der in Ref. [21] als viel zu klein angegebenen Fehlergrenzen für $\Delta^{rel.}$.

3.2.4 Die explizite Form der Beziehung

Da das bloße Wissen um die Existenz einer Abhängigkeit unter den Gleichungen (3.2)–(3.6) unbefriedigend ist und eine Ableitung der expliziten Form der Beziehung mit den derzeit verfügbaren Computerprogrammen nicht möglich war, wurden Anstrengungen unternommen, diese explizite Form von Hand abzuleiten. N.A. Cherepkov gelang schließlich die Ableitung dieser Relation, sie lautet [44]:

$$\left(A + \frac{1}{2}\alpha\right)^2 + (2\xi)^2 = \frac{1}{2}(1 + \beta)\left(1 - \frac{1}{2}\beta + A - \alpha\right) \quad (3.24)$$

Durch Einsetzen der Ausdrücke (3.2)–(3.6) läßt sich diese Relation — wenn man sie erst einmal kennt — leicht bestätigen. Die explizite Kenntnis der Beziehung vereinfacht die Überprüfung der dynamischen Parameter auf Konsistenz mit dem diskutierten Modell erheblich, denn statt einer aufwendigen numerischen Berechnung braucht man lediglich $\tilde{\beta}$, \tilde{A} , $\tilde{\alpha}$ und $\tilde{\xi}$ in die Gleichung (3.24) einzusetzen. Nur wenn sie exakt erfüllt wird, geht das Minimum der Funktion χ^2 (3.22) bis auf Null herab. Ferner läßt sich die Gleichung auch einfach nach einem der dynamischen Parameter auflösen, der dann aus Kenntnis der anderen berechnet werden kann.

Die Gültigkeit der Beziehung (3.24) betrifft die Photoionisation aus einer beliebigen Schale mit Quantenzahlen j_0 und l_0 , die entweder geschlossen (Edelgase) oder nur durch ein Elektron besetzt ist (Alkalimetalle) [44]. Damit ist die Abhängigkeit unter den dynamischen Parametern der Photoionisation bereits für eine große Klasse von Übergängen gezeigt.

Für den Fall, daß neben den Parametern σ , β , A , α und ξ , die sich ausschließlich aus der Beobachtung des Photoelektrons allein gewinnen lassen, noch weitere wirklich unabhängige Informationen zur Verfügung stehen, kann das vollständige Experiment wieder ermöglicht werden. Dies ist beispielsweise der Fall bei der Xe-4*d*-Photoionisation, die auch durch drei Dipolamplituden und zwei Phasendifferenzen beschrieben wird, für die sich aber zusätzlich die Kenntnis über die Lochorientierung \mathcal{A}_{10} und des Alignments \mathcal{A}_{20} aus der Beobachtung von geeigneten Augerzerfällen gewinnen läßt [22].

3.3 Die erneute Diskussion von Dipolmatrixelementen

3.3.1 Neubewertung des Experiments

Die Anwendung des oben genannten Konsistenztests auf die Meßdaten liefert das in Abbildung 3.4 gezeigte Ergebnis. Dargestellt ist die Größe $\Delta\lambda$, die der Subtraktion der beiden Terme in (3.24) entspricht:

$$\Delta\lambda = \frac{1}{2}(1 + \beta)(1 - \frac{1}{2}\beta + A - \alpha) - \left(A + \frac{1}{2}\alpha\right)^2 - (2\xi)^2 \quad (3.25)$$

Die Fehlergrenzen entsprechen dabei der *zweifachen* statistischen Standardabweichung 2σ , die bei einer Normalverteilung einer statistischen Größe den wahren Wert mit einer Wahrscheinlichkeit von 95.4% beinhaltet.

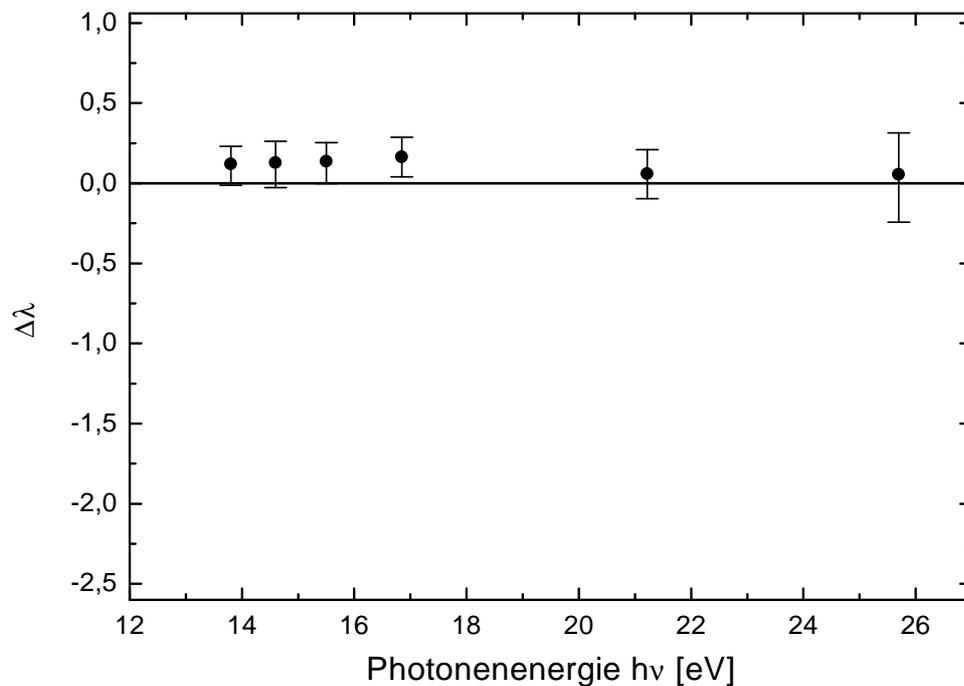


Abbildung 3.4: Überprüfung der Meßdaten des Heckenkampschens Experimentes auf Konsistenz mit der gefundenen Abhängigkeit unter den dynamischen Parametern. Der Parameter $\Delta\lambda$ sollte bei Erfüllung der Gleichung (3.24) verschwinden. Die Fehlergrenzen kennzeichnen den zweifachen statistischen Fehler.

Wie man in Abbildung 3.4 sieht, zeigen die experimentellen dynamischen Parameter die Tendenz $\Delta\lambda > 0$. Für $h\nu = 21.2$ eV und $h\nu = 25.7$ eV wird die Beziehung

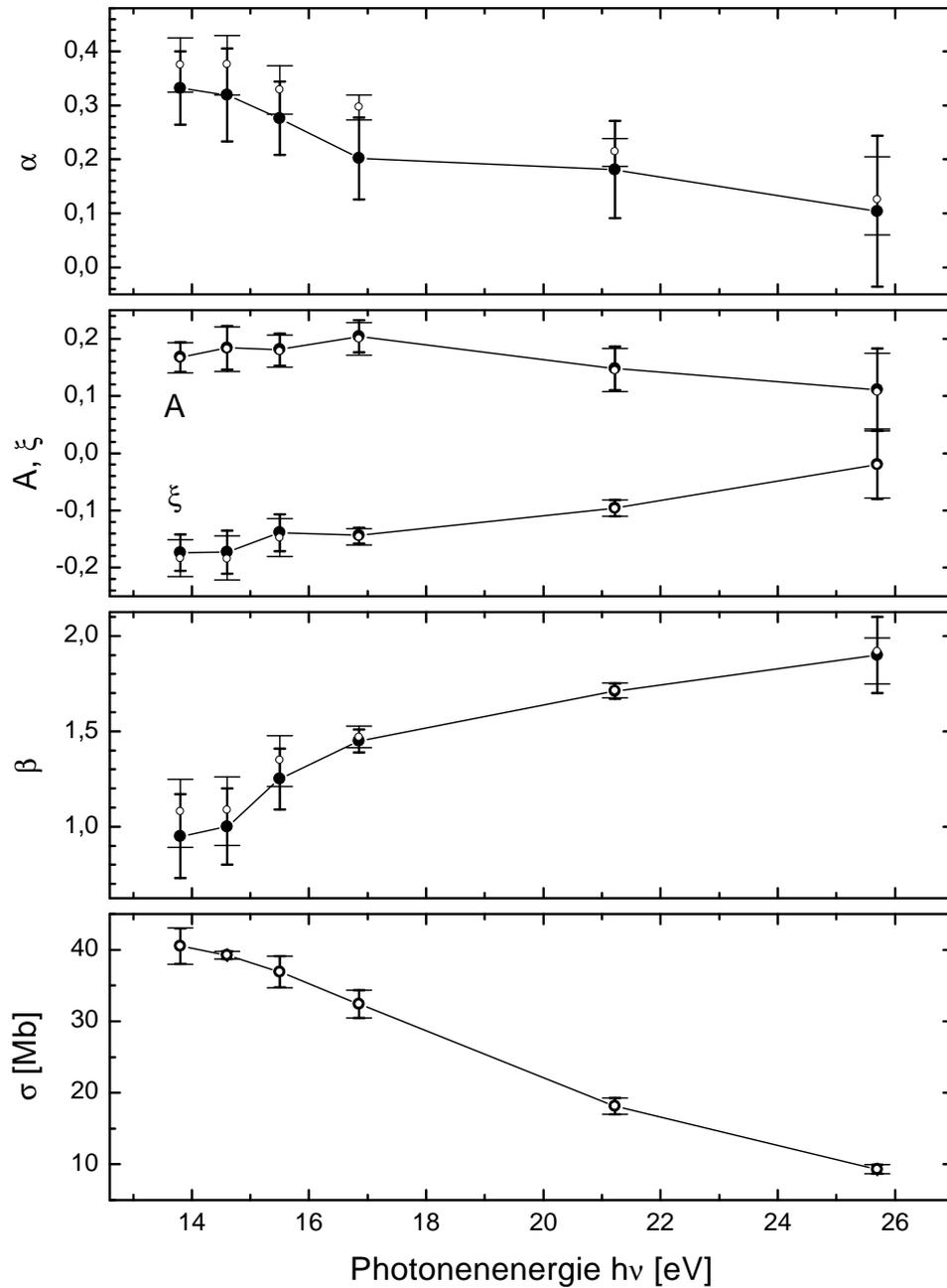


Abbildung 3.5: Die fünf dynamischen Parameter der $\text{Xe}-(5p_{3/2})^{-1}$ -Photoionisation. Volle Symbole (durch gerade Linien verbunden) mit kurzen dicken Fehlergrenzen: Meßdaten des Experimentes Heckenkamp (1984) [19,20] (identisch zu Abbildung 3.1); offene Symbole mit langen dünnen Fehlergrenzen: aus extrahierten Matrixelementen des 4-Parameter-Modells zurückgerechnete dynamische Parameter. Alle Fehlergrenzen kennzeichnen den zweifachen statistischen Fehler.

(3.24) innerhalb der einfachen Standardabweichung, für die Energien $h\nu = 13.8, 14.6$ und 15.5 eV innerhalb der zweifachen Standardabweichung erfüllt. Die Messung bei $h\nu = 16.9$ eV liegt knapp außerhalb des zweifachen statistischen Fehlers.

Aus meiner Sicht ist die feststellbare Abweichung jedoch nicht ausreichend dafür, eine Diskrepanz zum zugrundegelegten theoretischen Modell zu begründen. Die tendenzielle Abweichung ist wahrscheinlich auf experimentelle Unsicherheiten systematischer Natur zurückzuführen, die grundsätzlich bei allen Experimenten vorhanden und schwer quantifizierbar sind. Die Neubewertung der Originaldaten besteht daher darin, die Fehlergrenzen auf den zweifachen statistischen Fehler zu erweitern. Hierdurch wird die Kompatibilität der Meßdaten mit dem zugrundeliegenden Modell gewährleistet. *Alle* in den Abbildungen des gesamten Kapitels 3 angegebenen Fehlergrenzen entsprechen dem *zweifachen statistischen Fehler*. Rechnet man aus den in Abbildung 3.3 gezeigten Lösungskurven zurück auf die dynamischen Parameter, so erhält man die Werte, die in Abbildung 3.5 als offene Kreise zusätzlich zu den ursprünglichen Meßdaten des Heckenkampischen Experimentes eingetragen sind.

3.3.2 Diskussion im 4-Parameter-Modell

Aufgrund der Existenz der Beziehung (3.24) wird für die eindeutige Bestimmung von Dipolamplituden und Phasendifferenzen aus den fünf dynamischen Parametern für die Xe- $(5p_{3/2})^{-1}$ -Photoionisation mindestens eine zusätzliche Annahme benötigt, die die Anzahl unabhängiger Variablen um eins verringert (4-Parameter-Modell) und dadurch die Unterbestimmtheit des Gleichungssystems (3.2)–(3.6) aufhebt. Als solche bietet sich die Annahme einer verschwindenden relativistischen Phasendifferenz zwischen den beiden Partialwellen $d_{3/2}$ und $d_{5/2}$ an (siehe Abschnitt 2.1.3):

$$\delta_1 - \delta_2 = \Delta^{rel.} = 0 \quad (3.26)$$

Dadurch wird der Übergang nur noch durch die drei Amplituden D_1, D_2, D_3 und eine Phasendifferenz Δ^{ds} beschrieben.

Die Werte für D_1, D_2, D_3 und Δ^{ds} können direkt aus Abbildung 3.3 entnommen werden, indem man die entsprechenden Werte für $\Delta^{rel.} = 0$ abliest. Hierdurch wird deutlich, daß das 4-Parameter-Modell bezüglich der Güte in der Beschreibung der experimentellen Daten äquivalent zur relativistischen Beschreibung ist. Durch Hinzunahme der relativistischen Phasendifferenz $\Delta^{rel.}$ als freie Variable läßt sich keine verbesserte Beschreibung der experimentellen Daten erzielen. Für geschlossene Kurven ergibt sich eine Doppeldeutigkeit, die zu einer zweiten Lösung führt, die sich allerdings durch Vergleich mit dem in diesem Fall eindeutigen Ergebnis eines 3-Parameter-Modells (siehe folgenden Abschnitt 3.3.3) als mathematische Lösung verwerfen läßt.

Das Ergebnis des 4-Parameter-Modells ist in Abbildung 3.6 für die Amplituden und in Abbildung 3.7 für die Phasendifferenzen gezeigt. Dabei ist der Bereich, den das

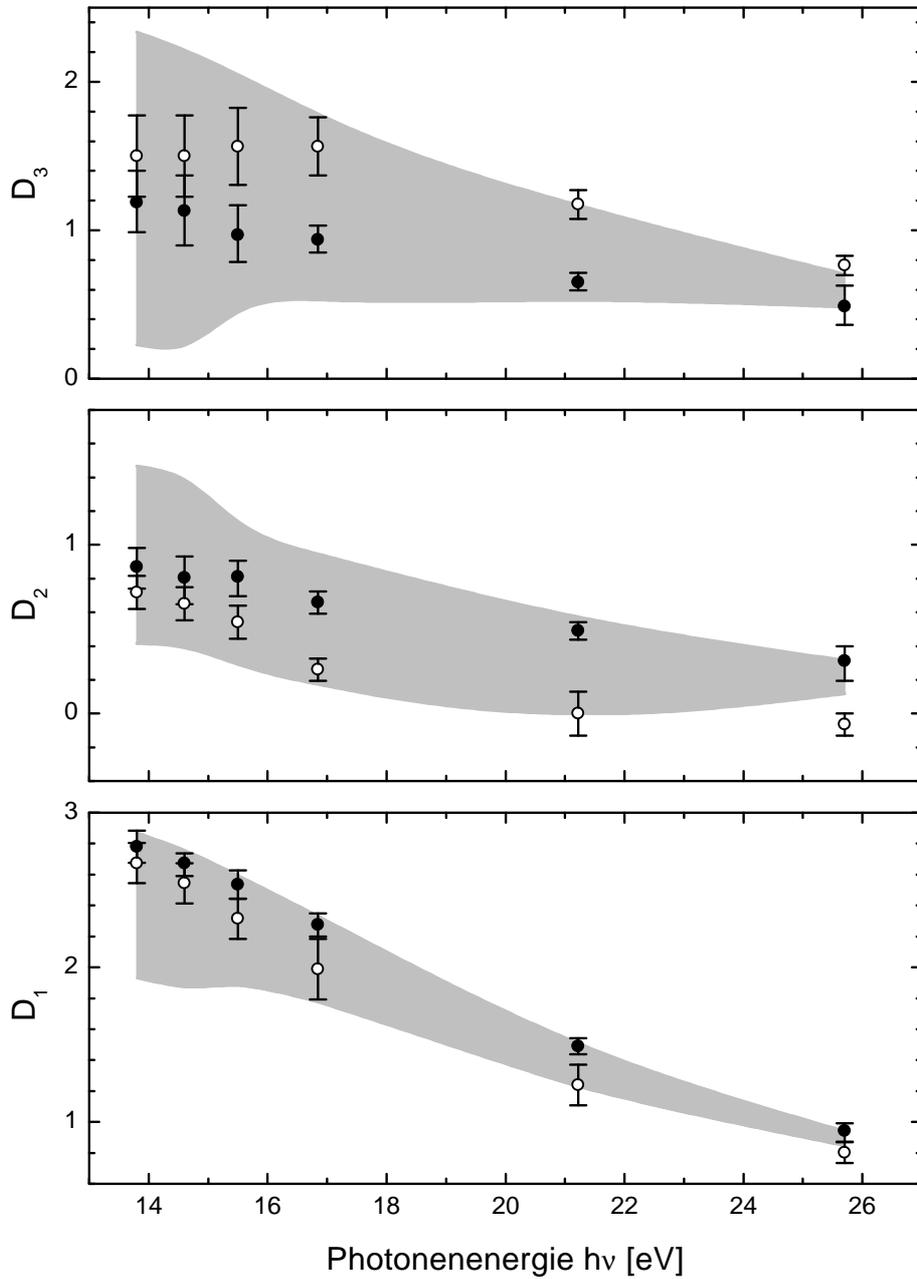


Abbildung 3.6: Volle Symbole: extrahierte Amplituden im 4-Parameter-Modell ($\Delta^{rel.} = 0$); offene Symbole: von Heckenkamp extrahierte Werte [19,21]. Die grau unterlegte Fläche definiert den ohne Einschränkung der relativistischen Phasendifferenz zugelassenen Bereich. Alle Fehlergrenzen kennzeichnen den zweifachen statistischen Fehler.

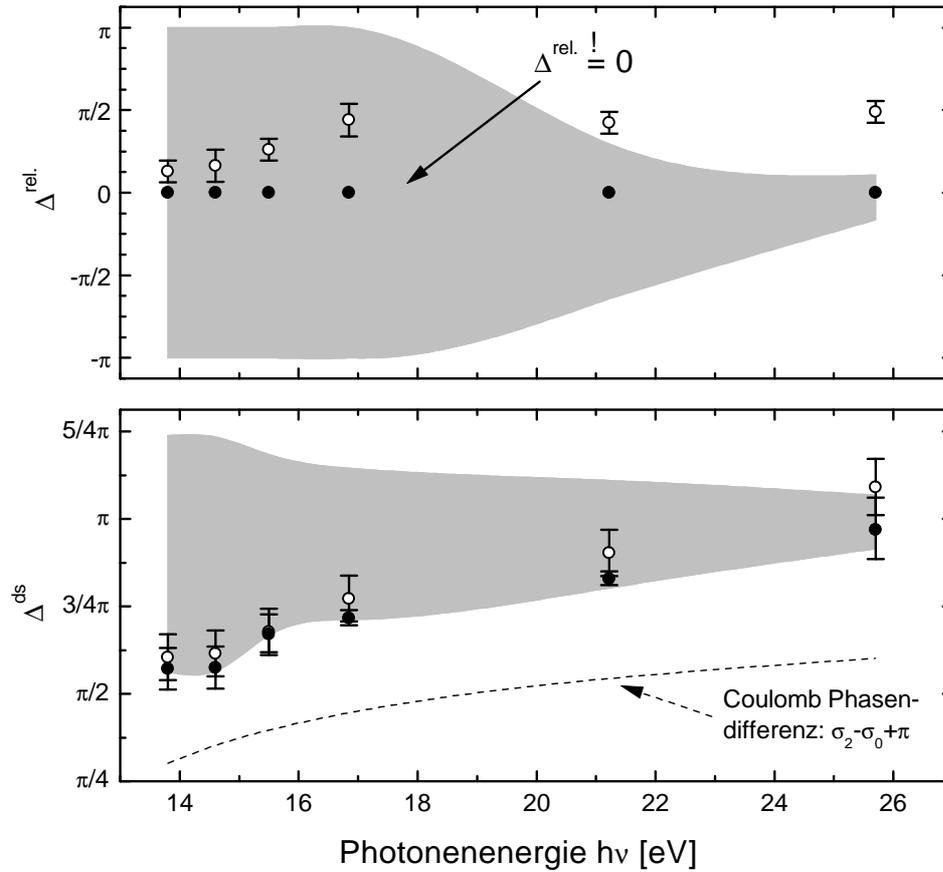


Abbildung 3.7: Extrahierte Phasendifferenzen im 4-Parameter-Modell. Die Bedeutung der Symbole ist dieselbe wie in Abbildung 3.6.

vollständig relativistische Modell erlaubt, grau hinterlegt. Zusätzlich sind auch hier die bisher von Heckenkamp et al. angegebenen Werte aus Ref. [19,21] eingetragen.

Im Bereich der Ionisationsgrenze stimmen die neuen Matrixelemente mit den bisherigen recht gut überein. Dementsprechend bleibt auch der stetige Anschluß zu den Quantendefekten im diskreten Spektralbereich bestehen, (siehe Ref. [21] für eine ausführliche Diskussion). Für größere Photonenenergien steigt jedoch die bisherige relativistische Phasendifferenz an, was für die Amplituden D_2 und D_3 zu Abweichungen von den neuen Matrixelementen führt. Jene mit dieser Aussage verknüpften Schlußfolgerungen, insbesondere die eines Vorzeichenwechsels der Amplitude D_2 bei $h\nu = 21.2$ eV, müssen revidiert werden, denn der bereits in Abschnitt 3.2.3 diskutierte „einschnürende“ Verlauf der Lösungskurven des allgemeinen Modells fordert ein gegenteiliges Verhalten. Der starke Abfall des Wirkungsquerschnitts σ zu größeren Photonenenergien spiegelt sich in Übereinstimmung mit den bisherigen Matrixelementen in der Abnahme aller Amplituden wieder. Die Phasendifferenz Δ^{ds} zeigt im wesentlichen den Verlauf der Coulombstreuphase zwischen d - und s -Welle.

3.3.3 Diskussion im 3-Parameter-Modell

Geht man mit der Vereinfachung des Modells noch einen Schritt weiter und vernachlässigt die Spin-Bahn-Wechselwirkung im Kontinuum vollständig (siehe Abschnitt 2.1.3) dann erhält man ein 3-Parameter-Modell, das die $\text{Xe}(5p_{3/2})^{-1}$ -Photoionisation nur noch durch die zwei Partialwellen ϵd und ϵs beschreibt. Entsprechend gibt es dann nur noch die zwei Amplituden D_d , D_s und eine Phasendifferenz $\Delta = \delta_d - \delta_s$ als freie Variablen. Diese sind durch folgende Kopplungskoeffizienten mit den Amplituden des relativistischen Modells verknüpft [21]:

$$D_1 = \sqrt{\frac{9}{10}} D_d \quad (3.27)$$

$$D_2 = \sqrt{\frac{1}{10}} D_d \quad (3.28)$$

$$D_3 = D_s \quad (3.29)$$

$$\Delta^{rel.} = 0 \quad (3.30)$$

$$\Delta^{ds} = \Delta \quad (3.31)$$

Natürlich addieren sich die Betragsquadrate der einzelnen Amplituden D_1 und D_2 zusammen zur Amplitude D_d im 3-Parameter-Modell:

$$D_d^2 = D_1^2 + D_2^2 \quad (3.32)$$

Aufgrund der Relationen (3.27)–(3.31) ist klar, daß zwischen den dynamischen Parametern eine weitere Beziehung neben der Relation (3.24) bestehen muß. Sie lautet [60]:

$$\alpha = A + 2 \frac{(-1)^{j_0 - l_0 - \frac{1}{2}}}{2j_0 + 1} \left(1 - \frac{1}{2}\beta\right) \quad (3.33)$$

In diesem Zusammenhang ist anzumerken, daß auch noch eine zweite Relation zwischen den dynamischen Parametern für den Fall vernachlässigter Spin-Bahn-Wechselwirkung im Kontinuum bereits in Ref. [60] angegeben wurde. Diese hat allerdings nicht die allgemeingültige Form der Gleichung (3.24), sondern besteht in einer Kombination aus (3.24) und (3.33) (siehe Ref. [60] und [44]).

Im Rahmen des 3-Parameter-Modells läßt sich die in Abschnitt 3.2.3 beschriebene Methode der Minimierung von χ^2 problemlos anwenden, da das Gleichungssystem nicht unterbestimmt ist. Das Ergebnis dieser Prozedur ist in Abbildung 3.8 gezeigt. Wie man sieht, fällt die Amplitude der d -Welle etwas stärker als die der s -Welle mit steigender Photonenenergie ab.

Um das 3- und 4-Parameter-Modell miteinander zu vergleichen, ist es sinnvoll, insbesondere die Beziehungen (3.27), (3.28) und (3.32) auf Verträglichkeit zu überprüfen. In Abbildung 3.8 sind dazu zusätzlich die Werte für D_d eingetragen, die sich aus den Amplituden D_1 und D_2 des 4-Parameter-Modells nach Gleichung (3.32) ergeben.

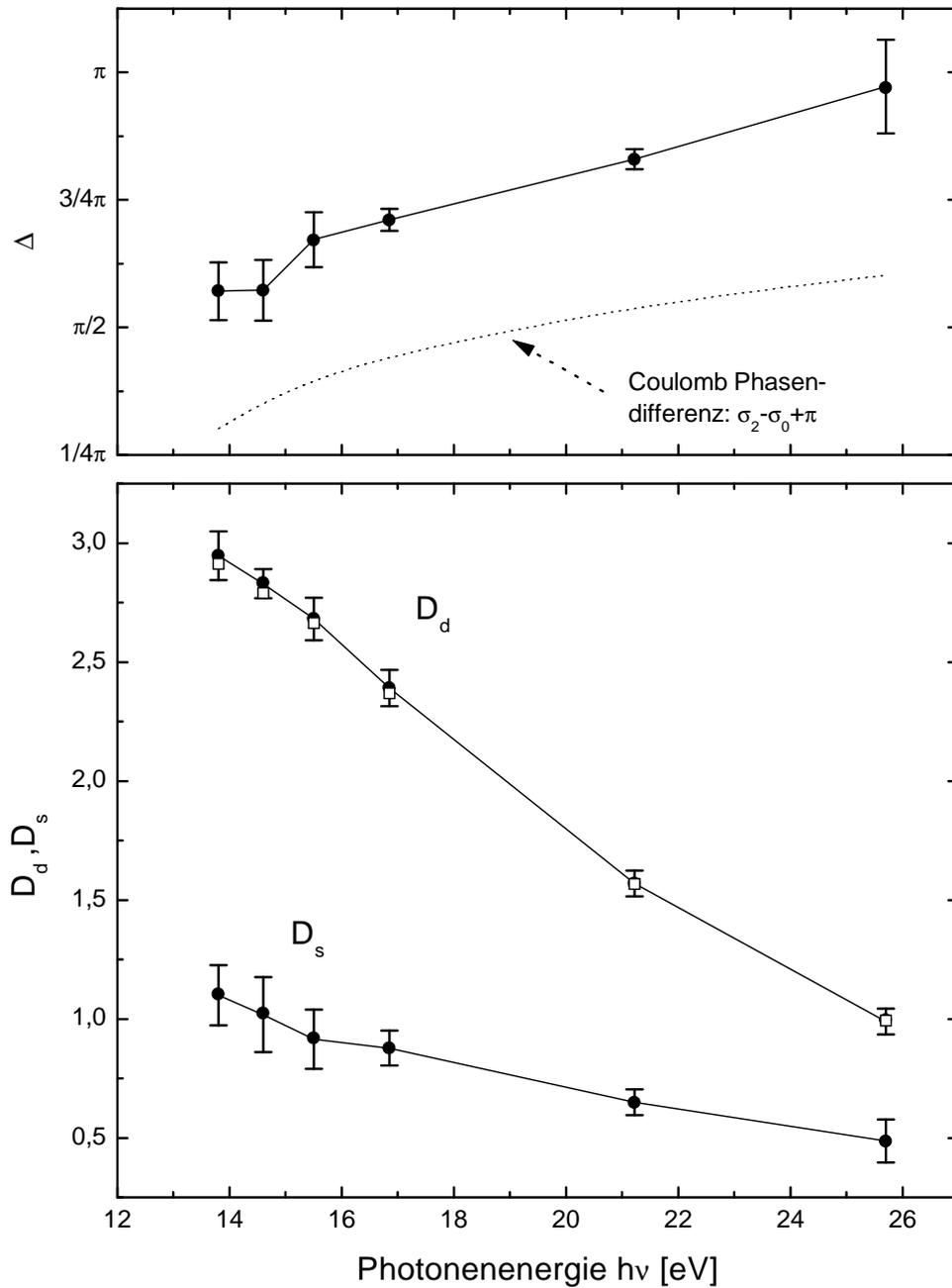


Abbildung 3.8: Volle Symbole (durch gerade Linien verbunden): extrahierte Matrixelemente im 3-Parameter-Modell (Vernachlässigung der Spin-Bahn-Wechselwirkung im Kontinuum); offene Symbole: aus dem 4-Parameter-Modell über festes Kopplungsverhältnis rückgerechnete Amplitude D_d . Die Fehlergrenzen kennzeichnen den zweifachen statistischen Fehler.

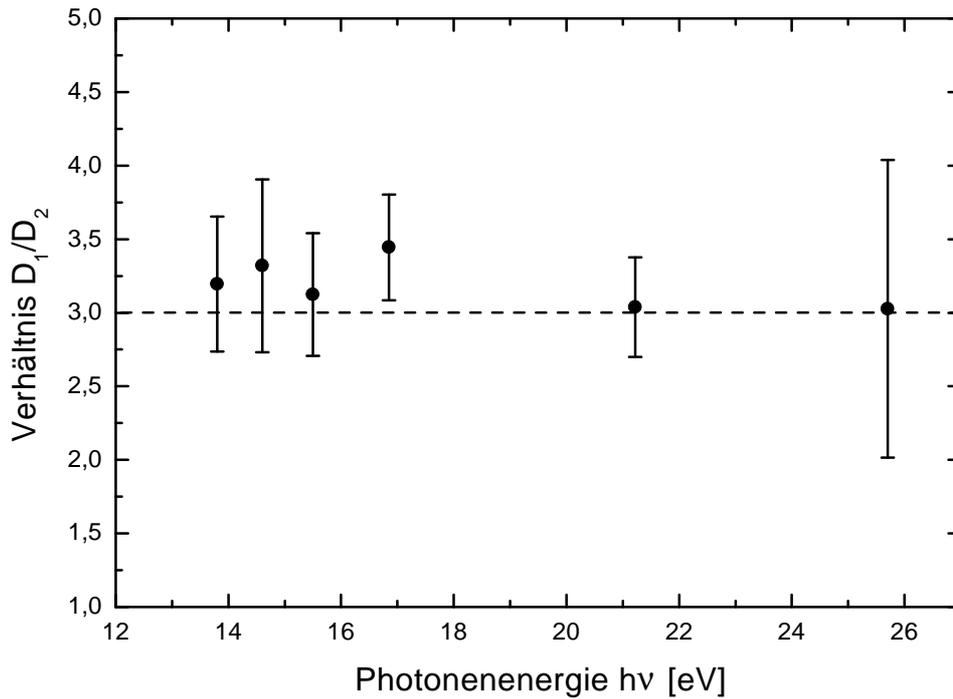


Abbildung 3.9: Verhältnis der relativistischen Amplituden für die $d_{3/2}$ und $d_{5/2}$ Partialwelle im 4-Parameter-Modell. Der Wert 3 entspricht einem verschwindenden Einfluß der Spin-Bahn-Kopplung im Kontinuum.

Ferner zeigt Abbildung 3.9 das Verhältnis der Amplituden D_1 und D_2 aus dem 4-Parameter-Modell. Wie sich zeigt, entspricht sowohl das Verhältnis von D_1/D_2 einem Wert von 3, wie durch die Beziehungen (3.27) und (3.28) gefordert, als auch deren Quadratsumme gerade dem Quadrat der Amplitude D_d des 3-Parameter-Modells. Das bedeutet, daß sich keine signifikante Verbesserung der Beschreibung der experimentellen Daten durch das 4- gegenüber dem 3-Parameter-Modell erzielen läßt. Ferner spricht diese Tatsache dafür, daß die Annahme eines vernachlässigbar kleinen Einflusses der Spin-Bahn-Wechselwirkung im Kontinuum tatsächlich gut erfüllt ist.

3.3.4 Fehlerberechnung

Die Berechnung der Fehlergrenzen für die in Abbildung 3.6 und 3.8 extrahierten Matrixelemente und die in Abbildung 3.5 eingetragenen zurückgerechneten Werte für die dynamischen Parameter beruht auf einer Zufallsvariation der Meßgrößen $\tilde{\sigma}$, $\tilde{\beta}$, \tilde{A} , $\tilde{\alpha}$ und $\tilde{\xi}$. Dazu wird eine Gesamtheit hypothetischer Sätze von dynamischen Parametern erzeugt², wobei jeder einzelne dynamische Parameter unabhängig von

²Typischerweise 5000, um die Rechenzeit nicht zu groß werden zu lassen.

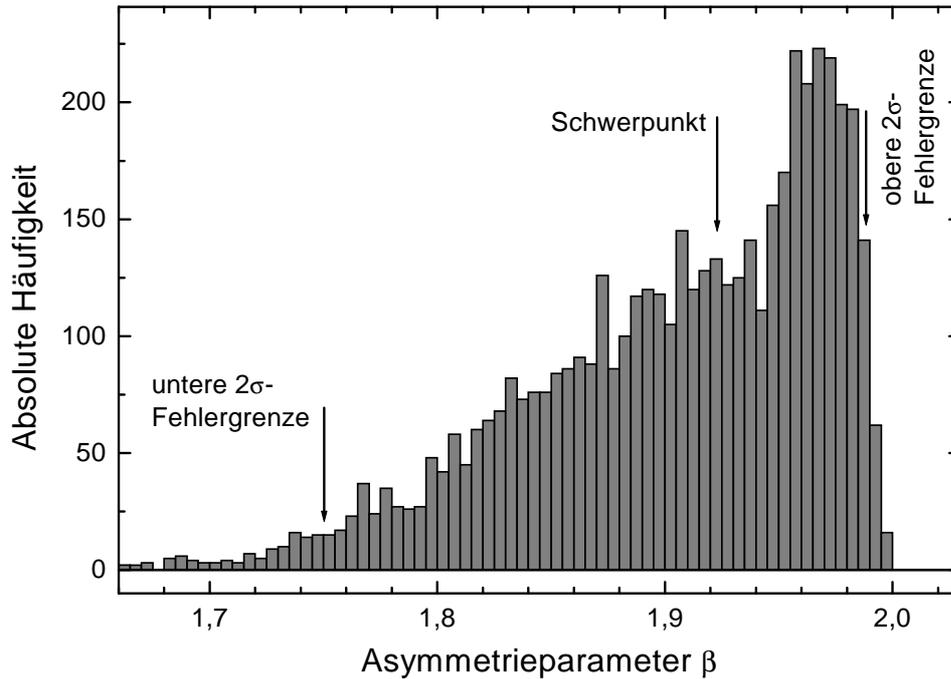


Abbildung 3.10: Histogramm der Verteilung des aus dem 4-Parameter-Modell zurückgerechneten β -Parameters zur Berechnung der Fehlerfortpflanzung bei 25.7 eV. Grundlage ist eine Gesamtheit von 5000 statistisch normalverteilten dynamischen Parametern als Eingangsgrößen. Die Pfeile kennzeichnen die berechneten 2σ -Fehlergrenzen und den Schwerpunkt der Verteilung. Innerhalb der 2σ -Fehlergrenzen befinden sich 95.4% aller statistisch verteilten β -Parameter.

den anderen nach einer gaußschen Normalverteilung zu den von Ch. Heckenkamp angegebenen Daten per Zufall³ variiert wird. Dabei entsprechen die Mittelwerte den Originaldaten und die Standardabweichungen den — hier nicht zu verdoppelnden — Fehlerangaben aus Ref. [21].

Alle verwendeten Algorithmen wurden auf diese Gesamtheit hypothetischer Sätze von dynamischen Parametern angewandt. Als Resultat erhält man eine Verteilung der Ausgangsgrößen, welche die Fehlerfortpflanzung entsprechend der Struktur der Gleichungen (3.2)–(3.6) beschreibt und aufgrund ihrer Nichtlinearität im allgemeinen keine Normalverteilung mehr ist. Aus dieser Verteilung habe ich die Fehlergrenzen durch die Bedingung bestimmt, daß jeweils 2.3% der errechneten Ausgangswerte jenseits dieser Grenzen liegen. Dies entspricht gerade dem doppelten statistischen Fehler, der aufgrund der Bewertung in Abschnitt 3.3.1 in allen Abbildungen dieses Kapitels als Fehlergrenzen dargestellt ist.

³Benutzt habe ich den in Ref. [88, S.280] angegebenen Zufallsgenerator von Park und Miller.

Als Beispiel zeigt Abbildung 3.10 das Histogramm der Verteilung des aus den extrahierten Matrixelementen des 4-Parameter-Modells zurückgerechneten β -Parameters für $h\nu = 25.7$ eV. Da β nach oben durch 2 begrenzt ist, wird die Ausgangsverteilung extrem asymmetrisch. Die bestimmten Fehlergrenzen sowie der Schwerpunkt sind durch Pfeile gekennzeichnet.

Kapitel 4

Experimenteller Aufbau

4.1 Experimenteller Gesamtaufbau

Die wesentlichen experimentellen Komponenten, die für die winkel- und spinaufgelöste Elektronenspektroskopie in der Gasphase benötigt werden, sind ein Spektrometer zur Trennung von Elektronen unterschiedlicher kinetischer Energie, eine elektrostatische Optik für ihre Abbildung und ein Mottpolarimeter für den spinaufgelösten Nachweis [14]. Dabei erfordert die explizite Messung einer Winkelabhängigkeit die Schwenkbarkeit des Nachweissystems.

Aufgrund der Größe und des Gewichtes konventioneller Mottpolarimeter wurde bei Spinpolarisationsmessungen bisher immer nur ein Teil des Nachweissystems (das Spektrometer mit Eintrittsoptik) im Raum gedreht, wobei das Mottpolarimeter selbst während dieser Drehung unverändert im Bezug zum Photonenstrahl bleibt [14]. Eine transportable Meßapparatur, die dieses leistet, wurde bereits in der Arbeit [89] aufgebaut und kam im Rahmen dieser Arbeit bei den Messungen an Xenon (Kapitel 5) am UE56/1 zum Einsatz. Die hiermit gewonnenen Meßdaten sind dadurch gekennzeichnet, daß die Komponenten des Spinpolarisationsvektors in natürlicher Weise im Laborkoordinatensystem definiert sind.

Ein anderes Prinzip besteht hingegen darin, das komplette Nachweissystem (inklusive Mottpolarimeter) zu drehen, so daß der spinsensitive Detektor mit der Emissionsrichtung der Elektronen in fester Relation steht. Hierbei ist im Gegensatz zur oben genannten Vorgehensweise das elektronenfeste Koordinatensystem für die Beschreibung des Spinpolarisationsvektors in natürlicher Weise geeignet (siehe Abschnitt 2.2.1). Eine für winkelaufgelöste Untersuchungen mit Synchrotronstrahlung allgemein nutzbare Meßapparatur, die dieses Konzept erstmals verwirklicht, wurde während dieser Arbeit aufgebaut und für die in Kapitel 6 vorgestellten Messungen an Krypton verwendet.

4.1.1 Messungen im Laborkoordinatensystem

Abbildung 4.1 zeigt den schematischen Aufbau mit fest zum Photonenstrahl stehenden Mottpolarimeter. Der Photonenstrahl trifft im Wechselwirkungszentrum auf die Atome eines effusiven Gasstrahls, der durch eine Düse (Kupferröhrchen mit Innendurchmesser 0.5 mm) in die Kammer eingelassen wird. Unter Meßbedingungen liegt der Hintergrunddruck bei einer Saugleistung der Turbomolekularpumpe von 2200 l/s bei $1\text{--}2 \cdot 10^{-4}$ mbar. Eine zweistufige, vakuumtechnisch durch Röhrchen mit kleinem Strömungsleitwert ($C \approx 1\text{--}2$ l/s) getrennte Druckstufe reduziert den Gasdruck zur Seite der Beamline hin um gute drei Größenordnungen, so daß in der beamlineseitigen Refokussierspiegelkammer ein Druck von $2\text{--}4 \cdot 10^{-8}$ mbar nicht überschritten wird.

Die im Wechselwirkungszentrum erzeugten Photo- und Augerelektronen werden durch eine zweielementige Eintrittslinse mit einem Akzeptanzwinkel von $\Delta\alpha \approx \pm 4^\circ$ unter verkleinerndem Maßstab ($\approx 1 : 2$) auf die Eintrittsblende des Spektrometers ($\varnothing 2.5$ mm) abgebildet. Das Spektrometer ist eine simulierte hemisphärische Halbkugel (SDA) mit einer Wurfweite von $D = 150$ mm und einer Spektrometerkonstanten $C = 0.956$ [90–92]. Elektronen, deren kinetische Energie nicht der Pass-Energie E_p entspricht, werden durch den Austrittsspalt des Spektrometers ($d = 2.5$ mm) aus dem Strahlengang ausgeblendet, wobei das inverse Auflösungsvermögen durch

$$\frac{\Delta E}{E_p} \approx \frac{d}{D} + \frac{1}{2}(\Delta\alpha)^2 \approx 2\% \quad (4.1)$$

gegeben ist [93, S.17]. Die Spektrometerkonstante C bestimmt dabei das Verhältnis der Spannungsdifferenz zwischen Innen- und Außenkugel zur Pass-Energie. Dieses Spektrometer wird bereits seit längerem in dieser Arbeitsgruppe für spektroskopische Untersuchungen eingesetzt [89,94].

Über einen 90° -Umlenker wird der hinter dem Spektrometer monochromatisierte Elektronenstrahl auf die Drehachse umgelenkt, um die sich die gesamte Spektrometereinheit innerhalb eines Bereiches $-168^\circ \leq \Theta \leq 168^\circ$ innerhalb der Vakuumkammer drehen läßt. Durch diverse Transportlinsensysteme und einen weiteren 90° -Umlenker wird der Strahl schließlich in das Mottpolarimeter geführt. Die „Außenkugeln“ der Umlenker bestehen aus feinen Molybdännetzen, so daß der Elektronenstrahl bei entsprechender Spannungsbeschaltung, ohne eine Ablenkung zu erfahren, geradeaus geführt werden kann. Hinter beiden Umlenkern befinden sich jeweils Monitor-Channeltrons, die zur Kontrolle der Strahlführung genutzt werden können. Da ausschließlich elektrostatische Linsen verwendet werden, bleibt der Spinpolarisationsvektor bei allen Ablenkungen des Elektronenstrahls erhalten, so daß entsprechend der Anordnung der beiden Rückstredetektoren des Mottpolarimeters MCP 1 und MCP 2 die transferierte Spinpolarisationskomponente P_Z in Richtung des Photonenstrahls (siehe Abschnitt 2.2.2) gemessen wird. Nach der Formel (2.28)

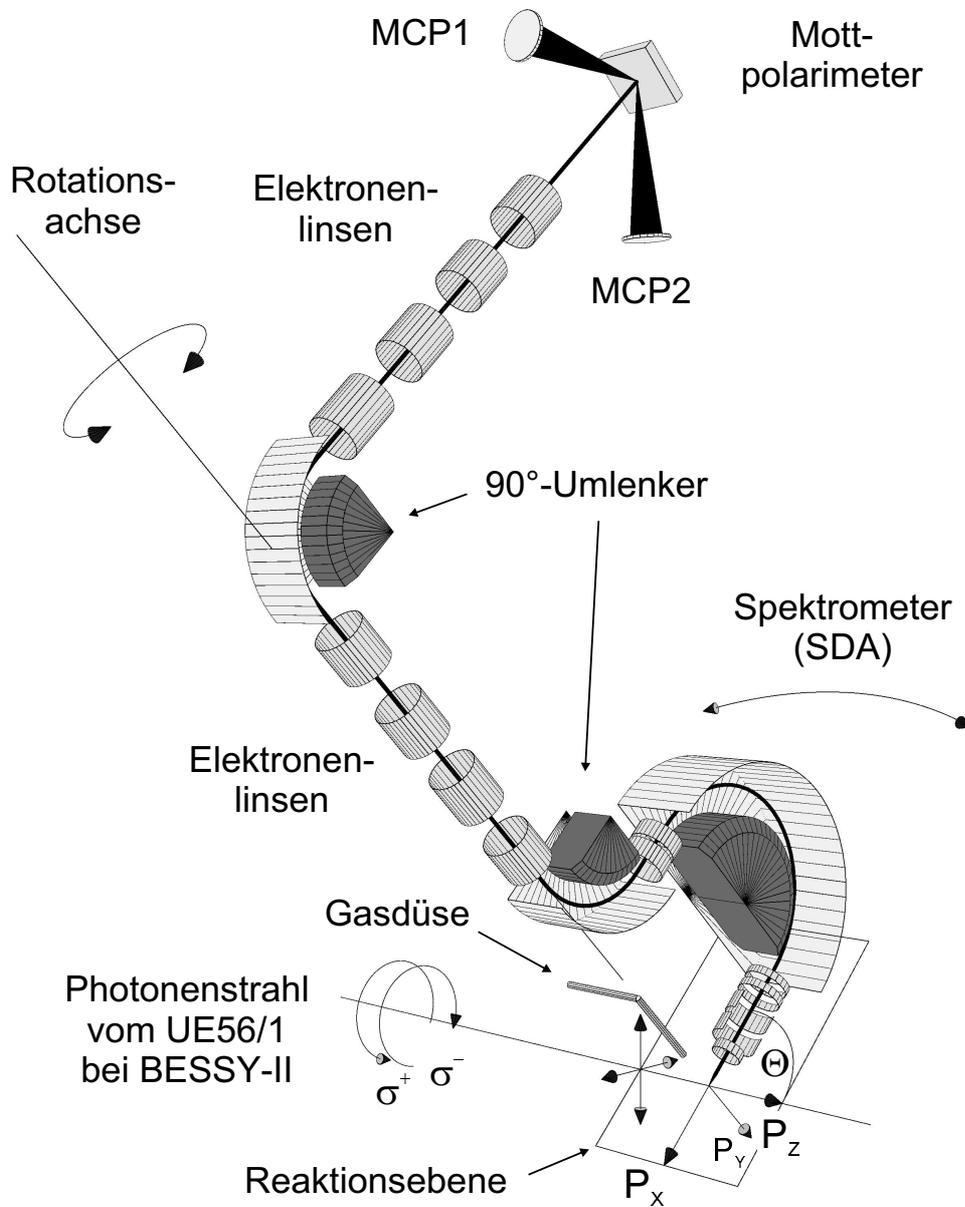


Abbildung 4.1: Experimenteller Aufbau mit festem Mottpolarimeter für die Messungen an Xenon. Die Asymmetrie in den Zählern MCP 1 und 2 bestimmt die transferierte Spinpolarisationskomponente P_z im Laborkoordinatensystem. Die Neigung der Reaktionsebene um 45° gegenüber der Horizontalen spielt nur bei Verwendung elliptisch polarisierter Strahlung eine Rolle [19,89].

sind demnach die zwei intrinsischen Parameter $\beta_1\mathcal{A}_{10}$ und $\gamma_1\mathcal{A}_{10}$ bei Anregung mit zirkular polarisierter Strahlung bestimmbar.

Der Spinanalysator ist ein sphärisches Mottpolarimeter mit Retardierungsfeld, das nach dem Konzept von Gray et al. (1984) [95] in dieser Arbeitsgruppe konstruiert und aufgebaut wurde [96,97]. Es wird bereits seit längerem sowohl für zeitaufgelöste Experimente in Kombination mit einem Flugzeitspektrometer [98] als auch für Untersuchungen an Festkörpern [99] unter UHV-Bedingungen erfolgreich eingesetzt und ist in der genannten Literatur bereits ausführlich beschrieben. Ein allgemeiner Überblick über Mottpolarimeter wird in dem Artikel von Gay und Dunning gegeben [100]. Das Analysiervermögen des Mottpolarimeters wurde für die Messungen an Xenon zu $S_{\text{eff}} = -0.20(03)$ durch Vergleich von Spinpolarisationsmessungen an Xe-4d-Photoelektronen zu Ref. [98] bestimmt.

4.1.2 Messungen im elektronenfesten Koordinatensystem

Der Versuchsaufbau mit fest zur Elektronenemission stehenden Mottpolarimeter ist schematisch in Abbildung 4.2 dargestellt. Der Unterschied zu dem im obigen Abschnitt 4.1.1 geschilderten Aufbau ist, daß nun das gesamte Nachweissystem mit Mottpolarimeter um die Inklinationsachse geschwenkt wird. Der Reaktionswinkel kann zwischen $50^\circ \leq \Theta \leq 130^\circ$ variiert werden (siehe dazu auch Anhang B.1).

Aufgrund der kinematischen Beziehungen für den Spinpolarisationsvektor im elektronenfesten Koordinatensystem werden hierbei zwei unabhängige Komponenten zur Bestimmung zweier intrinsischer Parameter benötigt. Daher wurde das Mottpolarimeter um zwei Rückstreuozähler (MCP3 und MCP4) erweitert, wodurch eine gleichzeitige Messung ermöglicht wird. Des weiteren wurde auf die zweite 90° -Umlenkung verzichtet, wodurch bei Anregung mit zirkular polarisierter Strahlung beide Komponenten der transferierten Spinpolarisation P_x und P_z gemessen werden können und damit die intrinsischen Parameter $\delta_1\mathcal{A}_{10}$ und $\xi_1\mathcal{A}_{10}$ zugänglich sind. Die Messung der dynamischen Komponente P_y ist bei dieser Geometrie nur unter Verwendung linear polarisierter Strahlung zu erreichen.

Zur Vakuumerzeugung dient in diesem Aufbau eine magnetgelagerte Turbomolekularpumpe (Pfeiffer TPU 1100 mit einer Saugleistung von 1100 l/s), die in beliebigen Einbaulagen benutzt werden kann und ein Schwenken bei laufendem Betrieb ermöglicht. Das Analysiervermögen des Mottpolarimeters wurde für die Messungen an Krypton zu $S_{\text{eff}} = -0.24(02)$ durch Vergleich von Spinpolarisationsmessungen an Xe-4d-Photoelektronen zu Ref. [98] bestimmt. Der etwas höherer Wert im Vergleich zu dem in Abschnitt 4.1.1 bestimmten ist durch eine veränderte Einstellung der Retardierspannung des Mottpolarimeters bedingt.

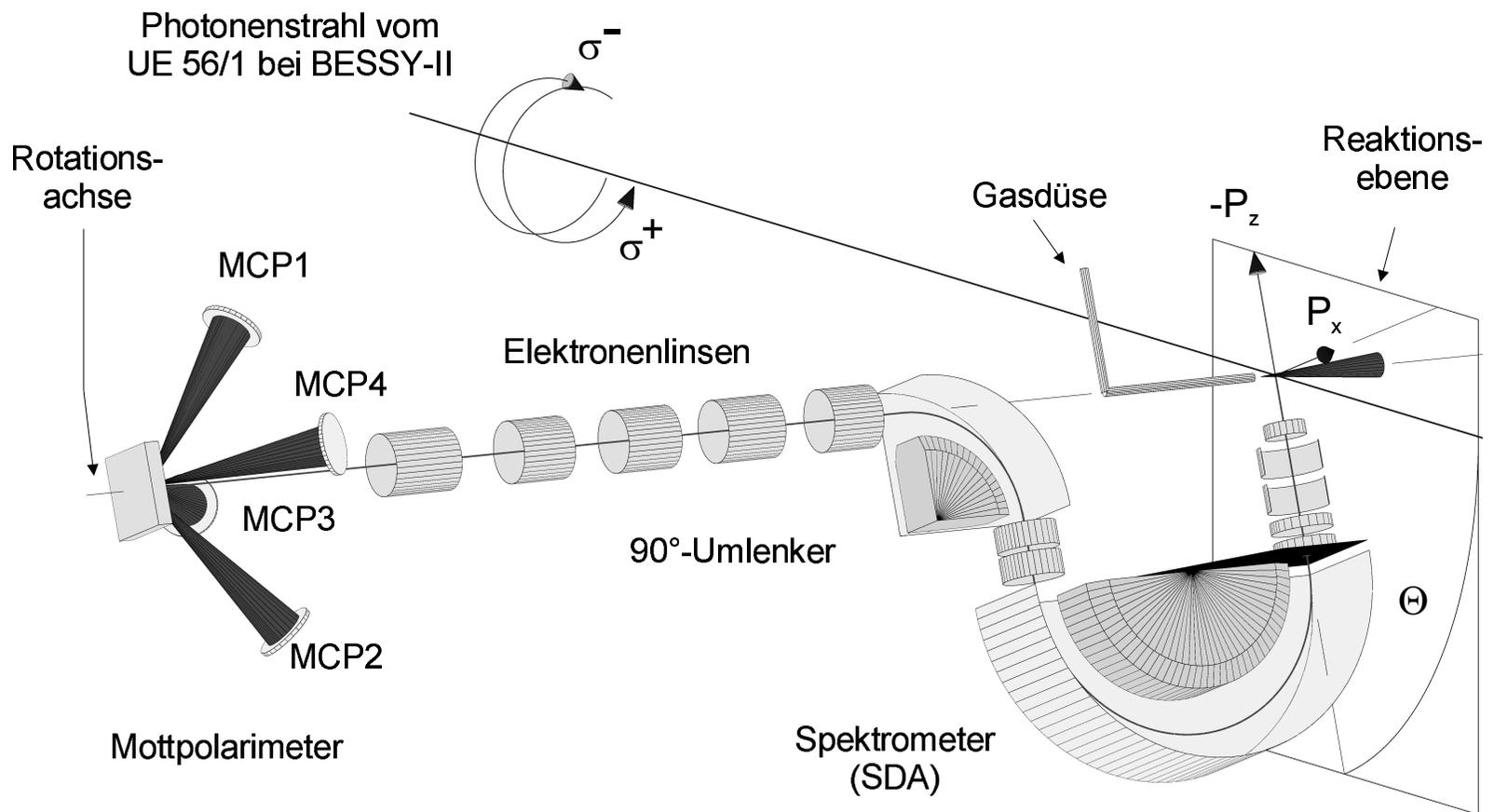


Abbildung 4.2: Experimenteller Aufbau mit mitrotiertem Mottpolarimeter für die Messungen an Krypton. Die Asymmetrie in den Zählern MCP 1 und 2 bestimmt die Spinpolarisationskomponente P_x , die in MCP 3 und 4 die Komponente P_z im elektronenfesten Koordinatensystem.

4.2 Die drehbare Vakuumkammer

Aufgrund des Bedarfs einer vielseitigen transportablen Meßapparatur für Winkelverteilungsmessungen beliebiger Art, wurde das Konzept einer um zwei orthogonale Achsen drehbaren Vakuumkammer entworfen. Es ermöglicht die Positionierung von Detektoren, die aufgrund ihrer Größe nicht innerhalb einer Vakuumkammer drehbar montiert und geschwenkt werden können, unter beliebigen Reaktionswinkeln relativ zu einem Gastarget an einem Synchrotronstrahlrohr.

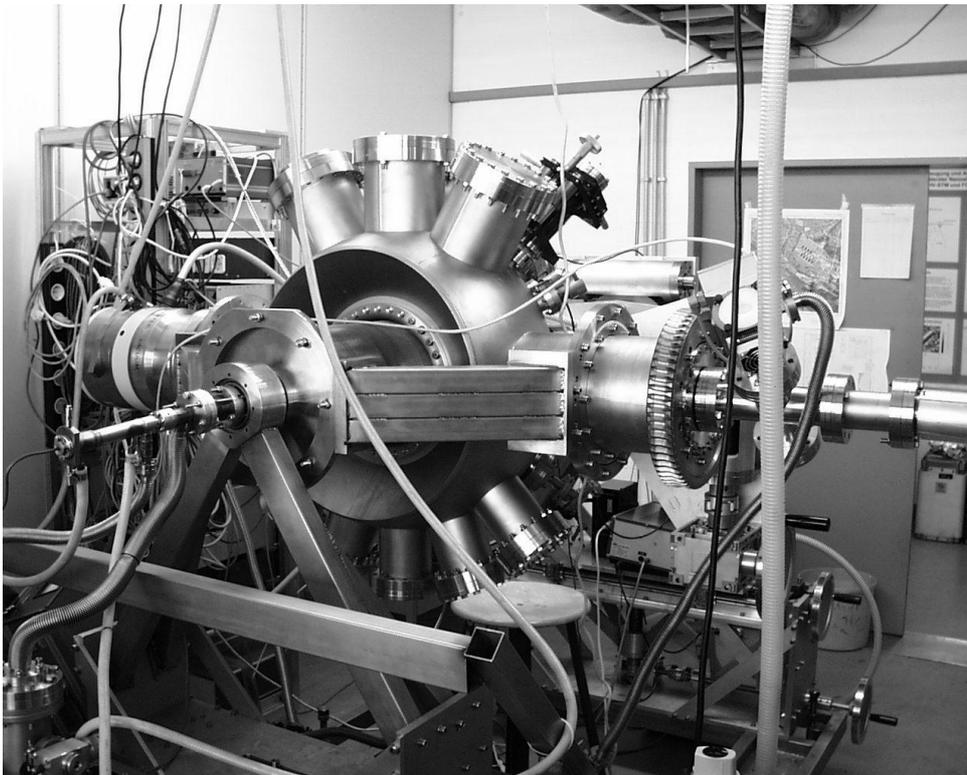


Abbildung 4.3: Photo der Meßapparatur im Bielefelder Labor während einer der Testphasen.

Die Realisierung dieses Konzeptes erforderte die technische Konstruktion eines geeigneten Vakuumrezipienten sowie einer Aufnahmevorrichtung, welche präzise Rotationen um Azimut- und Inklinationswinkel unter erheblicher Belastung durch schwere Detektoren¹ ermöglicht. Für eine ausführlichere Beschreibung technischer Details verweise ich an dieser Stelle auf Anhang B.1. Die Abbildung 4.3 zeigt ein Photo der Meßapparatur ohne Mottpolarimeter und Helmholtzkompensation. Während der

¹Beispielsweise beträgt das Gewicht des Mottpolarimeters ca. 70 kg, was ein Drehmoment von ca. 70 Nm erzeugt.

Testphase wird eine He-Gasentladungslampe zur Lichterzeugung ($h\nu = 21.6$ eV) anstelle der Synchrotron-Strahlungsquelle benutzt (im Vordergrund vorne links sichtbar). Horizontal (senkrecht zu der Azimutachse) steht die Inklinationsachse, deren zugehöriger Drehantrieb durch ein großes Schneckenrad rechts im Bild zu sehen ist. An dem Flansch gegenüber befindet sich die magnetgelagerte Turbomolekularpumpe (1000 l/s).

4.3 Das elektronenoptische Abbildungssystem

Die Abbildung 4.4 zeigt eine schematische Zeichnung des elektronenoptischen Abbildungssystems, wie es in dem in Abschnitt 4.1.2 beschriebenen Aufbau verwendet wurde. Die einzelnen optischen Elemente sind die Eintrittslinse, das Spektrometer, die Transportlinse 2 zwischen Spektrometer und Umlenker, der Umlenker selbst, die Transportlinse 3 für die Führung des Elektronenstrahls in das Mottpolarimeter und dessen Eintrittsoptik. Die Transmissionseigenschaften des Spektrometers² werden durch dessen Pass-Energie E_p und die kinetische Energie der nachzuweisenden Elektronen E_{kin} festgelegt. Die expliziten Formeln für die Spannungen, die an die Innen- (U_i), Außenkugel (U_a) und die Sollspannung (U_{soll}) angelegt werden, sind in Ref. [89] angegeben. Die Aufnahme eines Elektronenspektrums im EDC-Mode³ geschieht bei fester Pass-Energie, so daß der Elektronenstrahl hinter dem Spektrometerraustrittsspalt immer dieselbe kinetische Energie besitzt, E_p . Beim Durchfahren des Spektrums müssen daher alle Potentiale hinter dem Spektrometer lediglich um einen Offset variiert werden. Die Eintrittsoptik (Linse 1) wird hingegen dynamisch variiert, da sich die Fokallängen nichtlinear mit der kinetischen Energie ändern.

Als Ablenker ausgelegte Linsenelemente (A_i) bestehen aus vier einzeln ansteuerbaren Elektroden, so daß die Strahlage durch eine asymmetrische Beschaltung auf der Ideallinie gehalten werden kann. Der Strahlengang wurde in Abhängigkeit von den angelegten Potentialdifferenzen und der Geometrie der Linsensysteme mit Hilfe des Simulationsprogramms Simion [101] und unter Verwendung der Tabellen aus Ref. [102] berechnet. Tabelle 4.1 enthält einen typischen Spannungssatz für die insgesamt 47 Elektroden. Eine ausführliche Beschreibung des zur Ansteuerung der Potentiale verwendeten Spannungsversorgungssystems ist in Anhang B.2 gegeben.

Die Eintrittsoptik des Mottpolarimeters ist ebenfalls in Abbildung 4.4 mit den für die Elektroden verwendeten Bezeichnungen dargestellt. Sie wird mit einem separaten Spannungsversorgungssystem angesteuert. Typische hierfür verwendete Spannungen sind im unteren Teil der Tabelle 4.1 angegeben.

²Äquivalent dazu sind die Transmissionseigenschaften des Umlenkers.

³Durchfahren der kinetischen Energie des Analysators bei fester Photonenenergie [52, S.113].

Tabelle 4.1: Spannungssatz für eine kinetische Energie von $E_{kin} = 24.7$ eV, bei einer Pass-Energie des Spektrometers von $E_p = 20$ eV.

Elemente	Elektrode	Nr.	Spannung [V]
Linse 1	L1.2	0	87.0
	L1.3	1	16.0
	A1.4	2-5	16.0
	L1.5	6	16.0
	L1.6	7	250.0
Spek- trometer	U_{soll}	8	-4.7
	U_i	10	7.0
	U_a	11	-12.1
	U_k	12,13	-8.3
Linse 2	L2.1	14	16.0
	A2.2	15-18	276.0
Umlenker	U_{soll}	19	276.0
	U_i	20	450.0
	U_a	21	167.0
	U_k	22,23	224.0
Linse 3	L3.1	24	284.0
	A3.2	25-28	443.0
	L3.3	38	160.0
	L3.4	39	383.0
	A3.5	29-30, 32-33	360.0
	L3.6	34	383.0
	A3.7	40-43	383.0
	L3.8	44	383.0
	L3.9	45	100.0
	L3.10	46	360.0
Mott- eintritts- optik	V		410.0
	Vp2		390.0
	Vp2 _{x,y}		390.0
	K		770.0
	KE		134.0
	VE		200.0
	E		57.0

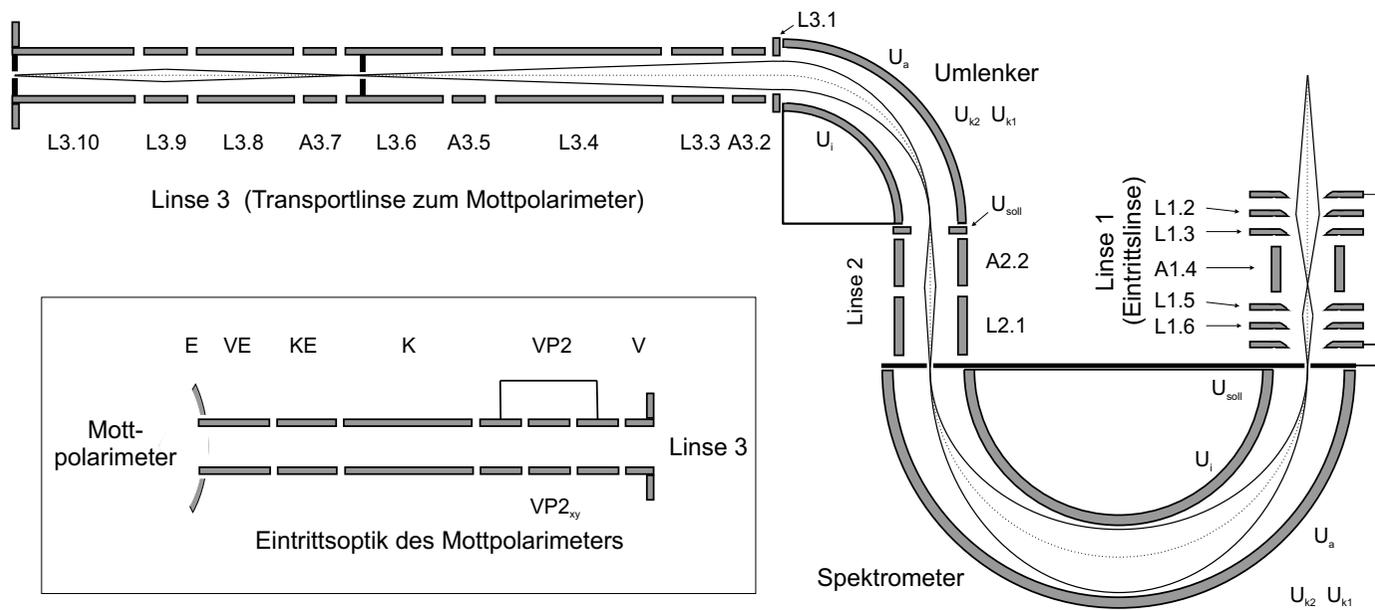


Abbildung 4.4: Schema des elektronenoptischen Abbildungssystems mit den verwendeten Bezeichnungen für die einzelnen Elektroden. (Die Zeichnung ist nicht maßstabsgetreu).

4.4 Meßzyklus für Spinpolarisationsmessungen

Aus der Asymmetrie A der über ein bestimmtes Zeitintervall in jeweils zwei gegenüberliegenden Rückstreuzählern 1 und 2 des Mottpolarimeters akkumulierten Ereignisse N_1 und N_2 läßt sich die Spinpolarisation der Elektronen durch $P = A/S_{\text{eff}}$ bestimmen [75, S.233]. Dabei ist S_{eff} das Analysiervermögen des Mottpolarimeters, das typischerweise bei Werten um 0.2 liegt. Die Asymmetrie A ergibt sich aus dem Verhältnis der beiden Ereigniszahlen $q = N_1/N_2$ durch:

$$\mathcal{A} = \frac{q - 1}{q + 1} \quad (4.2)$$

Ein wesentlicher experimenteller Vorteil bei Messungen der transferierten Spinpolarisation ist ihre Vorzeichenumkehr beim Wechsel der Lichthelizität von σ^+ auf σ^- . Bezeichnet man die mit entsprechender Lichthelizität gemessenen Ereigniszahlen mit N_1^+ , N_1^- , N_2^+ und N_2^- , und definiert q als das Verhältnis der geometrischen Mittel,

$$q = \sqrt{\frac{N_1^+ N_2^-}{N_2^+ N_1^-}} \quad (4.3)$$

dann läßt sich zeigen, daß apparativ bedingte Asymmetrien, deren Vorzeichen für beide Lichthelizitäten gleich ist, in erster Ordnung eliminiert werden [89,100].

Eine weitere wichtige Größe, die bei der Bestimmung der Spinpolarisation berücksichtigt werden muß, ist der unter den gezählten Ereignissen immer vorhandene Untergrund. Der Untergrund ist derjenige Anteil an Ereignissen, die nicht durch Elektronen des eigentlich zu messenden Übergangs verursacht werden. Dies ist zum Beispiel für das Dunkelrauschen der Zähler der Fall. Genauso können aber auch unerwünschte Anteile im Spektrum (Peaks mit gleicher kinetischer Energie) zu einer verfälschten Spinpolarisation führen. Um den Untergrund sauber abziehen zu können, wurde dieser grundsätzlich bei allen Messungen mitbestimmt, und zwar durch Einstellen des Spektrometers auf eine leicht veränderte kinetische Energie, so daß der zu messende Peak gerade nicht mehr erfasst wird. Die Ereigniszahlen sind deshalb durch

$$N_i^\sigma = S_i^\sigma - U_i^\sigma \quad i = 1, 2 \text{ und } \sigma = \pm \quad (4.4)$$

gegeben, wobei S das eigentliche Signal und U der über einen gleichlangen Zeitraum akkumulierte Untergrund bei der leicht veränderten kinetischen Energie ist.

Der verwendete Meßzyklus (Dauer ca. 30-40 min) bestand daher aus der Abfolge S^+ , U^+ , S^- und U^- , wobei innerhalb jeder einzelnen Messung alle untersuchten Linien des Spektrums nacheinander behandelt wurden. Alle extrahierten Spinpolarisationswerte setzten sich aus mindestens zwei aufaddierten Meßzyklen zusammen.

Kapitel 5

Der Xenon- $N_4O_{2,3}O_{2,3}{}^3P_1$ -Augerzerfall

Für die in diesem Kapitel vorgestellten Messungen wurde der in Abschnitt 4.1.1 beschriebene experimentelle Aufbau am „helical undulator“ UE56/1 [103] bei BESSY-II verwendet. Gemessen wurde die durch die Beziehung (2.28) gegebene Winkelverteilung der transferierten Spinpolarisationskomponente P_Z der Augerelektronen im Laborkoordinatensystem nach Anregung mit zirkular polarisierter Synchrotronstrahlung. Das Ziel dieser Messungen war die experimentelle Bestimmung der intrinsischen Parameter β_1 und γ_1 für den Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}{}^3P_1$ -Augerzerfall. Aufgrund des Drehimpulses des Endzustands $J_f = 1$ sind bei diesem Zerfall nur drei verschiedene Partialwellen an der Emission beteiligt, so daß analog zur Xe- $(5p_{3/2})^{-1}$ -Photoionisation (Kapitel 3) nur fünf quantenmechanische Größen für eine vollständige Charakterisierung benötigt werden. Unter Miteinbeziehung der aus Winkelverteilungsmessungen [104,105] bekannten Anisotropieparameters α_2 wird dadurch erstmals die Diskussion von Coulombmatrixelementen eines Augerzerfalls anhand von Spinpolarisationsdaten sinnvoll.

5.1 Coulombmatrixelemente des Übergangs

Für den Xenon- $N_4O_{2,3}O_{2,3}{}^3P_1$ -Augerzerfall ist aufgrund der Einschränkungen durch Gleichung (2.19) und (2.20), wie auch bei der Xe- $5p$ -Photoionisation, nur die Emission von drei verschiedenen Partialwellen erlaubt. In diesem Fall ist die Parität der auslaufenden Partialwellen ebenfalls gerade ($\pi = +1$) und den Übergängen können die folgenden drei Coulombamplituden M_i und Phasen δ_i zugeordnet werden:

$$\text{Xe}(4d)^{-1} {}^2D_{3/2} \rightarrow \text{Xe}(5p)^{-2} {}^3P_1 + \begin{cases} \epsilon s_{1/2} & \rightarrow M_1, \delta_1 \\ \epsilon d_{3/2} & \rightarrow M_2, \delta_2 \\ \epsilon d_{5/2} & \rightarrow M_3, \delta_3 \end{cases} \quad (5.1)$$

Es werden daher drei Amplituden und zwei Phasendifferenzen für die vollständige Beschreibung dieses Übergangs benötigt. Die Ausdrücke für die intrinsischen Parameter α_2 , β_1 , γ_1 und ξ_2 in Abhängigkeit dieser Größen können anhand der Tabelle A.1 und Gleichung (A.1) im Anhang A entnommen werden. Da alle Observablen mit Ausnahme des absoluten Wirkungsquerschnitts bereits durch die Verhältnisse der Amplituden und die Phasendifferenzen eindeutig bestimmt sind, läßt sich die Zahl der unbekannt Variablen grundsätzlich um eins reduzieren, indem man zu Amplitudenverhältnissen übergeht. Damit wird auf einen gemeinsamen Skalierungsfaktor für die Amplituden, der durch den Wirkungsquerschnitt festgelegt wird und strenggenommen zu einer vollständigen Beschreibung mit dazu gehört, verzichtet. Unter dieser Einschränkung erhält man aus drei absoluten Amplituden zwei Amplitudenverhältnisse als relative Größen:

$$\begin{aligned} \mu &= M_1/M_3 & \Delta^{sd} &= \delta_1 - \delta_3 \\ \nu &= M_2/M_3 & \Delta^{rel.} &= \delta_2 - \delta_3 \end{aligned} \quad (5.2)$$

Wird dieser Zerfall im Rahmen der Näherung des LSJ-Kopplungsmodells beschrieben (siehe Abschnitt 2.1.3), dann wird der Übergang nur noch durch zwei Partialwellen s und d mit Amplituden M_s , M_d und Phasendifferenz $\Delta = \delta_s - \delta_d$ beschrieben. Als Besonderheit für den betrachteten Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}{}^3P_1$ -Augerzerfall folgt in dieser Näherung, daß die Emission der s -Welle aufgrund der Drehimpulserhaltung verboten ist [79]. Es gilt daher $M_s = 0$ und $\Delta = 0$. Die Verknüpfung zu den Matrixelementen des relativistischen Modells (5.1) beziehungsweise (5.2) ist gegeben durch:

$$\begin{aligned} M_1 &= M_s = 0 \\ M_2 &= 0 \\ M_3 &= M_d \\ \Delta^{rel.} &= 0 \\ \Delta^{sd} &= \Delta = 0 . \end{aligned} \quad (5.3)$$

Anders als bei der Xe- $(5p_{3/2})^{-1}$ -Photoionisation (siehe (3.27), (3.28) und (3.32)) ist die d -Welle des LSJ-Kopplungsmodells hier aufgrund der Kopplungskoeffizienten ausschließlich mit dem $d_{5/2}$ -Kanal des relativistischen Modells verknüpft, denn es gilt $M_2 = 0$. Des weiteren sind als direkte Folge der Emission einer einzigen Partialwelle die intrinsischen Parameter im LSJ-Kopplungsfall unabhängig von Coulombmatrixelementen — ebenso wie bei den Augerzerfällen mit einem 1S_0 -Endzustand [70].

Aufgrund der hohen Reinheit des 3P_1 -Endzustandes beim Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}{}^3P_1$ -Augerzerfall ist zu erwarten daß die LSJ-Kopplungsnaherung recht gut erfüllt sein sollte. Der tatsächliche Anteil der $5s^25p^4$ -Konfiguration beträgt nach Multikonfigurationsrechnungen ungefähr 98% [106,107].

5.2 Die Abhängigkeit unter den intrinsischen Parametern

In Analogie zur Photoionisation, wo die dynamischen Parameter untereinander verknüpft sind (siehe Abschnitt 3.2, Gleichung (3.24)), kann man vermuten, daß wegen derselben Struktur der Gleichungen eine ähnliche Beziehung auch für die intrinsischen Parameter des Augerzerfalls gilt. In der Tat läßt sich anhand der in Anhang A angegebenen Ausdrücke nachprüfen, daß die folgende Beziehung für den Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_1$ -Augerzerfall gilt [46]:

$$\left(\alpha_2 - \frac{3}{2}\sqrt{5}\gamma_1\right)^2 + (2\xi_2)^2 = (1 + \alpha_2)(5 - 3\sqrt{5}\beta_1) \quad (5.4)$$

Diese Gleichung wurde explizit durch N.M. Kabachnik abgeleitet, nachdem der Existenzbeweis analog zu dem in Abschnitt 3.2.2 für die Photoionisation geführten erbracht war. Damit wird deutlich, daß die prinzipielle Unmöglichkeit des vollständigen Experiments durch Untersuchungen des emittierten Elektrons allein nicht nur auf die Photoionisation beschränkt ist. Diese Gleichung kann auf Augerübergänge mit Drehimpuls des Anfangszustandes $J_0 = 3/2$ und des Endzustandes $J_f = 1$ verallgemeinert werden. Dies wird weiter unten in Abschnitt 6.2 im Zusammenhang mit den Messungen an Krypton noch ausführlicher diskutiert.

5.3 Meßergebnisse

Abbildung 5.1 zeigt ein Spektrum der Xe- $N_{4,5}O_{2,3}O_{2,3}$ -Augergruppe, das mit dem Monitor-Channeltron hinter dem zweiten Umlenker gemessen wurde. Die Linien der N_5 - sind gegenüber denen der N_4 -Augergruppe entsprechend der Spin-Bahn-Aufspaltung der Innerschalenlöcher $(4d_{5/2})^{-1}$ und $(4d_{3/2})^{-1}$ um 2 eV zu niedrigeren kinetischen Energien hin verschoben. Die in der Abbildung angegebenen Linienzuordnungen basieren auf Ref. [106]¹. Spinaufgelöste Messungen wurden an den beiden Zerfällen $N_5O_{2,3}O_{2,3}^1S_0$ und $N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_1$ durchgeführt. Die Wahl der Pass-Energie des Spektrometers stellt einen Kompromiß zwischen Auflösungsvermögen ($E/\Delta E \approx 10^2$) und Signalintensität im Mottpolarimeter dar (durchschnittlich ca. 70 cps im $N_5O_{2,3}O_{2,3}^1S_0$ -Peak). Die beiden Pfeile kennzeichnen die Positionen, an denen die Messungen für den in Abschnitt 4.4 diskutierten Untergrundabzug durchgeführt wurden. Bei der Berechnung der Spinpolarisation wurde dieser Untergrund für beide Linien individuell abgezogen.

¹In Ref. [106] wurden die ursprünglich von Werme et al. in Ref. [108] angegebenen Linienzuordnungen teilweise revidiert. In der Xe- $N_{4,5}O_{2,3}O_{2,3}$ -Augergruppe ist auch der hier diskutierte 3P_1 -Endzustand von dieser Neuordnung betroffen.

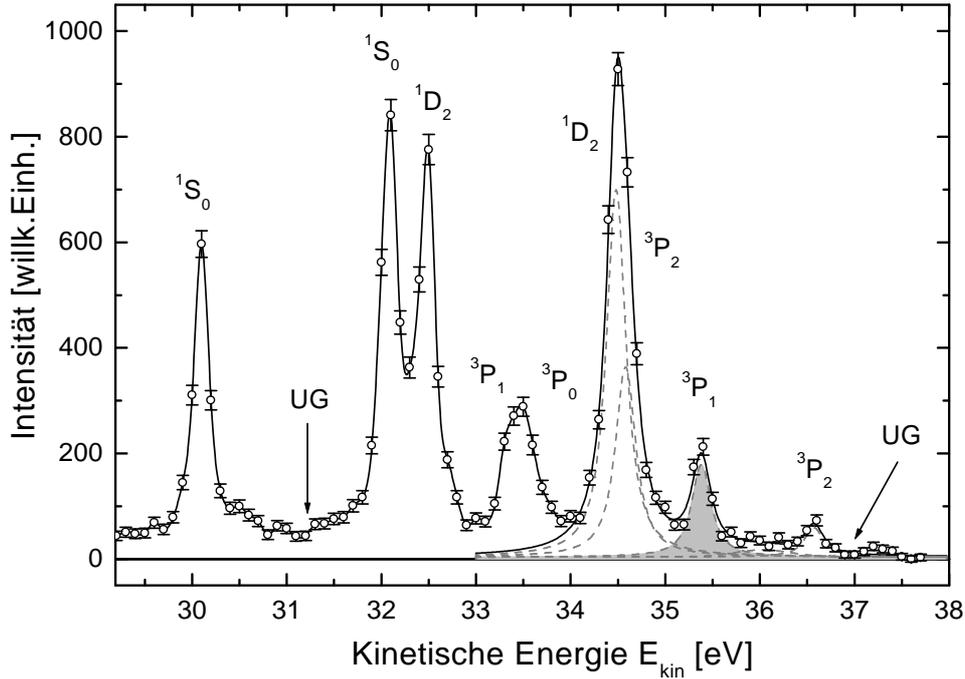


Abbildung 5.1: Spektrum der Xe- $N_{4,5}O_{2,3}O_{2,3}$ -Augergruppe bei Anregung mit der Photonenenergie $h\nu = 125$ eV, unter dem Reaktionswinkel $\Theta = 90^\circ$ und mit der Pass-Energie des Spektrometers $E_p = 20$ eV. Die Kennzeichnungen der Peaks markieren den Endzustand des doppelt geladenen Ions; die Markierungen *UG* kennzeichnen die Positionen für die in Abschnitt 4.4 beschriebene Untergrundmessung. Die gepunkteten Linien sind das Ausgleichsergebnis der in Anhang C.1 beschriebenen Voigtprofil-Analyse.

5.3.1 Referenzmessung am Xe- $N_5O_{2,3}O_{2,3}{}^1S_0$ -Zerfall

Da die intrinsischen Parameter für den Xe- $N_5O_{2,3}O_{2,3}{}^1S_0$ -Augerzerfall von vornherein festgelegt sind (siehe Tabelle 2.1), eignen sich diese Augerelektronen als Referenzmessung. Zum einen ermöglicht diese Messung eine Konsistenzprüfung der Daten untereinander, zum anderen läßt sich auch der für die Analyse des Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}{}^3P_1$ -Augerzerfalls benötigte Proportionalitätsfaktor bestimmen, der das Produkt aus Analysiervermögen, Zirkularpolarisationsgrad und Lochorientierung definiert und den ich mit Λ bezeichne:

$$\Lambda = P_{\text{zirk}} S_{\text{eff}} \mathcal{A}_{10} . \quad (5.5)$$

Mit dieser Definition ergibt sich aus Gleichung (2.28) der Ausdruck für die aus den Rohdaten nach (4.2) bestimmte Asymmetrie:

$$A(\Theta) = \Lambda \beta_1 \frac{1 + \frac{\gamma_1}{\beta_1} P_2(\cos \Theta)}{1 + \alpha_2 \mathcal{A}_{20} P_2(\cos \Theta)} \quad (5.6)$$

Tabelle 5.1: Vergleich verschiedener Ausgleichsergebnisse für die Winkelverteilung der transferierten Spinpolarisation der Xe- $N_5O_{2,3}O_{2,3}^1S_0$ -Augerelektronen. Der Wert χ^2 ist die quadratische Abweichung der Meßwerte zur Ausgleichsfunktion. Hoch- und tiefgestellte Zahlen geben die Fehlergrenze nach oben beziehungsweise nach unten an.

Fit Nr.	Fitparameter				χ^2
	Λ	$\frac{\gamma_1}{\beta_1}$	\mathcal{A}_{20}		
1. ($\Lambda, \frac{\gamma_1}{\beta_1}, \mathcal{A}_{20}$) frei	-0.097 $\begin{smallmatrix} 0.003 \\ 0.003 \end{smallmatrix}$	-0.58 $\begin{smallmatrix} 0.16 \\ 0.13 \end{smallmatrix}$	0.09 $\begin{smallmatrix} 0.15 \\ 0.18 \end{smallmatrix}$		3.62
2. ($\Lambda, \frac{\gamma_1}{\beta_1}$) frei; \mathcal{A}_{20} fest	-0.097 $\begin{smallmatrix} 0.002 \\ 0.002 \end{smallmatrix}$	-0.61 $\begin{smallmatrix} 0.04 \\ 0.04 \end{smallmatrix}$	0.13 $\begin{smallmatrix} 0.01 \\ 0.01 \end{smallmatrix}$) ^a		3.63
3. ($\Lambda, \mathcal{A}_{20}$) frei; $\frac{\gamma_1}{\beta_1}$ fest	-0.097 $\begin{smallmatrix} 0.002 \\ 0.002 \end{smallmatrix}$	-0.57 $\begin{smallmatrix} 0.00 \\ 0.00 \end{smallmatrix}$) ^b	0.08 $\begin{smallmatrix} 0.04 \\ 0.05 \end{smallmatrix}$		3.63
4. Λ frei; ($\frac{\gamma_1}{\beta_1}, \mathcal{A}_{20}$) fest	-0.098 $\begin{smallmatrix} 0.002 \\ 0.002 \end{smallmatrix}$	-0.57 $\begin{smallmatrix} 0.00 \\ 0.00 \end{smallmatrix}$) ^b	0.13 $\begin{smallmatrix} 0.01 \\ 0.01 \end{smallmatrix}$) ^a		3.78

^a Experimenteller Wert aus Ref. [105,109].

^b Geometrisch festgelegte intrinsischen Parameter aus Tabelle 2.1.

wobei $\Lambda\beta_1$, γ_1/β_1 und $\alpha_2\mathcal{A}_{20}$ die Fitparameter sind, die durch eine „least squares“-Ausgleichsrechnung bestimmt werden können. Tabelle 5.1 enthält die mit verschiedenen Ausgleichsmethoden gewonnenen Ergebnisse für die Fitparameter.

Der Fit 1 in Tabelle 5.1, bei dem alle drei Fitparameter frei variiert wurden, stellt die eigentliche Konsistenzprüfung der Meßdaten dar. Der für das Verhältnis der beiden intrinsischen Parameter γ_1 und β_1 vorgegebene Wert von $\gamma_1/\beta_1 = -4/7 \approx -0.57$ (siehe Tabelle 2.1) wird sehr gut wiedergegeben. Auch der für das Alignment bestimmte Wert stimmt im Rahmen der statistischen Unsicherheit mit dem Wert $\mathcal{A}_{20} = 0.13 \pm 0.01$ überein, der experimentell in den Arbeiten [109] und [105] bestimmt wurde². Der Grund für die relativ große Unsicherheit in diesen beiden Fitparametern ist die mathematische Korrelation der beiden Legendrepolynome im Zähler und im Nenner der Formel (5.6). Wird einer der beiden Fitparameter eingefroren (Fit 2 und 3), dann reduziert sich dieser Fehler wesentlich. Die Übereinstimmung wird zwar etwas schlechter, liegt aber weiterhin innerhalb des einfachen statistischen Fehlers. Der letzte Fit 4 dient letztlich zur endgültigen Bestimmung des Proportionalitätsfaktors Λ , dessen Sensitivität auf die verschiedenen Ausgleichsmethoden sehr gering ist, wie man an den Werten der zweiten Spalte deutlich sieht.

Mit den einzelnen Referenzwerten $P_{\text{zirk}} = 0.91^3$ und $S_{\text{eff}} = -0.20 \pm 0.03$ ergibt sich für die Lochorientierung der Wert $\mathcal{A}_{10} = -0.53 \pm 0.06$. Auch dieser Wert stimmt mit dem Literaturwert überein ($\mathcal{A}_{10} = -0.56 \pm 0.06$ aus Ref. [41]). Abbildung 5.2

²Das in [105] angegebene Alignment ist auf die X-Achse des Laborkoordinatensystems bezogen, nicht auf die Z-Achse wie in dieser Arbeit. Daher muß der in dieser Veröffentlichung angegebene Werte für \mathcal{A}_{20} durch -2 dividiert werden.

³Berechnete Angabe von BESSY.

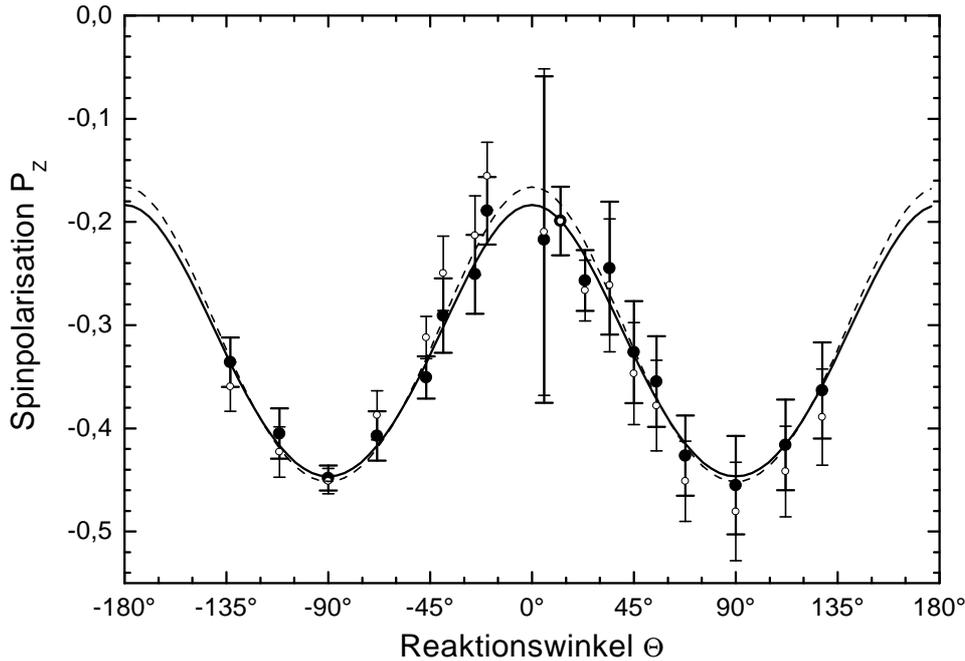


Abbildung 5.2: Winkelverteilung der transferierten Spinpolarisation P_Z der Xe- $N_5O_{2,3}O_{2,3}^1S_0$ -Augerelektronen. Offene Symbole: gemessene Werte; geschlossene Symbole: korrigierte Werte (siehe Text). Die Fehlergrenzen enthalten den einfachen statistischen Fehler. Durchgezogene Kurve: Fit 4; unterbrochene Kurve: Fit 2 entsprechend der Nummerierung in Tabelle 5.1.

zeigt die gemessene Winkelverteilung der transferierten Spinpolarisationskomponente P_Z (offene Symbole) zusammen mit den Ergebnissen der Ausgleichsmethoden Fit 2 und 4. Bei genauer Betrachtung kann man eine leichte systematische Abweichung von der vorgegebenen Winkelverteilung feststellen, die sich vorwiegend bei positiven Winkeln äußert und wahrscheinlich apparativ bedingt ist. Die Kenntnis der intrinsischen Parameter ermöglicht im Prinzip die Korrektur dieses Effektes anhand einer winkelabhängigen apparativen Asymmetrie gemäß des in Anhang C.2.1 diskutierten Verfahrens. Die auf diese Weise korrigierten Werte sind in Abbildung 5.2 durch volle Symbole dargestellt. Da sich diese Korrektur jedoch im Vergleich zum statistischen Fehler als klein erweist, findet sie für die weitere Diskussion keine Anwendung.

5.3.2 Messung am Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_1$ -Zerfall

Der Peak der Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_1$ -Augerelektronen ist weitaus weniger gut von seinen nächsten Nachbarn separiert als der oben diskutierte $N_5O_{2,3}O_{2,3}^1S_0$ Peak (siehe Abbildung 5.1). Daher ist für diesen Übergang eine besondere Untergrundkorrektur der gemessenen Spinpolarisation erforderlich, die den Anteilen der von den Ausläufern

der Nachbarn herrührenden Intensität Rechnung trägt und ausführlich im Anhang C.1 beschrieben ist.

Tabelle 5.2: Ausgleichsergebnisse für die Winkelverteilung der transferierten Spinpolarisation der $\text{Xe-}N_4O_{2,3}O_{2,3}{}^3P_1$ -Augerelektronen. Die Untergrundkorrektur bezieht sich auf den Einfluß der in der $\text{Xe-}N_{4,5}O_{2,3}O_{2,3}$ -Augergruppe benachbarten Peaks (siehe Anhang C.1). Der Wert χ^2 ist die quadratische Abweichung der Meßwerte zur Ausgleichsfunktion.

Fit Nr.	Fitparameter			χ^2
	β_1	γ_1	α_2	
Ohne Untergrundkorrektur				
1. $\beta_1, \gamma_1, \alpha_2$ frei	0.49 $\begin{smallmatrix} 0.02 \\ 0.02 \end{smallmatrix}$	-0.25 $\begin{smallmatrix} 0.11 \\ 0.10 \end{smallmatrix}$	-0.77 $\begin{smallmatrix} 2.48 \\ 2.23 \end{smallmatrix}$	3.39
2. β_1, γ_1 frei, α_2 fest	0.49 $\begin{smallmatrix} 0.02 \\ 0.02 \end{smallmatrix}$	-0.25 $\begin{smallmatrix} 0.03 \\ 0.03 \end{smallmatrix}$	-0.70 $\begin{smallmatrix} 0.05 \\ 0.05 \end{smallmatrix}$) ^a	3.39
Mit Untergrundkorrektur				
3. β_1, γ_1 frei, α_2 fest	0.59 $\begin{smallmatrix} 0.03 \\ 0.03 \end{smallmatrix}$	-0.28 $\begin{smallmatrix} 0.05 \\ 0.05 \end{smallmatrix}$	-0.70 $\begin{smallmatrix} 0.05 \\ 0.05 \end{smallmatrix}$) ^a	3.35

^a Experimenteller Wert aus Ref. [104,105]

In Analogie zur in Abschnitt 5.3.1 beschriebenen Vorgehensweise können die intrinsischen Parameter durch „least squares“-Ausgleichsrechnungen gewonnen werden. Benötigt wird dabei der in Abschnitt 5.3.1 bestimmte Proportionalitätsfaktor ($\Lambda = -0.098 \pm 0.002$), sowie die Verhältnisse von Orientierung und Alignment der beiden unterschiedlichen Löcher $(4d_{3/2})^{-1}$ und $(4d_{5/2})^{-1}$. Letztere beiden Faktoren sind im Rahmen der LS-Kopplung durch $\mathcal{A}_{10}^{3/2} = \sqrt{27/28} \mathcal{A}_{10}^{5/2}$ und $\mathcal{A}_{20}^{3/2} = \sqrt{7/8} \mathcal{A}_{20}^{5/2}$ gegeben [79] und spielen im Vergleich zum statistischen Fehler eine vernachlässigbar geringe Rolle. Das Ergebnis ist in Tabelle 5.2 für verschiedene Ausgleichsmethoden dargestellt. Auch hier zeigt sich, daß für eine genaue Bestimmung des Parameters γ_1 , der die Modulation der Spinpolarisation im wesentlichen bestimmt, die Kenntnis des α_2 -Parameters durch eine unabhängige Messung benötigt wird. Aufgrund des geringen Wertes des Alignments ist das Ausgleichsergebnis recht unempfindlich auf den exakten Wert des α_2 -Parameters, wie an Fit 1 und 2 zu erkennen ist.

Der Fit 3 liefert das Endresultat für die intrinsischen Parameter β_1 und γ_1 des $\text{Xe-}N_4O_{2,3}O_{2,3}{}^3P_1$ -Augerzerfalls unter Berücksichtigung der Untergrundkorrektur. Wie man sieht, wirkt sie sich vorwiegend auf den integralen Spinpolarisationsparameter β_1 aus, dessen Wert um ungefähr 20% nach oben korrigiert werden muß. Der zusätzliche Fehler, der sich aufgrund der Untergrundkorrektur ergibt, ist jedoch trotz dieses großen Einflusses vergleichsweise gering und in den angegebenen Fehlergrenzen bereits enthalten. Abbildung 5.3 stellt das Meßergebnis für die transferierte Spinpolarisation des $\text{Xe-}N_4O_{2,3}O_{2,3}{}^3P_1$ -Augerzerfalls zusammen mit den Ausgleichskurven

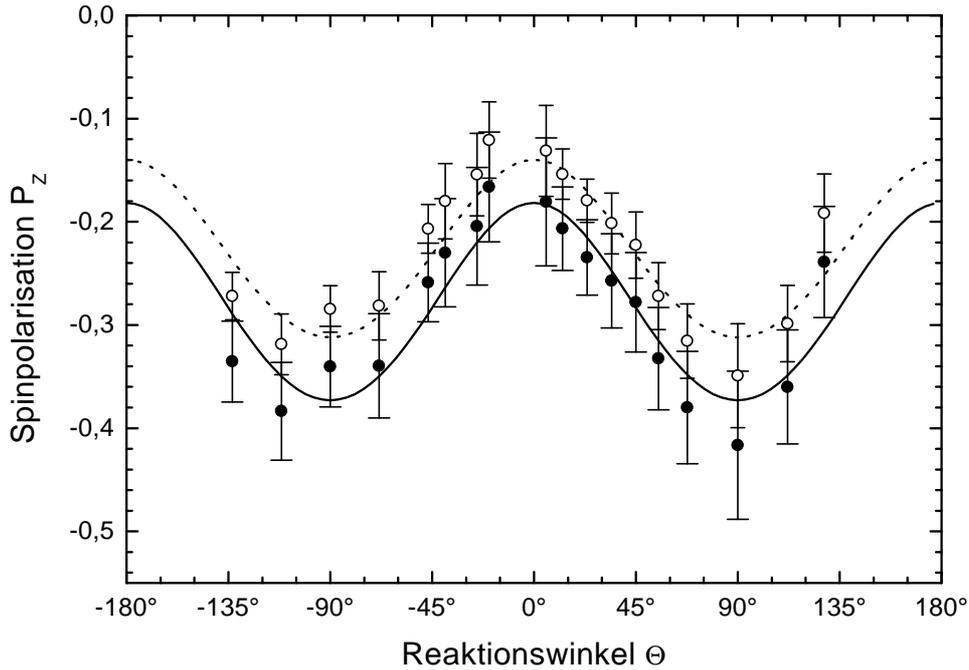


Abbildung 5.3: Winkelverteilung der transferierten Spinpolarisation P_Z der $\text{Xe-N}_4\text{O}_{2,3}\text{O}_{2,3}^3P_1$ -Augerelektronen. Offene Symbole: gemessene Werte ohne zusätzlichen Untergrundabzug; geschlossene Symbole: Werte nach Untergrundkorrektur. Die Fehlergrenzen enthalten den einfachen statistischen sowie den zusätzlich durch die Untergrundkorrektur verursachten Fehler (siehe Anhang C.1). Unterbrochene Kurve: Fit 2; durchgezogene Kurve: Fit 3 entsprechend der Nummerierung in Tabelle 5.2.

aus Tabelle 5.2 graphisch dar. Der zusätzliche Fehler, der sich aufgrund der Untergrundkorrektur ergibt, ist auch hier in den Fehlergrenzen der korrigierten Daten bereits enthalten.

5.4 Diskussion der Meßergebnisse

5.4.1 Intrinsische Parameter

Die für die weitere Diskussion verwendeten experimentellen intrinsischen Parameter sind nochmals in der ersten Zeile der Tabelle 5.3 zusammengestellt. Da für diesen Augerübergang der ξ_1 -Parameter im elektronenfesten Koordinatensystem unabhängig in dem Experiment aus Ref. [41] bestimmt worden ist, ist auch dieser Parameter in der Tabelle zum Vergleich enthalten. Obwohl die dynamische Spinpolarisation nicht explizit gemessen wurde, erlaubt die Kenntnis der Gleichung (5.4), welche

Tabelle 5.3: Intrinsische Parameter des Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_1$ -Augerzerfalls im Vergleich zur Theorie und zu einem weiteren Experiment.

	α_2	β_1	γ_1	ξ_1	ξ_2
Experiment					
Diese Arbeit	-0.70 $\begin{smallmatrix} 0.05 \\ 0.05 \end{smallmatrix}$) ^a	0.59 $\begin{smallmatrix} 0.03 \\ 0.03 \end{smallmatrix}$	-0.28 $\begin{smallmatrix} 0.05 \\ 0.05 \end{smallmatrix}$	-0.73 $\begin{smallmatrix} 0.04 \\ 0.04 \end{smallmatrix}$) ^b	$\pm 0.25 \begin{smallmatrix} 0.08 \\ 0.08 \end{smallmatrix}$) ^c
Ref. [41]				-0.57 $\begin{smallmatrix} 0.21 \\ 0.21 \end{smallmatrix}$	
Theorie					
LS-Koppl. ^d	-0.80	0.63	-0.36	-0.81	0.00
MCDF	-0.84 ^e	0.59 ^f	-0.37 ^f	-0.78 ^b	-0.01 ^e
MMCDF [110]	-0.84				-0.02

^a Wert aus Ref. [105].

^b Berechnet durch Gleichung (2.33).

^c Berechnet durch Gleichung (5.4).

^d Intrinsische Parameter unabhängig von Coulombmatrixelementen.

^e Wert aus Ref. [84].

^f Wert aus Ref. [79].

die intrinsischen Parameter untereinander verknüpft, die indirekte Bestimmung des Betrages vom ξ_2 -Parameter. Der auf diese Weise bestimmte Wert ist in der Tabelle in der letzten Spalte angegeben.

Zu dem Experiment aus Ref. [41] zeigt sich eine tendenzielle Abweichung, die jedoch im Rahmen der dort angegebenen Unsicherheit nicht signifikant ist. Beim Vergleich mit den theoretischen Werten im LSJ-Kopplungsfall stellt man fest, daß sich für den β_1 -Parameter eine recht gute Übereinstimmung ergibt, während α_2 und γ_1 eine kleine Abweichung zeigen. Eine deutliche Differenz zeigt hingegen der indirekt abgeleitete ξ_2 -Parameter, dessen experimenteller Wert deutlich von Null verschieden ist. Eine ähnliche Situation ergibt sich für den Vergleich zu der MCDF-Rechnung von Lohmann et al. [79,84]. Während der β_1 -Parameter mit dem experimentellen Wert sehr gut übereinstimmt, entfernt sich der Anisotropieparameter α_2 noch etwas weiter vom gemessenen Wert. Die Situation für γ_1 und ξ_2 bleibt praktisch unverändert. Die MMCDF-Rechnung von Tulkki et al. [110] liefert praktisch dieselben Werte für α_2 und ξ_2 , wie die MCDF-Rechnung.

Zu den kleinen Werten für den ξ_2 -Parameter in den beiden Theorien, die nicht im Rahmen der LSJ-Kopplungsnaheung durchgeführt wurden, sei an dieser Stelle angemerkt, daß der ξ_2 -Parameter sehr empfindlich auf Korrelationseffekte und die Wahl der Ein-Elektronenorbitale ist. In der Tat fanden Tulkki et al. für den Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_2$ -Augerzerfall mit verschiedene Näherungsmethoden Werte für ξ_2 , die in einem Bereich von 0.04 ... -0.30 variieren [110]. Aufgrund einer Summenregel

[73], nach der sich die mit $2J_f + 1$ gewichteten ξ_2 -Parameter verschiedener Feinstrukturkomponenten zu Null aufaddieren⁴, läßt sich ein ähnliches Verhalten auch für den $\text{Xe-}N_4O_{2,3}O_{2,3}{}^3P_1$ -Augerzerfall vermuten. Von experimenteller Seite ist der bisher einzige bekannte Nachweis einer von Null verschiedenen dynamischen Spinpolarisation an resonanten Augerelektronen an Xenon erbracht worden [42].

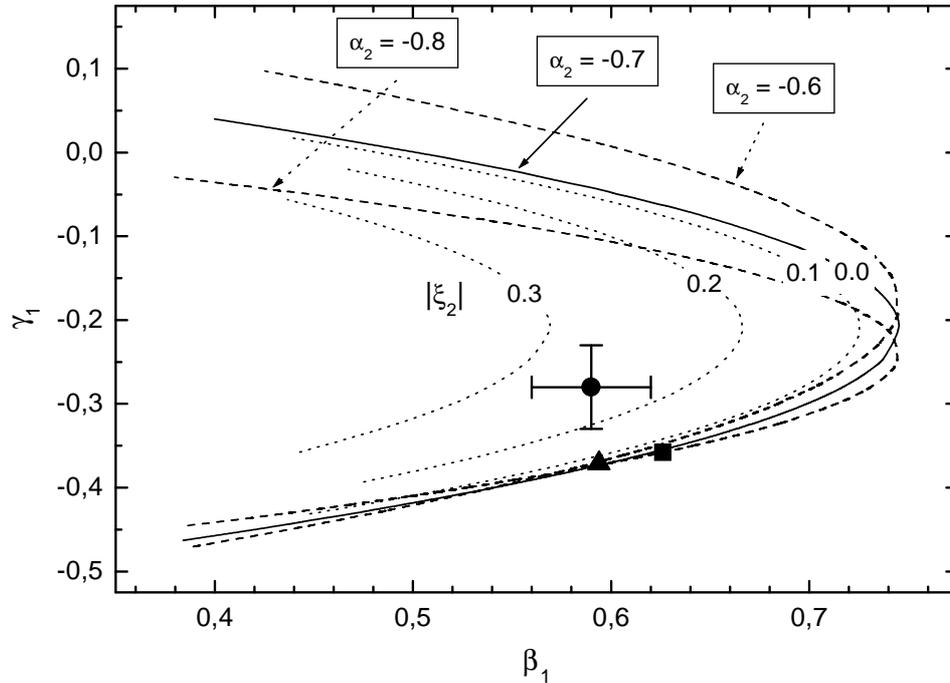


Abbildung 5.4: Graphische Darstellung der Verknüpfung unter den intrinsischen Parametern (5.4) für den $\text{Xe-}N_4O_{2,3}O_{2,3}{}^3P_1$ -Augerzerfall, projiziert auf β_1 und γ_1 . Für die drei durch verschiedene Werte für α_2 gekennzeichneten Linien gilt $\xi_2 = 0$, für die drei durch verschiedene Werte für ξ_2 gekennzeichneten gilt $\alpha_2 = -0.7$. Kreis: experimenteller Wert dieser Arbeit; Quadrat: LS-Kopplung; Dreieck: MCDF-Theorie.

Um die Verknüpfung unter den intrinsischen Parametern hinsichtlich der Meßwerte aus Tabelle 5.3 näher zu charakterisieren, ist in Abbildung 5.4 die Gleichung (5.4) graphisch dargestellt. Gezeigt ist γ_1 in Abhängigkeit von β_1 in der Projektion auf verschiedene Werte für α_2 und ξ_2 zusammen mit den experimentellen und theoretischen Werten aus Tabelle 5.3. Zunächst wird deutlich, daß Bereiche für die intrinsischen Parameter existieren, die durch Gleichung (5.4) nicht zugelassen werden. Dies ist zum Beispiel der Fall für $\beta_1 > \sqrt{5}/3 \approx 0.75$ — dies kann man auch direkt daran ablesen, daß die rechte Seite von (5.4) für diesen Fall negative Werte annehmen müßte⁵. Der experimentelle Wert liegt deutlich innerhalb des erlaubten

⁴Streng genommen gilt diese Summenregel nur im LSJ-Kopplungsfall.

⁵Vorausgesetzt $\alpha_2 > -1$, was durch den experimentellen Wert deutlich erfüllt ist.

Bereiches, während die theoretischen Werte sowohl in LSJ-Kopplung als auch aus der MCDF-Rechnung beide sehr dicht an der Grenze zum nichtzugelassenen Bereich liegen. Des weiteren wird die Empfindlichkeit des ξ_2 -Parameters auf die Lage der übrigen intrinsischen Parameter deutlich.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß aufgrund der experimentellen intrinsischen Parameter α_2 , β_1 und γ_1 eine kleine Abweichung vom LSJ-Kopplungsfall besteht, die sich besonders deutlich in dem indirekt abgeleiteten, von Null verschiedenen ξ_2 -Parameter zeigt. Denn im LSJ-Kopplungsfall müßte die dynamische Spinpolarisation für diesen Übergang verschwinden ($\xi_2 = 0$).

5.4.2 Coulombmatrixelemente

Die Extraktion der Coulombmatrixelemente aus den experimentellen intrinsischen Parametern geschieht in Analogie zu dem in Abschnitt 3.2 für die Xe-($5p_{3/2}$)⁻¹-Photoionisation ausführlich beschriebenen Verfahren. Der einzige formale Unterschied besteht darin, daß die Verwendung des absoluten Wirkungsquerschnitts durch den Übergang von den absoluten Amplituden M_i zu den Amplitudenverhältnissen μ und ν vermieden wird. Demzufolge gibt es analog zu dem Gleichungssystem (3.2)–(3.6) ein in diesem Fall vier- statt fünfdimensionales Gleichungssystem, das die intrinsischen Parameter α_2 , β_1 , γ_1 und ξ_2 durch die vier Größen μ , Δ^{sd} , ν und $\Delta^{rel.}$ aus Gleichung (5.2) ausdrückt. Die expliziten Formeln sind über Gleichung (A.1) und Tabelle A.1 in Anhang A definiert und haben dieselbe Form wie die Gleichungen (3.2)–(3.6). Das Gleichungssystem ist aufgrund der Beziehung (5.4) auch hier wie in Abschnitt 3.2 unterbestimmt, wegen der nicht vorhandenen unabhängigen Messung von ξ_2 jedoch nicht gleichzeitig überbestimmt.

Die numerische Berechnung der Lösungskurven $\vec{g}(t)$ für die experimentellen intrinsischen Parameter aus Tabelle 5.3 liefert das in Abbildung 5.5 gezeigte Ergebnis. Die Darstellung der Lösungskurven erfolgt ebenfalls in Analogie zur Abbildung 3.3. Aufgetragen sind die beiden Amplitudenverhältnisse μ und ν sowie die Phasendifferenz Δ^{sd} gegenüber der relativistischen Phasendifferenz $\Delta^{rel.}$. Dabei sind nur die Lösungen zu positivem ξ_2 -Parameter angegeben. Die entsprechenden Lösungen für ein negatives ξ_2 erhält man aufgrund der Relationen (3.11) und (3.7) durch vertikale Spiegelung der Diagramme für μ und ν beziehungsweise durch vertikale und gleichzeitig horizontale Spiegelung des Diagramms für Δ^{sd} .

Die Berechnung der angegebenen Fehlergrenzen erfolgt durch eine statistische Variation der intrinsischen Parameter ähnlich zu der bereits in Abschnitt 3.3.4 beschriebenen Vorgehensweise. Zunächst wird eine große Gesamtheit intrinsischer Parametersätze (α_2 , β_1 , γ_1) erzeugt, die innerhalb der in Tabelle 5.3 angegebenen Fehlergrenzen gleichverteilt ist — die Wahrscheinlichkeit dafür, daß der wahre Wert diese Bedingung erfüllt, beträgt gemäß einer gaußschen Normalverteilung 68%. Die in Abbildung 5.5 gezeigten Fehlergrenzen wurden so berechnet, daß sie 95% aller zu

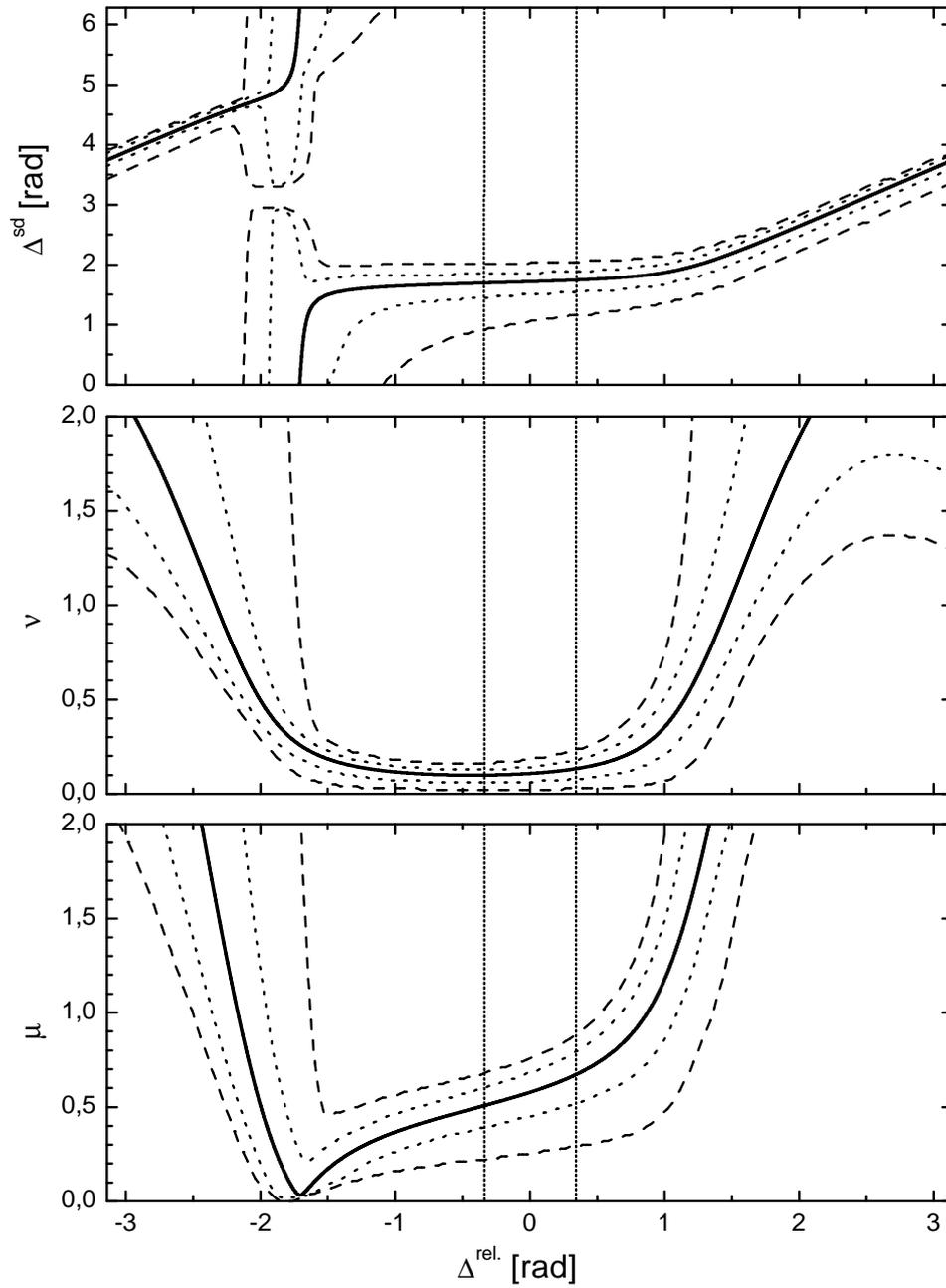


Abbildung 5.5: Lösungskurve für die Coulomb-Amplitudenverhältnisse und Phasendifferenzen des Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}{}^3P_1$ -Augerzerfalls. Durchgezogen: optimale Lösungskurve; gestrichelt: σ -Konfidenzintervall; gepunktet: $\sigma/2$ -Konfidenzintervall; vertikale Linien begrenzen $\Delta^{rel.}$ auf $\pm 20^\circ$.

dieser Gesamtheit berechneten Lösungskurven enthalten. Das bedeutet die wahre Lösungskurve liegt mit einer Wahrscheinlichkeit von 65% innerhalb des angegebenen Bereichs ($0.68 \cdot 0.95 = 0.65$).

Wie aus der Abbildung 5.5 abzulesen ist, handelt es sich bei der berechneten Lösung um eine offene Kurve, für die sich keine Einschränkung über den zulässigen Bereich der relativistischen Phasendifferenz machen läßt (siehe Abschnitt 3.2.3 zum Vergleich). Bei $\Delta^{rel.} \approx -1.7$ wird das Verhältnis μ sehr klein, wobei die Null im Rahmen der Fehlergrenzen auch tatsächlich erreicht wird. Ein solcher Fall wird natürlich von einer totalen Unbestimmtheit der zugehörigen Phasendifferenz Δ^{sd} begleitet, sie kann dort sogar eine Sprung um π erfahren⁶.

Unter der Annahme einer verschwindenden relativistischen Phasendifferenz $\Delta^{rel.} \approx 0$ (siehe Abschnitt 2.1.3) ergibt sich eine wesentliche Einschränkung für den möglichen Bereich der Coulombmatrixelemente. Da die Steigung der Lösungskurve in diesem Bereich sehr klein ist, sind die Größen μ , ν und Δ^{sd} relativ unempfindlich auf die relativistische Phasendifferenz. Innerhalb eines recht großen Bereichs für die relativistische Phasendifferenz von $-20^\circ \leq \Delta^{rel.} \leq 20^\circ$ ergeben sich die Werte $\mu = 0.58_{0.36}^{0.30}$, $\Delta^{sd} = 1.71_{0.82}^{0.33}$, $\nu = 0.11_{0.05}^{0.11}$, $\Delta^{rel.} = 0.00_{0.35}^{0.35}$

Weiterhin zeigt sich, daß das geometrisch festgelegte Verhältnis zwischen den relativistischen Amplituden der $d_{3/2}$ - und $d_{5/2}$ -Partialwelle ν in diesem Bereich nahezu verschwindet, wie im LSJ-Kopplungsfall gefordert. Im Gegensatz dazu zeigt jedoch das zweite Amplitudenverhältnis zwischen s - und d -Partialwelle einen von Null verschiedenen Wert. Ein Verhältnis von $\mu \approx 0.6$ entspricht bereits einem Emissionsanteil einer s -Welle von 25%. In diesem Sinne äußert sich die bereits im vorigen Abschnitt 5.4.1 festgestellte Abweichung vom LSJ-Kopplungsfall, für den die Emission einer s -Welle verboten ist.

⁶Die Unterbrechung der Fehlergrenzen bei $\Delta^{rel.} = -1.7$ und $\Delta^{sd} = \pi$ ist rein technischer Art und hat keine physikalische Bedeutung. In der Tat sind in der simulierten Gesamtheit aller Lösungskurven einige enthalten, die den π -Phasensprung auch tatsächlich zeigen.

Kapitel 6

Die Krypton- $M_{4,5}N_1N_{2,3}^1P_1$ -Augerzerfälle

Für die in diesem Kapitel vorgestellten Messungen wurde der in Abschnitt 4.1.2 beschriebene experimentelle Aufbau am „helical undulator“-UE56/1 [103] bei BESSY-II verwendet. Gemessen wurden die durch die Beziehungen (2.30) und (2.32) gegebenen Winkelverteilungen der transferierten Spinpolarisationskomponenten P_x und P_z der Augerelektronen im elektronenfesten Koordinatensystem nach Anregung mit zirkular polarisierter Synchrotronstrahlung. Das Ziel dieser Messungen war die experimentelle Bestimmung der intrinsischen Parameter δ_1 und ξ_1 für die Augerzerfälle Kr- $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$ und Kr- $M_5N_1N_{2,3}^1P_1$. Diese Zerfälle sind im Gegensatz zum in Kapitel 5 diskutierten Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_1$ -Übergang aufgrund der besonders starken Konfigurationsmischungen im Endzustand ausgezeichnet [111]. Unter Miteinbeziehung des aus Winkelverteilungsmessungen [112] bekannten Asymmetrieparameters α_2 wird auch hier die Diskussion von Coulombmatrixelementen sinnvoll.

6.1 Definition der Coulombmatrixelemente

In Analogie zum in Kapitel 5 diskutierten Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_1$ -Augerzerfall, sind auch die beiden Zerfälle des Kryptons $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$ und $M_5N_1N_{2,3}^1P_1$ aufgrund der Einschränkungen durch Gleichung (2.19) und (2.20) durch die Emission von jeweils drei verschiedenen Partialwellen gekennzeichnet. Bei diesen Übergängen bleibt das doppelt geladene Ion in einer Endzustandskonfiguration $(4s)^{-1}(4p)^{-1}$ zurück, die eine ungerade Parität besitzt ($\sum_i l_i$ ist ungerade). Dementsprechend können den Übergängen in die Kontinuumszustände folgende Amplituden zugeordnet werden:

$$\text{Kr}(3d)^{-1} \ ^2D_{3/2} \quad \rightarrow \quad \text{Kr}(4s)^{-1}(4p)^{-1} \ ^1P_1 + \begin{cases} \epsilon p_{1/2} & \rightarrow M_1, \delta_1 \\ \epsilon p_{3/2} & \rightarrow M_2, \delta_2 \\ \epsilon f_{5/2} & \rightarrow M_3, \delta_3 \end{cases} \quad (6.1)$$

$$\text{Kr}(3d)^{-1} {}^2D_{5/2} \rightarrow \text{Kr}(4s)^{-1}(4p)^{-1} {}^1P_1 + \begin{cases} \epsilon p_{3/2} & \rightarrow M_4, \delta_4 \\ \epsilon f_{5/2} & \rightarrow M_5, \delta_5 \\ \epsilon f_{7/2} & \rightarrow M_6, \delta_6 \end{cases} \quad (6.2)$$

Für eine vollständige Beschreibung werden daher wieder für jeweils beide Feinstrukturkomponenten fünf Größen benötigt, welche vier relative Größen (zwei Amplitudenverhältnisse und zwei Phasendifferenzen) enthalten. Für den Kr- $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$ -Augerzerfall ($J_0 = 3/2$) definiere ich:

$$\begin{aligned} \mu_{3/2} &= \sqrt{\frac{5}{6}} M_3/M_1 & \Delta_{3/2}^{pf} &= \delta_1 - \delta_3 \\ \nu_{3/2} &= \sqrt{5} M_2/M_1 & \Delta_{3/2}^{rel.} &= \delta_1 - \delta_2 \end{aligned} \quad (6.3)$$

und für den Kr- $M_5N_1N_{2,3}^1P_1$ -Augerzerfall ($J_0 = 5/2$):

$$\begin{aligned} \mu_{5/2} &= \sqrt{\frac{21}{20}} M_6/M_4 & \Delta_{5/2}^{pf} &= \delta_4 - \delta_6 \\ \nu_{5/2} &= -2\sqrt{5} M_5/M_6 & \Delta_{5/2}^{rel.} &= \delta_5 - \delta_6 \end{aligned} \quad (6.4)$$

Wird für diese beiden Zerfälle die Spin-Bahn-Wechselwirkung im Kontinuum vernachlässigt (LSJ-Kopplung, siehe Abschnitt 2.1.3), dann wird jeweils für beide Feinstrukturkomponenten nur noch zwischen einer p - und einer f -Partialwelle mit Amplituden $M_p^{J_0}$, $M_f^{J_0}$ und Phasendifferenz Δ^{J_0} unterschieden. Der Zusammenhang mit den Amplituden des relativistischen Modells ist dabei gegeben durch die Transformation [73]:

$J_0 = 3/2$	$J_0 = 5/2$
$M_1 = \sqrt{\frac{5}{6}} M_p^{3/2}$	$M_4 = M_p^{5/2}$
$M_2 = \frac{1}{\sqrt{6}} M_p^{3/2}$	$M_5 = -\frac{1}{\sqrt{21}} M_f^{5/2}$
$M_3 = M_f^{3/2}$	$M_6 = \sqrt{\frac{20}{21}} M_f^{5/2}$
$\Delta_{3/2}^{rel.} = 0$	$\Delta_{5/2}^{rel.} = 0$
$\Delta_{3/2}^{pf} = \Delta_{3/2}$	$\Delta_{5/2}^{pf} = \Delta_{5/2}$

(6.5)

Aus diesen Transformationseigenschaften ergibt sich die spezielle Wahl der Koeffizienten in den Ausdrücken (6.3) und (6.4), denn beim stetigen Übergang vom relativistischen zum LSJ-Kopplungsmodell gilt für den Grenzfall:

$$\begin{aligned} \nu_{3/2} &= 1 & \Delta_{3/2}^{rel.} &= 0 \\ \nu_{5/2} &= 1 & \Delta_{5/2}^{rel.} &= 0 \end{aligned} \quad (6.6)$$

Vernachlässigt man auch noch die Feinstrukturaufspaltung des Anfangszustandes in die Komponenten $J_0 = 3/2$ und $J_0 = 5/2$ (reine LS-Kopplung, siehe Abschnitt

2.1.3), dann werden die Augerelektronen der beiden Übergänge $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$ und $M_5N_1N_{2,3}^1P_1$ nur noch durch ein einziges Amplitudenverhältnis μ und eine Phasendifferenz Δ beschrieben und die Notation des Übergangs vereinfacht sich zu

$$\text{Kr}(3d)^{-1} \ ^2D \quad \rightarrow \quad \text{Kr}(4s)^{-1}(4p)^{-1} \ ^1P + \begin{cases} \epsilon p & \rightarrow M_p, \delta_p \\ \epsilon f & \rightarrow M_f, \delta_f \end{cases}, \quad (6.7)$$

und es gilt im Grenzfall zum LSJ-Kopplungsmodell:

$$\mu_{3/2} = \mu_{5/2} = \mu \quad \Delta_{3/2}^{pf} = \Delta_{5/2}^{pf} = \Delta \quad (6.8)$$

6.2 Die Abhängigkeit unter den intrinsischen Parametern

In Analogie zum Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_1$ -Augerzerfall beziehungsweise zur Xe-5p-Photoionisation können auch für die Kr- $M_{4,5}N_1N_{2,3}^1P_1$ -Augerzerfälle die Existenzbeweise für eine Verknüpfung unter den intrinsischen Parametern anhand der entsprechenden in Anhang A angegebenen Formeln geführt werden (siehe Abschnitt 3.2.2). Die von N.M. Kabachnik explizit hergeleiteten Beziehungen lauten für Augerzerfälle mit Gesamtdrehimpuls des Anfangszustandes $J_0 = 3/2$ und Endzustandes $J_f = 1$ [50]:

$$\left[\alpha_2 - \sqrt{5} \left(\delta_1 - (-1)^l \xi_1 \right) \right]^2 + (2\xi_2)^2 = (1 + \alpha_2) \left[5 - \sqrt{5} \left(\delta_1 + 2(-1)^l \xi_1 \right) \right] \quad (6.9)$$

Und für $J_0 = 5/2$, $J_f = 1$:

$$\begin{aligned} & \left[\alpha_2 - \frac{1}{2} \sqrt{\frac{15}{2}} \left(\frac{3}{2} \delta_1 - (-1)^l \xi_1 \right) + \frac{1}{4} \sqrt{\frac{7}{2}} \right]^2 + (2\xi_2)^2 \\ & = \left(2\sqrt{\frac{2}{7}} + \alpha_2 \right) \left[3\sqrt{\frac{7}{2}} - \sqrt{\frac{15}{2}} \left(\delta_1 + 2(-1)^l \xi_1 \right) \right] \end{aligned} \quad (6.10)$$

Dabei wurden die intrinsischen Parameter δ_1 und ξ_1 anstatt β_1 und γ_1 entsprechend des Zusammenhangs (2.33) verwendet. Wie sich zeigen läßt, wird das Vorzeichen, mit dem der ξ_1 -Parameter in die Ausdrücke (6.9) und (6.10) eingeht, durch die Parität der erreichbaren Kontinuumszustände $\pi = (-1)^l$ bestimmt, die in den Fällen $M_{4,5}N_1N_{2,3}$ ungerade ist: $\pi = -1$. Die Formeln (6.9) und (6.10) gelten paritätsunabhängig und sind damit ein Stück allgemeiner, als die Gleichung (5.4). Letztere folgt unter Einsetzen von (2.33) in Gleichung (6.9) für gerade Parität $\pi = 1$.

Eine für beliebige Augerzerfälle allgemeingültige Beziehung unter den intrinsischen Parametern konnte, wie auch im Fall der Photoionisation, bisher noch nicht gefunden werden, obwohl ihre Existenz wahrscheinlich ist [46,50]. Für eine weitere Klasse von

Zerfällen mit Anfangszuständen $J_0 = 1/2$ kann die Beziehung hingegen für beliebige J_f angegeben werden [113].

Die Tatsache, daß die sich in den Gleichungen (3.24), (6.9) und (6.10) äußernde Abhängigkeit gleichermaßen für die Photoionisation und auch für den Augerzerfall gegeben ist, ist keineswegs selbstverständlich. Bei beiden handelt es sich schließlich um unterschiedliche physikalische Vorgänge, die durch verschiedene Operatoren mit unterschiedlichen Auswahlregeln beschrieben werden. Gemeinsam ist jedoch für beide Vorgänge die experimentelle Nachweismethode; die Beobachtung der Elektronenemission nach Anregung mit Licht. Die verwendeten Meßgrößen Intensitätswinkelverteilung und drei orthogonale Spinpolarisationskomponenten sind für sich frei ausbreitende Elektronen zweifelsfrei voneinander unabhängig. Und zwar in dem Sinne, daß für die Beschreibung eines beliebigen Ensembles vier unabhängige Parameter für eine eindeutige Beschreibung benötigt werden — drei für die Spinorientierung im Raum und einen, der die Winkelverteilung, die wiederum vom Bahndrehimpuls des Elektrons abhängt, charakterisiert. Dennoch sind diese Meßgrößen im Falle der Photoionisation und des Augerzerfalls offensichtlich miteinander verknüpft, obwohl der Prozeß durch genügend freie Parameter (Matrixelemente) beschrieben wird. Es besteht daher die Vermutung, daß es sich hierbei um die Konsequenz einer allgemeinen Symmetrieeigenschaft handelt, die zumindest für die hier untersuchten Fälle der Photoionisation und des Augerzerfalls gleichermaßen gilt. Diese zu erkennen, bedeutet den eigentlichen physikalischen Grund für die gefundenen Verknüpfung zu verstehen und erfordert weitere theoretische Untersuchungen.

Für die im folgenden bei der Diskussion der Kr- $M_{4,5}N_1N_{2,3}^1P_1$ -Zerfälle benötigte Form der Gleichungen (6.9) und (6.10) zu ungerader Parität findet man folgende kompaktere Form:

$$[\hat{\alpha}_2 + \hat{\beta}_1 + \hat{\gamma}_1]^2 + \hat{\xi}_2^2 = C \hat{\alpha}_2 \hat{\beta}_1 \quad (6.11)$$

Wobei wieder die Parameter β_1 und γ_1 verwendet werden und $\hat{\alpha}_2, \hat{\beta}_1, \hat{\gamma}_1, \hat{\xi}_2$ sowie die zusätzliche Konstante C im Fall $J_0 = 3/2$ durch:

$$J_0 = 3/2 \quad \left\{ \begin{array}{l} \hat{\alpha}_2 = (\alpha_2 + 1) \\ \hat{\beta}_1 = 2\sqrt{5} \left(\beta_1 + \frac{1}{\sqrt{5}} \right) \\ \hat{\gamma}_1 = \frac{1}{2}\sqrt{5} \left(\gamma_1 - \frac{2}{\sqrt{5}} \right) \\ \hat{\xi}_2 = 2\xi_2 \end{array} \right. \quad \text{mit } C = \frac{9}{2} \quad (6.12)$$

Und im Fall $J_0 = 5/2$ durch:

$$J_0 = 5/2 \quad \left\{ \begin{array}{l} \hat{\alpha}_2 = \left(\alpha_2 + \sqrt{\frac{8}{7}} \right) \\ \hat{\beta}_1 = -\frac{1}{4}\sqrt{\frac{15}{2}} \left(\beta_1 - \sqrt{\frac{7}{15}} \right) \\ \hat{\gamma}_1 = -\sqrt{\frac{15}{2}} \left(\gamma_1 + \frac{4}{\sqrt{105}} \right) \\ \hat{\xi}_2 = 2\xi_2 \end{array} \right. \quad \text{mit } C = 12 \quad (6.13)$$

gegeben ist. Die besondere Einfachheit der Ausdrücke (6.12) und (6.13) besteht darin, daß die linke Seite positiv definit ist, während gleichzeitig die rechte Seite durch ein Produkt aus zwei Kombinationen intrinsischer Parameter besteht, die vorzeichenbehaftet sind. Daher gilt $\hat{\alpha}_2 \hat{\beta}_1 \geq 0$. Ferner gilt der Spezialfall $\hat{\alpha}_2 = 0$, $\hat{\beta}_1 = 0$, $\hat{\gamma}_1 = 0$ und $\hat{\xi}_2 = 0$ gerade dann, wenn die intrinsischen Parameter die geometrischen Werte für 1S_0 -Endzustände aus Tabelle 2.1 annehmen.

6.3 Meßergebnisse

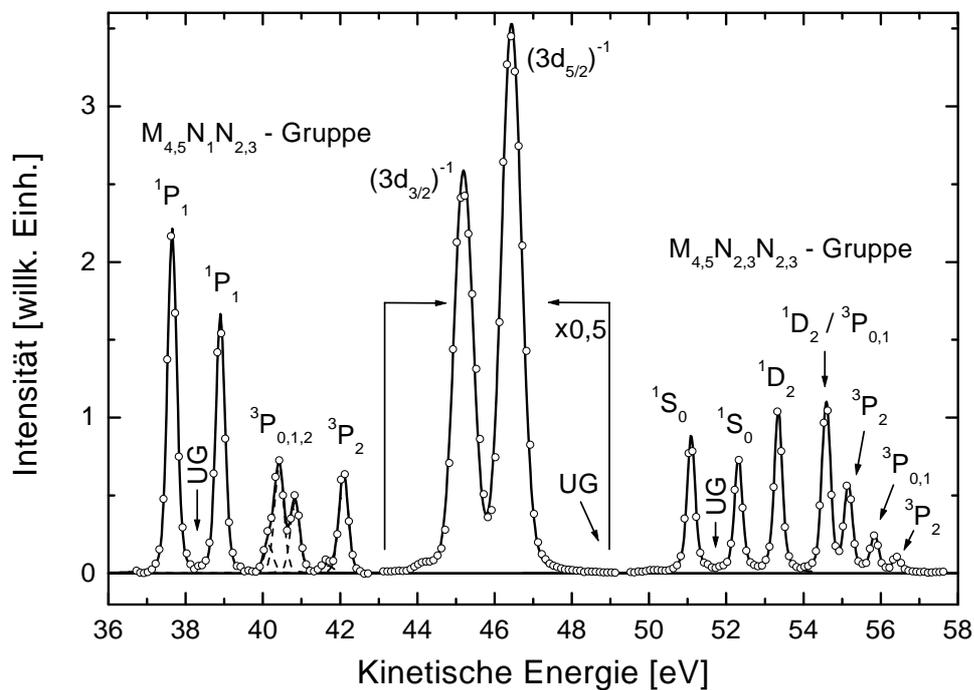


Abbildung 6.1: Elektronenspektrum an freien Kryptonatomen bei Anregung mit einer Photonenenergie von $h\nu = 140$ eV unter dem Reaktionswinkel $\Theta = 90^\circ$. Die Pass-Energie des Spektrometers betrug $E_p = 20$ eV. Die Bezeichnungen der Peaks kennzeichnen den Endzustand des zurückbleibenden Ions. Die Markierungen *UG* kennzeichnen die Positionen für die in Abschnitt 4.4 beschriebene Untergrundmessung.

Die Abbildung 6.1 zeigt ein spinintegriertes Elektronenspektrum an freien Kryptonatomen, das mit den Zählern des Mottpolarimeters bei ausgeschalteter Hochspannung aufgenommen wurde. Die Peaks zwischen 36 und 43 eV kinetischer Energie gehören zur $M_{4,5}N_1N_{2,3}$ -Augergruppe, während die $M_{4,5}N_{2,3}N_{2,3}$ -Gruppe bei entsprechend höherer kinetischer Energie zwischen 50 und 57 eV liegt. Bei einer Photonenenergie von $h\nu = 140$ eV liegen die Photoelektronen der $(3d_{3/2})$ -beziehungs-

weise ($3d_{5/2}$)-Schale aufgrund ihrer um 1.2 eV unterschiedlichen Bindungsenergie bei $E_{kin} = 45.0$ eV und 46.2 eV. Entsprechend sind auch die Linien der M_5 - gegenüber denen der M_4 -Augergruppen um 1.2 eV zu niedrigeren kinetischen Energien hin verschoben. Da der Monochromator der UE56/1-Beamline für diese Messung in erster Linie auf Photonenfluß optimiert wurde und daher nur eine moderate Auflösung besitzt, ist die Peakbreite der Photoelektronen im Spektrum mit $\text{FWHM} \approx 640$ meV entsprechend größer als die der Augerelektronen ($\text{FWHM} \approx 280$ meV für die 1S_0 -Augerlinien). Spinaufgelöste Messungen wurden an den Augerzerfällen $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$, $M_5N_1N_{2,3}^1P_1$ und zu Referenzzwecken an $M_4N_{2,3}N_{2,3}^1S_0$, $M_5N_{2,3}N_{2,3}^1S_0$ durchgeführt. Nebenbei wurde auch die Spinpolarisation der Photoelektronen ($3d_{3/2}$) $^{-1}$ und ($3d_{5/2}$) $^{-1}$ gemessen (die Ergebnisse hierzu sind in Anhang C.2.3 enthalten). Aufgrund der guten energetischen Trennung der Augerpeaks ist eine zusätzliche Untergrundkorrektur von Einflüssen durch Nachbarpeaks, im Gegensatz zum in Kapitel 5 diskutierten Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_1$ -Zerfall, hier nicht notwendig.

6.3.1 Referenzmessung an den $\text{Kr-}M_{4,5}N_{2,3}N_{2,3}^1S_0$ -Zerfällen

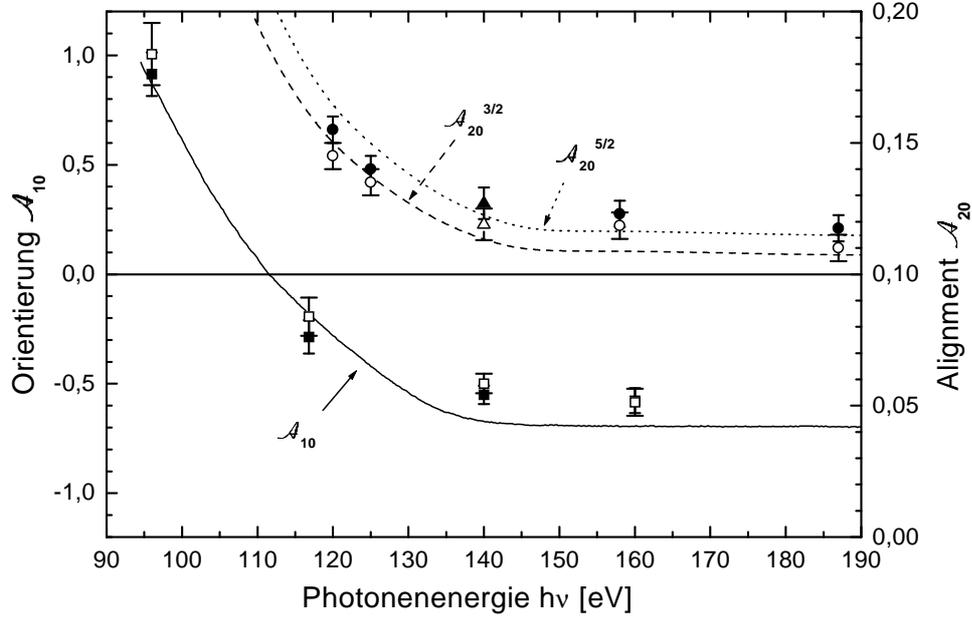


Abbildung 6.2: Orientierung und Alignment der $(3d_{3/2})^{-1}$ - und $(3d_{5/2})^{-1}$ -Löcher des Kryptonatoms in Abhängigkeit der Photonenergie für zirkular polarisierte Strahlung. Offene Symbole: $(3d_{3/2})^{-1}$; volle Symbole: $(3d_{5/2})^{-1}$; Quadrate: aus eigenen Messungen bestimmte Orientierung; durchgezogene Linie: Theorie [83] (um 8 eV zu kleineren Photonenergien hin verschoben); Kreise: experimentelle Werte für \mathcal{A}_{20} aus Ref. [112,114]; Dreieck: interpolierter Wert; unterbrochene Linien: Theorie [115].

In Analogie zum in Abschnitt 5.3.1 beschriebenen Verfahren läßt sich anhand der vorherbestimmten Werte für die intrinsischen Parameter der $\text{Kr-}M_{4,5}N_{2,3}N_{2,3}^1S_0$ -Augerelektronen (siehe Tabelle 2.1) unter Verwendung der Formeln (2.30) beziehungsweise (2.32) die Orientierung der Lochzustände $(3d_{3/2})^{-1}$ und $(3d_{5/2})^{-1}$ bestimmen. Dazu wurden für vier verschiedene Photonenergien die Spinpolarisationskomponenten P_x und P_z am magischen Winkel gemessen. Die daraus resultierenden Werte für \mathcal{A}_{10} sind in Abbildung 6.2 zusammen mit der theoretischen Vorhersage aus Ref. [83] gezeigt. Bei einer Photonenergie von $h\nu = 140$ eV erhalten wir eine für beide Feinstrukturkomponenten als gleich angenommene Orientierung von $\mathcal{A}_{10} = -0.53 \pm 0.07$. Des weiteren sind in Abbildung 6.2 einige experimentelle Werte für den Alignmentparameter \mathcal{A}_{20} gezeigt, die von Kämmerling et al. aus Intensitätswinkelverteilungsmessungen bestimmt wurden [112,114]. Durch Interpolation und Vergleich zur Theorie aus Ref. [115] erhalten wir bei $h\nu = 140$ eV für den Alignmentparameter die Werte $\mathcal{A}_{20}^{3/2} = 0.119 \pm 0.007$ und $\mathcal{A}_{20}^{5/2} = 0.127 \pm 0.007$,

die für die weiteren Analysen verwendet wurden. Das theoretische Verhältnis zwischen den Alignmentparametern zu den beiden Feinstrukturkomponenten beträgt in LSJ-Näherung $\mathcal{A}_{20}^{3/2}/\mathcal{A}_{20}^{5/2} = \sqrt{7/8}$. Da dieser Wert in LSJ-Näherung nur durch Kopplungskoeffizienten, die von J_0 und L_0 abhängen, festgelegt ist, ist er zu dem in Abschnitt 5.3.1 für den Fall der Xe-4d-Photoionisation verwendeten identisch [83].

Abbildung 6.3 zeigt das Ergebnis für die Messung der Winkelverteilung der Spinpolarisationskomponenten P_x und P_z an den Kr- $M_{4,5}N_{2,3}N_{2,3}^1S_0$ -Augerelektronen. Entsprechend den Formeln (2.30) und (2.32) zeigen die beiden Spinpolarisationskomponenten die Winkelabhängigkeiten $P_z \propto \cos \Theta$ und $P_x \propto \sin \Theta$, was bei $\Theta = 90^\circ$ zu einem Vorzeichenwechsel in P_z und zu einem Extremum in P_x führt. Aufgrund des Vorzeichenwechsels der Komponente P_z ist diese besonders empfindlich auf kleine Abweichungen von der Form der Gleichung (2.32), die apparativ bedingt sein können. Anhang C.2 enthält eine ausführliche Diskussion und eine quantitative Bewertung verschiedener möglicher Ursachen für die in den Spinpolarisationsdaten tatsächlich messbare Abweichung dieser Art. Die in diesem Kapitel herangezogenen Spinpolarisationsdaten wurden nachträglich mit dem in Anhang C.2.1 beschriebenen Verfahren bezüglich dieser Abweichung korrigiert.

Für eine quantitative Analyse können die Meßdaten an die Formeln (2.30) und (2.32) in Analogie zu Abschnitt 5.3.1 durch „least squares“-Ausgleichsrechnungen angepasst werden, um den Proportionalitätsfaktor Λ zu bestimmen (siehe (5.5)). Das Ergebnis ist in Tabelle 6.1 und die zugehörigen Ausgleichskurven in Abbildung 6.3 gezeigt. Die Übereinstimmung von Λ für alle vier voneinander unabhängigen Messungen zeigt die Konsistenz des Experimentes und der Auswertungsprozedur. Ferner besteht Übereinstimmung mit den einzeln bestimmten Werten für das Analysiervermögen und die Orientierung. Mit dem Wert für S_{eff} aus Abschnitt 4.1.2, $P_{\text{zirk}} = 1.0$ ¹ und \mathcal{A}_{10} aus Abbildung 6.2 erhält man $\Lambda = 0.129 \pm 0.20$.

Tabelle 6.1: Ausgleichsergebnis für das Produkt aus Analysiervermögen und Orientierung der Innerschalenlöcher: $\Lambda = S_{\text{eff}}\mathcal{A}_{10}$; abgeleitet aus den Messungen der Spinpolarisation $P_x(\Theta)$ und $P_z(\Theta)$ für die Kr- $M_{4,5}N_{2,3}N_{2,3}^1S_0$ -Übergänge.

Komponente	$(3d_{3/2})^{-1}$	$(3d_{5/2})^{-1}$	Mittelwert
P_x	0.126 _{0.013} ^{0.013}	0.129 _{0.013} ^{0.013}	0.131 _{0.008} ^{0.008}
P_z	0.138 _{0.017} ^{0.017}	0.138 _{0.023} ^{0.023}	

¹Berechnete Angabe von BESSY.

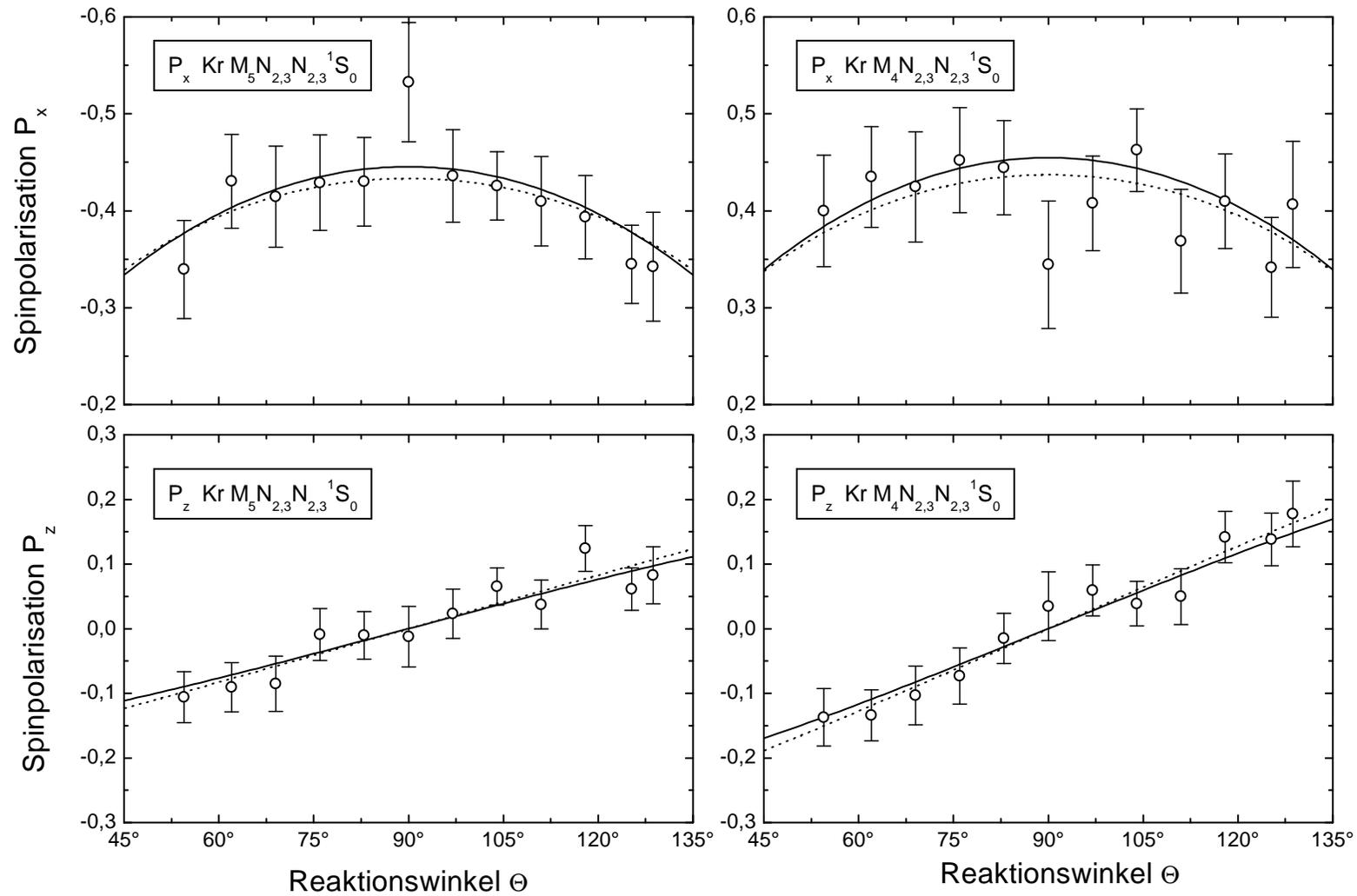


Abbildung 6.3: Winkelverteilung der Spinpolarisationskomponenten P_x und P_z für die $\text{Kr}-M_{4,5}N_{2,3}N_{2,3}^1S_0$ -Augerzerfälle. Unterbrochene Linien: Ausgleichsergebnis; durchgezogene Linien: geometrisch festgelegte Spinpolarisation.

6.3.2 Messung an den Kr- $M_{4,5}N_1N_{2,3}^1P_1$ -Zerfällen

Die Abbildung 6.4 zeigt die Winkelverteilung der Spinpolarisationskomponenten P_x und P_z für die beiden Augerzerfälle Kr- $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$ und Kr- $M_5N_1N_{2,3}^1P_1$. Unter Verwendung der experimentell durch Kämmerling et al. [112] bestimmten Anisotropieparameter α_2 und dem Proportionalitätsfaktor Λ aus Abschnitt 6.3.1 erhält man durch Ausgleichsrechnung über die Formeln (2.30) und (2.32) die Werte für die intrinsischen Parameter δ_1 und ξ_1 . Das Ergebnis ist in Abbildung 6.4 gezeigt und die expliziten Werte für die intrinsischen Parameter sind in Tabelle 6.2 angegeben.

Tabelle 6.2: Ausgleichsergebnis einer „least squares“-Anpassung an die experimentellen Daten für die intrinsischen Parameter δ_1 und ξ_1 der Augerzerfälle Kr- $M_{4,5}N_1N_{2,3}^1P_1$.

Übergang	δ_1	ξ_1
$M_4N_1N_{2,3}^1P_1$	0.07 $\begin{smallmatrix} 0.05 \\ 0.05 \end{smallmatrix}$	0.72 $\begin{smallmatrix} 0.10 \\ 0.10 \end{smallmatrix}$
$M_5N_1N_{2,3}^1P_1$	0.51 $\begin{smallmatrix} 0.04 \\ 0.04 \end{smallmatrix}$	-0.79 $\begin{smallmatrix} 0.10 \\ 0.10 \end{smallmatrix}$

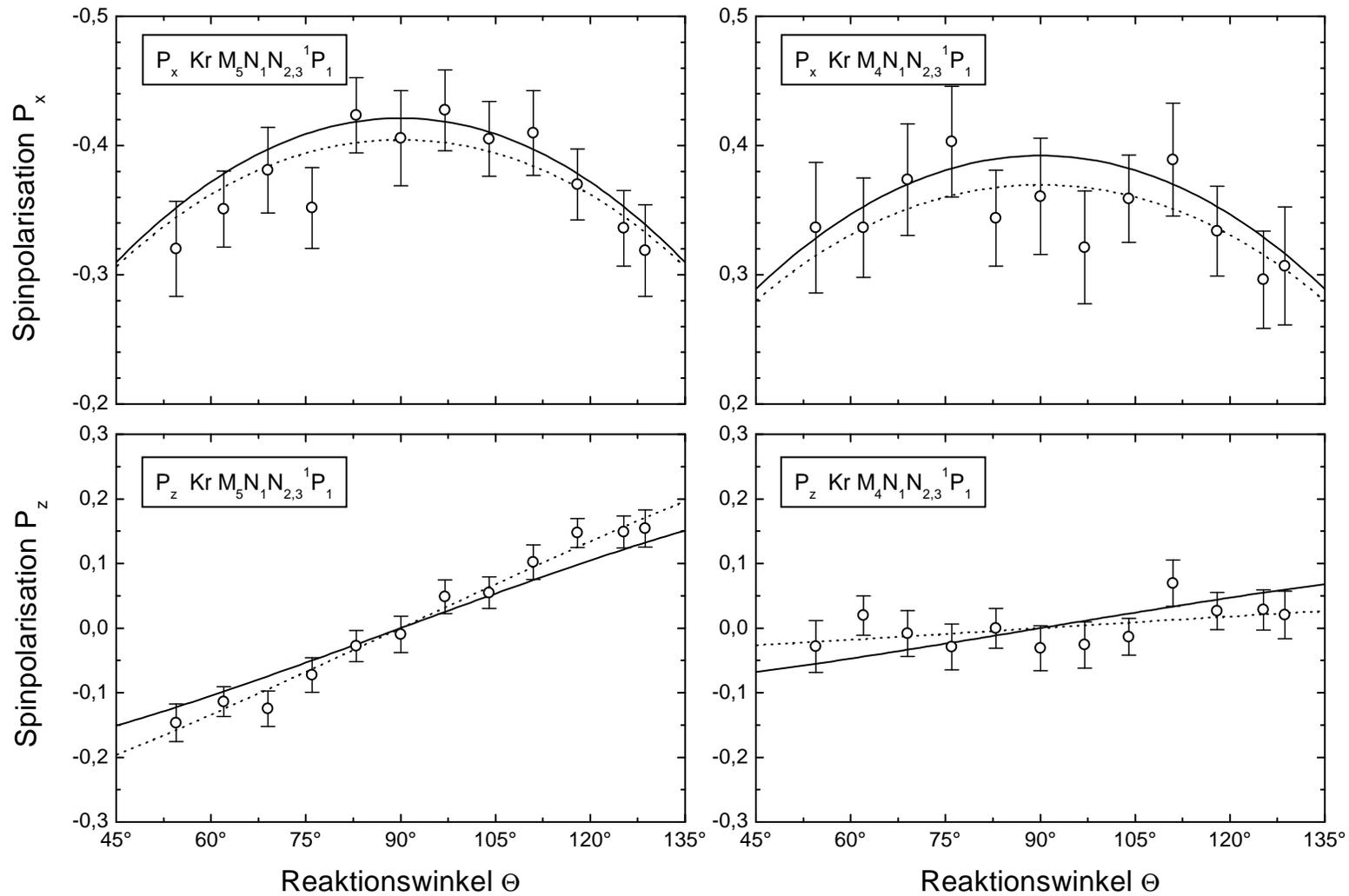


Abbildung 6.4: Winkelverteilung der Spinpolarisationskomponenten P_x und P_z für die $\text{Kr}-M_{4,5}N_1N_{2,3}^1P_1$ -Augerzerfälle. Unterbrochene Linien: Ausgleichsergebnis; durchgezogene Linien: LS-HF Theorie [83].

6.4 Diskussion der Meßergebnisse

Die für die weitere Diskussion verwendeten experimentellen intrinsischen Parameter sind nochmals in der ersten Zeile der Tabelle 6.3 für die Zerfälle Kr- $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$ und Kr- $M_5N_1N_{2,3}^1P_1$ zusammengestellt. Die zweite Zeile enthält diejenigen Parameter, die unter der Randbedingung (6.11) den kleinsten Abstand von den experimentellen Parametern besitzen. Ihre Berechnung erfolgte analog zu dem in Abschnitt 3.2.3 beschriebenen Verfahren durch Minimierung der Funktion χ^2 , die analog zu Gleichung (3.22) definiert wurde. Dieser Satz intrinsischer Parameter (EXP-OPT) stellt den bezüglich der experimentellen Meßwerte optimalen Parametersatz im Rahmen des relativistischen Modells dar. Des weiteren liefert dieser Parametersatz indirekt einen Wert für den ξ_2 -Parameter, der in der letzten Spalte der zweiten Zeile enthalten ist. Die theoretischen intrinsischen Parameter sind mit verschiedenen Näherungen berechnet worden: Im Rahmen des reinen LS-Kopplungsmodells gibt es Rechnungen mit Hartree-Slater- (LS-HS) [116] und Hartree-Fock- (LS-HF) [83] Wellenfunktionen, sowie eine MBPT-Rechnung, die Elektron-Elektron-Korrelationen mit berücksichtigt (LS-MBPT) [83]. Die einzige Rechnung, die über den Rahmen des LS-Kopplungsmodells hinaus geht, ist die MMCDF-Rechnung [110], die allerdings nur für die Parameter α_2 und ξ_2 durchgeführt wurde.

Zunächst läßt sich feststellen, daß die Mittelwerte der experimentellen intrinsischen Parameter die Gleichung (6.11) nicht erfüllen, denn es gilt für beide Übergänge: $\hat{\alpha}_2\hat{\beta}_1 < 0$. Aus diesem Grund sind die Zahlenwerte des optimalen Parametersatzes (EXP-OPT) und die des experimentellen nicht identisch. Des weiteren sind die Fehlergrenzen für den β_1 -Parameter des Satzes EXP-OPT deutlich kleiner als die des experimentellen β_1 -Parameters. Der Grund dafür ist die zusätzliche Einschränkung des Fehlerintervalls auf den durch die Gleichung (6.11) erlaubten Bereich. (Dies wird weiter unten noch ausführlicher diskutiert.) Wie man sieht, ist die Abweichung beider Parametersätze untereinander so gering, daß sie gegenüber der statistischen Unsicherheit vernachlässigt werden kann. Die Gleichung (6.11) ist damit experimentell erfüllt.

Beim Vergleich der experimentellen mit den theoretischen Werten, stellt man fest, daß der Absolutwert für den ξ_2 -Parameter in Übereinstimmung mit allen Rechnungen sehr klein ist; dies allerdings mit einer relativ großen Unsicherheit. Für die anderen intrinsischen Parameter besteht für die LS-Rechnungen eine qualitativ recht gute Übereinstimmung, während die MMCDF-Rechnung einen zu kleinen Anisotropieparameter α_2 liefert. Die beste Übereinstimmung mit den experimentellen Parametern ist für die LS-HF- und LS-MBPT-Rechnungen gegeben. Dabei ist zu bemerken, daß Elektron-Elektron-Korrelationen für die hier diskutierten Übergänge auf die Werte der intrinsischen Parameter kaum Einfluß haben; die Ergebnisse der MBPT- und HF-Rechnung unterscheiden sich praktisch nicht. Zur Illustration ist die LS-HF-Rechnung in Abbildung 6.4 neben dem optimalen Ausgleichsergebnis mit eingezeichnet.

Tabelle 6.3: Experimentelle Werte für die intrinsischen Parameter der Kr- $M_{4,5}N_1N_{2,3}^1P_1$ -Augerzerfälle im Vergleich mit verschiedenen theoretischen Werten. Die experimentellen Parameter β_1 und γ_1 sind aus den Werten für δ_1 und ξ_1 aus Tabelle 6.2 über die Zusammenhänge (2.33) berechnet worden.

	α_2	β_1	γ_1	ξ_2
Kr- $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$				
Experiment	$-0.77 \begin{smallmatrix} 0.04 \\ 0.04 \end{smallmatrix})^a$	$-0.46 \begin{smallmatrix} 0.07 \\ 0.07 \end{smallmatrix}$	$0.53 \begin{smallmatrix} 0.07 \\ 0.07 \end{smallmatrix}$	
EXP-OPT ^b	$-0.76 \begin{smallmatrix} 0.03 \\ 0.05 \end{smallmatrix}$	$-0.44 \begin{smallmatrix} 0.05 \\ 0.01 \end{smallmatrix}$	$0.51 \begin{smallmatrix} 0.09 \\ 0.05 \end{smallmatrix}$	$0.00 \begin{smallmatrix} 0.23 \\ 0.23 \end{smallmatrix}$
LS-HS [116]	-0.81	$-\frac{1}{\sqrt{5}})^c$	0.72^d	$0)^c$
LS-HF [83]	-0.70^d	$-\frac{1}{\sqrt{5}})^c$	0.63	$0)^c$
LS-MBPT [83]	-0.68^d	$-\frac{1}{\sqrt{5}})^c$	0.61	$0)^c$
MMCDF [110]	-0.59			$+0.00$
Kr- $M_5N_1N_{2,3}^1P_1$				
Experiment	$-0.72 \begin{smallmatrix} 0.04 \\ 0.04 \end{smallmatrix})^a$	$0.70 \begin{smallmatrix} 0.07 \\ 0.07 \end{smallmatrix}$	$-0.19 \begin{smallmatrix} 0.07 \\ 0.07 \end{smallmatrix}$	
EXP-OPT ^b	$-0.72 \begin{smallmatrix} 0.04 \\ 0.04 \end{smallmatrix}$	$0.67 \begin{smallmatrix} 0.01 \\ 0.04 \end{smallmatrix}$	$-0.18 \begin{smallmatrix} 0.06 \\ 0.08 \end{smallmatrix}$	$0.00 \begin{smallmatrix} 0.15 \\ 0.15 \end{smallmatrix}$
LS-HS [116]	-0.86	$\sqrt{\frac{7}{15}})^c$	-0.31^d	$0)^c$
LS-HF [83]	-0.77^d	$\sqrt{\frac{7}{15}})^c$	-0.28	$0)^c$
LS-MBPT [83]	-0.74^d	$\sqrt{\frac{7}{15}})^c$	-0.27	$0)^c$
MMCDF [110]	-0.57			0.03

^a Experiment von Kämmerling et al. [112].

^b Parametersatz erfüllt die Einschränkung durch Gleichung (6.11).

^c Geometrisch festgelegt, ($-1/\sqrt{5} \approx -0.45$, $\sqrt{7/15} \approx 0.68$).

^d Bestimmt anhand der Gleichungen (6.17) bzw. (6.18).

Sind wir in einem weiteren Schritt an der Extraktion von Coulombmatrixelementen interessiert, so stehen wir aufgrund der Existenz der Gleichung (6.11) vor derselben Situation eines unterbestimmten Gleichungssystems wie für den in Kapitel 5 diskutierten Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_1$ -Augerzerfall. Die Berechnung der Lösungskurven $\vec{g}(t)$ für die beiden Zerfälle Kr- $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$ und Kr- $M_5N_1N_{2,3}^1P_1$ anhand der entsprechenden Gleichungssysteme aus Anhang A erfolgt daher völlig analog und liefert das in Abbildung 6.5 für den Kr- $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$ - und in Abbildung 6.6 für den Kr- $M_5N_1N_{2,3}^1P_1$ -Augerzerfall gezeigte Ergebnis.

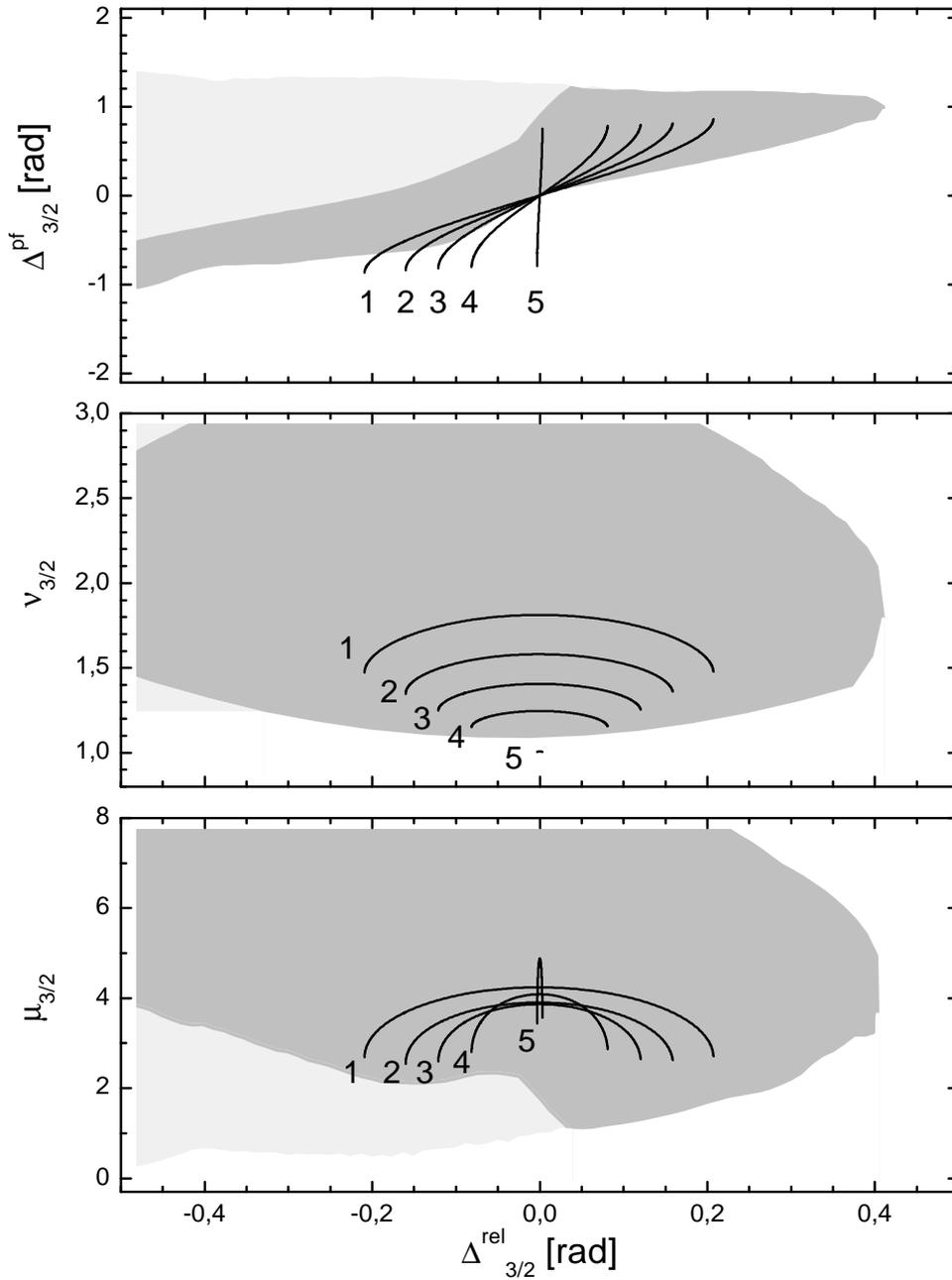


Abbildung 6.5: Matrixelemente für den Kr- $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$ -Zerfall. Linie 1: Lösungskurve im Rahmen des relativistischen Modells zum Parametersatz EXP-OPT aus Tabelle 6.3. Linien 2...5: Lösungskurven, zu den gegen die LS-Kopplungsgrenze konvergierenden Testpunkten gehörend (siehe Text); grau schattiertes Gebiet: Bereich, der alle mit den experimentellen Meßwerten innerhalb eines Standardfehlers verträglichen Lösungskurven einschließt; (dunkelgrau: zusätzliche Einschränkung $|\xi_2| < 0.03$; hellgrau: $|\xi_2|$ frei variabel innerhalb 1σ).

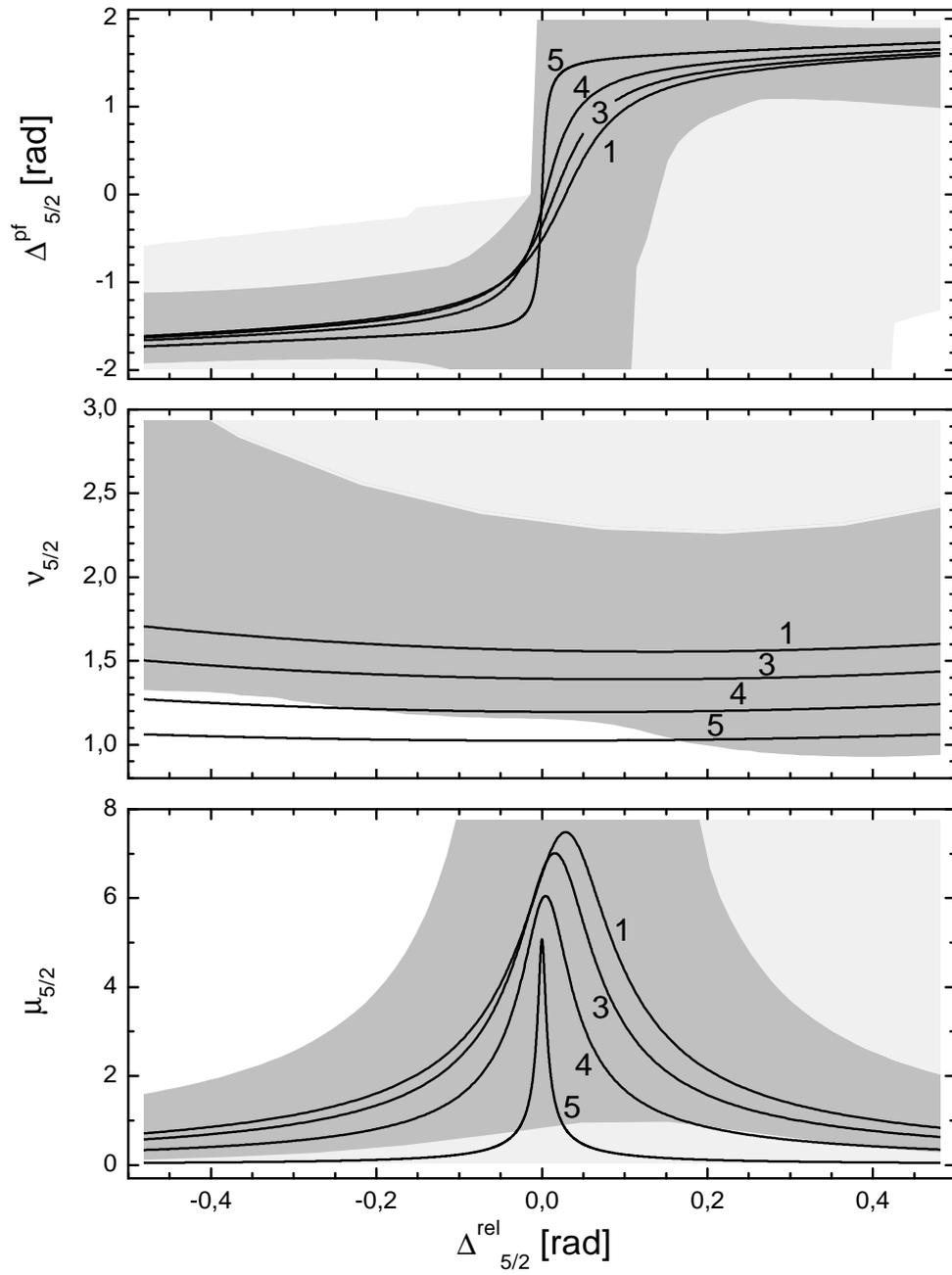


Abbildung 6.6: Matrixelemente für den $\text{Kr}-M_5N_1N_{2,3}^1P_1$ -Zerfall. Es gelten dieselben Bezeichnungen wie in Abbildung 6.5.

Auch in den Abbildungen 6.5 und 6.6 sind nur die Lösungskurven zu positivem ξ_2 -Parameter angegeben; die zu negativem ξ_2 erhält man wie in Abschnitt 5.4.2. Wie sich herausstellt, sind die Lösungskurven für den $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$ -Zerfall von geschlossener Art, so daß für die Größen $\mu_{3/2}$, $\nu_{3/2}$ und $\Delta_{3/2}^{pf}$ im für die relativistische Phasendifferenz $\Delta_{3/2}^{rel.}$ erlaubten Bereich zwei Lösungen angenommen werden. Die Lösungskurven für den $M_5N_1N_{2,3}^1P_1$ -Zerfall sind hingegen offen und diesbezüglich eindeutig. In Abbildung 6.5 ist für den $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$ -Zerfall nur derjenige Zweig der Lösungskurve gezeigt, für den die Erwartung gleicher Größenordnung für die Amplitudenverhältnisse $\mu_{3/2} \approx \mu_{5/2}$ erfüllt ist. Die angegebenen Fehlerbereiche sind in derselben Art und Weise berechnet worden, wie in Abschnitt 5.4.2 beschrieben.

Wie man sieht, ist der Fehlerbereich für die extrahierten Matrixelemente extrem groß, so daß eine quantitative Aussage über die tatsächlichen Werte der Amplitudenverhältnisse und Phasendifferenzen auch unter der Einschränkung einer verschwindenden relativistischen Phasendifferenz $\Delta^{rel.} \approx 0$ (siehe Abschnitt 2.1.3) nicht möglich ist. Diese große Empfindlichkeit der Matrixelemente auf kleine Schwankungen in den intrinsischen Parametern steht im Gegensatz zum Verhalten des untersuchten Xe- $N_4O_{2,3}N_{2,3}^3P_1$ -Augerzerfalls, für den eine quantitative Angabe der Matrixelemente möglich ist. Anhand der Lösungskurven und des Verlaufs der Fehlerbereiche in den Abbildungen 6.5 und 6.6 läßt sich unter der Annahme $\Delta^{rel.} \approx 0$ lediglich die Andeutung gewinnen, daß das Verhältnis zwischen f - und p -Welle große Werte annimmt, $\mu > 1$.

Um zu verstehen, wie es zu dieser großen Empfindlichkeit kommt, ist es erforderlich, die $M_{4,5}N_1N_{2,3}^1P_1$ -Augerzerfälle im Rahmen des vereinfachten LS-Kopplungsmodells zu diskutieren. Zunächst führt die in Abschnitt 2.1.3 beschriebene Näherung des LSJ-Kopplungsfalls zu besonderen zusätzlichen Einschränkungen für die intrinsischen Parameter: Für Augerzerfälle in ionische Endzustände mit *Singlet*-Symmetrie ($S_f = 0$) verschwindet zum einen die dynamische Spinpolarisation [81]:

$$\xi_2 = 0 \quad (6.14)$$

Ferner ist der β_1 -Parameter unabhängig von Coulombmatrixelementen und nimmt geometrisch vorherbestimmte Werte an [83]:

$$\beta_1^{3/2} = -\frac{1}{\sqrt{5}} \quad (6.15)$$

$$\beta_1^{5/2} = \sqrt{\frac{7}{15}} \quad (6.16)$$

Der hochgestellte Index kennzeichnet dabei den Drehimpuls des Lochzustandes J_0 . Die Beziehungen (6.14), (6.15) und (6.16) sind eine direkte Folge der Erhaltung des Gesamtbahndrehimpulses L und des Gesamtspins S [117].

Des weiteren besteht, wie ebenfalls bereits in Ref. [83] erwähnt, eine direkte Proportionalität zwischen den Parametern α_2 und γ_1 :

$$\alpha_2^{3/2} = -\frac{1}{2}\sqrt{5}\gamma_1^{3/2} \quad (6.17)$$

$$\alpha_2^{5/2} = \sqrt{\frac{15}{2}}\gamma_1^{5/2} \quad (6.18)$$

Dabei ist zu bemerken, daß sich die beiden letztgenannten Gleichungen (6.17) und (6.18) aus der Gleichung (6.11) ergeben, wenn man dort die Werte (6.14), (6.15) und (6.16) einsetzt. Aufgrund der Beziehungen (6.14)–(6.18), die sich natürlich auch direkt durch Einsetzen der Gleichungen (6.6) in die entsprechenden Formeln aus Anhang A ergeben, ist im Rahmen des LSJ-Kopplungsmodells für beide Feinstrukturkomponenten jeweils nur ein intrinsischer Parameter in nichttrivialer Weise von den Coulombmatrixelementen abhängig; beispielsweise $\gamma_1^{3/2}$ und $\gamma_1^{5/2}$. Alle anderen sind anhand der Gleichungen (6.14)–(6.18) automatisch bestimmt, wobei der Grund dafür die Symmetrie — insbesondere der Singlet-Charakter — des ionischen Endzustandes ist.

Im Rahmen der in Abschnitt 2.1.3 beschriebenen reinen LS-Kopplungsnaheung führt die Verknüpfung der Matrixelemente der beiden Feinstrukturkomponenten durch (6.7) zu der weiteren Einschränkung [116]

$$\alpha_2^{3/2} = \sqrt{\frac{7}{8}}\alpha_2^{5/2}, \quad (6.19)$$

womit sich aus (6.17) und (6.18) auch ein festes Verhältnis für die γ_1 -Parameter ergibt:

$$\gamma_1^{3/2} = -\frac{1}{2}\sqrt{21}\gamma_1^{5/2} \quad (6.20)$$

Im reinen LS-Kopplungsfall bleibt also für den Übergang $MN_1N_{2,3}^1P$ nur noch ein einziger unabhängiger intrinsischer Parameter übrig; beispielsweise $\gamma_1^{3/2}$.

Der Abstand der experimentellen Daten vom LSJ-Kopplungsfall läßt sich in besonderer Weise anhand des β_1 -Parameters quantifizieren, denn wie aus der allgemeingültigen Gleichung (6.11) folgt, gilt grundsätzlich $\hat{\beta}_1 \geq 0^2$. Das bedeutet, daß die β_1 -Parameter durch Extremwerte begrenzt sind, die nicht überschritten werden können. Diese Extremwerte stimmen gleichzeitig mit den im LSJ-Kopplungsfall geforderten Werten (6.15) und (6.16) überein. D.h. wenn β_1 sein Extremum erreicht ($\beta_1 \rightarrow \beta_1^{LS}$), müssen automatisch alle Bedingungen (6.14)–(6.18) erfüllt werden. Die Aussage $\beta_1 = \beta_1^{LS}$ ist daher zu dem LSJ-Kopplungsfall *äquivalent* und die Abweichung des β_1 -Parameters von seinem Extremwert kann als Maß für die Abweichung

²Genaugenommen gilt $\hat{\alpha}_2\hat{\beta}_1 \geq 0$. Da jedoch aufgrund des experimentellen α_2 -Parameters $\hat{\alpha}_2 > 0$ sicher erfüllt ist, braucht der Fall $\hat{\alpha}_2 < 0$ nicht diskutiert zu werden.

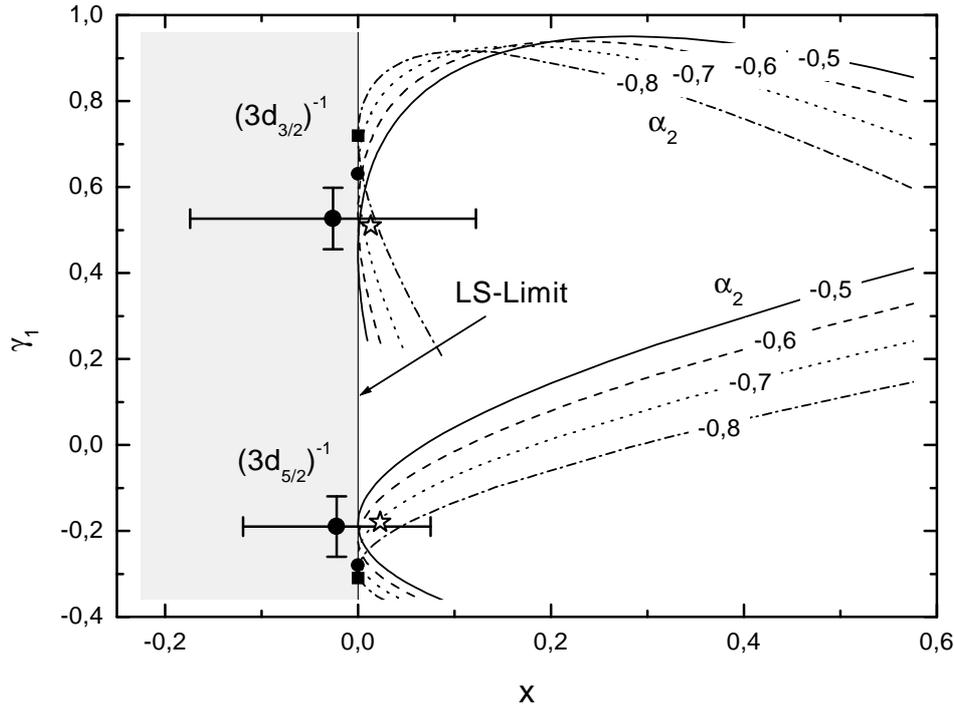


Abbildung 6.7: Verknüpfung zwischen γ_1 und x für beide Übergänge zu $J_0 = 3/2$ und $J_0 = 5/2$. Linien unterschiedlichen Strichtyps: Gleichung (6.11) zu verschiedenen Werten für α_2 mit $\xi_2 = 0$; Kreis mit Fehlerbalken: Experiment; Kreis: LS-HF-; Quadrat: LS-HS-Theorie; Sternchen: EXP-OPT.

vom LSJ-Kopplungsfall verwendet werden:

$$x = \frac{\beta_1^{LS} - \beta_1}{\beta_1^{LS}} \quad (6.21)$$

Mit dieser Definition beschreibt x die relative Abweichung des β_1 -Parameters von seinem Grenzwert, es gilt $x \propto \hat{\beta}_1$ und beide Größen besitzen dasselbe Vorzeichen ($\text{sgn}(x) = \text{sgn}(\hat{\beta}_1)$).

Bestimmt man die Größe x aus den experimentellen β_1 -Parametern aus Tabelle 6.3, so erhält man $x = -2.6\% \pm 14.8\%$ für den Kr- $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$ und $x = -2.2\% \pm 9.7\%$ für den Kr- $M_5N_1N_{2,3}^1P_1$ -Augerzerfall. Das negative Vorzeichen spiegelt hierbei die Nichterfüllung der Gleichung (6.11) für die Mittelwerte der experimentellen Parameter wieder. Für den β_1 -Parameter des Parametersatzes EXP-OPT erhält man entsprechend $x = 1.3\% \begin{smallmatrix} 8.0\% \\ 1.3\% \end{smallmatrix}$ für den Kr- $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$ - und $x = 2.3\% \begin{smallmatrix} 6.9\% \\ 2.3\% \end{smallmatrix}$ für den Kr- $M_5N_1N_{2,3}^1P_1$ -Augerzerfall. Abbildung 6.7 stellt diesen Sachverhalt graphisch dar, indem der Parametersatz auf die durch γ_1 und x aufgespannte Ebene projiziert wird. Der grau unterlegte Bereich stellt den durch die Gleichung (6.11) nicht zu-

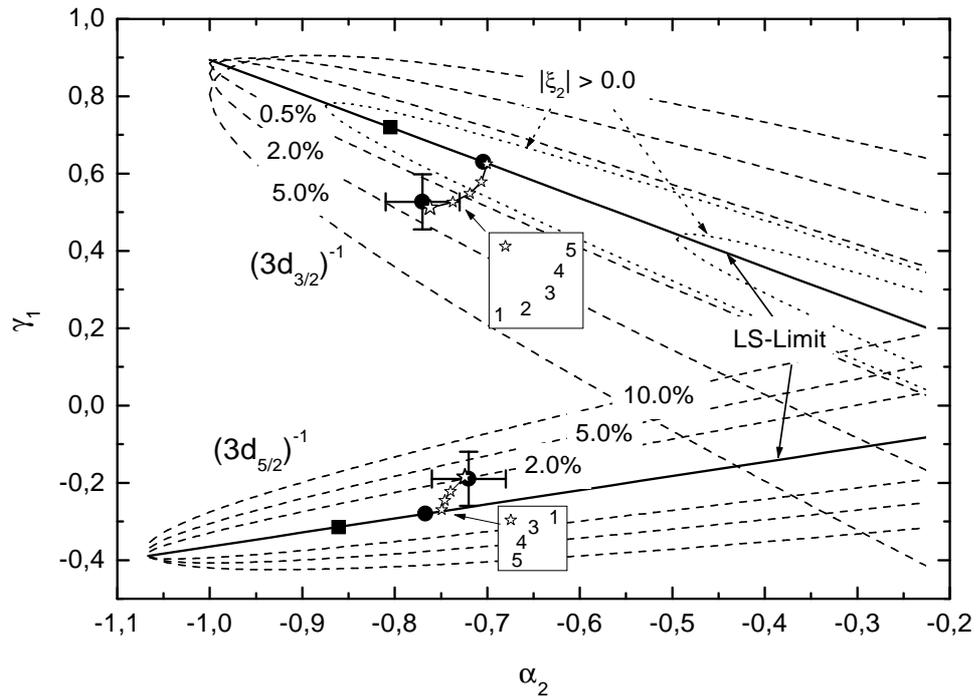


Abbildung 6.8: Verknüpfung zwischen γ_1 und α_2 für beide Übergänge zu $J_0 = 3/2$ und $J_0 = 5/2$. Durchgezogene Linien: Gleichungen (6.17) und (6.18); gestrichelte Linien: Gleichung (6.11) für $\xi_2 = 0$ und verschiedene Werte für x . Zwei gepunktete Linien: $x = 0.5$ und $|\xi_2| = 0.075$ bzw. $|\xi_2| = 0.150$; Kreis mit Fehlerbalken: Experiment; Kreis: LS-HF-; Quadrat: LS-HS-Theorie; offene Sternchen: hypothetische gegen den Grenzfall der LS-Kopplung konvergierende Testpunkte (Numerierung 1...5 identisch mit den Abbildungen 6.5 und 6.6).

gelassenen Bereich dar. Zusätzlich sind die Beziehungen zwischen γ_1 und x , die sich entsprechend der Gleichung (6.11) ergeben, für beide Feinstrukturkomponenten dargestellt. Alle Parametersätze, die das LSJ-Kopplungsmodell exakt erfüllen, liegen auf der Grenze $x = 0$. Man erkennt, daß der optimale Parametersatz EXP-OPT im erlaubten Bereich liegt ($x > 0$) und sich dabei noch sehr gut innerhalb des einfachen statistischen Fehlerbereichs befindet. Insbesondere ist auch der exakte Grenzfall $x = 0$ innerhalb des Fehlers erlaubt.

In Analogie lassen sich die Verhältnisse auch in der Projektion γ_1 - α_2 darstellen (Abbildung 6.8). Der LSJ-Kopplungsgrenzfall ist in dieser Darstellung durch die geraden Linien entsprechend der Beziehungen (6.17) und (6.18) gegeben. Die unterbrochenen Linien kennzeichnen die Gleichung (6.11) für $\xi_2 = 0$ und verschiedene Werte für $x > 0$. Die Abbildung verdeutlicht, daß die durch die gestrichelten Linien eingeschlossenen Flächen für die Parameter α_2 und γ_1 zu einem jeweils fest vorgegebenem Zahlenwert x erlaubt sind, wenn der ξ_2 -Parameter beliebige Werte annimmt. Nähert

man sich der Grenze zum LSJ-Kopplungsfall ($x \rightarrow 0$), dann entartet diese Fläche zu einer eindimensionalen Linie, die durch die Gleichungen (6.17) beziehungsweise (6.18) gegeben ist und es gibt keine Freiheit mehr für den ξ_2 -Parameter. Betrachtet man die Lage des Parametersatzes EXP-OPT, so erkennt man, daß besonders für den Kr- $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$ -Augerzerfall eine Abweichung von der LSJ-Kopplungsgrenze besteht. Das bedeutet, daß die Gleichung (6.17) innerhalb des einfachen statistischen Fehlers nicht erfüllt wird. In Anbetracht der Tatsache, daß die Parameter γ_1 und α_2 unabhängig voneinander mit verschiedenen Meßmethoden bestimmt worden sind, ist diese Abweichung jedoch als gering einzustufen (innerhalb des zweifachen statistischen Fehlers ist wieder Übereinstimmung erreicht). Für eine präzise experimentelle Überprüfung aller Gleichungen (6.14)–(6.18) wäre eine wesentlich bessere Statistik erforderlich.

Die Tatsache, daß der LSJ-Kopplungsfall äquivalent zu einem seinen Grenzwert annehmenden β_1 -Parameter ist, ist eine Besonderheit der hier diskutierten Übergänge und folgt aus der Analyse der expliziten Form der Gleichung (6.11). Aus diesem Grund läßt sich aus der Nähe der experimentellen intrinsischen Parameter zu diesem Grenzfall schließen, daß der LSJ-Kopplungsfall auch tatsächlich erfüllt ist. Vergleichen wir diese Situation mit dem in Kapitel 5 diskutierten Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_1$ -Augerzerfall, so ergibt sich auch dort eine Grenze für β_1 mit entsprechenden Konsequenzen für die anderen intrinsischen Parameter. Jedoch entspricht diese Grenze nicht dem LSJ-Kopplungsfall, der ja auch für den Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_1$ -Augerzerfall im Rahmen der diskutierten Abweichung recht gut erfüllt ist.

Die Annahme des LSJ-Kopplungsfalls für die Kr- $M_{4,5}N_1N_{2,3}^1P_1$ -Augerzerfälle bedeutet, daß die Symmetrie des ionischen Endzustands wirklich durch den Gesamtspin S_f und den Gesamtbahndrehimpuls L_f festgelegt ist auf eine reine 1P_1 -Symmetrie. Dieses Ergebnis entspricht nicht unbedingt der Erwartung, denn es ist aufgrund der Lage ihrer kinetischen Energien bekannt, daß gerade diese Augerzerfälle mit einer $s^{-1}p^{-1}$ -Konfiguration im Endzustand besonders stark von Korrelationswechselwirkungen mit anderen Konfigurationen beeinflusst sind [111,118]. Die Zuweisung 1P_1 in der Notation (6.1) und (6.2) ist in der Tat zunächst lediglich als Bezeichnung anzusehen, denn die tatsächliche Wellenfunktion setzt sich hingegen aus einer großen Zahl von Zuständen aus verschiedenen Konfigurationen zusammen (siehe Ref. [111] und dortige Referenzen). Vor diesem Hintergrund bedeutet die hier experimentell gefundene 1P_1 -Symmetrie, daß unter jenen Zuständen nur diejenige Untermenge signifikant beiträgt, die durch diese Symmetrie (1P_1) ausgezeichnet ist. D.h. die Bezeichnung 1P_1 ist letztendlich doch charakteristisch für den Endzustand: sie bedeutet $L_f = 1, S_f = 0$.

Überprüft man die Gleichungen des reinen LS-Kopplungsfalles (6.19) und (6.20) anhand der experimentellen intrinsischen Parameter, so ergibt sich eine Übereinstimmung für die Beziehung (6.20). Die Beziehung (6.19) für das Verhältnis der beiden Anisotropieparameter ist jedoch nicht erfüllt, allerdings ist auch hier die Abweichung geringer als der doppelte von den Autoren angegebene statistische Fehler,

so daß man nicht von einer echten Diskrepanz sprechen kann. Insofern sind die hier getrennt diskutierten Fälle LSJ- und reine LS-Kopplung im Rahmen der Meßgenauigkeit als gleich gut zu bewerten, um die experimentellen Daten zu beschreiben.

Um nun zu zeigen, in welcher Weise die Nähe der experimentellen intrinsischen Parameter zum Grenzfall der LSJ-Kopplung die Möglichkeit Coulombmatrixelemente zu extrahieren behindert, habe ich die Lösungskurven zu hypothetischen Sätzen intrinsischer Parameter berechnet, die sich dem Grenzfall der LSJ-Kopplung asymptotisch nähern, ihn aber dennoch nicht exakt erreichen. Die Linien 2... 5 in den Abbildungen 6.5 und 6.6 zeigen diese Lösungskurven und die zugehörigen intrinsischen Parameter sind in Abbildung 6.8 eingetragen. Der Weg, entlang dessen diese Testpunkte gegen den Grenzfall der LSJ-Kopplung konvergieren, ist wie folgt gewählt: Ausgehend von der besten Lösung im Rahmen des allgemeinen Modells (EXP-OPT) werden α_2 , β_1 und ξ_2 stetig in Richtung der besten Lösung im Rahmen des reinen LS-Kopplungsfalles variiert (1... 5), wobei γ_1 durch Gleichung (6.11) festgelegt ist. Wie man in den Abbildungen 6.5 und 6.6 sieht, werden die Größen μ_{J_0} und $\Delta_{J_0}^{pf}$ umso undefinierter, je näher sich die Testpunkte am LSJ-Kopplungsfall befinden. Daher hilft auch die Näherung einer verschwindenden relativistischen Phasendifferenz in diesem Fall nicht weiter. Im Grenzfall sollten die Größen ν und $\Delta^{rel.}$ entsprechend der Gleichungen (6.6) auf die Werte 1 und 0 festgelegt sein. Wie man sieht, ist dies auch erfüllt. Die Lösung 5 ist bereits sehr dicht an der Lösung des exakten LSJ-Kopplungsfalles, die zu einer senkrechten Linie in den Diagrammen für μ und Δ^{pf} entartet und diese beiden Größen daher völlig unbestimmt läßt.

Es stellt sich die Frage, ob es möglich ist, im Rahmen des reinen LS-Kopplungsfalles Werte für das Amplitudenverhältnis μ und die Phasendifferenz Δ zu extrahieren. Unglücklicherweise hat man jedoch für diesen Übergang in einen Singlet-Endzustand selbst für dieses sehr starke Näherungsmodell weiterhin ein unterbestimmtes Gleichungssystem, denn ein einziger intrinsischer Parameter (z.B. $\gamma_1^{3/2}$) steht zwei unbekanntenen Größen (μ , Δ) gegenüber. Aus den Gleichungen in Anhang A ergibt sich mit (6.6) und (6.7) die Formel:

$$\gamma_1^{3/2} = \frac{1}{5\sqrt{5}} \frac{8\mu^2 - 2\sqrt{6}\mu \cos \Delta + 7}{1 + \mu^2} \quad (6.22)$$

Es ist daher bestenfalls möglich, den Wertebereich zu berechnen, der im Rahmen des experimentellen Fehlers erlaubt ist. Im Rahmen des reinen LS-Kopplungsmodells können die unabhängigen Messungen für die sechs Parameter $\alpha_2^{3/2}$, $\delta_1^{3/2}$, $\xi_1^{3/2}$, $\alpha_2^{5/2}$, $\delta_1^{5/2}$ und $\xi_1^{5/2}$ für die Berechnung des Parameters $\gamma_1^{3/2}$ verwendet werden. Man erhält in dieser Weise mit $\gamma_1^{3/2} = 0.626 \pm 0.023$ einen Wert, der mit besserer Statistik nur leicht größer ist als der experimentelle Wert aus Tabelle 6.3. Der in Abbildung 6.9 dargestellte Lösungsbereich für μ und Δ ist kompatibel mit der Unsicherheit dieses Wertes für $\gamma_1^{3/2}$. Es läßt sich eine obere Grenze für das Verhältnis $\mu = M_f/M_p$ ablesen: $\mu \leq 6.6$. Dies steht in Übereinstimmung mit theoretischen Aussagen, welche eine stärkere Emission der f -Welle bevorzugen ($2.0 \leq \mu \leq 4.7$ nach Ref. [110]).

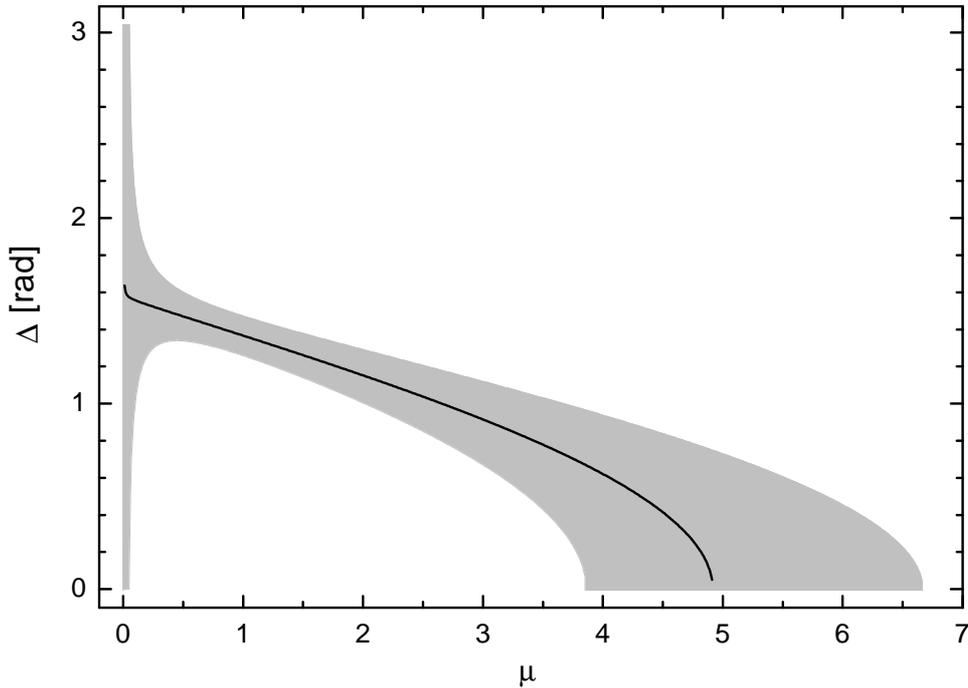


Abbildung 6.9: Möglicher Bereich für die Größen μ und Δ im Rahmen des reinen LS-Kopplungsmodells. Die durchgezogene Linie entspricht der Lösung der Gleichung (6.22) für den experimentellen Mittelwert $\gamma_1^{3/2} = 0.626$. Der grau schattierte Bereich gibt den möglichen Fehlerbereich an.

Aus der Analyse des LS-Kopplungsmodell wird klar, warum die Unsicherheiten für die Matrixelemente im relativistischen Modell so groß werden. Offensichtlich ist der Grund die Nähe der intrinsischen Parameter zum LSJ-Grenzfall in Verbindung mit einem Singlet-Endzustand. Aufgrund der in diesem Sonderfall geltenden zusätzlichen Einschränkungen durch Drehimpulserhaltung ist die eindeutige Bestimmung von Matrixelementen selbst im LSJ-Kopplungs- oder reinen LS-Kopplungsfall nicht möglich.

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden die Übergänge $N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_1$ an Xenon- sowie $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$ und $M_5N_1N_{2,3}^1P_1$ an Kryptonatomen für Untersuchungen mit der experimentellen Methode der spinaufgelösten Elektronenspektroskopie ausgewählt, mit dem Ziel einer vollständigen Charakterisierung des Augerzerfalls. Zu diesem Zweck wurden an den Augerelektronen dieser Zerfälle Winkelverteilungsmessungen der transferierten Spinpolarisation nach Anregung mit zirkular polarisierter Synchrotronstrahlung durchgeführt. Aus den gemessenen Winkelverteilungen konnten für den Augerzerfall an Xenon die zwei intrinsischen Parameter β_1 und γ_1 separat bestimmt werden. Des Weiteren wurde im Rahmen dieser Arbeit eine transportable Meßapparatur konstruiert und aufgebaut, die während des Meßbetriebs um zwei zueinander orthogonale Achsen drehbar ist und für beliebig winkelvariierende Untersuchungen in der Gasphase eingesetzt werden kann. Diese neue Meßapparatur wurde bei den Messungen an Krypton verwendet, wodurch erstmals explizite Winkelverteilungen der Spinpolarisation in einem zum Laborsystem gedrehten elektronenfesten Koordinatensystem gemessen werden konnten. Daraus wurden die mit dem gedrehten Koordinatensystem assoziierten intrinsischen Parameter δ_1 und ξ_1 bestimmt.

Für alle drei Übergänge liefert die Kenntnis dieser beiden neu hinzugewonnenen intrinsischen Parameter zusätzliche experimentelle Information zu dem bereits aus der Literatur bekannten Anisotropieparameter α_2 , so daß die Diskussion des Augerprozesses im Rahmen der Coulombmatrixelemente sinnvoll wird. Eine solche Analyse des Augerzerfalls wurde im Hinblick auf eine vollständige Charakterisierung erstmals auf der Basis von Spinpolarisationsdaten durchgeführt.

Eine mathematische Analyse des Zusammenhangs zwischen den intrinsischen Parametern und den Matrixelementen brachte, wie durch einen analytischen Existenzbeweis gezeigt werden konnte, die Erkenntnis, daß die vier intrinsischen Parameter entgegen den Erwartungen nicht unabhängig voneinander sind. Der verblei-

bende Parameter ξ_2 , der die dynamische Spinpolarisation charakterisiert, ist daher durch die drei bekannten Parameter bereits bis auf sein Vorzeichen festgelegt. Dieser grundsätzliche Befund überträgt sich auch auf den Fall der Photoionisation, wie — ursprünglich zuerst — am Beispiel der Xe- $(5p_{3/2})^{-1}$ -Photoionisation gezeigt werden konnte. Die explizite Form der Abhängigkeit konnte von den Theoretikern N.A. Cherepkov für die Photoionisation und N.M. Kabachnik für die Augerzerfälle hergeleitet und der Gültigkeitsbereich jeweils auf gewisse Klassen von Übergängen erweitert werden.

Die Konsequenz dieser scheinbar fundamentalen Abhängigkeit ist die prinzipielle Unmöglichkeit, aus der vollständigen Charakterisierung eines einzigen Reaktionspartners mit der Methode der spinaufgelösten Elektronenspektroskopie, genügend Informationen für ein vollständiges Experiment zu einem Prozeß mit drei beteiligten Partialwellen zu ziehen. Um daher Aussagen über den Wert der Matrixelemente machen zu können, ist in diesem Fall zumindest die Näherung einer verschwindenden relativistischen Phasendifferenz notwendig. Da diese Näherung jedoch den theoretischen Erwartungen nach sehr gut erfüllt und auch mit den durchgeführten Analysen kompatibel ist, lassen sich trotz dieser Einschränkung für die Meßmethode Schlüsse ziehen, die den Vergleich zur Theorie auf der Basis von Matrixelementen ermöglichen.

Aufgrund der Feststellung der Abhängigkeit unter den dynamischen Parametern, wurde eine Neubewertung der Meßdaten des Experimentes von Ch. Heckenkamp (1984) (Ref. [19–21]) sowie eine erneute Extraktion der Dipolmatrixelemente unter Berücksichtigung dieses Aspekts notwendig. Wie sich zeigte, sind die Originalmeßdaten innerhalb des zweifachen statistischen Fehlers mit dem relativistischen Modell kompatibel, was eine experimentelle Bestätigung der gefundenen Abhängigkeit ist. Unter der Annahme einer verschwindenden relativistischen Phasendifferenz zwischen den $d_{3/2}$ - und $d_{5/2}$ -Kontinua konnten daher eindeutige Werte für die Dipolmatrixelemente extrahiert werden. Dabei ergab sich zu den in Ref. [21] angegebenen Werten Übereinstimmung an der Ionisationsgrenze, aber eine deutliche Diskrepanz für höhere Photonenenergien. Für die Aussage eines Nulldurchgangs einer der drei beteiligten Dipolamplituden ergibt sich aufgrund der neuen Analyse kein Hinweis. Vielmehr zeigte sich, daß die Meßdaten auch mit dem LSJ-Kopplungsmodell vereinbar sind, welches die Spin-Bahn-Wechselwirkung im Kontinuum komplett vernachlässigt.

Für den Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_1$ -Augerzerfall ergab die Analyse der experimentellen intrinsischen Parameter einen recht großen Wert für den indirekt bestimmten ξ_2 -Parameter, was auf eine kleine Abweichung vom LSJ-Kopplungsfall hindeutet. Unter der Annahme einer verschwindenden relativistischen Phasendifferenz zwischen den $d_{3/2}$ - und $d_{5/2}$ -Kontinua konnten eindeutige Werte für die Verhältnisse zweier Coulombamplituden und einer weiteren Phasendifferenz bestimmt werden. Dabei ergab sich ein signifikanter Emissionsbeitrag der s -Welle, worin sich die Abweichung zum LSJ-Kopplungsfall äußert.

Für die $\text{Kr-}M_{4,5}N_1N_{2,3}^1P_1$ -Augerzerfälle ergaben die Messungen, daß die experimentellen intrinsischen Parameter für beide Feinstrukturkomponenten sehr nahe an dem LSJ-Kopplungsfall liegen. Insbesondere für den ξ_2 -Parameter ergibt sich für diese beiden Übergänge ein mit Null kompatibler Wert. Im Rahmen des LSJ-Kopplungsmodells besteht eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den experimentellen und den theoretischen Werten der LS-HF- und LS-MBPT-Rechnungen. Wie eine Zusammenstellung der zusätzlichen Einschränkungen unter den intrinsischen Parametern im LSJ-Kopplungsfall zeigt, besteht für Augerzerfälle mit Singlet-Endzustandskonfiguration aufgrund der Drehimpulserhaltung die Besonderheit, daß der LSJ-Kopplungsfall ein Grenzfall des allgemeinen Modells ist, für den nur ein einziger intrinsischer Parameter in nichttrivialer Weise von den Matrixelementen abhängt. Aus diesem Grund ist eine Extraktion von Werten für die Matrixelemente in diesem Fall nicht möglich. Auf der anderen Seite läßt die Messung jedoch den Schluß zu, daß die Endzustände dieser Übergänge eine reine 1P_1 -Symmetrie besitzen, obwohl Konfigurationswechselwirkungen gerade für diese Übergänge eine große Rolle spielen.

Ausblick

Der große Wert für den ξ_2 -Parameter des $\text{Xe-}N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_1$ -Augerzerfalls, der in dieser Arbeit indirekt abgeleitet wurde, ist natürlich ein Hinweis auf eine entsprechend große dynamische Spinpolarisation (der maximal zu erwartende Spinpolarisationsgrad beträgt etwa $P_Y \approx 0.02$). Daher wäre eine Messung mit entsprechend guter Statistik und einer ausreichend guten Unterdrückung apparativer Asymmetrien erforderlich. Eine Vorzeichenumkehr von P_Y ist bei Anregung mit linear polarisierter Strahlung durch Umklappen der Polarisationsebene zwischen vertikal und horizontal möglich. Auch wenn durch eine solche Messung keine zusätzliche physikalische Information gewonnen werden kann, so wäre ein von Null verschiedenes Ergebnis dennoch experimentell ein erstmaliger Nachweis einer dynamischen Spinpolarisation an einem normalen Augerübergang.

Des weiteren wird in naher Zukunft die Frage nach Beiträgen höherer Multipolterme in der Spinpolarisation eine Rolle spielen, die über den Rahmen der Dipolnäherung hinausgehen. Nachdem in der Intensitätswinkelverteilung bereits Effekte gemessen worden sind, erscheint es nur natürlich, danach auch in der Spinpolarisation zu suchen. Hierzu sind zunächst theoretische Vorhersagen über die Größe nichtdipolarer Parameter notwendig.

Die gefundene Verknüpfung unter den dynamischen beziehungsweise intrinsischen Parametern der Photoionisation und des Augerzerfalls ist theoretisch noch keineswegs verstanden. Es ist einerseits für die Durchführung und Planung weiterer Experimente notwendig, einen allgemeinen Ausdruck für die Verknüpfung anzugeben,

der für beliebige Übergänge Gültigkeit besitzt. Ferner ist ein Verständnis der physikalischen Ursache für das Zustandekommen dieser Verknüpfung wünschenswert und ein interessanter Gegenstand für weitergehende theoretische Überlegungen.

Anhang A

Der Zusammenhang zwischen den intrinsischen Parametern und Matrixelementen

Die mathematischen Ausdrücke für die intrinsischen Parameter des Augerzerfalls in Abhängigkeit von den reduzierten Coulombmatrixelementen (2.16) lassen sich in folgender Form schreiben, wenn drei verschiedenen Kontinuumszustände beteiligt sind:

$$p = a_0 \left(M_a^2 + M_b^2 + M_c^2 \right)^{-1} \left\{ a_1 M_a^2 + a_2 M_b^2 + a_3 M_c^2 + b_1 M_a M_b \cos(\Delta_{ab}) + b_2 M_a M_c \cos(\Delta_{ac}) + b_3 M_b M_c \cos(\Delta_{bc}) + c_1 M_a M_b \sin(\Delta_{ab}) + c_2 M_a M_c \sin(\Delta_{ac}) + c_3 M_b M_c \sin(\Delta_{bc}) \right\} \quad (\text{A.1})$$

Darin ist für p ein intrinsischer Parameter einzusetzen; die M_i sind die Amplituden und Δ_i die zugehörigen Phasen der einzelnen Matrixelemente ($i = a \dots c$), wobei die Differenz zwischen zwei Phasen durch $\Delta_{ij} = \Delta_i - \Delta_j$ definiert ist. Eine der drei Phasendifferenzen läßt sich grundsätzlich durch die beiden anderen ausdrücken, so daß nur zwei Phasendifferenzen voneinander unabhängig sind: $\Delta_{ab} = \Delta_{ac} - \Delta_{bc}$.

Dieselbe Form gilt auch für die Ausdrücke der dynamischen Parameter der Photoionisation (siehe Gleichungen (3.2)–(3.6)). Daher finden insbesondere die in Abschnitt 3.2.1 für die Xe- $(5p_{3/2})^{-1}$ -Photoionisation gemachten allgemeingültigen Aussagen über Vorzeichenkonvention und Periodizität auch hier Anwendung.

Die in Gleichung (A.1) einzusetzenden Koeffizienten sind in der Tabelle A.1 für die behandelten Augerzerfälle angegeben. Sie wurden hergeleitet anhand der allgemeinen Formeln, die für α_2, ξ_2 in [73] und für β_1, γ_1 in [79] angegeben sind. Die benötigten Werte für Clebsch-Gordan-Koeffizienten und $6j$ -Symbole wurden aus [119] und [63, S.215] entnommen.

Tabelle A.1: In den Ausdruck (A.1) einzusetzende Kopplungskoeffizienten für die intrinsischen Parameter α_2 , β_1 , γ_1 , und ξ_2 der Augerzerfälle Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}{}^3P_1$, und Kr- $M_{4,5}N_1N_{2,3}{}^1P_1$.

p	a_0	a_1	a_2	a_3	b_1 / c_1 *	b_2 / c_2 *	b_3 / c_3 *
Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}{}^3P_1$ $a = 1, b = 2, \text{ und } c = 3$							
α_2	$-1/5$	0	1	4	$4\sqrt{5}$	$-2\sqrt{5}$	4
β_1	$-\sqrt{5}/75$	-25	11	-21	0	0	24
γ_1	$-2\sqrt{5}/75$	0	-11	6	$10\sqrt{5}$	0	6
ξ_2	$\sqrt{5}/5$	0	0	0	3	1	$-\sqrt{5}$
Kr- $M_4N_1N_{2,3}{}^1P_1$ $a = 1, b = 2, \text{ und } c = 3$							
α_2	$-1/5$	0	1	4	$4\sqrt{5}$	$-2\sqrt{5}$	4
β_1	$-1/45$	$5\sqrt{5}$	$-11\sqrt{5}$	$9\sqrt{5}$	40	0	0
γ_1	$2/225$	$50\sqrt{5}$	$-11\sqrt{5}$	$36\sqrt{5}$	-50	0	$-54\sqrt{5}$
ξ_2	$-1/5$	0	0	0	$3\sqrt{5}$	$\sqrt{5}$	-5
Kr- $M_5N_1N_{2,3}{}^1P_1$ $a = 4, b = 5, \text{ und } c = 6$							
α_2	$-1/490$	$98\sqrt{14}$	$92\sqrt{14}$	$125\sqrt{14}$	336	$-84\sqrt{5}$	$24\sqrt{70}$
β_1	$\sqrt{105}/735$	49	-31	45	0	0	$-16\sqrt{5}$
γ_1	$-2\sqrt{105}/3675$	49	-124	75	$42\sqrt{14}$	0	$20\sqrt{5}$
ξ_2	$3/35$	0	0	0	10	$\sqrt{5}$	$-\sqrt{70}$

* Für α_2 , β_1 und γ_1 sind die Koeffizienten b_i einzusetzen, so daß die Sinusterme in (A.1) verschwinden ($c_i = 0$); umgekehrt sind für ξ_2 die Koeffizienten c_i einzusetzen, so daß die Kosinusterme verschwinden ($b_i = 0$) für alle $i = 1 \dots 3$.

Anhang B

Apparative Neu- und Weiterentwicklungen

B.1 Die drehbare Vakuumapparatur

Der Vakuumrezipient sollte optimal für große Detektortypen geeignet sein, die auf einem Flansch montiert sind und auf das zu untersuchende Target ausgerichtet werden, wie zum Beispiel das Mottpolarimeter in Kombination mit einem Flugzeitspektrometer [98].

Aus diesem Grund bietet sich eine kugelsymmetrische Form des Rezipienten an, wobei möglichst viele Flansche unterschiedlicher Nennweite auf den Kugelmittelpunkt ausgerichtet sind. Die Schwenkbarkeit um eine Achse senkrecht zum Strahlrohr erfordert die Verwendung eines Faltenbalgs mit großem Durchmesser, der möglichst nahe an den Drehpunkt (Kugelmittelpunkt) herangeführt werden muß. Für den Vakuumrezipienten wurde daher die Form einer Halbkugel (\varnothing 600 mm) gewählt. Abbildung B.1 zeigt zwei Ansichten des Rezipienten aus unterschiedlichen Perspektiven. Die *Inklinationsachse* ist in Abbildung B.1 vertikal orientiert und wird durch die beiden großen Rohre mit einem Durchmesser von 200 mm definiert. Die Aufnahmevorrichtungen für die Kugellager an diesen Rohrstücken sind am Ende des Produktionsvorgangs maschinell gedreht worden, so daß sie exakt aufeinander ausgerichtet sind.

Abbildung B.2 zeigt eine Übersichtszeichnung der Kammer, eingebaut in die zugehörige Aufnahmevorrichtung. Auch hier ist die Inklinationsachse vertikal orientiert, während die Azimutachse horizontal in der Zeichenebene entlang des Photonenstrahls liegt. Die azimutale Rotation wird ermöglicht durch eine differentiell gepumpte CF-35-Drehstufe zwischen der Druckstufe und der Hauptkammer. Die Lagerung der Azimutachse erfolgt durch ein loses Gelenklager vorn und ein festes Zylinderrollenlager hinten. Das Gelenklager besteht aus einer Bronzekugel, die sich in einer Edelstahlfassung drehen und gleichzeitig um etwa $\pm 5^\circ$ Grad neigen kann. Die

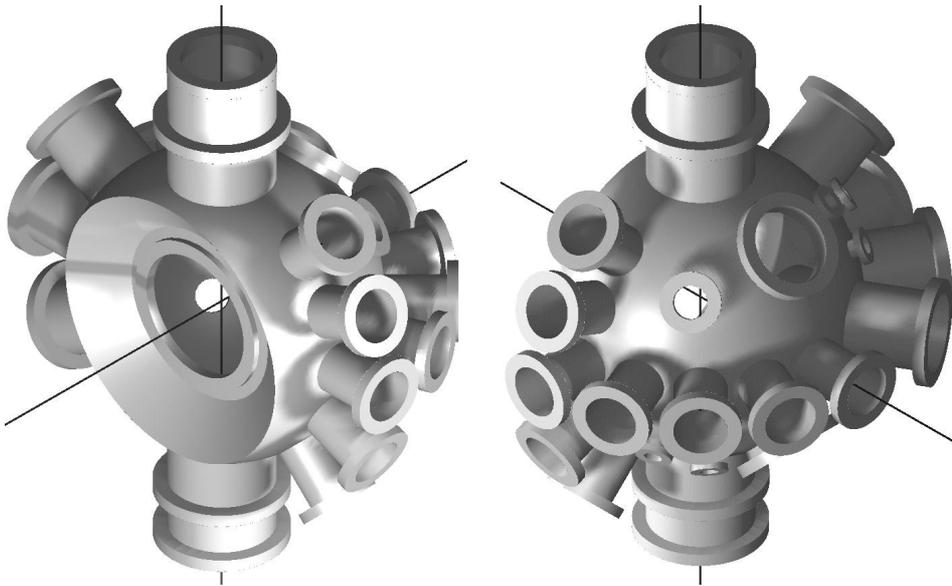


Abbildung B.1: Der Vakuumrezipient. In beiden Ansichten steht die Inklinationsachse vertikal und die Azimutachse senkrecht dazu (eingezeichnet für eine Kammerorientierung zu $\Theta = 0^\circ$). Für Detektoren vorgesehene Flanschpositionen (CF 100 und CF 150) erstrecken sich entlang der beiden Ebenen, deren Normalen durch die Azimut- und die Inklinationsachse definiert sind. Der CF 200 Flansch (unten) ist für die Turbomolekularpumpe vorgesehen.

Neigung am Zylinderrollenlager wird durch eine kardanische Aufhängung ermöglicht. Über einen Balg ($\varnothing 35$ mm) wird die Bewegung der Azimutachse von der Beamline mechanisch entkoppelt.

Die Rotationsbewegung um die Inklinationsachse wird durch eine Biegung des Faltenbalgs ermöglicht, die in einer kombinierten Bewegung aus Verbiegung und Versatz besteht. Der Durchmesser des Balgs ($\varnothing 200$ mm) bestimmt zusammen mit dem Abstand des kammerseitigen Flansches vom Drehpunkt (110 mm) den möglichen Schwenkbereich unter der Bedingung, daß der Photonenstrahl nicht abgeschnitten wird. Der Inklinationwinkel kann dementsprechend zwischen $-38^\circ \leq \Theta \leq 38^\circ$ variiert werden. Die Lagerung der Inklinationsachse geschieht durch zwei gegeneinander verspannte Kugellager ($\varnothing 260$ mm). Beide Rotationsbewegungen werden über selbsthemmende Schneckenradgetriebe (Durchmesser des Schneckenrades 250 mm) mit 35-facher Untersetzung angetrieben. Über eine weitere 10:1-Untersetzung wird das benötigte Drehmoment ausreichend klein für den bequemen Handbetrieb. Die beiden Stützen können über Spindelhubgewinde und Linearführungen in X- und Y-Richtung bewegt werden. Durch die Aufhängung der Kammer über das variable Gelenklager und die kardanische Aufhängung wird eine vorn und hinten entkoppelte Justierung der Azimutachse auf den vorgegebenen Photonenstrahl des Undulators ermöglicht, nachdem die Apparatur grob auf das Strahlrohr ausgerichtet ist.

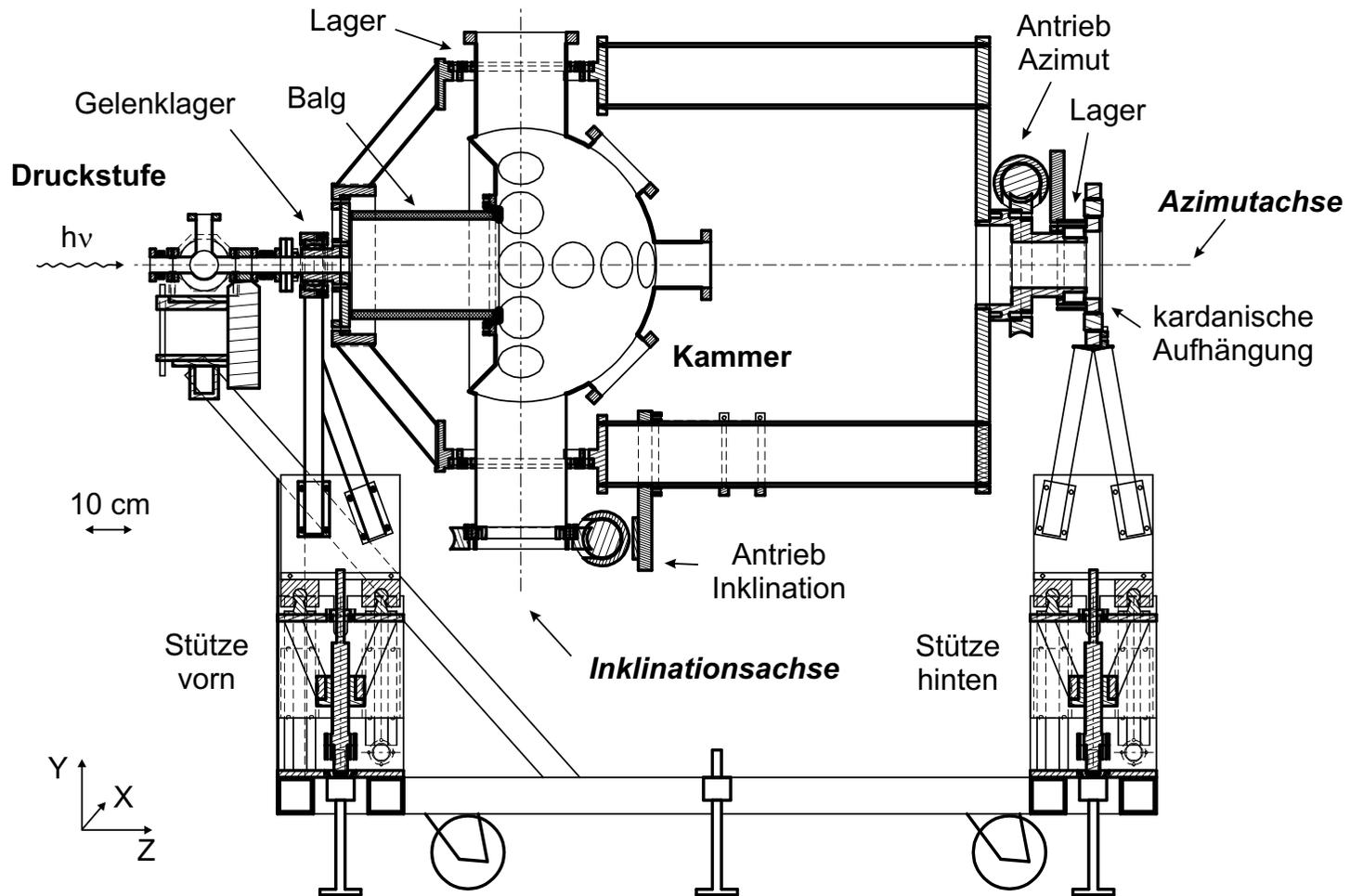


Abbildung B.2: Querschnittszeichnung der drehbaren Kammer mit Gestell. In dieser Zeichnung ist der Azimutwinkel so eingestellt, daß die Inklinationsachse vertikal steht.

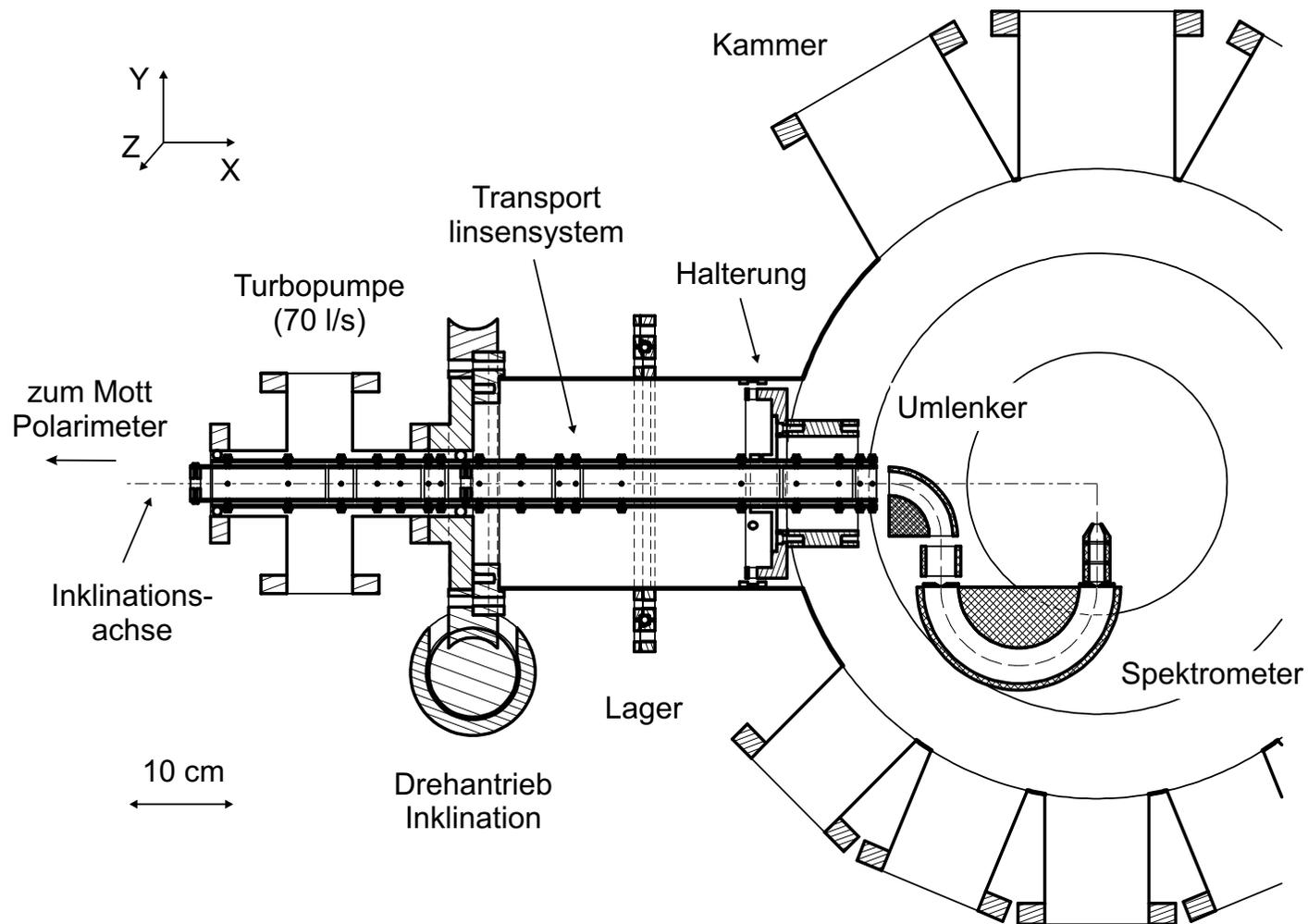


Abbildung B.3: Einbaulage des Spektrometers und Linsensystems in der drehbaren Kammer. Die Inklinationsachse liegt in dieser Zeichnung horizontal.

Zur Abschirmung des Erdmagnetfeldes wird ein aktives Spulensystem verwendet, das die gesamte Apparatur einschließt. Durch die Helmholtz-Anordnung ist es damit möglich, die Restflußdichte des Magnetfeldes innerhalb des gesamten Kammerbereichs auf weniger als $3 \mu\text{T}$ zu reduzieren. Zusätzlich ist das Spektrometer von einer μ -Metallfolie umgeben, um das Feld innerhalb des Spektrometers noch weiter zu reduzieren. (Wegen der relativ großen Löcher in der Abschirmung reicht eine μ -Metallfolie allein nicht für eine ausreichende Abschirmung aus. Insbesondere die kinetische Energieskala des Spektrometers ist bei niedrigen Pass-Energien besonders empfindlich auf Magnetfeldeinflüsse.)

Die Einbaulage des Spektrometersystems in die drehbare Kammer ist in Abbildung B.3 dargestellt. Sie zeigt eine Ansicht, in der der Photonenstrahl aus der Zeichenebene heraustritt und in der die Inklinationsachse horizontal liegt. Als neues elektronenoptisches Element wurde ein Transportlinsensystem für die Abbildung des Elektronenstrahls in das Mottpolarimeter entworfen, das gleichzeitig als Druckstufe zwischen Mottpolarimeter und Hauptkammer wirkt. Die relative Druckdifferenz zwischen Mottpolarimeter und Hauptkammer beträgt gute zwei Größenordnungen. Das Transportlinsensystem ist ebenfalls zusätzlich durch eine μ -Metallfolie abgeschirmt.

B.2 Das mikrocontrollergesteuerte Spannungsversorgungssystem

Die Spannungsversorgung des Spektrometers und des elektronenoptischen Linsensystems erfolgte mit dem ursprünglich in dieser Arbeitsgruppe von M. Drescher entworfenen und bereits in meiner Diplomarbeit auf bipolare Spannungen erweiterten rechnergesteuerten Systems [89,120]. Da die bisherige Verwendung eines 14 Bit-DACs aufgrund der nicht vernachlässigbaren differentiellen Nichtlinearität des LSBs für die Ansteuerung eines Spannungskanals mit einer Ausgangsspannung von $\pm 1000 \text{ V}$ nicht ausreicht (siehe hierzu [89]), wurde im Rahmen dieser Arbeit ein neues flexibles Interfacemodul für die Ansteuerung der Verstärkerendstufen entworfen, die nach dem „sample & hold“-Prinzip funktionieren (siehe [89,120]). Abbildung B.4 und B.5 zeigen den Hardwareaufbau des neuen Interfacemoduls und ein Logikschema des modifizierten Ansteuerungsmoduls.

Das neue Interfacemodul besteht in erster Linie aus einem Mikrocontroller (Microchip, PIC 17C43), der mit einem EPROM-Brenner in einem speziellen Maschinencode programmiert wird. Eine interruptgesteuerte Subroutine führt alle zum Betrieb des Systems erforderlichen Steueraufgaben mit variabel einstellbarer Taktfrequenz durch (Ansteuerung des doppelten 12 Bit-DACs (AD7237), Auslesen des 16 Bit-ADCs (AD977) und Adressierung der einzelnen Verstärkerendstufen). Abbildung B.6 zeigt das Ablaufschema der Subroutine, die im Normalfall mit einer Taktfrequenz von 100 Hz betrieben wird.

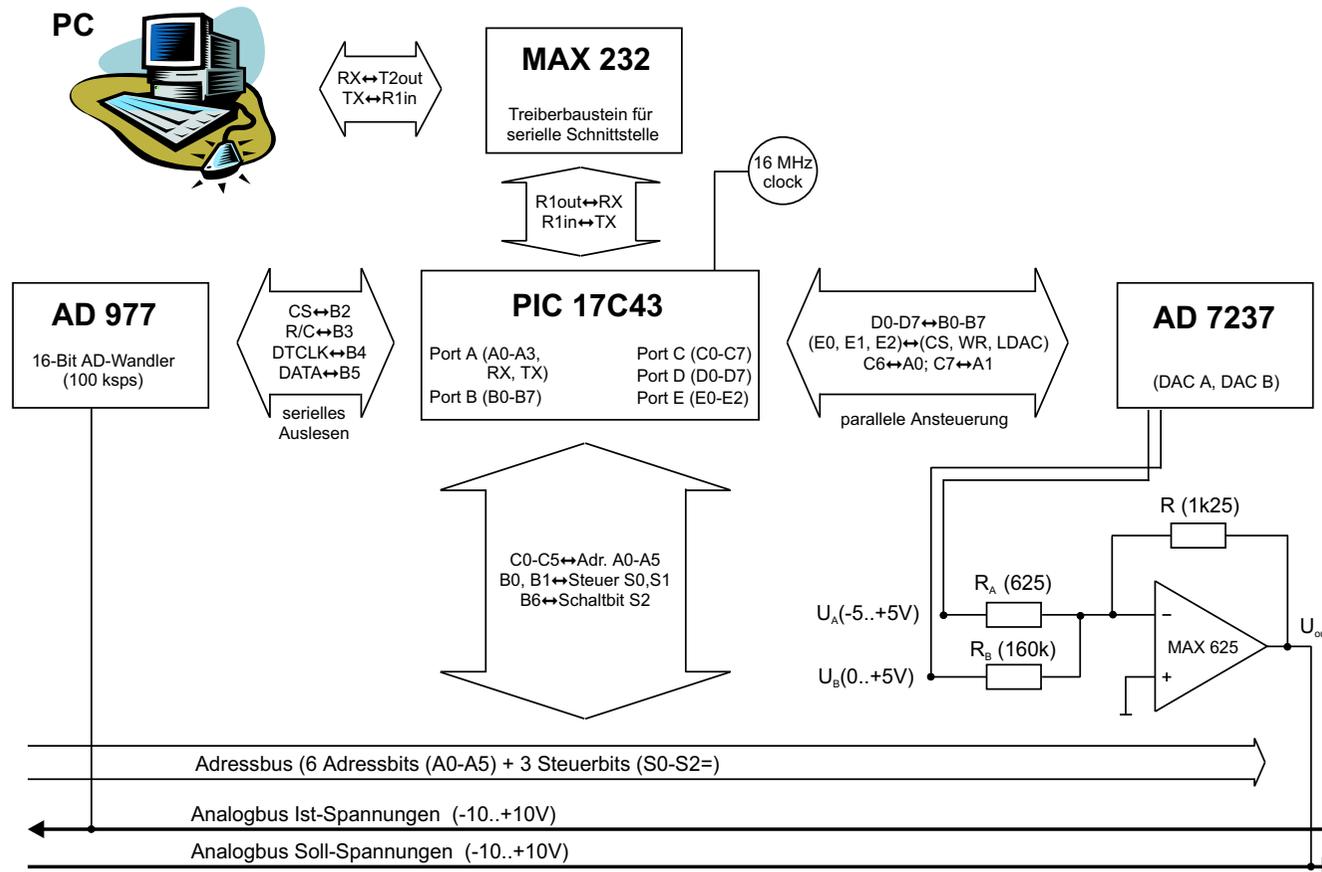


Abbildung B.4: Schema der Hardwarekomponenten des neuen Interfacemoduls.

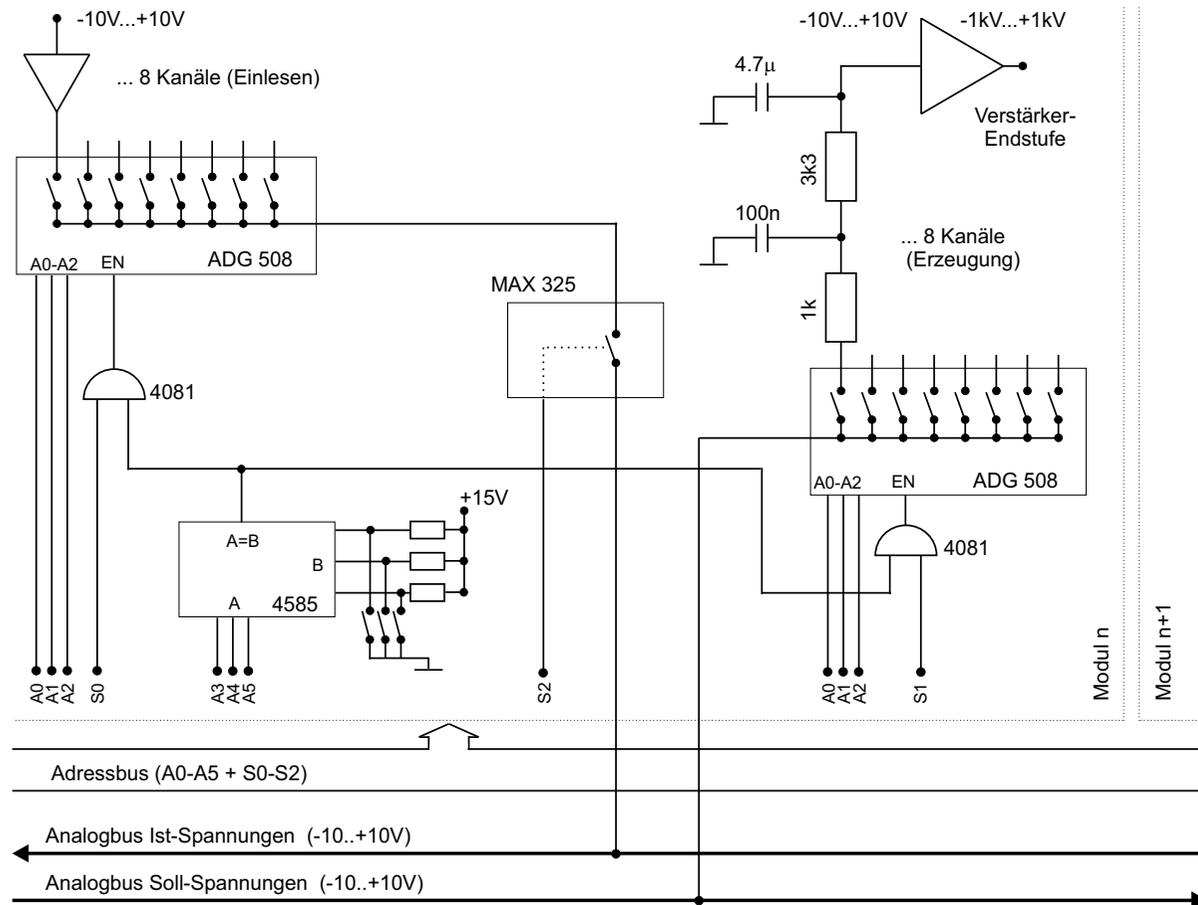


Abbildung B.5: Logikschema zur Adressierung der einzelnen Spannungskanäle.

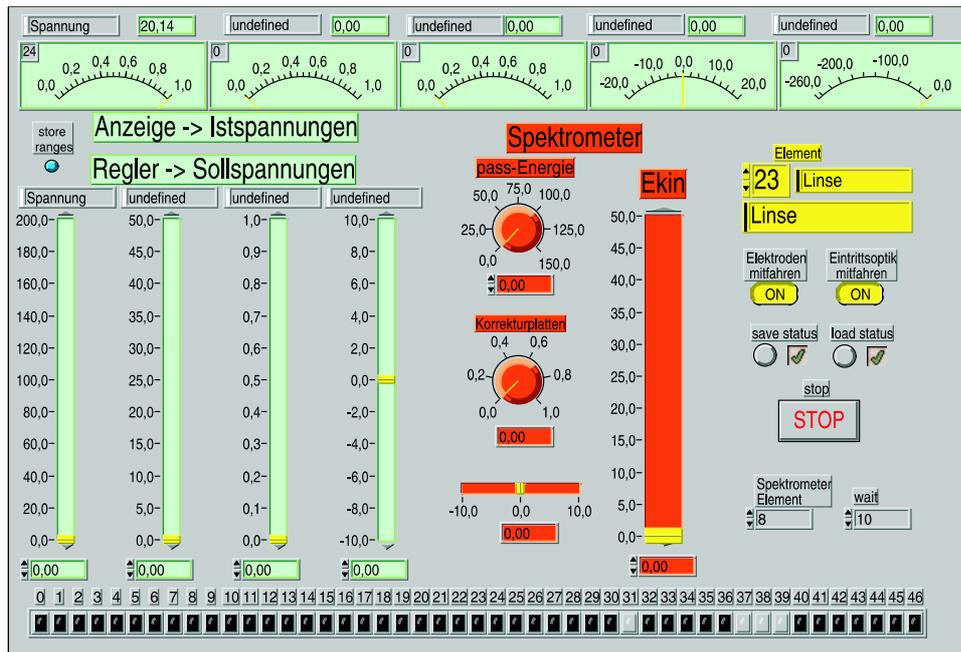


Abbildung B.7: Bedienungsoberfläche des Steuerprogramms für das elektrooptische System mit Spektrometer. Über einen Wahlschalter läßt sich jedes einzelne der insgesamt 12 optischen Elemente, die mit 46 einzelnen Spannungspotentialen betrieben werden, anwählen, so daß eine schnelle Optimierung der Abbildungseigenschaften aller Elemente möglich ist. Die Aufnahme eines Elektronenspektrums (im EDC-Mode) wird mit konstanter Pass-Energie gefahren und erfolgt vollautomatisch.

te Prinzip besteht in der Hintereinanderschachtelung zweier 12 Bit-DACs (A und B) mit einem 4 Bit-Überlapp, so daß theoretisch eine 20 Bit-Genauigkeit erreicht werden kann. Der Überlapp ist dabei notwendig, um den Fehler durch die LSBs des DAC A mit den MSBs des DAC B auszugleichen. In Abbildung B.4 ist unten rechts die elektronische Realisierung dieser Hintereinanderschachtelung durch eine einfache invertierende Additionsschaltung gezeigt. Für diese gilt die Beziehung:

$$U_{out} = -R \left\{ \frac{1}{R_A} U_A + \frac{1}{R_B} U_B \right\} \quad (\text{B.1})$$

Um einen 4 Bit-Überlapp zu erhalten, muß das Verhältnis der Widerstände exakt $R_B/R_A = 2^8$ sein, ferner muß wegen der geforderten zweifachen Verstärkung $R/R_A = 2$ gelten. Alle drei Widerstände wurden als Präzisionsspannungsteiler bestehend aus 16 parallel beziehungsweise seriell geschalteten 10 k Ω -Basiswiderständen realisiert, um eine erhöhte Temperaturstabilität des Teilverhältnisses zu erzielen. Die Ausgangsspannung U_{out} wird über einen Multiplexer an einen der 64 möglichen „sample & hold“-Kanäle weitergeleitet und über die jeweilige aktive Endstufe

typischerweise um einen Faktor 10^2 verstärkt (siehe Ref. [89] für eine detaillierte Beschreibung).

Um die gewünschte Genauigkeit zu erreichen, muß das System kalibriert werden. Dazu wurde eine spezielle Routine programmiert, die den vollständigen Spannungsbereich eines Kanals in 16 Bit-Schritten durchfährt, aus der Differenz zwischen eingestellter Soll- und gemessener Istspannung den entsprechenden Korrekturwert berechnet und diesen in einer Eich-tabelle ablegt. Zur Messung der Istspannung wird ein Keithley-2000-Multimeter verwendet, das über eine GPIB-Schnittstelle automatisch ausgelesen wird. Eine typische Kalibrierung dauert ungefähr eine halbe Stunde. Das Ergebnis einer solchen Kalibrierung ist in Abbildung B.8 dargestellt. Aufgetragen ist die Differenz zwischen Soll- und Istspannung gegenüber der Sollspannung vor und nach der Kalibrierung, wobei auf den Verstärkungsfaktor der Endstufe normiert wurde.

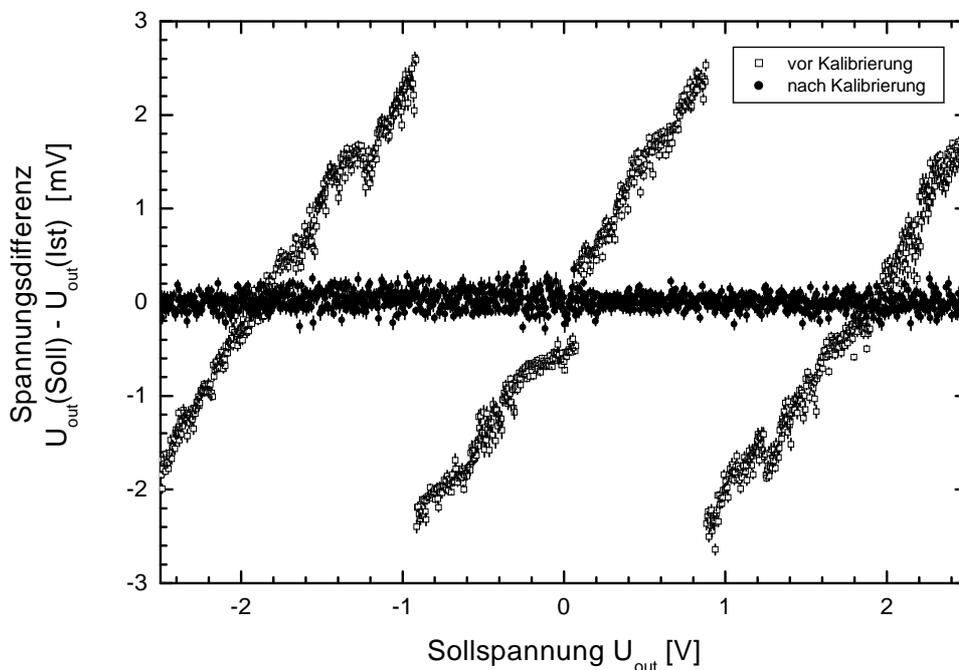


Abbildung B.8: Vergleich der mit der Verstärkerschaltung aus Abbildung B.4 erzeugten Ausgangsspannungen vor und nach durchgeführter Kalibrierung der beiden Digital-Analog Konverter. Der volle Aussteuerungsbereich der dargestellten Skala umfasst $-10 \dots +10$ V.

Die großen Sprünge in der Spannungsfolge vor der Kalibrierung werden durch den DAC A verursacht. Offensichtlich weicht die Steigung des DACs von dem exakten Wert Eins ein wenig ab, so daß in der Bitabfolge nachkorrigiert wird, sobald die Abweichung des Istwertes größer als 1 LSB wird (1 LSB entspricht hier 4.9 mV). Bei dem hier verwendeten DAC wird ungefähr alle 370 Bit (~ 1.8 V) ein LSB in

der Bitfolge ausgelassen, was einer Abweichung der Steigung von Eins um 0.27 % entspricht. Diese Korrektur führt dazu, daß die Bitabfolge nicht mehr streng monoton verläuft, was natürlich die Aufnahme eines Elektronenspektrums stört. Dieses Verhalten ist spezifisch für dieses Bauteil und variiert im allgemeinen leicht unter verschiedenen Wandlern desselben Typs.

Durch die Kalibration wird diese Unstetigkeit mithilfe des DAC B korrigiert. Wie die Werte nach der Kalibration zeigen, streut die Abweichung um den Wert Null mit einer Standardabweichung von $100 \mu\text{V}$, was einer Auflösung besser als 16 Bit entspricht und bereits die Genauigkeit des Keithley Multimeters erreicht.

Anhang C

Korrekturverfahren zur Spinpolarisation

C.1 Untergrundkorrektur für den Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_1$ -Zerfall

Um den Einfluß von Elektronen aus benachbarten Peaks der Xe- $N_{4,5}O_{2,3}O_{2,3}$ -Augergruppe auf die gemessene Spinpolarisation des Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}^3P_1$ -Zerfalls quantitativ zu erfassen, habe ich für die zu den verschiedenen Reaktionswinkeln gemessenen Spektren eine Ausgleichsrechnung mit Voigtprofilen für die relevanten Linien durchgeführt. Das mathematische Problem eines Fits mit Voigtprofilen ist durchaus kein triviales Problem, da es sich um eine Faltung zwischen einer Gauß- und einer Lorentzfunktion handelt, deren Ausdruck sich nicht analytisch angeben läßt. Aufgrund verschiedener Probleme diese Rechnungen mit vorhandener kommerziell verfügbarer Software durchzuführen, habe ich einen auf Basis diverser standardisierter numerischer Verfahren (Levenberg-Marquardt-Methode [88, S.683], Romberg-Schema [87, S.153], adaptive Quadratur [122, S.49]) selbstentwickelten Algorithmus angewendet. Mit Hilfe der dadurch gewonnenen Profilverläufe und unter Verwendung von theoretischen Spinpolarisationsdaten für die Nachbar-Peaks ist es möglich, einen polarisierten Untergrund abzuziehen.

Abbildung C.1 zeigt die als Ergebnis dieser Ausgleichsrechnung gewonnenen Linienprofile für das Spektrum zum Reaktionswinkel $\Theta = 133^\circ$. Die Ausgleichsrechnung berücksichtigt fünf Peaks (siehe erste Zeile von Tabelle C.1), wobei folgende Fitparameter eingefroren sind: die kinetischen Energieabstände unter den Peaks 1, 2, 3 und 5 (nach Werme et al. [108]), die Lorentzbreiten der Lochzustände ($\Gamma_4 = 110$ meV und $\Gamma_5 = 120$ meV nach [123]) und das Intensitätsverhältnis zwischen Peak 1 und 2 (ebenfalls nach [108]). Die freien Fitparameter sind die Intensitäten der Peaks 1, 3, 4 und 5, eine für alle Peaks gemeinsame Gaußbreite (Spektrometerfunktion), die

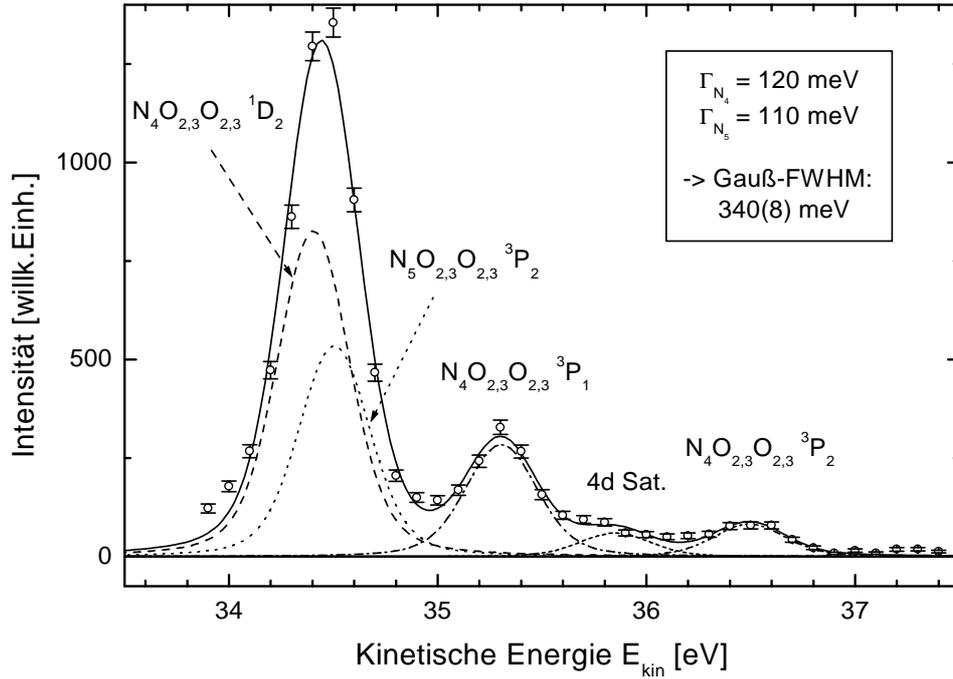


Abbildung C.1: Ergebnis einer Ausgleichsrechnung mit Voigtprofilen für den relevanten Teil des Xe- $N_{4,5}O_{2,3}O_{2,3}$ -Augerspektrums für $\Theta = 133^\circ$.

absoluten kinetischen Energien von Peak 3 und 4, sowie ein konstanter Untergrund. Unter Miteinbeziehung des Peaks 4, der als 4d-Satellit zu identifizieren ist [124], läßt sich eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Fit und gemessenem Spektrum erzielen. Die Abweichung zu niedrigen kinetischen Energien hin ist durch die dort liegenden nicht berücksichtigten Peaks der $N_{4,5}O_{2,3}O_{2,3}$ -Augergruppe bedingt.

Tabelle C.1: Für die Untergrundkorrektur verwendete Parameter.

Peak	1: $N_4^1D_2$	2: $N_5^3P_2$	3: $N_4^3P_1$	4: 4d-sat.	5: $N_4^3P_2$
w	0.048(05)	0.039(04)	0.897(20)	0.016(05)	< 0.005
β_1	-0.43(14)	0.09(03)	--- ^a	0.0 ^b	0.0 ^c
γ_1	-0.25(08)	-0.21(07)	--- ^a	0.0 ^b	0.0 ^c
α_2	0.01(02)	-0.19(07)	--- ^a	0.0 ^b	0.0 ^c

^a zu bestimmen. ^b als unpolarisiert angenommen.

^c aufgrund des kleinen Gewichtes w_5 vernachlässigt.

Sind n Peaks mit Spinpolarisationen P_i überlagert ($i = 1 \dots n$), dann ergibt sich die tatsächlich gemessene Spinpolarisation \tilde{P} durch:

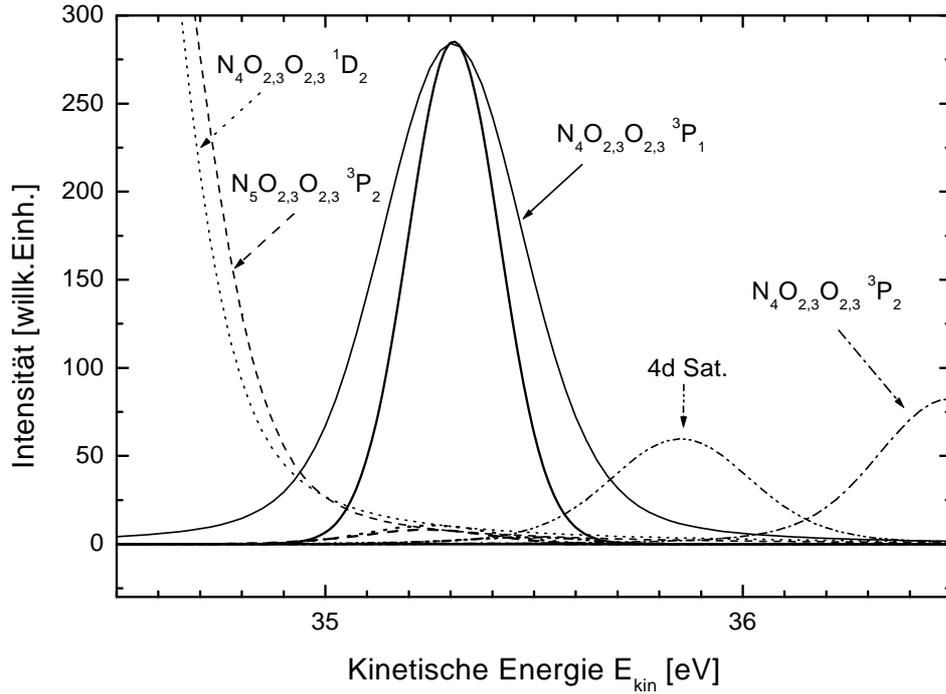


Abbildung C.2: Berechnung der Beiträge durch die Nachbarpeaks zum Xe- $N_4O_{2,3}O_{2,3}{}^3P_1$ -Augerzerfall. Dünne Linien: Voigtprofile der einzelnen Peaks; dicke Linien: dieselben Voigtprofile gewichtet mit der Spektrometerfunktion (Gaußprofil mit der Halbwertsbreite (FWHM) 340 meV). Die von den gewichteten Profilen eingeschlossenen Flächen bestimmen die vom Spektrometer akzeptierten Elektronen.

$$\tilde{P} = \sum_{i=1}^n \frac{I_i}{I_1 + \dots + I_n} P_i = \sum_{i=1}^n w_i P_i . \quad (\text{C.1})$$

Für einen Abzug des polarisierten Untergrundes werden daher die Gewichte w_i und Polarisierungen P_i der einzelnen Peaks benötigt. Die Spinpolarisation P_i habe ich über die Formel (2.28) mit den in Tabelle C.1 angegebenen intrinsischen Parametern berechnet. Die Gewichte w_i ergeben sich nach Formel (C.1) aus den vom Spektrometer akzeptierten Elektronen I_i des Peaks i und sind ebenfalls in Tabelle C.1 angegeben. Dabei wurde der Fehler aus den Schwankungen der Fits zu den verschiedenen gemessenen Reaktionswinkeln bestimmt. Die Größe I_i ist dabei durch die Fläche des Produktes aus dem Linienprofil i und der Spektrometerfunktion gegeben (siehe Abbildung C.2).

Sind w_i und P_i bekannt, so läßt sich die Formel (C.1) nach P_3 auflösen und somit die gesuchte Spinpolarisation aus der tatsächlich gemessenen \tilde{P} berechnen. Aufgrund der in Tabelle C.1 angegebenen Unsicherheiten für die Größen w_i und P_i

ergibt sich per Fehlerfortpflanzung ein zusätzlicher Fehler für die tatsächliche Spinpolarisation P_3 . In Abbildung 5.3 sind beide Spinpolarisationen \tilde{P} (offene Symbole) und P_3 (geschlossene Symbole) dargestellt. Der vergleichsweise große Einfluß dieser Korrektur auf die gemessene Spinpolarisation ist bedingt durch die weitreichenden lorentzartigen Schultern der Störpeaks in Kombination mit einem ungünstigen Intensitätsverhältnis zwischen Signal- und Störpeak.

C.2 Korrekturverfahren für die Spinpolarisation der Kr-Augerzerfälle

Im Rahmen der Dipolnäherung muß die Spinpolarisationskomponente P_z unter dem Reaktionswinkel $\Theta = 90^\circ$ — also in dem Fall, daß Photonenstrahl, Emissionsrichtung und Spinpolarisationsrichtung zueinander senkrecht stehen — verschwinden. Dies ist eine direkte Folge der allgemeinen in Abschnitt 2.2.1 diskutierten Symmetriebedingungen und spiegelt sich in der $\cos \Theta$ -Abhängigkeit der Formel (2.32) wieder. Diese Spinpolarisationskomponente ist daher besonders empfindlich auf kleine Abweichungen, die entweder apparativ bedingt sind oder andererseits durch höhere Multipoleffekte verursacht werden können.

Abbildung C.3 zeigt die Asymmetrie für die $3d$ -Photoelektronen, die simultan mit den Augerzerfällen $M_{4,5}N_{2,3}N_{2,3}^1S_0$ und $M_{4,5}N_1N_{2,3}^1P_1$ mit dem in Abschnitt 4.1.2 beschriebenen experimentellen Aufbau gemessen wurde. Wie man sieht, zeigt die Komponente A_z unter $\Theta = 90^\circ$ eine kleine aber dennoch deutlich signifikante Abweichung vom Wert Null. Die eingezeichnete Theoriekurve, die ich auf der Grundlage der dynamischen Parameter aus Ref. [125] mit $S_{\text{eff}} = -0.24$ berechnet habe, macht dies besonders deutlich. In den folgenden Unterabschnitten diskutiere ich die Ergebnisse der Auswertungsmethoden, die auf verschiedenen Annahmen für die Ursache dieses systematischen Effektes beruhen, sowohl für die $3d$ -Photo- als auch für die gemessenen Augerelektronen, deren Spinpolarisation ebenfalls das beschriebene Verhalten zeigt.

C.2.1 Apparative Asymmetrien

Mit dem Begriff „apparative Asymmetrie“ bezeichne ich apparativ bedingte Effekte, die zu einer Asymmetrie in den Rückstreuozählern des Mottpolarimeters führen, obwohl die tatsächlich untersuchten Elektronen gar nicht spinpolarisiert sind. Eine Möglichkeit solche Effekte zu beschreiben besteht in der Einführung eines Korrekturfaktors λ .

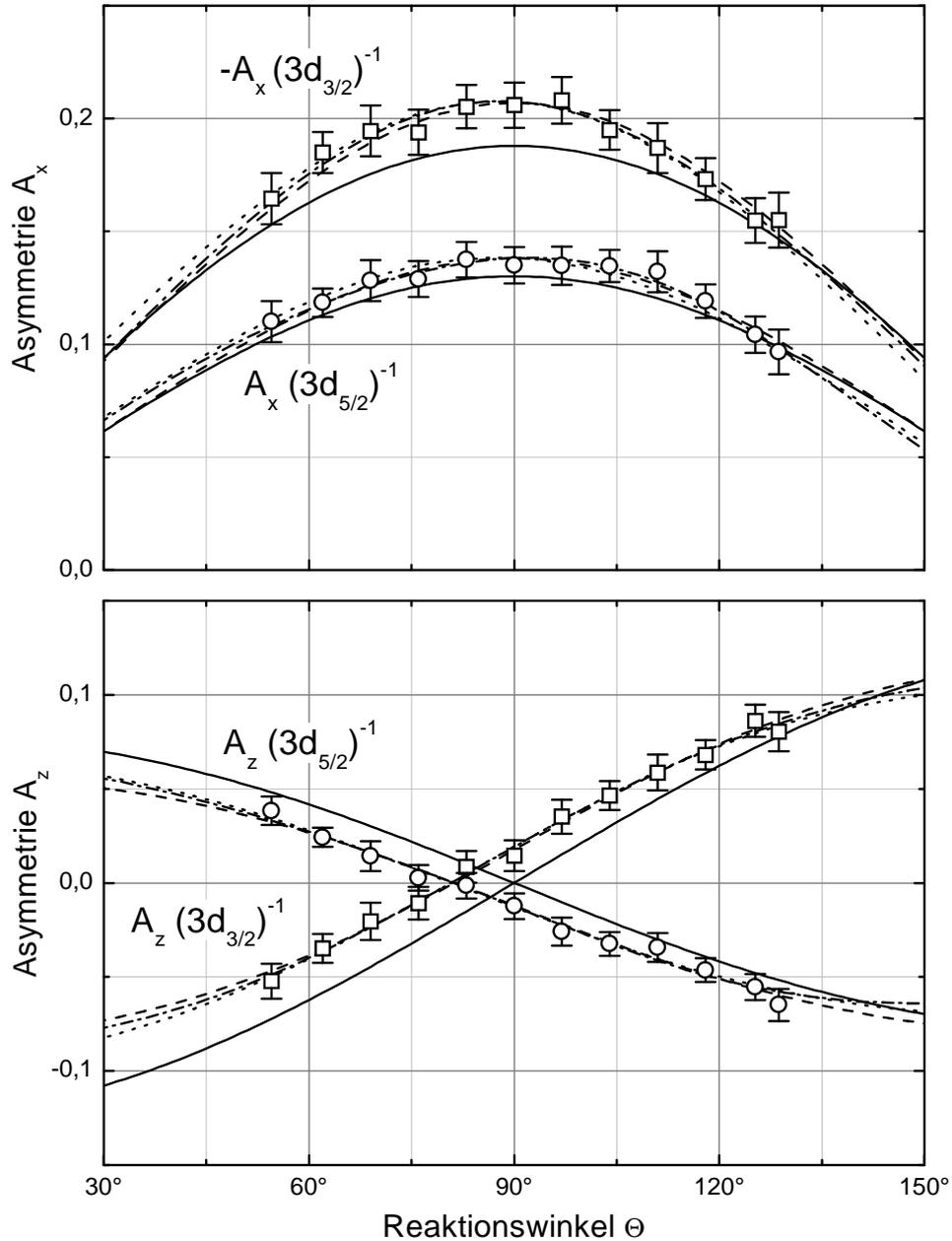


Abbildung C.3: Gemessene Winkelverteilung der Asymmetriekomponenten A_x und A_z für die Kr-3d-Photoelektronen mit den Ausgleichsfunktionen verschiedener Korrekturverfahren. Die Spinpolarisation ergibt sich durch den Zusammenhang $P = A/S_{\text{eff}}$ mit $S_{\text{eff}} = -0.24(02)$. Durchgezogen: Theorie [125]; gestrichelt: Korrektur apparativer Asymmetrien (Abschnitt C.2.1); gepunktet: Korrektur einer Spinvektordrehung (Abschnitt C.2.2); Strich-Punkt-Linie: Korrektur höherer Multipoltermne (Abschnitt C.2.3).

Definition

Bezeichnen wir das tatsächlich im Experiment gemessene Verhältnis der Zählraten in den beiden Rückstreudetektoren mit \tilde{q} und das ideale Verhältnis mit q , dann wird die Größe λ definiert durch:

$$\tilde{q} = \lambda q \quad (\text{C.2})$$

Damit folgt für die im Experiment gemessene Asymmetrie \tilde{A} :

$$\tilde{A} = \frac{\tilde{q} - 1}{\tilde{q} + 1} = \frac{\lambda q - 1}{\lambda q + 1} \quad (\text{C.3})$$

Dementsprechend ist der Zusammenhang zwischen \tilde{A} und der in einem idealen Experiment bestimmten Asymmetrie A gegeben durch:

$$\tilde{A}(\Theta) = \frac{(\lambda + 1)A(\Theta) - (\lambda - 1)}{(\lambda + 1) - (\lambda - 1)A(\Theta)} \quad (\text{C.4})$$

Während der Korrekturfaktor λ für das ideale Experiment exakt den Wert 1 annimmt, ergibt sich für das mit einer apparativen Asymmetrie belegte Experiment eine kleine Abweichung vom Idealwert um ϵ ($\lambda = 1 + \epsilon$ mit $\epsilon \ll 1$). Entwickelt man den Ausdruck (C.4) nach Potenzen in ϵ , dann erhält man bis zur ersten Ordnung:

$$\tilde{A}(\Theta) \approx A(\Theta) \left\{ 1 + \frac{1}{2}\epsilon A(\Theta) \right\} - \frac{1}{2}\epsilon \quad (\text{C.5})$$

$$\approx A(\Theta) - \frac{1}{2}\epsilon \quad (\text{mit } A(\Theta)^2 \ll 1) \quad (\text{C.6})$$

Selbst bei einer Spinpolarisation von $P = 1$ bleibt A durch das Analysiervermögen des Mottpolarimeters auf Werte um 0.2 begrenzt. Diese Korrektur wirkt sich daher in der Winkelverteilung $A(\Theta)$ im wesentlichen durch einen additiven Offset um $-\epsilon/2$ aus.

Mögliche Ursachen für $\lambda \neq 1$

Durch die Bildung des geometrischen Mittels nach Gleichung (4.3) fallen bereits apparative Asymmetrien, deren Vorzeichen nicht von der Lichthelizität abhängen, in erster Ordnung heraus. Genaugenommen gilt dies jedoch nur unter der Voraussetzung, daß die Strahlage und der Einschußwinkel, unter dem die Elektronen auf das Rückstreutarget im Mottpolarimeter treffen, für beide Messungen mit unterschiedlicher Lichthelizität dieselbe ist. Eine kleine Strahlageveränderung zwischen σ^+ - und σ^- -Licht könnte ein verändertes Empfindlichkeitsverhältnis der beiden Rückstreudetektoren für die Messungen mit beiden Lichthelizitäten bewirken. Mit den Empfindlichkeiten der Detektoren η ergibt sich folgender Wert für λ :

$$\tilde{q} = \sqrt{\frac{\eta_1^+ N_1^+ \eta_2^- N_2^-}{\eta_2^+ N_2^+ \eta_1^- N_1^-}} = \frac{\sqrt{\frac{\eta_1^+}{\eta_2^+}}}{\sqrt{\frac{\eta_1^-}{\eta_2^-}}} \sqrt{\frac{N_1^+ N_2^-}{N_2^+ N_1^-}} = \lambda q \quad (\text{C.7})$$

Eine weitere mögliche Ursache, die durch dieses Korrekturverfahren erfaßt wird, ist der Einfluß eines Untergrundabzugs. Mit den Bezeichnungen aus Abschnitt 4.4 ergibt sich:

$$\begin{aligned}\tilde{q} &= \sqrt{\frac{S_1^+ S_2^-}{S_2^+ S_1^-}} = \sqrt{\frac{(N_1^+ + U_1^+)(N_2^- + U_2^-)}{(N_2^+ + U_2^+)(N_1^- + U_1^-)}} \\ &= \sqrt{\frac{(1 + \frac{1}{v_1^+})(1 + \frac{1}{v_2^-})}{(1 + \frac{1}{v_2^+})(1 + \frac{1}{v_1^-})}} \sqrt{\frac{N_1^+ N_2^-}{N_2^+ N_1^-}} = \lambda q\end{aligned}\quad (\text{C.8})$$

wobei das echte Signal- zu Untergrundverhältnis mit $v = N/U$ bezeichnet ist.

Anwendung

Durch Einsetzen der Ausdrücke (2.30) und (2.32) in Formel (C.4), wobei der Zusammenhang zwischen P und A durch $A(\Theta) = S_{\text{eff}} P_{\text{zirk}} P(\Theta)$ gegeben ist, lassen sich die Korrekturfaktoren λ_x und λ_z beziehungsweise ϵ_x und ϵ_z als zusätzliche Fitparameter aus den Meßdaten durch „least squares“-Ausgleichsrechnung gewinnen. Wie sich zeigt, ist nur die Bestimmung von ϵ_z anhand der Komponente A_z präzise möglich, was daran liegt, daß A_z den Nulldurchgang zeigt und daher besonders empfindlich auf diese Korrektur ist. Tabelle C.2 enthält in der zweiten Spalte die in dieser Weise bestimmten Werte für ϵ_z .

Tabelle C.2: Ausgleichsergebnisse für die Korrektur apparativer Asymmetrien. Für die Photoelektronen gilt $d_1 = P_{\text{zirk}} S_{\text{eff}}(A - \alpha)$, $d_2 = -P_{\text{zirk}} S_{\text{eff}}(A + \alpha/2)$ und $d_3 = -\beta/2$; für die Augerelektronen gilt $d_1 = \Lambda\delta_1$, $d_2 = \Lambda\xi_1$ und $d_3 = \mathcal{A}_{20}\alpha_2$. χ_{red}^2 ist die reduzierte quadratische Abweichung zwischen Ausgleichskurve und Meßdaten.

Übergang	ϵ_z	d_1	d_2 *	d_3	χ_{red}^2
$(3d_{3/2})^{-1}$	-0.035(05)	-0.111(06)	-0.197(11)	0.100(30) [†]	0.17
$M_4 N_{2,3} N_{2,3} {}^1S_0$	0.020(06)	0.062(08)	0.113(12)	-0.119(06) ⁺	0.37
$M_4 N_1 N_{2,3} {}^1P_1$	0.017(05)	0.009(06)	0.094(12)	-0.092(07) ⁺	0.44
$(3d_{5/2})^{-1}$	0.025(04)	0.077(05)	0.131(11)	0.100(30) [†]	0.17
$M_5 N_{2,3} N_{2,3} {}^1S_0$	-0.018(05)	0.040(07)	-0.113(12)	-0.136(06) ⁺	0.42
$M_5 N_1 N_{2,3} {}^1P_1$	-0.022(04)	0.066(05)	-0.103(11)	-0.091(07) ⁺	0.36

* Fehler enthalten die durch $\epsilon_x = 0.00 \pm 0.02$ verursachte Unsicherheit.

[†] eingefroren (Theoriewert aus [125] bzw. [126]).

⁺ eingefroren (nach Tabelle 2.1 und \mathcal{A}_{20} Abschnitt 6.3.1).

Die Größenordnung in der Abweichung der Korrekturfaktoren vom Idealwert 1 liegt sowohl für die Photoelektronen, als auch für die untersuchten Augerelektronen etwa bei $|\epsilon_z| \approx 0.02$. Auffällig ist des weiteren die Systematik mit der das Vorzeichen von ϵ_z für die untersuchten Übergänge wechselt. Einerseits zeigt ϵ_z für die beiden Feinstrukturkomponenten der $3d$ -Photoelektronen entgegengesetztes Vorzeichen, zum anderen hat ϵ_z für die Augerelektronen wiederum entgegengesetztes Vorzeichen im Vergleich zu den zugehörigen Photoelektronen.

Da eine genaue Bestimmung des Korrekturfaktors ϵ_x für die Komponente A_x nicht möglich, aber das Vorhandensein der apparativen Asymmetrie natürlich auch hierin anzunehmen ist, setze ich aufgrund der Annahme, daß beide apparativen Asymmetrien dieselbe Größenordnung haben, $\epsilon_x = 0.00 \pm 0.02$, was natürlich zu einer Vergrößerung des Fehlers in den entsprechenden Fitparametern führt. Die expliziten Werte für die weiteren Fitparameter sind ebenfalls in Tabelle C.2 enthalten und die zugehörigen Ausgleichskurven für die $3d$ -Photoelektronen sind in Abbildung C.3 dargestellt.

C.2.2 Drehung des Spinpolarisationsvektors

Das Vorhandensein von Restmagnetfeldern im Bereich des Detektorsystems kann Ursache für eine Drehung des Spinpolarisationsvektors durch Präzession sein, die während des Durchlaufs der Elektronen-Trajektorien vom Ionisationsvolumen durch das Spektrometer und die Abbildungssysteme bis zum Mottpolarimeter stattfindet. Eine solche Drehung um den Winkel ζ läßt sich zumindest innerhalb der Reaktionsebene quantitativ erfassen, da beide Komponenten des Spinpolarisationsvektors bekannt sind.

Definition

Eine Drehung des Asymmetrievektors \vec{A} innerhalb der durch die idealen Komponenten A_x und A_z aufgespannten Reaktionsebene um den Winkel ζ führt auf folgende im Experiment tatsächlich gemessenen Komponenten:

$$\begin{aligned} \tilde{A}_x &= A \cos(\phi + \zeta) \\ \tilde{A}_z &= A \sin(\phi + \zeta) \end{aligned} \quad \text{mit} \quad \begin{aligned} A &= \sqrt{A_x^2 + A_z^2} \\ \phi &= \arctan \frac{A_z}{A_x} \end{aligned} \quad (\text{C.9})$$

wobei A die Länge der Projektion von \vec{A} auf die Reaktionsebene und ϕ dessen Winkel bezüglich der x -Achse definiert. Unter der Bedingung, daß der Rotationswinkel klein ist ($\zeta \approx 0$), ergibt sich aus den Gleichungen (C.9) durch Entwicklung nach Potenzen in ζ in erster Näherung:

$$\tilde{A}_x \approx A_x - \zeta A_z \quad (\text{C.10})$$

$$\tilde{A}_z \approx A_z + \zeta A_x \quad (\text{C.11})$$

Eine Drehung des Asymmetrievektors führt also in erster Näherung analog zu den in Abschnitt C.2.1 diskutierten apparativen Asymmetrien zu einem Offset in den kartesischen Komponenten. Im Gegensatz zu einer apparativen Asymmetrie ist hier jedoch der Einfluß auf beide Komponente festgelegt, nämlich mit zueinander umgekehrtem Vorzeichen. Ein Teil der Asymmetrie der einen Komponente wird sozusagen auf die andere übertragen.

Anwendung

Analog zu Abschnitt C.2.1 läßt sich der Winkel ζ durch „least squares“-Ausgleichsrechnung nach Einsetzen der Ausdrücke (2.30) und (2.32) in Formel (C.9) gewinnen. Das Ergebnis ist in Tabelle C.3 angegeben. Wie sich zeigt, stimmen die Werte für ζ für die verschiedenen Übergänge im Rahmen der statistischen Unsicherheit recht gut miteinander überein. Bildet man den gewichteten Mittelwert, so erhält man für den Spinpolarisationsvektor eine Drehung um einen Winkel von $\zeta = -5.6^\circ \pm 0.5^\circ$.

Tabelle C.3: Ausgleichsergebnisse für die Korrektur durch eine Drehung des Spinpolarisationsvektors. Für die Photoelektronen gilt $d_1 = P_{\text{zirk}} S_{\text{eff}}(A - \alpha)$, $d_2 = -P_{\text{zirk}} S_{\text{eff}}(A + \alpha/2)$ und $d_3 = -\beta/2$; für die Augerelektronen gilt $d_1 = \Lambda\delta_1$, $d_2 = \Lambda\xi_1$ und $d_3 = \mathcal{A}_{20}\alpha_2$. Die Fehlerfortpflanzung durch die Unsicherheit in d_3 wurde bei der Berechnung vernachlässigt. χ_{red}^2 ist die reduzierte quadratische Abweichung zwischen Ausgleichskurve und Meßdaten.

Übergang	ζ [rad]	d_1	d_2	d_3	χ_{red}^2
$(3d_{3/2})^{-1}$	-0.093(13)	-0.112(07)	-0.198(03)	0.100 [†]	0.13
$M_4N_{2,3}N_{2,3}^1S_0$	-0.097(29)	0.064(08)	0.114(04)	-0.119 ⁺	0.35
$M_4N_1N_{2,3}^1P_1$	-0.100(28)	0.010(06)	0.095(03)	-0.092 ⁺	0.46
$(3d_{5/2})^{-1}$	-0.094(15)	0.077(05)	0.132(02)	0.100 [†]	0.20
$M_5N_{2,3}N_{2,3}^1S_0$	-0.084(27)	0.040(07)	-0.113(04)	-0.136 ⁺	0.39
$M_5N_1N_{2,3}^1P_1$	-0.116(19)	0.066(05)	-0.103(03)	-0.091 ⁺	0.26

[†] eingefroren (Theoriewert aus [125]).

⁺ eingefroren (nach Tabelle 2.1 und \mathcal{A}_{20} Abschnitt 6.3.1).

Die Larmorfrequenz, mit der der Spinpolarisationsvektor um die Achse des Magnetfeldes präzediert, ist gegeben durch [51, S.211]:

$$\nu_L = \frac{\mu_B}{h} B \quad (\text{C.12})$$

wobei $\mu_B = 9.27 \cdot 10^{-24}$ J/T das Bohrsche Magneton ist. Schätzt man die Flugzeit der Elektronen durch ungefähr $t_{flug} \approx 200$ ns ab, dann ergibt sich aus Gleichung

(C.12) eine mittlere Magnetfeldflußdichte von $B \approx 5.6 \mu\text{T}$ für eine Drehung um $\zeta = 5.6^\circ$.

C.2.3 Analyse der Meßdaten auf höhere Multipol-Effekte

Aufgrund des bei der Analyse in Abschnitt C.2.1 beobachteten Vorzeichenwechsels im Korrekturfaktor λ kann man vermuten, daß die Meßdaten durch höhere Multipolterme beeinflußt sind. Da sich die Winkelabhängigkeit solcher Beiträge von der durch Dipolterme gegebenen — siehe Gleichungen (2.30) und (2.32) — unterscheidet, können auch solche Effekte eine Abweichung der Spinpolarisation $P_z(90^\circ)$ von Null hervorrufen.

Definition

Ausgehend von den in Ref. [127] angegebenen allgemeinen Ausdrücken für die Winkelverteilung der Spinpolarisation \vec{P} unter Berücksichtigung elektrischer Quadrupoleffekte, erhalte ich nach einer Transformation in das Elektronenkoordinatensystem folgende Formeln für die Asymmetriekomponenten A_x und A_z ($\vec{A} = S_{\text{eff}} P_{\text{zirk}} \vec{P}$):

$$A_z(\Theta) = \frac{d_1 \cos(\Theta) + q_1 P_2(\cos(\Theta))}{1 + d_3 P_2(\cos(\Theta)) + q_3 \cos(\Theta) + q_4 P_3(\cos(\Theta))} \quad (\text{C.13})$$

$$A_x(\Theta) = \frac{[d_2 + q_2 \cos(\Theta)] \sin(\Theta)}{1 + d_3 P_2(\cos(\Theta)) + q_3 \cos(\Theta) + q_4 P_3(\cos(\Theta))} \quad (\text{C.14})$$

Zu den in Ref. [127] benutzten Parametern B_{yLx}^j besteht dabei für die Photoelektronen der folgende Zusammenhang:

$$\begin{aligned} d_1 &= S_{\text{eff}} P_{\text{zirk}} (\sqrt{3} B_{101} - \sqrt{6} B_{121}) \\ d_2 &= -S_{\text{eff}} P_{\text{zirk}} (\sqrt{3} B_{101} + \sqrt{3/2} B_{121}) \\ d_3 &= \sqrt{5} B_{220} \end{aligned}$$

für die „Dipolparameter“, und für die „Quadrupolparameter“:

$$\begin{aligned} q_1 &= S_{\text{eff}} P_{\text{zirk}} (\sqrt{6} B_{211} - 3 B_{231}) \\ q_2 &= S_{\text{eff}} P_{\text{zirk}} (3\sqrt{6} B_{211} + 6 B_{231}) \\ q_3 &= \sqrt{3} B_{110} \\ q_4 &= \sqrt{7} B_{330} \end{aligned} \quad (\text{C.15})$$

Dabei ist P_3 ist das dritte Legendrepolynom: $P_3(\Theta) = 5/2 \cos^3 \Theta - 3/2 \cos \Theta$.

Unter der Voraussetzung, daß die Quadrupoleffekte klein gegenüber den Dipoleffekten sind ($q_i \ll 1$ für $i = 1 \dots 4$), läßt sich zeigen, daß auch die hier diskutierte

Analyse zur in Abschnitt C.2.1 beschriebenen Korrektur auf Basis einer apparativen Asymmetrie äquivalent ist. Entwickelt man den Ausdruck (C.13) nach Potenzen von q_1 , q_2 , q_3 und q_4 , so folgt:

$$\begin{aligned} \tilde{A}(\Theta) & \approx A(\Theta) \left\{ 1 - \frac{q_3 \cos \Theta + q_4 P_3(\cos \Theta)}{1 + d_3 P_2(\cos \Theta)} \right\} + \frac{q_1 P_2(\cos \Theta)}{1 + d_3 P_2(\cos \Theta)} \\ & \approx A(\Theta) + \frac{q_1 P_2(\cos \Theta)}{1 + d_3 P_2(\cos \Theta)} \quad (\text{mit } A(\Theta)q_3, A(\Theta)q_4 \ll 1) \quad (\text{C.16}) \end{aligned}$$

$$\approx A(\Theta) - \frac{1}{2} \frac{q_1}{1 + d_3} \quad (\text{für } \Theta \approx 90^\circ) \quad (\text{C.17})$$

Das bedeutet insbesondere, daß das Vorhandensein kleiner elektrischer Quadrupolbeiträge sich auf die in Abschnitt C.2.1 bestimmten Dipolparameter nicht auswirken sollte.

Anwendung

Eine „least squares“-Ausgleichsrechnung, die eine Anpassung aller sieben Parameter $d_1 \dots d_3$ und $q_1 \dots q_4$ an die Datensätze für A_x und A_z nach (C.14) und (C.13) durchführt, ergibt das in Tabelle C.4 angegebene Ergebnis. In Fit 1 werden alle sieben Parameter frei variiert, während in Fit 2 der Parameter d_3 eingefroren wurde. Die zugehörigen Ausgleichskurven für die Photoelektronen sind in Abbildung C.3 mit eingetragen.

Wie man in der Abbildung sieht, läßt sich die gemessene Winkelverteilung in dem betrachteten Bereich durch die Formeln (C.14) und (C.13) beschreiben. Betrachten wir in Tabelle C.4 die Parameter d_1 und d_2 , welche die Größe der hier interessierenden Dipolparameter festlegen, dann stellt man wie erwartet Übereinstimmung in allen Ausgleichsmethoden fest. Vergleicht man die Werte für die anderen Parameter untereinander, so fällt zunächst der systematische Vorzeichenwechsel des Parameters q_1 analog zum in Abschnitt C.2.1 festgestellten Verhalten für ϵ auf. Der Parameter q_2 wechselt ebenfalls sein Vorzeichen für die Photoelektronen. Dabei sind die Werte, die für diese beiden Parameter relativ präzise bestimmbar sind, für Photo- und Augerelektronen von gleicher Größenordnung. Des weiteren zeigt der Parameter q_3 recht große Werte, die mit der Annahme $q_3 \ll 1$ nicht vereinbar zu sein scheinen.

Tabelle C.4: Ausgleichsergebnisse der Analyse von Quadrupolbeiträgen. Für die Photoelektronen gilt $d_1 = P_{\text{zirk}} S_{\text{eff}}(A - \alpha)$, $d_2 = -P_{\text{zirk}} S_{\text{eff}}(A + \alpha/2)$ und $d_3 = -\beta/2$; für die Augerelektronen gilt $d_1 = \Lambda\delta_1$, $d_2 = \Lambda\xi_1$ und $d_3 = \mathcal{A}_{20}\alpha_2$. χ_{red}^2 ist die reduzierte quadratische Abweichung zwischen Ausgleichskurve und Meßdaten.

Fit	d_1	d_2	d_3	q_1	q_2	q_3	q_4	χ_{red}^2
Kr-($3d_{3/2}$) ⁻¹								
1	-0.106(08)	-0.201(07)	0.04(09)	-0.037(08)	-0.09(03)	0.42(17)	0.00(16)	0.11
2	-0.105(08)	-0.197(03)	0.10*	-0.036(07)	-0.09(03)	0.45(16)	0.04(13)	0.13
Kr- $M_4N_{2,3}N_{2,3}^1S_0$								
1	0.060(10)	0.118(09)	-0.26(24)	0.024(10)	0.06(03)	0.46(35)	0.05(38)	0.33
2	0.059(10)	0.114(04)	-0.12 [†]	0.023(10)	0.05(03)	0.55(32)	0.16(32)	0.34
Kr- $M_4N_1N_{2,3}^1P_1$								
1	0.013(11)	0.095(08)	-0.14(23)	0.016(08)	0.07(09)	0.59(1.03)	-0.17(36)	0.59
2	0.012(11)	0.093(04)	-0.09 [†]	0.017(07)	0.08(09)	0.65(1.04)	-0.14(27)	0.60
Kr-($3d_{5/2}$) ⁻¹								
1	0.073(06)	0.134(05)	0.04(11)	0.024(06)	0.06(02)	0.35(20)	-0.11(19)	0.14
2	0.072(06)	0.131(03)	0.10*	0.024(06)	0.06(02)	0.40(18)	-0.06(16)	0.15
Kr- $M_5N_{2,3}N_{2,3}^1S_0$								
1	0.032(09)	-0.105(07)	0.11(17)	-0.012(08)	0.09(03)	-0.84(38)	0.03(30)	0.31
2	0.033(09)	-0.113(04)	-0.14 [†]	-0.013(09)	0.10(04)	-0.74(36)	0.17(30)	0.38
Kr- $M_5N_1N_{2,3}^1P_1$								
1	0.060(05)	-0.099(05)	0.07(12)	-0.023(06)	0.05(16)	-0.59(23)	-0.16(23)	0.23
2	0.061(05)	-0.103(03)	-0.09 [†]	-0.025(06)	0.05(02)	-0.60(22)	-0.16(24)	0.30

)* d_3 eingefroren (Theoriewert aus [125])

)[†] d_3 eingefroren (nach Tabelle 2.1 und \mathcal{A}_{20} Abschnitt 6.3.1)

C.2.4 Bewertung der verschiedenen Korrekturverfahren

Zunächst können folgende Ursachen für das hier festgestellte Verhalten mit Sicherheit ausgeschlossen werden:

- Ein falscher Abzug des Untergrundes. Denn wie eine Analyse zeigt, hat der Untergrundabzug einen maximalen Einfluß auf die Spinpolarisationswerte im Promillebereich, ist also um eine Größenordnung zu klein.
- Der Untergrundeinfluß durch lorentzartige Ausläufer der Nachbarpeaks im Spektrum. Auch dies ist wie eine Entfaltungsrechnung analog zu Abschnitt C.1 zeigt vernachlässigbar, selbst für die Photoelektronen, die deutlich schlechter aufgelöst sind als die Augerelektronen.
- Effekte, die durch nicht vernachlässigbar große un- oder linear polarisierte Lichtanteile in der ionisierenden Strahlung verursacht werden könnten. Denn die Formel (2.32) lautet für beliebig polarisierte Strahlung (in Dipolnäherung):

$$P_z(\Theta, \Phi) = \frac{\mathcal{A}_{10}\delta_1 \cos(\Theta)}{1 + \mathcal{A}_{20}\alpha_2 \left\{ P_2(\cos \Theta) - \frac{3}{2} [S_1 \cos(2\Phi) + S_2 \sin(2\Phi)] \sin^2(\Theta) \right\}} \quad (\text{C.18})$$

Aufgrund der $\cos(\Theta)$ -Abhängigkeit, muß P_z daher für $\Theta = 90^\circ$ verschwinden.

- Ein systematisch falsch eingestellter Winkel erklärt nicht die in Abschnitt C.2.1 beobachtete Systematik.

Grundsätzlich nicht auszuschließen sind die in Abschnitt C.2.1 diskutierten apparative Asymmetrien, die durch eine Änderung des Photonenstrahls für σ^+ und σ^- -Licht verursacht werden. Die diesbezüglich hohe Präzision der UE56/1-Beamline bei BESSY II spricht jedoch eher gegen solche Effekte. Des weiteren kann auch die beobachtete Vorzeichensystematik hierdurch nicht richtig erklärt werden.

Eine Drehung des Spinpolarisationsvektors wäre hingegen eine mögliche Erklärung, obwohl eine Restfeldstärke von $5 \mu\text{T}$, angesichts der im Experiment verwendeten Abschirmungen und der aktiven Helmholtz-Kompensation, recht hoch ist.

Gegen Quadrupoleffekte als Ursache spricht einerseits der zu große Parameter q_3 , sowie andererseits die gleiche Größenordnung für Photo- und Augerelektronen. Denn die Quadrupolbeiträge, die bereits für die Photoelektronen klein zu erwarten sind, sollten für Augerelektronen um eine weitere Größenordnung kleiner sein, aufgrund der Fortpflanzung über die Alignment- beziehungsweise Orientierungstensoren (\mathcal{A}_{kq} mit $k > 2$) [128]. Des weiteren sagen neueste von N.A. Cherepov durchgeführte Rechnungen einen im Vergleich zum hier beobachteten um zwei Größenordnungen kleineren Effekt durch Quadrupolbeiträge voraus [129].

Tabelle C.5: Vergleich der Endergebnisse für die intrinsischen Parameter der Kr- $M_{4,5}N_1N_{2,3}^1P_1$ - und der Proportionalitätsfaktoren Λ für die Kr- $M_{4,5}N_{2,3}N_{2,3}^1S_0$ -Augerzerfälle für die verschiedenen Analysemethoden.

Korrektur	$M_4N_1N_{2,3}^1P_1$		$M_5N_1N_{2,3}^1P_1$	
	δ_1	ξ_1	δ_1	ξ_1
Apparative Asymmetrie	0.068(47)	0.722(96)	0.508(44)	-0.793(96)
Spinvektordrehung	0.075(48)	0.740(31)	0.515(43)	-0.805(28)
Quadrupoleffekte	0.097(89)	0.731(33)	0.480(43)	-0.808(28)
	$M_4N_{2,3}N_{2,3}^1S_0$		$M_5N_{2,3}N_{2,3}^1S_0$	
	Λ_{A_x}	Λ_{A_z}	Λ_{A_x}	Λ_{A_z}
Apparative Asymmetrie	0.126(13)	0.138(17)	0.129(13)	0.138(23)
Spinvektordrehung	0.128(05)		0.129(04)	
Quadrupoleffekte	0.127(05)	0.133(22)	0.128(04)	0.112(31)

Wie man anhand des Vergleichs der Werte für die mittlere quadratische Abweichung χ_{red}^2 in den Tabellen C.2–C.4 sowie in Abbildung C.2.3 am Beispiel der Photoelektronen erkennt, führen die verschiedenen Analysemethoden letztendlich zu demselben Ergebnis für die intrinsischen Parameter. In Tabelle C.5 sind nochmals die endgültigen Werte für die intrinsischen Parameter der untersuchten Augerzerfälle zum Vergleich zusammengefaßt.

Für die weitere Analyse der Augerzerfälle im Rahmen von Coulombmatrixelementen ziehe ich die Ergebnisse der Korrektur durch apparative Asymmetrien heran. Über das Inverse der Formel (C.4):

$$A(\Theta) = \frac{\epsilon - (\epsilon + 2)\tilde{A}(\Theta)}{\epsilon\tilde{A}(\Theta) - (\epsilon + 2)} \quad (\text{C.19})$$

lassen sich mit den bekannten ϵ -Werten aus Abschnitt C.2.1 korrigierte Spinpolarisationsdaten für $P_x(\Theta)$ und $P_z(\Theta)$ erzeugen. In den Abbildungen 6.3 und 6.4 sind jeweils die auf diese Weise korrigierten Spinpolarisationsdaten dargestellt.

Zieht man für die in Abschnitt 6.4 geführte Diskussion der Coulombmatrixelemente für die Kr- $M_{4,5}N_1N_{2,3}^1P_1$ -Übergänge die Ergebnisse der anderen Auswertungsmethoden heran, so führt dies zu denselben Schlußfolgerungen. In allen Fällen liegen die intrinsischen Parameter so nahe an der LSJ-Kopplungsgrenze, daß die Unsicherheit in den extrahierten Amplitudenverhältnissen und Phasendifferenzen zu groß für eine eindeutige Bestimmung wird.

Literaturverzeichnis

- [1] H. Hertz. *Ann. d. Phys.* **31** (1887) 983.
- [2] A. Einstein. *Ann. d. Phys.* **17** (1905) 132.
- [3] P. Auger. *C. R. Acad. Sci. Paris* **182** (1926) 776.
- [4] J.P. Blewett. *Phys. Rev.* **69** (1946) 87.
- [5] F.R. Elder, A.M. Gurewitsch, R.V. Langmuir und H.C. Pollock. *Phys. Rev.* **71** (1947) 829.
- [6] C. Kunz. *Synchrotron Radiation*. Springer, Berlin, 1979.
- [7] K. Wille. *Physik der Teilchenbeschleuniger und Synchrotronstrahlungsquellen*. Teubner, Stuttgart, 1996.
- [8] J. Berkowitz. *Photoabsorption, Photoionization and Photoelectron Spectroscopy*. Academic Press, New York, 1978.
- [9] J.A.R. Samson. *Atomic Photoionization*. In W. Mehlhorn, Hrsg., *Handbuch der Physik*, Bd. 31, S. 124. Springer, Berlin, 1982.
- [10] H. Siegbahn und L. Karlsson. *Photoelectron Spectroscopy*. In W. Mehlhorn, Hrsg., *Handbuch der Physik*, Bd. 31, S. 215. Springer, Berlin, 1982.
- [11] W. Mehlhorn. *Auger-Electron Spectrometry of Core Levels of Atoms*. In B. Crasemann, Hrsg., *Atomic Inner-Shell Physics*, S. 119. Plenum Press, New York, 1985.
- [12] U. Becker und D.A. Shirley. *Partial Cross Sections and Angular Distributions*. In U. Becker und D.A. Shirley, Hrsg., *VUV and Soft X-Ray Photoionization*, S. 135. Plenum Press, New York, 1996.
- [13] J.H.D. Eland und V. Schmidt. *Coincidence Measurements on Ions and Electrons*. In U. Becker und D.A. Shirley, Hrsg., *VUV and Soft X-Ray Photoionization*, S. 495. Plenum Press, New York, 1996.

-
- [14] U. Heinzmann und N.A. Cherepkov. *Spin Polarization in Photoionization*. In U. Becker und D.A. Shirley, Hrsg., *VUV and Soft X-Ray Photoionization*, S. 521. Plenum Press, New York, 1996.
- [15] B. Bederson. *Comm. At. Mol. Phys.* **1** (1969) 41, 65.
- [16] J. Kessler. *Comm. At. Mol. Phys.* **10** (1981) 47.
- [17] U. Heinzmann. *J. Phys. B* **13** (1980) 4353.
- [18] U. Heinzmann. *J. Phys. B* **13** (1980) 4367.
- [19] Ch. Heckenkamp. *Winkel- und spin-aufgelöste Photoelektronenspektroskopie mit zirkular polarisierter Synchrotronstrahlung an freien Xenon Atomen*. Dissertation, Freie Universität Berlin, 1984.
- [20] Ch. Heckenkamp, F. Schäfers, G. Schönhense und U. Heinzmann. *Phys. Rev. Lett.* **52** (1984) 421.
- [21] Ch. Heckenkamp, F. Schäfers, G. Schönhense und U. Heinzmann. *Z. Phys. D* **2** (1986) 257.
- [22] G. Snell, U. Hergenhahn, N. Müller, M. Drescher, J. Viefhaus, U. Becker und U. Heinzmann. *Phys. Rev. A* **63** (2001) 032712.
- [23] A. Hausmann, B. Kämmerling, H. Kossmann und V. Schmidt. *Phys. Rev. Lett.* **61** (1988) 2669.
- [24] J. Jiménez-Mier, C.D. Caldwell und D.L. Ederer. *Phys. Rev. Lett.* **57** (1986) 2260.
- [25] H. Hamdy, H.J. Beyer, J.B. West und H. Kleinpoppen. *J. Phys. B* **24** (1991) 4957.
- [26] B. Kämmerling und V. Schmidt. *Phys. Rev. Lett.* **67** (1991) 1848.
- [27] S.J. Schaphorst, Q. Qian, P. Krässig, B. van Kampen, N. Scherer und V. Schmidt. *J. Phys. B* **30** (1997) 1997.
- [28] H.J. Beyer, J.B. West, K.J. Ross, K. Ueda, N.M. Kabachnik, H. Hamdy und H. Kleinpoppen. *J. Phys. B* **28** (1995) L47.
- [29] O. Plotzke, G. Prümper, B. Zimmermann, U. Becker und H. Kleinpoppen. *Phys. Rev. Lett.* **77** (1996) 2642.
- [30] K. Godehusen, P. Zimmermann, A. Verweyen, A. vd Borne, Ph. Wernet und B. Sonntag. *Phys. Rev. A* **58** (1998) R3371.

-
- [31] G. Prümper, B. Zimmermann, B. Langer, R. Hentges, N.A. Cherepkov, B. Schmidtke, M. Drescher, U. Heinzmann, U. Becker und H. Kleinpoppen. *Phys. Rev. Lett.* **24** (2000) 5074.
- [32] A. Dorn, O. Zatsarinny und W. Mehlhorn. *J. Phys. B* **30** (1997) 2975.
- [33] A.N. Grum-Grzhimailo, A. Dorn und W. Mehlhorn. *Commun. Mod. Phys. D* **1** (1999) 29.
- [34] K. Ueda, Y. Shimizu, H. Chiba, Y. Sato, M. Kitajima, H. Tanaka und N.M. Kabachnik. *Phys. Rev. Lett.* **83** (1999) 5463.
- [35] U. Hahn, J. Semke, H. Merz und J Kessler. *J. Phys. B* **18** (1985) L417.
- [36] R. Kuntze, M. Salzmann, N. Böwering und U. Heinzmann. *Phys. Rev.Lett* **70** (1993) 3716.
- [37] R. Kuntze, M. Salzmann, N. Böwering und U. Heinzmann. *Z. Phys. D* **30** (1993) 235.
- [38] R. Kuntze, M. Salzmann, N. Böwering, U. Heinzmann, V.K. Ivanov und N.M. Kabachnik. *Phys. Rev. A* **50** (1994) 489.
- [39] G. Snell, M. Drescher, N. Müller, U. Heinzmann, U. Hergenbahn, J. Viefhaus, F. Heiser, U. Becker und N.B. Brooks. *Phys. Rev.Lett*, **76** (1996) 3923.
- [40] G. Snell, B. Langer, M. Drescher, N. Müller, B. Zimmermann, U. Hergenbahn, J. Viefhaus, U. Heinzmann und U. Becker. *Phys. Rev. Lett.* **82** (1999) 2480.
- [41] G. Snell, M. Drescher, N. Müller, U. Heinzmann, U. Hergenbahn und U. Becker. *J. Phys. B* **32** (1999) 2361.
- [42] U. Hergenbahn, G. Snell, M. Drescher, B. Schmidtke, N. Müller, U. Heinzmann, M. Wiedenhöft und U. Becker. *Phys. Rev. Lett.* **82** (1999) 5020.
- [43] B. Schmidtke, M. Drescher und U. Heinzmann. *Systematic ambiguity in the extraction of matrix elements from the five dynamical parameters of photoionization*. In *Proc. 22nd Int. Conf. on Photonic, Electronic and Atomic Collisions*, Sendai, (1999).
- [44] B. Schmidtke, M. Drescher, N.A. Cherepkov und U. Heinzmann. *J. Phys. B* **33** (2000) 2451.
- [45] B. Schmidtke, T. Khalil, N. Müller, M. Drescher und U. Heinzmann. *Bestimmung der intrinsischen Parameter β_1 und γ_1 durch explizite Messung der Winkelabhängigkeit der Spinpolarisation von Augerelektronen*. In *Verhandl. DPG (VI) 35*, Bonn, (2000).

- [46] B. Schmidtke, T. Khalil, M. Drescher, N. Müller, N.M. Kabachnik und U. Heinzmann. *J. Phys. B* **33** (2000) 5225.
- [47] B. Schmidtke, T. Khalil, N. Müller, M. Drescher, N.M. Kabachnik und U. Heinzmann. *First measurements of the angular dependence of Auger electron spin polarization for Xe and Kr atoms by means of the helical undulator UE56/1 of BESSY-II*. In *Proc. Int. Workshop on Photoionisation*, Carry le Rouet, (2000).
- [48] B. Schmidtke, T. Khalil, N. Müller, M. Drescher, N.M. Kabachnik und U. Heinzmann. *Discovery of a fundamental dependence between intrinsic parameters of Auger decay and consequences for the extraction of matrix elements from measured data*. In *Proc. Int. Workshop on Photoionisation*, Carry le Rouet, (2000).
- [49] B. Schmidtke, T. Khalil, N. Müller, M. Drescher, N.M. Kabachnik und U. Heinzmann. *Implications of a newly discovered interdependence of intrinsic parameters for the analysis of angle- and spin resolved Auger electron spectroscopy of the Kr $M_{4,5}N_1N_{2,3}^1P_1$ Auger decay*. In *Verhandl. DPG (VI) 36*, Berlin, (2001).
- [50] B. Schmidtke, T. Khalil, N. Müller, M. Drescher, N.M. Kabachnik und U. Heinzmann. *The Kr $M_{4,5}N_1N_{2,3}^1P_1$ Auger decay: measurement of the transferred spin polarization and analysis of Auger amplitudes*. Submitted to *J. Phys. B*, (2001).
- [51] B.H. Bransden und C.J. Joachain. *Physics of Atoms and Molecules*. Longman Scientific & Technical, Essex, 1994.
- [52] V. Schmidt. *Electron Spectrometry of Atoms using Synchrotron Radiation*. University press, Cambridge, 1992.
- [53] D.R. Hartree. *The Calculation of Atomic Structures*. Wiley, New York, 1957.
- [54] A.F. Starace. *Theory of Atomic Photoionization*. In W. Mehlhorn, Hrsg., *Handbuch der Physik*, Bd. 31, S. 1. Springer, Berlin, 1982.
- [55] T. Åberg und G. Howat. *Theory of the Auger effect*. In S. Flügge und W. Mehlhorn, Hrsg., *Handbuch der Physik*, Bd. 31, S. 469. Springer, Berlin, 1982.
- [56] B. Krässig, M. Jung, D.S. Gemmell, E.P. Kanter, T. LeBrun, S.H. Southworth und L. Young. *Phys. Rev. Lett.* **75** (1995) 4736.
- [57] M. Jung, B. Krässig, D.S. Gemmell, E.P. Kanter, T. LeBrun, S.H. Southworth und L. Young. *Phys. Rev. A* **54** (1996) 2127.

- [58] O. Hemmers, G. Fisher, P. Glans, D.L. Hansen, H. Wang, S.B. Whitfield, R. Wehlitz, J.C. Levin, I.A. Sellin, R.C.C. Perera, E.W.B. Dias, H.S. Chakraborty, P.C. Deshmukh, S.T. Manson und D.W. Lindle. *J. Phys. B* **30** (1997) L727.
- [59] N.L.S. Martin, D.B. Thompson, R.P. Bauman, C.D. Caldwell, M.O. Krause, S.P. Frigo und M. Wilson. *Phys. Rev. Lett.* **81** (1998) 1199.
- [60] N.A. Cherepkov. *Adv. At. Mol. Phys.* **19** (1983) 395.
- [61] N.F. Mott und H.S.W. Massey. *The Theory of Atomic Collisions*. Clarendon Press, Oxford, 1971.
- [62] K.N. Huang. *Phys. Rev. A* **22** (1979) 223.
- [63] V.V. Balashov, A.N. Grum-Grzhimailo und N.M. Kabachnik. *Polarization and Correlation Phenomena in Atomic Collisions*. Kluwer Academic/Plenum Publishers, New York, 2000.
- [64] V. Schmidt, N. Sandner, W. Mehlhorn, M.Y. Adam und F. Wuilleumier. *Phys. Rev. Lett.* **38** (1977) 63.
- [65] L. Vegh und J.H. Macek. *Phys. Rev. A* **50** (1994) 4031.
- [66] O. Schwarzkopf und V. Schmidt. *J. Phys. B* **29** (1996) 3023.
- [67] J. Viefhaus, G. Snell, R. Hentges, M. Wiedenhöft, F. Heuser, O. Geßner und U. Becker. *Phys. Rev. Lett.* **80** (1998) 1618.
- [68] V. Schmidt. *Nucl. Inst. Meth. B* **87** (1994) 241.
- [69] G. Wentzel. *Z. Phys.* **43** (1927) 524.
- [70] N.M. Kabachnik und I.P. Sazhina. *J. Phys. B* **23** (1990) L353.
- [71] W.R. Johnson und K.T. Cheng. *Phys. Rev. Lett.* **69** (1992) 1144.
- [72] W.R. Johnson und K.T. Cheng. *Phys. Rev. A* **46** (1992) 2952.
- [73] N.M. Kabachnik und I.P. Sazhina. *J. Phys. B* **17** (1984) 1335.
- [74] M. Born und E. Wolf. *Principles of Optics*. Pergamon Press, Oxford, 1986.
- [75] J. Kessler. *Polarized Electrons*. Springer, Berlin, 1985.
- [76] K. Blum. *Density Matrix Theory and Applications*. Plenum Press, New York, 1996.

- [77] W. Mehlhorn. *Auger-Electron Spectrometry of Core Levels of Atoms*. In B. Crasemann, Hrsg., *X-ray and Atomic Inner-Shell Physics*, S. 53. Plenum Press, New York, 1982.
- [78] K.N. Huang. *Phys. Rev. A* **26** (1982) 2274.
- [79] B. Lohmann, U. Hergenhahn und N.M. Kabachnik. *J. Phys. B* **26** (1993) 3327.
- [80] H. Klar. *J. Phys. B* **13** (1980) 4741.
- [81] N.M. Kabachnik. *J. Phys. B* **14** (1981) L337.
- [82] U. Hergenhahn und U. Becker. *J. Electr. Spectr. Rel. Phenomen.* **76** (1995) 225.
- [83] N.M. Kabachnik und O.V. Lee. *J. Phys. B* **22** (1989) 2705.
- [84] B. Lohmann. *Angle and Spin Resolved Auger Processes on Free Atoms and Molecules*. Habilitation, Universität Münster, 1998.
- [85] O. Forster. *Analysis 2*. Vieweg, Braunschweig, 1991.
- [86] Waterloo Software. *MAPLE V*, (1994).
- [87] J. Stoer. *Numerische Mathematik 1*. Springer, Berlin, 1994.
- [88] W.H. Press, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling und B.P. Flannery. *Numerical Recipes in C*. University press, Cambridge, 1997.
- [89] B. Schmidtke. Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 1998.
- [90] F.W. Aston. *Phil. Mag.* **38** (1919) 707.
- [91] E.M. Purcell. *Phys. Rev.* **54** (1938) 818.
- [92] K. Jost. *J. Phys. E* **12** (1979) 1006.
- [93] M.E. Rudd. *Electrostatic Analyzers*. In K.D. Sevier, Hrsg., *Low Energy Electron Spectrometry*. Wiley Interscience, New York, 1972.
- [94] A. Mank. *Rotationsselektive Untersuchung der Photoionisationsdynamik von HI-Molekülen durch winkel- und spinaufgelöste Photoelektronenspektroskopie*. Dissertation, Universität Bielefeld, 1991.
- [95] L.G. Gray, M.W. Hart, F.B. Dunning und G.K. Walters. *Rev. Sci. Instrum.* **55** (1984) 88.
- [96] B. Heidemann. Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 1989.

- [97] N. Müller, R. David, G. Snell, R. Kuntze, M. Drescher, N. Böwering, P. Stoppmanns, S.-W. Yu, U. Heinzmann, J. Viefhaus, Hergenahn U. und U. Becker. *J. Electr. Spectr. Rel. Phenomen.* **72** (1995) 187.
- [98] G. Snell. *Spinaufgelöste Elektronenspektroskopie an freien Xenon- und Argonatomen mit zirkular polarisierter Synchrotronstrahlung*. Dissertation, Universität Bielefeld, 1997.
- [99] R. David. *Spinaufgelöste Augerspektroskopie an 3d-Metallen und Jod nach Anregung mit zirkular polarisierter Synchrotronstrahlung*. Dissertation, Universität Bielefeld, 1998.
- [100] T.J. Gay und F.B. Dunning. *Rev. Sci. Instrum.* **63** (1991) 1635.
- [101] Ion Source Software. *SIMION*, (1993).
- [102] E. Harting und F. Read. *Electrostatic Lenses*. Elsevier, New York, 1976.
- [103] K.J.S. Sawhney, F. Senf, M. Scheer, F. Schäfers, J. Bahrtdt, A. Gaupp und W. Gudat. *Nucl. Instr. Meth. A* **390** (1997) 395.
- [104] B. Kämmerling, B. Krässig und V. Schmidt. *J. Phys. B* **23** (1990) 4487.
- [105] G. Snell, E. Kukk, B. Langer und N. Berrah. *Phys. Rev. A* **61** (2000) 042709.
- [106] H. Aksela, S. Aksela und H. Pulkkinen. *Phys. Rev. A* **30** (1983) 865.
- [107] W. Persson, C.-G. Wahlström, G. Bertuccelli, H.O. Di Rocco, J.G. Reyna Almandos und M. Gallardo. *Phys. Scr.* **38** (1988) 347.
- [108] L.O. Werme, T. Bergmark und K. Siegbahn. *Phys. Scr.* **6** (1972) 141.
- [109] S. Southworth, U. Becker, C.M. Truesdale, P.H. Kobrin, D.W. Lindle, S. Owaki und D.A. Shirley. *Phys. Rev. A* **28** (1983) 261.
- [110] J. Tulkki, N.M. Kabachnik und H. Aksela. *Phys. Rev. A* **48** (1993) 1277.
- [111] J. Jauhiainen, H. Aksela, S. Aksela, A. Kivimäki, O.-P. Sairanen, E. Nömmiste und J. Végh. *J. Phys. B* **28** (1995) 3831.
- [112] B. Kämmerling, B. Krässig, O. Schwarzkopf, J.P. Ribeiro und V. Schmidt. *J. Phys. B* **25** (1992) L5.
- [113] N.M. Kabachnik und A.N. Grum-Grzhimailo. *J. Phys. B* **34** (2000) L63.
- [114] B. Kämmerling, V. Schmidt, W. Mehlhorn, W.B. Peatman, F. Schäfers und T. Schroeter. *J. Phys. B* **22** (1989) L597.

-
- [115] E.G. Berezhko, N.M. Kabachnik und V.S. Rostovsky. *J. Phys. B* **11** (1977) 1749.
- [116] N.M. Kabachnik und I.P. Sazhina. *J. Phys. B* **21** (1988) 267.
- [117] N.M. Kabachnik. private Mitteilung, (2000).
- [118] N.M. Kabachnik, I.P. Sazhina, I.S. Lee und O.V. Lee. *J. Phys. B* **21** (1988) 3695.
- [119] D.A. Varshalovich, A.N. Moskalev und V.K. Khersonskii. *Quantum Theory of Angular Momentum*. World Scientific, Singapore, 1988.
- [120] M. Drescher. *Rotationsaufgelöste Charakterisierung der Autoionisationsresonanzen von HCl und DCl durch Messung der Photoelektronenspinpolarisation*. Dissertation, Universität Bielefeld, 1993.
- [121] NATIONAL INSTRUMENTS. *LabVIEW: Graphical Programming for Instrumentation*, (1992).
- [122] U. Beyn. *Vorlesungsscript zu numerische Methoden der Mathematik I*. Universität Bielefeld, (1993).
- [123] A. Ausmees, A. Hahlin, S.L. Sorensen, S. Sundin, I Hjelte, O. Björneholm und S. Svensson. *J. Phys. B* **32** (1999) L197.
- [124] T. Hayaishi, E. Murakami, Y. Morioka, H. Aksela, S. Aksela, E. Shigemasa und A. Yagishita. *Phys. Rev. A* **44** (1991) R2771.
- [125] K.N. Huang, W.R. Johnson und K.T. Cheng. *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **26** (1981) 33.
- [126] D.W. Lindle, P.A. Heimann, P.H. Ferett, Kobrin P.H., C.M. Truesdale, U. Becker und Shirley D.A. *Phys. Rev. A* **33** (1986) 319.
- [127] N.A. Cherepkov und S.K. Semenov. *Non-dipole effects in spin polarisation of photoelectrons from Xe 4p and 5p shells*. to be published, (2001).
- [128] N.M Kabachnik und I.P. Sazhina. *J. Phys. B* **29** (1996) L515.
- [129] N.A. Cherepkov. private Mitteilung, (2001).

Abkürzungsverzeichnis

ADC: „analog to digital converter“

BESSY: Berliner Elektronenspeicherringgesellschaft für Synchrotronstrahlung

EDC: „energy dispersion curve“

FWHM: „full width at half maximum“

DAC: „digital to analog converter“

EPROM: „erasable programmable read only memory“

LSB: „least significant bit“

HF: „Hartree-Fock“

HS: „Hartree-Slater“

MBPT: „many body perturbation theory“

MCDF: „multiconfiguration Dirac-Fock“

MMCDF: „multichannel multiconfiguration Dirac-Fock“

MCP: „multi channel plate“

MQDT: „multi channel quantum defect theory“

MSB: „most significant bit“

PCI: „post collision interaction“

QDT: „quantum defect theory“

RRPA: „relativistic random phase approximation“

SDA: „spherical deflection analyzer“

UHV: Ultrahochvakuum

Danksagung

Diese Arbeit entstand am Lehrstuhl für Molekül- und Oberflächenphysik der Universität Bielefeld mit finanzieller Unterstützung durch die Deutsche Forschungsgemeinschaft und das Bundesministerium für Bildung und Forschung. Herrn Prof. Dr. U. Heinzmann danke ich für die interessante Aufgabenstellung, das mir entgegengebrachte Vertrauen und die Unterstützung bei der Interpretation und Analyse der experimentellen Ergebnisse.

Mein besonderer Dank gilt Dr. M. Drescher, der diese Arbeit von Anfang an durch vielseitige Ideen kritisch begleitet hat und während der kurzen und daher stets hektischen Meßzeiten am Speicherring immer mit seiner wertvollen experimentellen Erfahrung zur Verfügung stand.

Herrn Prof. Dr. N.A. Cherepkov danke ich für die Zusammenarbeit bei der Suche nach der „magischen“ Verknüpfung. Ganz besonders möchte ich auch Herrn Prof. Dr. N.M. Kabachnik für die vielen interessanten Diskussionen und die Hilfe bei der Interpretation der Meßdaten danken.

Ferner danke ich Herrn Dr. N. Müller für viele interessante Diskussionen und insbesondere für die Unterstützung beim Betrieb des Mottpolarimeters. Herrn Dipl.-Phys. T. Khalil danke ich für das unermüdliche Mitwirken während der Meßzeiten wie auch bei der Vorbereitung der Experimente. Des weiteren möchte ich Herrn Dipl.-Phys. T. Lischke und Herrn Dipl.-Phys. M. Pohl danken, die mich bei den aufwendigen Aufbau- und Transportaktionen tatkräftig unterstützt haben und auch bei den Messungen zu einem angenehmen und entspannten Arbeitsklima beigetragen haben.

Herrn V. Schimmang wie auch den Mitarbeitern der mechanischen Werkstatt (Leiter Herr H.-D. Brezina) bin ich zu besonderem Dank verpflichtet für die kompetente und unkomplizierte Umsetzung der teilweise aufwendigen technischen Konstruktionen. Herrn H. Nosseler und Herrn W. Grohnemeyer gilt in diesem Zusammenhang mein spezieller Dank.

Herzlich danken möchte allen Doktoranden und Diplomanden dieser Arbeitsgruppe für die gute Zusammenarbeit und viele anregende Diskussionen, insbesondere Herrn Dr. M. Spieweck und Herrn Mgr. P. Šiffalovič, sowie auch den Sekretärinnen K. Lofthouse und K. Schneider für die organisatorische Unterstützung.

Hiermit versichere ich, die vorliegende Arbeit eigenständig und ohne fremde Hilfe durchgeführt zu haben. Alle benutzten Hilfsmittel sind in der Literaturliste kenntlich gemacht.

Bielefeld, den 08.04.2001

Bernd Schmidtke

Lebenslauf

Bernd Schmidtke
Geboren am 12.06.1972 in Hannover
Deutscher Staatsbürger
Ledig

Schulischer und beruflicher Werdegang:

- | | |
|-----------------|--|
| ab 1978 | Besuch der Fichteschule, Hannover |
| 08.1982-08.1984 | Besuch der Hermann-Löns-Schule, Hannover |
| 08.1984-08.1991 | Besuch des Kaiser-Wilhelm-Gymnasiums, Hannover |
| 05.1991 | Abitur |
| 07.1991-07.1992 | Grundwehrdienst im Panzerlehrbataillon 94, Munster |
| 10.1992 | Beginn des Diplomstudiengangs Physik
an der Universität Bielefeld |
| 10.1994 | Vordiplom |
| 02.1998 | Abschluß der Diplomarbeit bei Prof. Dr. U. Heinzmann, mit
dem Thema: Aufbau und Charakterisierung einer Apparatur
zur winkel- und spinaufgelösten Photoelektronenspektroskopie
in der Gasphase. |
| ab 03.1998 | Wissenschaftlicher Angestellter an der Fakultät der Physik
der Universität Bielefeld mit dem Ziel der Promotion. |

Bielefeld, April 2001