

Untersuchung lokaler Responseeffekte in interatomaren Stößen mit zwei aktiven Elektronen im Rahmen zeitabhängiger Dichtefunktionaltheorie

Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften

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

von
Matthias Keim
aus Erlensee

Frankfurt am Main 2004
(D F 1)

Dekan: Prof. Dr. W. Aßmus

1. Gutachter: Prof. Dr. R.M. Dreizler

2. Gutachter: Prof. Dr. H.J. Lüdde

Datum der Disputation:

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theorie der Elektronendynamik in interatomaren Stoßprozessen	7
2.1	Abbildung auf ein effektives Einteilchenbild	8
2.1.1	Das Runge-Gross-Theorem	9
2.1.2	Die zeitabhängigen Kohn-Sham-Gleichungen	9
2.1.3	Das zeitabhängige Kohn-Sham-Potential	10
2.1.4	Die adiabatische Näherung	11
2.2	Lösung der Einteilchengleichungen	13
2.2.1	Quantenmechanische Lösungsmethoden	14
2.2.2	Das optische Potential	15
2.2.3	Die Basis Generator Methode	17
2.2.4	Numerische Umsetzung der BGM	22
2.3	Observablen für ein Zweiteilchen Spin-Singulett System	24
2.3.1	Nettowahrscheinlichkeiten	24
2.3.2	Zweiteilchen-Übergangswahrscheinlichkeiten	25
2.3.3	Berechnung von Wirkungsquerschnitten	27
3	Modelle für das Responspotential	29
3.1	Die 'no-response' Näherung	29
3.2	Globales Responsmodell	30
3.3	Adiabatisches Responsmodell	32
3.4	Mikroskopische Respons	33
3.4.1	Näherung durch Multipolentwicklung	34
3.4.2	Lösung der Poisson-Gleichung	36
4	Numerische Darstellung des Responspotentials	41
5	Stöße mit Antiprotonen	47
5.1	Konvergenz der einzentrigen Entwicklung des Responspotentials	48
5.2	Ionisation in $\bar{p} - \text{He}$ Stößen	50
5.2.1	Einfachionisation	50
5.2.2	Zweifachionisation	54
5.2.3	Ionisationsmechanismus	56
5.2.4	Betrachtung des Responspotentials	60

5.3	Einfachionisation in $\bar{p} - \text{Li}^+$ Stößen	65
5.4	Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse	66
6	Stöße mit positiv geladenen Projektilen	67
6.1	Konvergenz der zweizentrierten Entwicklung des Responspotentials	68
6.2	Vergleich der Stoßsysteme $p - \text{He}$ und $\text{He}^{2+} - \text{He}$	69
6.2.1	Dynamische Korrelationsdiagramme	70
6.2.2	Nettowirkungsquerschnitte und Auswirkungen des globalen Responsmodells	72
6.2.3	Zweiteilchen-Wirkungsquerschnitte	75
6.2.4	Betrachtung verschiedener Multinomialauswertungen in $p - \text{He}$ Stößen	82
6.3	Vergleich der Stoßsysteme $\text{Li}^{3+} - \text{He}$ und $p - \text{Li}^+$	85
6.4	Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse	91
7	Zusammenfassung und Ausblick	93
A	Details zur praktischen Umsetzung des BGM-Konzepts	99
A.1	Vororthogonalisierung der Basis	99
A.2	Berechnung der Matrixelemente	100
A.2.1	Matrixelemente für die 'no-response' Näherung	100
A.2.2	Matrixelemente für das mikroskopische Responspotential	104
A.3	Dreieckszerlegung der Überlappmatrix	105
A.4	Projektion auf bewegte Projektilezustände	106
B	Matrixelemente zur Darstellung der Poisson-Gleichung	111
C	Verzeichnis der Abkürzungen	113
	Literaturverzeichnis	115

Kapitel 1

Einleitung

Interatomare Stöße sind ein physikalisches Phänomen, das auf sehr verschiedenen Gebieten in Natur und Technik von Bedeutung ist und Anwendung findet. Als natürliche Prozesse treten Ion-Atom-Stöße in den Atmosphären von Sternen, Planeten und Kometen auf, zu deren theoretischer Beschreibung umfassendes Datenmaterial benötigt wird. Gleiches gilt für technische Anwendungen wie z.B. die Plasmadiagnostik, die Materialforschung, die Femtochemie oder etwa die strahlentherapeutische Tumorbehandlung mit Hilfe von Protonen oder hochgeladenen Schwerionen. Auf allen diesen Gebieten sind atomare Streuprozesse in vielfältiger Art und Weise anzutreffen. In der theoretischen Betrachtung handelt es sich dabei um zeitabhängige wechselwirkende Vielteilchensysteme, deren Bewegungsgleichungen weder im klassischen noch im quantenmechanischen Fall analytisch gelöst werden können, obwohl die relevanten Wechselwirkungen bekannt sind. Zur Lösung dieser Gleichungen sind folglich Näherungen unumgänglich. Neben den Anwendungen in Natur und Technik spielt also die Grundlagenforschung auf dem Gebiet interatomarer Stöße eine nicht zu unterschätzende Rolle. Hierzu zählt die Entwicklung leistungsfähiger Näherungen, numerischer Ansätze und Methoden auf theoretischer Seite, sowie der Einsatz neuer Techniken, wie beispielsweise hochauflösender Detektoren und leistungsfähiger Ionenquellen, auf experimenteller Seite.

Den Prototyp eines wechselwirkenden quantenmechanischen Vielteilchensystems stellen Stöße vollständig ionisierter Projektile mit Heliumatomen dar. Erste Experimente bezüglich der auftretenden inelastischen Prozesse – Einfang und Ionisation – wurden vor fast fünfzig Jahren mit positiv geladenen Ionen durchgeführt [1–3]. Die zugehörigen totalen Wirkungsquerschnitte konnten von theoretischer Seite her im Laufe der Zeit quantitativ recht gut wiedergegeben werden, jedoch besteht an einigen Punkten weiterhin Klärungsbedarf. Das Hauptproblem besteht dabei in der Vielfalt der möglichen Reaktionen verbunden mit dem *Vielteilchencharakter* der aus der zur Diskussion stehenden Schrödinger- oder Dirac-Gleichung zu berechnenden Wellenfunktion. Die Beschreibung der Elektron-Elektron-Wechselwirkung während des Stoßes ist hierbei von besonderer Bedeutung. Ein Aspekt dieser Wechselwirkung, die Behandlung mikroskopischer Responseeffekte, ist Gegenstand der vorliegenden Arbeit und soll für interatomare Stöße mit zwei aktiven Elektronen mit Hilfe verschiedener Modellierungen im Detail untersucht werden.

Von experimenteller Seite her wurde in den letzten Jahren durch die COLTRIMS¹-Technik ein äußerst leistungsfähiges Verfahren entwickelt, um mit hoher Präzision verschiedene Aspekte der Elektron-Elektron-Wechselwirkung in interatomaren Stößen zu untersuchen [4–7]. Mit Hilfe dieser Methode können die kinematischen Freiheitsgrade und damit die Endzustände (abgesehen vom Spin) aller Reaktionsprodukte eines Ion-Atom-Stoßes bestimmt werden. In den gemessenen Impulsraumspektren kann man auf diese Weise Signaturen verschiedenster Ionisationsmechanismen [8] nachweisen. Äußerst umfangreich und detailliert wurde beispielsweise die Transferionisation im Stoßsystem p – He vermessen [9–15]. Hierbei wird während des Stoßes ein Elektron vom Projektil eingefangen und gleichzeitig das andere ionisiert. Es zeigt sich, dass schon für ein qualitatives Verständnis der beobachteten Charakteristika dieses Prozesses eine korrelierte Wellenfunktion für den Anfangszustand notwendig ist [16,17]. Der Begriff '*Korrelation*' ist dabei im traditionellen Sinne als verbleibende Differenz zwischen exakter Lösung und der Lösung, die mit Hilfe der Näherung der Wellenfunktion durch eine einzelne Slater-Determinante gewonnen wird, zu verstehen. Dieser Ansatz wird auch als Hartree-Fock-Näherung bezeichnet. Mit Hilfe des zeitabhängigen Hartree-Fock-Formalismus (TDHF²) wurden in der Vergangenheit totale Wirkungsquerschnitte für Einfang und Anregung in den Systemen p – He und He²⁺ – He berechnet [18–24]. Äußerst schwierig hierbei ist die Behandlung der dort vernachlässigten Ionisationskanäle. Während für kleine Stoßenergien (adiabatischer Energiebereich) der Einfang den dominierenden inelastischen Prozess darstellt, konkurriert dieser im Bereich mittlerer Projektilenergien mit der Ionisation, die schließlich für große Einschussenergien (diabatischer Energiebereich) dominant ist. Als kleine Einschussenergie wird dabei eine Projektilgeschwindigkeit bezeichnet, die sehr viel kleiner ist als die klassische Orbitalgeschwindigkeit des aktiven Elektrons im Bohrschen Atommodell. Ist das Projektil sehr viel schneller als die aktiven Elektronen, so können Responseeffekte vernachlässigt werden, da der elektronischen Dichte nicht genügend Zeit bleibt, sich den sehr schnell verändernden Potentialverhältnissen anzupassen. Unter Responseeffekten versteht man die Veränderungen des effektiven interelektronischen Potentials gegenüber dem Grundzustandspotential der effektiven Elektron-Elektron-Wechselwirkung im ungestörten Targetatom durch die Anwesenheit des Projektils. Im Bereich großer Stoßenergien reicht es also bedingt durch die kurze Wechselwirkungszeit aus, die interelektronische Wechselwirkung nur im Anfangs- und Endzustand zu berücksichtigen. Für kleine Einschussenergien kann die Zeitabhängigkeit des Potentials aufgrund der Reaktion der Dichteverteilung in der Gegenwart des Projektils – das Resonspotential – jedoch nicht mehr vernachlässigt werden. Hier müssen die zeitabhängigen Effekte der Elektron-Elektron-Wechselwirkung auch *während* des Stoßes in die theoretische Betrachtung miteinbezogen werden.

Für große Projektilgeschwindigkeiten können störungstheoretische Ansätze, wie beispielsweise CDW³-Methoden, zur Beschreibung der Stoßdynamik verwendet werden. Dabei werden Übergangsamplituden erster Ordnung einer Entwicklung nach Zuständen berechnet, die näherungsweise die Störungen durch die Coulombfelder von Projektil und Target berücksichtigen. Die verwendeten Funktionen erfüllen die korrekten Randbedingungen des Streuproblems und sind deshalb der herkömmlichen Bornschen Näherung überlegen.

¹COLTRIMS: Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy

²TDHF: Time Dependent Hartree Fock

³CDW: Continuum Distorted Wave

Für die Stoßsysteme $p - \text{He}$ und $\text{He}^{2+} - \text{He}$ werden damit die totalen Wirkungsquerschnitte bei großen Einschussenergien verglichen mit Messungen sehr gut wiedergegeben [25–33]. Dabei ist jedoch unklar, bis zu welcher Stoßenergie die CDW-Methoden sinnvolle Ergebnisse liefern können. Details zu verschiedenen CDW-Modellen finden sich in dem Übersichtsartikel [34].

Eine weitere intensive Diskussion darüber, die Effekte der Elektron-Elektron-Wechselwirkung im Anfangszustand, im Endzustand oder auch in der Dynamik berücksichtigen zu müssen, erfolgte bezüglich des Verhältnisses der totalen Wirkungsquerschnitte für Zweifach- und Einfachionisation in Stößen hochenergetischer Protonen und Antiprotonen mit Helium [35–39]. Es zeigt sich, dass das gemessene unterschiedliche Verhalten dieses Quotienten nicht im Rahmen eines Modells unabhängiger Elektronen wiedergegeben werden kann. Eine korrelierte Anfangswellenfunktion ist auch hier zur richtigen Beschreibung notwendig (siehe Diskussion in [40–47]).

Für das Stoßsystem $\bar{p} - \text{He}$ (und auch für Stöße anderer atomarer Targets mit Antiprotonen) besteht darüber hinaus für die totalen Wirkungsquerschnitte eine Diskrepanz zwischen existierenden Rechnungen und den experimentellen Daten für Einfachionisation bei kleinen Stoßenergien. In diesem Fall ist es notwendig, die Elektron-Elektron-Wechselwirkung auch während des Stoßes zu berücksichtigen. Da es auch korrelierten Rechnungen [45, 48] nicht gelungen ist, die bestehenden Diskrepanzen aufzuklären, muss die Ursache dafür bei den vorliegenden experimentellen Daten vermutet werden. Diese wurden im Rahmen des LEAR⁴-Projektes am europäischen Kernforschungszentrum CERN⁵ durch die PS194-Kollaboration gewonnen. In naher Zukunft sollen die Stoßexperimente durch die ASACUSA⁶-Kollaboration am CERN wiederholt und überprüft werden. In ferner Zukunft werden im Zuge des Ausbaus der GSI⁷ im Rahmen des FLAIR⁸-Projektes sehr niederenergetische Antiprotonen für weitere Stoßexperimente zur Verfügung stehen.

Für mittlere und kleine Einschussenergien wurden im Laufe der Zeit eine Vielzahl verschiedener quantenmechanischer Lösungsansätze entwickelt. Ein kurzer Überblick der gängigen Methoden ist in Kapitel 2.2.1 zusammengestellt. Bei diesen Stoßenergien spielt der mikroskopische Charakter der Elektron-Elektron-Wechselwirkung eine entscheidende Rolle, wozu neben *Polarisations-* auch *Austausch-* und *Korrelationseffekte* zählen. Einen systematischen Zugang zur quantenmechanischen Beschreibung der Vielelektronendynamik stellt dabei die Dichtefunktionaltheorie (DFT⁹) dar. Sie liefert die mathematische Grundlage für die Abbildung des wechselwirkenden Vielteilchensystems auf eine effektive Einteilchenbeschreibung. Den zentralen Punkt dieses Konzepts stellt die Einteilchendichte des Systems dar, aus der sich prinzipiell alle relevanten Observablen eindeutig bestimmen lassen. Da es sich hierbei jedoch lediglich um Existenzaussagen handelt und keine exakten Konstruktionsvorschriften vorliegen, sind in der Praxis Näherungen unumgänglich. Die vollständige Elektron-Elektron-Wechselwirkung kann somit auf diese Weise nicht in

⁴LEAR: Low-energy Antiproton Ring

⁵CERN: Centre Européen pour la Recherche Nucléaire

⁶ASACUSA: Atomic Spectroscopy And Collisions Using Slow Antiprotons

⁷GSI: Gesellschaft für Schwerionenforschung

⁸FLAIR: Facility for Low-energy Antiproton and Ion Research

⁹DFT: Density Functional Theory

der theoretischen Beschreibung berücksichtigt werden. Es ist jedoch möglich, das Niveau der Hartree-Fock-Beschreibung zu erreichen und Austauscheffekte vollständig einzubeziehen. Im Rahmen dieser Näherung können dann Aussagen über Auswirkungen der nicht erfassten Korrelationseffekte gemacht werden. In jüngster Vergangenheit wurde zeitabhängige Dichtefunktionaltheorie (TDDFT¹⁰) verwendet, um Ladungsaustausch im Stoßsystem $\text{Ar}^{8+} - \text{Ar}$ [49, 50] und Ionisation im System $\bar{p} - \text{He}$ [51, 52] zu berechnen. Letzteres ist ebenfalls Gegenstand dieser Arbeit, einige Ergebnisse sind in [52] zusammengefasst. Darüber hinaus soll das theoretische Konzept angewendet werden, um Ionisation und Einfang in Stößen von positiv geladenen Ionen mit Heliumatomen und heliumähnlichen Ionen zu beschreiben [53]. Zur Lösung der entstehenden Einteilchengleichungen wird die *Basis Generator Methode* (BGM) verwendet, die in Frankfurt seit einigen Jahren entwickelt wird. Sie ist dazu in der Lage, neben der Konkurrenz von Ionisation und Einfang auch die quasimolekulare Dynamik von interatomaren Stößen bei kleinen Energien zu beschreiben. Die BGM wurde bereits sehr erfolgreich in vielfältiger Weise auf Ion-Atom-Stöße [54–56], Ion-Ion-Stöße [57–60], Ion-Molekül-Stöße [61–63] und erst kürzlich auch auf Laser unterstützte Ion-Atom-Stöße [64, 65] angewendet. Durch das Konstruktionschema dieser nichtperturbativen Methode ist es möglich, eine *dynamisch optimierte Basis* zu erzeugen, die den gesamten Gültigkeitsbereich herkömmlicher MO¹¹- und AO¹²-Entwicklungen abdeckt und auch den störungstheoretischen Limes erreicht (siehe auch Kapitel 2.2.1). Die BGM-Basis bietet also die Möglichkeit, Responseffekte in Ionisations- und Einfangwirkungsquerschnitten für kleine und mittlere Stoßenergien zu untersuchen.

Die Arbeit gliedert sich wie folgt: In Kapitel 2 wird das Konzept der zeitabhängigen Dichtefunktionaltheorie zur Abbildung des Vielteilchensystems auf ein effektives Einteilchensystem und die Lösung der entstehenden Einteilchengleichungen mit Hilfe der Basis Generator Methode sowie das BGM-Konzept selbst erläutert. Es schließt sich die Berechnung physikalisch relevanter Observablen an. Kapitel 3 stellt die verschiedenen Varianten der Responmodellierung (adiabatisch, global, mikroskopisch) bei Betrachtung der Elektron-Elektron-Wechselwirkung während des Stoßes vor. Daneben werden die auftretenden Probleme bei der Extraktion von Übergangswahrscheinlichkeiten aus der Wellenfunktion bei Verwendung eines zeitabhängigen Responspotentials angesprochen. Das sich anschließende Kapitel 4 enthält einige Details zu den numerischen Eigenschaften der verwendeten Darstellung des Responspotentials. Die Anwendung des entwickelten theoretischen Konzepts auf einige interatomare Stoßsysteme sowie der Vergleich mit den verfügbaren experimentellen Daten und anderen theoretischen Ansätzen folgt in den Kapiteln 5 ($\bar{p} - \text{He}$, $\bar{p} - \text{Li}^+$) und 6 ($p - \text{He}$, $\text{He}^{2+} - \text{He}$, $\text{Li}^{3+} - \text{He}$, $p - \text{Li}^+$). Dabei werden unterschiedliche physikalische Aspekte betont, aus denen Rückschlüsse auf bestimmte Reaktionsmechanismen und die Wirkungsweise bzw. Eigenschaften des Responspotentials gezogen werden können. Die Arbeit schließt mit Kapitel 7, in dem die gewonnenen Ergebnisse zusammengefasst und mögliche Erweiterungen des verwendeten Ansatzes diskutiert werden. Im Anhang der Arbeit sind einige Details zur numerischen Umsetzung des BGM-Konzepts und zur Berechnung der auftretenden Matrixelemente zusammengestellt.

¹⁰TDDFT: Time Dependent Density Functional Theory

¹¹MO: Molecular Orbitals

¹²AO: Atomical Orbitals

In der gesamten Arbeit finden durchgehend atomare Einheiten, die durch die Definition $\hbar = m_e = e = 1$ a.u. charakterisiert sind, Verwendung. Die Umrechnungsfaktoren der verwendeten atomaren Einheiten (a.u.) in die gängigen SI-Einheiten und umgekehrt sind in Tab. 1.1 für die innerhalb der Arbeit auftauchenden Größen zusammengefasst.

Größe	Atomare Einheiten (a.u.)	System International (SI)
Länge	1 a.u. = $5,2918 \cdot 10^{-11}$ m	1 m = $1,8897 \cdot 10^{10}$ a.u.
Zeit	1 a.u. = $2,4189 \cdot 10^{-17}$ s	1 s = $4,1341 \cdot 10^{16}$ a.u.
Masse	1 a.u. = $9,1094 \cdot 10^{-31}$ kg	1 kg = $1,0978 \cdot 10^{30}$ a.u.
Geschwindigkeit	1 a.u. = $2,1877 \cdot 10^6$ m/s	1 m/s = $4,571 \cdot 10^{-7}$ a.u.
Energie	1 a.u. = $4,360 \cdot 10^{-18}$ J 1 a.u. = 1 Hartree = 27,212 eV	1 J = $2,294 \cdot 10^{17}$ a.u. 1 eV = $3,675 \cdot 10^{-2}$ a.u.

Tab. 1.1: Umrechnungsfaktoren zwischen atomaren Einheiten (a.u.) und SI-Einheiten.

Kapitel 2

Theorie der Elektronendynamik in interatomaren Stoßprozessen

Interatomare Stoßsysteme, gebildet aus den beiden Kernen und deren Elektronenhüllen, stellen quantenmechanische Vielteilchenprobleme dar. In dieser Arbeit wird ein Energiebereich betrachtet ($1 \text{ keV/amu} \leq E_P \leq 1 \text{ MeV/amu}$), in dem zwei grundlegende Näherungen gerechtfertigt sind:

- Die Bewegung der Kerne kann klassisch beschrieben werden.
- Alle relativistischen Effekte können vernachlässigt werden.

Die erste Näherung wird durch die gegenüber den Elektronen sehr viel größere Masse der Kerne ($M_P/m_e = 1836,15$) gerechtfertigt. Diese Behandlung eines Stoßsystems mit quantenmechanisch beschriebenen Elektronen und klassisch betrachteten Kernen wird semiklassische Näherung (SCA¹) genannt [66, 67]. Relativistische Effekte können vernachlässigt werden, da die Stoßgeschwindigkeiten klein im Vergleich zur Lichtgeschwindigkeit sind ($E_P \leq 1 \text{ MeV/amu} \hat{=} v = 6,35 \text{ a.u.} = 0,046 c$). Darüber hinaus sind die auftretenden Kernladungen ($Z \leq 3$) klein gegen die Inverse der Feinstrukturkonstanten ($Z \leq 3 \ll \alpha^{-1} = 137,04$).

Im Rahmen der semiklassischen Näherung wird aus dem ursprünglich zeitunabhängigen quantenmechanischen Vielteilchenproblem durch die klassische Behandlung der Kerne ein explizit zeitabhängiges Problem [68]. Wegen der zusätzlich nichtrelativistischen Betrachtung ist für die in den Coulomb-Feldern der klassisch bewegten Kerne quantenmechanisch beschriebenen Elektronen die zeitabhängige Schrödinger-Gleichung (TDSE²) zu einer gegebenen Anfangsbedingung

$$(\hat{H}(t) - i\partial_t)|\Psi(t)\rangle = 0 \quad , \quad |\Psi(t_0)\rangle = |\Psi_0\rangle \quad (2.1)$$

zu lösen. Der Hamilton-Operator \hat{H} des Systems

$$\hat{H}(t) = \hat{T} + \hat{V}_{ee} + \hat{V}_{\text{ext}}(t) \quad (2.2)$$

$$= \sum_{i=1}^N \left(-\frac{1}{2} \Delta_i \right) + \sum_{i < j}^N \frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} + \sum_{i=1}^N \left(\frac{-Q_T}{r_i} + \frac{-Q_P}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{R}|} \right) \quad (2.3)$$

¹SCA: Semi-Classical Approximation

²TDSE: Time Dependent Schrödinger Equation

setzt sich aus der kinetischen Energie \hat{T} der Elektronen, der Elektron-Elektron-Wechselwirkung \hat{V}_{ee} und dem äußeren Potential $\hat{V}_{\text{ext}}(t)$ zusammen, das aufgrund der klassisch bewegten Kerne explizit zeitabhängig ist. In dieser Gleichung bezeichnet Q_P die Ladung des Projektilkerns, Q_T die Ladung des Targetkerns, \mathbf{r}_i die Koordinaten der N Elektronen bezüglich des Targetzentrums und \mathbf{R} die klassische Relativkoordinate zwischen den beiden nuklearen Zentren. Für Stoßenergien im hier betrachteten Bereich kann dabei eine kräftefreie Bewegung (gerade Bahn) der Kerne angenommen werden. Die einzige explizit zeitabhängige Größe ist also der Ortsvektor $\mathbf{R}(t) = (b, 0, vt)$ des Projektils, der durch die konstante Projektilgeschwindigkeit v und den Stoßparameter b bestimmt wird. Die Orientierung dieser beiden Größen zueinander definiert die Streuebene, wobei der Hamilton-Operator (2.3) invariant bezüglich Spiegelungen an dieser Ebene ist. In der gesamten Arbeit werden nur Stoßsysteme untersucht, bei denen vor dem Stoß keine Elektronen am Projektil gebunden sind.

In den folgenden Abschnitten soll nun die Abbildung des Vielelektronenproblems auf ein effektives Einteilchenproblem im Rahmen der TDDFT (Kapitel 2.1), die Lösung der resultierenden Einteilchengleichungen (Kapitel 2.2) sowie die Extraktion experimentell zugänglicher Observablen (Kapitel 2.3) beschrieben werden.

2.1 Abbildung auf ein effektives Einteilchenbild

Definiert man ein System von N Elektronen mit den Koordinaten $\mathbf{x} = (\mathbf{x}_1, \dots, \mathbf{x}_N)$, wobei $\mathbf{x}_j = (\mathbf{r}, s)$ Raumkoordinaten und Spin des j -ten Elektrons bezeichnen, so wird dieses elektronische System durch die zeitabhängige Vielteilchenwellenfunktion $\Psi(\mathbf{x}, t)$ als Lösung der TDSE (2.1) vollständig charakterisiert. $\Psi(\mathbf{x}, t)$ selbst ist jedoch nicht beobachtbar. Das Betragsquadrat $|\Psi(\mathbf{x}, t)|^2$ wird als Wahrscheinlichkeitsdichte interpretiert, dass sich die N Elektronen zum Zeitpunkt t an den Positionen \mathbf{x} aufhalten. In einem typischen Stoßproblem misst man jedoch üblicherweise nur die Wahrscheinlichkeit, einige Elektronen in bestimmten Endzuständen des Konfigurationsraumes zu finden. Diese inklusiven Wahrscheinlichkeiten [69] können durch die sogenannte q -Teilchendichte [70]

$$\gamma^q(\mathbf{x}_1, \dots, \mathbf{x}_q, t) = \binom{N}{q} \int d^4x_{q+1} \dots d^4x_N |\Psi(\mathbf{x}_1, \dots, \mathbf{x}_N, t)|^2 \quad (2.4)$$

ausgedrückt werden. d^4x_j steht hierin für eine Summation über die Spinkoordinate und eine Integration über die Raumkoordinaten. Mit der Definition (2.4) beschreibt der Ausdruck $\gamma^q d^3r_1 \dots d^3r_q$ folglich die inklusive Wahrscheinlichkeit, q Elektronen an bestimmten Positionen des Konfigurationsraumes zu beobachten, während die verbleibenden $N - q$ nicht explizit detektiert werden. Für den Fall $q = 1$ erhält man die spinfreie Einteilchendichte

$$n(\mathbf{r}, t) = \sum_s \gamma^1(\mathbf{r}, s, t), \quad (2.5)$$

die die zentrale Größe der TDDFT darstellt. Sie ist ein mathematisch wesentlich weniger komplexes Objekt als die zeitabhängige Vielteilchenwellenfunktion und folglich einfacher zu handhaben und direkter zu interpretieren.

2.1.1 Das Runge-Gross-Theorem

Die Grundlage der stationären Dichtefunktionaltheorie (DFT) bildet das Hohenberg-Kohn-Theorem [71], demzufolge sich die Observablen eines wechselwirkenden Vielteilchensystems allein durch die Einteilchendichte n vollständig, und zwar als Funktionale von n , bestimmen lassen. Dabei ist bemerkenswert, dass es möglich ist, diese Dichte aus einem Satz von Einteilchengleichungen zu berechnen, ohne dass die Lösung der vollen Schrödinger-Gleichung für das wechselwirkende System notwendig ist. In den sich ergebenden Kohn-Sham- (KS) Gleichungen [72] können die Effekte der Elektron-Elektron-Wechselwirkung mit Hilfe eines multiplikativen effektiven Potentials erfasst werden (siehe auch nachfolgendes Kapitel). In den beiden Büchern [73, 74] ist ein allgemeiner Überblick der Dichtefunktionaltheorie und in den Artikeln [75, 76] eine Übersicht von Anwendungen auf den Gebieten der Atom-, Molekül- und Festkörperphysik zu finden.

Für explizit zeitabhängige Probleme werden die Grundaussagen der DFT durch das Runge-Gross-Theorem [77] verallgemeinert, das folgendes besagt: Wenn sich ein System für zwei äußere Potentiale zu einem Anfangszeitpunkt t_0 in einem gemeinsamen Zustand $|\Psi_0\rangle$ befindet, sich diese Potentiale um mehr als eine rein zeitabhängige Funktion $c(t)$ unterscheiden und um den Anfangszeitpunkt t_0 in Taylor-Reihen entwickelbar sind, so haben sie für Zeiten $t > t_0$ voneinander verschiedene Einteilchendichten zur Folge. Auf diese Weise ist eine injektive, d.h. umkehrbare, Abbildung der Potentiale auf die Menge der v -darstellbaren Dichten³ gewährleistet. Bis auf die rein zeitabhängige Funktion $c(t)$ ist folglich das externe Potential ein eindeutiges Funktional der Dichte. Darüber hinaus kann auch die Vielteilchenwellenfunktion $|\Psi(t)\rangle$ bis auf eine zeitabhängige Phase als Funktional von n betrachtet werden, wird das externe Potential doch im Rahmen der TDSE auf $|\Psi(t)\rangle$ abgebildet. Observablen, die als Erwartungswerte von hermiteschen Operatoren berechnet werden, in denen *keine Zeitableitungen* enthalten sind, sind also ebenfalls eindeutige Funktionale der Dichte, weil sich die Phasen im Bra- und Ketvektor gegenseitig aufheben. Für Übergangsamplituden, die beispielsweise in Streuproblemen von großem Interesse sind, gilt die gleiche Aussage. Der Beweis ist allerdings *nur* für einen festen Anfangszustand $|\Psi_0\rangle$ möglich, so dass alle Größen implizit von diesem Zustand abhängen. Das ist jedoch im Rahmen dieser Arbeit unproblematisch, da lediglich Stoßsysteme untersucht werden, die sich zum Zeitpunkt t_0 im Grundzustand befinden, der gemäß dem Hohenberg-Kohn-Theorem selbst ein Funktional von n ist. Eine ausführliche Darstellung und Zusammenfassung des aktuellen Forschungsstandes auf dem Gebiet der TDDFT findet man in [78–82].

2.1.2 Die zeitabhängigen Kohn-Sham-Gleichungen

Wendet man das Runge-Gross-Theorem auf ein fiktives nichtwechselwirkendes System ($\hat{V}_{ee} = 0$) an, von dem man annimmt, dass es durch exakt dieselbe Dichte n wie das wechselwirkende System (2.2) charakterisiert wird, so ergeben sich die zeitabhängigen

³Eine Dichte wird dann als v -darstellbar bezeichnet, wenn ein externes Potential existiert, das über die Lösung der Schrödinger-Gleichung und eine entsprechende Integration auf eben diese Dichte führt. Die Surjektivität der Abbildung wird dabei durch die Einschränkung der Bildmenge auf v -darstellbare Dichten gesichert.

Kohn-Sham-Gleichungen (TDKS⁴)

$$i\partial_t\psi_i(\mathbf{r},t) = \hat{h}(t)\psi_i(\mathbf{r},t), \quad i = 1, \dots, N, \quad (2.6)$$

mit dem Einteilchen-Hamilton-Operator

$$\hat{h}(t) = -\frac{1}{2}\Delta + v_{\text{TDKS}}[n](\mathbf{r},t), \quad (2.7)$$

der das multiplikative Potential $v_{\text{TDKS}}(t)$ enthält, welches ein Funktional der exakten Dichte n ist⁵. Existiert ein solches Potential, so garantiert das Runge-Gross-Theorem seine Eindeutigkeit, d.h. bis auf eine höchstens zeitabhängige Funktion gibt es genau ein Einteilchenpotential $v_{\text{TDKS}}(t)$, das im Zusammenhang mit den TDKS-Gleichungen (2.6) die Einteilchendichte n ergibt. Diese erhält man aus den Lösungen der TDKS-Gleichungen – den KS Orbitalen $\{\psi_i\}$, die keinerlei physikalische Bedeutung haben – gemäß

$$n(\mathbf{r},t) = \sum_{i=1}^N |\psi_i(\mathbf{r},t)|^2. \quad (2.8)$$

Für den Anfangszeitpunkt $t = t_0$ müssen die Orbitale $\{\psi_i\}$ so gewählt werden, dass Gleichung (2.8) die Dichte des ungestörten Systems wiedergibt.

Bis zu dieser Stelle der Abbildung des wechselwirkenden zeitabhängigen Vielteilchenproblems auf ein Einteilchenschema wurden keinerlei Näherungen gemacht. Die durch die Gleichungen (2.6), (2.7) und (2.8) definierte Abbildung ist exakt und darum auch dem TDHF-Formalismus überlegen, der von einer Näherung der Lösung der TDSE (2.1) in Form einer einzelnen Slater-Determinante ausgeht. Problematisch ist die Aufstellung der TDKS-Gleichungen, da die exakte Form des Funktionals $v_{\text{TDKS}}[n](\mathbf{r},t)$ nicht bekannt ist und so Näherungen, die im Folgenden vorgestellt werden sollen, unumgänglich sind.

2.1.3 Das zeitabhängige Kohn-Sham-Potential

Bildet ein nichtentarteter Grundzustand die Ausgangssituation für die zeitliche Entwicklung des elektronischen Systems, so ist das zeitabhängige Kohn-Sham-Potential ein eindeutiges Funktional der Einteilchendichte n alleine und unabhängig vom Anfangszustand $|\Psi_0\rangle$. Es setzt sich zusammen aus dem externen Coulomb-Potential der beiden nuklearen Zentren $v_{\text{ext}}(\mathbf{r},t)$, dem Hartree-Potential $v_H[n](\mathbf{r},t)$, das die Abschirmung des externen Potentials durch die elektronische Dichte beschreibt, sowie dem rein quantenmechanischen Austausch-Korrelations- (xc⁶) Potential $v_{xc}[n](\mathbf{r},t)$

$$v_{\text{TDKS}}[n](\mathbf{r},t) = v_{\text{ext}}(\mathbf{r},t) + v_H[n](\mathbf{r},t) + v_{xc}[n](\mathbf{r},t) \quad (2.9)$$

$$v_{\text{ext}}(\mathbf{r},t) = -\frac{Q_T}{r} - \frac{Q_P}{|\mathbf{r} - \mathbf{R}|} \quad (2.10)$$

$$v_H[n](\mathbf{r},t) = \int d^3r' \frac{n(\mathbf{r}',t)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}. \quad (2.11)$$

⁴TDKS: Time Dependent Kohn Sham

⁵Die Frage nach der Existenz eines solchen Einteilchenpotentials v_{TDKS} zu gegebenem n wird in der Literatur unter dem Stichwort 'v-Darstellbarkeitsproblem' behandelt [83, 84].

⁶xc: exchange correlation

Das effektiv wirksame Elektron-Elektron-Potential ergibt sich folglich zu

$$v_{ee}[n](\mathbf{r}, t) = v_{\text{TDKS}}[n](\mathbf{r}, t) - v_{\text{ext}}(\mathbf{r}, t) = v_H[n](\mathbf{r}, t) + v_{xc}[n](\mathbf{r}, t). \quad (2.12)$$

Die exakte Form des xc-Anteils $v_{xc}[n](\mathbf{r}, t)$ ist jedoch nicht bekannt. Eine Möglichkeit, Eigenschaften des quantenmechanischen Vielteilchenproblems auszunutzen, um Informationen über das Kohn-Sham Potential zu erlangen, besteht in der Betrachtung des quantenmechanischen Wirkungsfunktional

$$\mathcal{A} = \int_{t_0}^{t_1} dt \langle \Psi(t) | i\partial_t - \hat{H}(t) | \Psi(t) \rangle, \quad (2.13)$$

das für die Lösung der TDSE (2.1) einen stationären Punkt besitzt. Da gemäß dem Runge-Gross-Theorem Ψ selbst ein Funktional von n ist, findet man also diesen stationären Punkt als Variation von \mathcal{A} nach der exakten Dichte des zeitabhängigen Systems

$$\frac{\delta \mathcal{A}}{\delta n(\mathbf{r}, t)} = 0. \quad (2.14)$$

Problematisch ist hierbei jedoch, dass das Runge-Gross-Theorem den funktionalen Zusammenhang $\Psi[n]$ nur bis auf einen zeitabhängigen Phasenfaktor festlegt. Da aber im Schrödinger-Operator $i\partial_t - \hat{H}(t)$ eine partielle Ableitung nach der Zeit auftritt, ist das quantenmechanische Wirkungsintegral (2.13) ein Funktional von n und der unbestimmten Phase. (2.13) kann folglich unmittelbar keine weiteren Informationen über das Kohn-Sham Potential liefern. Für eine detaillierte Diskussion siehe [80, 85].

2.1.4 Die adiabatische Näherung

Im Rahmen der *adiabatischen Näherung* geht man davon aus, dass die Zeitabhängigkeit des Kohn-Sham Potentials allein durch die Zeitabhängigkeit der Dichte vorgegeben ist und die funktionalen Eigenschaften der Dichte von der stationären DFT auf den zeitabhängigen Fall übertragen werden können. Aus dem Rayleigh-Ritzschen Variationsprinzip folgt, dass sich für einen nichtentarteten Grundzustand $v_{xc}[n_0](\mathbf{r})$ als Funktionalableitung der Austausch-Korrelationsenergie E_{xc} nach der Dichte ergibt

$$v_{xc}[n_0](\mathbf{r}) = \left. \frac{\delta E_{xc}[n]}{\delta n(\mathbf{r})} \right|_{n_0=n(\mathbf{r})} \quad (2.15)$$

$$E_{xc} = T - T_s + W - E_H. \quad (2.16)$$

E_{xc} wiederum setzt sich zusammen aus der Differenz zwischen der kinetischen Energie T des wechselwirkenden Vielteilchensystems und der kinetischen Energie T_s , die über die KS-Orbitale definiert ist

$$T_s = \sum_{i=1}^N \int d^3r \varphi_i^*(\mathbf{r}) \left(-\frac{1}{2}\Delta\right) \varphi_i(\mathbf{r}), \quad (2.17)$$

sowie der Differenz zwischen der vollen elektronischen Wechselwirkung W und dem klassischen Hartree-Beitrag

$$E_H = \frac{1}{2} \int d^3r \int d^3r' \frac{n(\mathbf{r})n(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}, \quad (2.18)$$

dessen Funktionalableitung nach der Dichte auf das Hartree-Potential (2.11) führt. Im Zuge der adiabatischen Näherung wird nun also die Grundzustandsdichte $n_0(\mathbf{r})$ durch die zeitabhängige Dichte $n(\mathbf{r}, t)$ ersetzt.

Die Verwendung der Dichteabhängigkeit von E_{xc} für das *homogene Elektronengas* als lokale Näherung für das zu untersuchende inhomogene System in (2.15-2.18) wird als **Lokaldichtenäherung** (LDA⁷) bezeichnet. Der Austausch-(x) Anteil ergibt sich zu

$$E_x^{\text{LDA}}[n](t) = -\frac{3}{4} \frac{(3\pi^2)^{1/3}}{\pi} \int d^3r (n(\mathbf{r}, t))^{4/3} \quad (2.19)$$

$$v_x^{\text{LDA}}[n](\mathbf{r}, t) = -\frac{1}{\pi} (3\pi^2 n(\mathbf{r}, t))^{1/3}, \quad (2.20)$$

wobei anzumerken ist, dass für den Korrelations-(c) Beitrag lediglich Interpolationsformeln existieren [86, 87]. Diese Näherung ist für Systeme, in denen sich die Dichte nur langsam räumlich und zeitlich ändert, recht gut. Problematisch dabei ist die unvollständige Korrektur der *Selbstwechselwirkung*. Während im Hartree-Fock (HF) Schema die im Hartree-Term enthaltene Selbstwechselwirkung durch die Addition des Fock-Terms genau korrigiert wird, ist dies infolge der groben Näherung des Fock-Potentials durch das LDA-Potential nicht mehr der Fall. Die Ursache hierfür ist der exponentielle Abfall des LDA-Potentials im Vergleich zur N/r -Asymptotik des Hartree-Terms, so dass sich für das Gesamtpotential nicht die korrekte $-1/r$ -Asymptotik ergibt. Die Asymptotik ist für Streuprobleme sehr wichtig, bestimmt sie doch die Bindung der äußeren Elektronen. Durch das LDA-Potential wird folglich eine zu große Abschirmung simuliert, was zu einer zu geringen Bindung der äußeren Elektronen führt. Um diese Problematik zu umgehen, wird mit Hilfe der sogenannten Latter-Korrektur [88–90] nachträglich die Asymptotik des Potentials angepasst

$$v_x^{\text{LDA/L}}[n](\mathbf{r}, t) = \begin{cases} v_x^{\text{LDA}}[n](\mathbf{r}, t) & \text{für } v_x^{\text{LDA}}(\mathbf{r}, t) < -1/r \\ -1/r & \text{sonst} \end{cases} \quad (2.21)$$

Das angesprochene Problem der Selbstwechselwirkungskorrektur kann mit Hilfe der **Optimierten Potential Methode** (OPM) gelöst werden [91]. Dabei wird die Darstellung der Austausch-Korrelationsenergie als explizites Dichtefunktional aufgegeben und statt dessen ein implizites Dichtefunktional

$$E_{xc} = E_{xc}[\varphi] \quad \text{mit } \varphi = \{\varphi_1, \dots\} \quad (2.22)$$

definiert [92, 93]. Hierbei wird E_{xc} als Funktional der KS-Orbitale ausgedrückt, die selbst wieder Funktionale der Einteilchendichte n sind. Dabei soll, um das KS-Schema weiterhin beizubehalten, das Austausch-Korrelationspotential multiplikativ bleiben und nicht wie in der Hartree-Fock-Methode zu einem nichtlokalen oder orbitalabhängigen Operator werden. Man konstruiert es wie vorher als Funktionalableitung von E_{xc} nach n (siehe (2.15)),

⁷LDA: Local Density Approximation

wobei nun die Kettenregel beachtet werden muss

$$v_{xc}(\mathbf{r}) = \frac{\delta E_{xc}[\boldsymbol{\varphi}]}{\delta n(\mathbf{r})} \quad (2.23)$$

$$= \int d^3r' \frac{\delta v_{KS}(\mathbf{r}')}{\delta n(\mathbf{r})} \int d^3r'' \sum_{k=1}^N \frac{\delta \varphi_k^*(\mathbf{r}'')}{\delta v_{KS}(\mathbf{r}') \delta \varphi_k^*(\mathbf{r}'')} \frac{\delta E_{xc}[\boldsymbol{\varphi}]}{\delta \varphi_k^*(\mathbf{r}'')} + c.c. , \quad (2.24)$$

c.c. bezeichnet den zum ersten Summanden konjugiert komplexen Term. Multipliziert man diese Gleichung mit der Inversen des ersten Terms und integriert über die Koordinate von v_{xc} , so erhält man wegen der Relation

$$\int d^3r \frac{\delta v_{KS}(\mathbf{r}')}{\delta n(\mathbf{r})} \frac{\delta n(\mathbf{r})}{v_{KS}(\mathbf{r}''')} = \delta^{(3)}(\mathbf{r}' - \mathbf{r}''') \quad (2.25)$$

nach einer Umbenennung der Koordinaten die Integralgleichung

$$\int d^3r' \frac{\delta n(\mathbf{r}')}{\delta v_{KS}(\mathbf{r})} v_{xc}(\mathbf{r}') = \sum_{k=1}^N \int d^3r' \frac{\delta \varphi_k^*(\mathbf{r}')}{\delta v_{KS}(\mathbf{r}) \delta \varphi_k^*(\mathbf{r}')} \frac{\delta E_{xc}[\boldsymbol{\varphi}]}{\delta \varphi_k^*(\mathbf{r}')} + c.c. . \quad (2.26)$$

Mit der Lösung dieser OPM-Integralgleichung wird ein multiplikatives Austausch-Korrelationspotential zu einem vorgegebenen orbitalabhängigen Funktional E_{xc} gewonnen. Eine vollständige Korrektur der Selbstwechselwirkung im Hartree-Term kann nun durch die Verwendung des Standard-Fock-Ausdrucks für den Austauschbeitrag

$$E_x = -\frac{1}{2} \int d^3r \int d^3r' \sum_{k,l=1}^N \delta_{m_{s_k} m_{s_l}} \frac{\varphi_k^*(\mathbf{r}) \varphi_l(\mathbf{r}) \varphi_l^*(\mathbf{r}') \varphi_k(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \quad (2.27)$$

erreicht werden, wobei die KS-Orbitale einzusetzen sind. Das Kronecker-Delta spiegelt die Tatsache wider, dass nur bei gleichgerichtetem Spin des k -ten und l -ten Orbitals Austauschereffekte auftreten. Auf diese Weise wird die korrekte Asymptotik von v_x garantiert.

Die Lösung der Gleichung (2.26) ist numerisch sehr aufwendig und anspruchsvoll, kann jedoch für sphärische Systeme den Fock-Austausch betreffend mit hoher Genauigkeit durchgeführt werden [94]. Bei der Betrachtung komplizierterer Systeme müssen weitere Näherungen gemacht werden (KLI⁸-Näherung: [95], Anwendung auf atomare Systeme [96]).

Einen Überblick über die Entwicklung orbitalabhängiger Funktionale für den Korrelationsanteil E_c geben die Referenzen [97–99]. Ein über die adiabatische Näherung hinausgehendes Austausch-Korrelationsfunktional mit 'Erinnerungsvermögen' existiert bisher nur auf Basis der LDA [100].

2.2 Lösung der Einteilchengleichungen

In diesem Abschnitt sollen einige Methoden angesprochen und vorgestellt werden, die zur Lösung der Einteilchengleichungen (2.6) entwickelt worden sind. Der kurze Überblick soll

⁸KLI: Krieger Li Iaftrate

sich dabei auf rein quantenmechanische Lösungsansätze konzentrieren, klassische Lösungsvarianten im Rahmen von CTMC⁹-Rechnungen [101–104], bei denen das elektronische System durch ein statistisches Ensemble klassischer Punktladungen simuliert wird, werden nicht näher besprochen. Ein Überblick über die gängigen Methoden wird im Sammelband [105] sowie dem Übersichtsartikel [106] gegeben.

2.2.1 Quantenmechanische Lösungsmethoden

Das Ziel der Lösung der Einteilchengleichungen besteht darin, die Streuwellenfunktion $|\psi_i(t)\rangle$ nach Amplituden

$$c_f^i = \lim_{t \rightarrow \infty} \langle f(t) | \psi_i(t) \rangle \quad (2.28)$$

für Übergänge in physikalisch interpretierbare Endkanäle $|f\rangle$ zu analysieren. Dazu können grundsätzlich zwei Ansätze verfolgt werden:

- perturbative Ansätze
- nichtperturbative Ansätze.

Der Ausgangspunkt für perturbative Methoden besteht in der Idee, die Lösung durch Iteration der zur Schrödinger-Gleichung äquivalenten Operator-Integralgleichung im Wechselwirkungsbild, d.h. der zeitgeordneten Reihe

$$\hat{U}(t_f, t_i) = \hat{T} \exp \left[-i \int_{t_i}^{t_f} \hat{v}_I(t) dt \right] \quad (2.29)$$

für den Zeitentwicklungsoperator des Systems, zu gewinnen. Die Übergangsamplituden zwischen dem Anfangszustand des Systems zum Zeitpunkt $t = t_i$ und den interessierenden asymptotischen Zuständen zum Zeitpunkt $t = t_f$ nach dem Stoß sind dann entsprechend als Matrixelemente dieses Ausdrucks zu berechnen. In erster Ordnung ergibt sich die sogenannte erste Bornsche Näherung (B1)

$$c_f^{iB1} = -i \int_{-\infty}^{\infty} \langle \varphi_f(t) | \hat{v}_I(t) | \varphi_i(t) \rangle dt . \quad (2.30)$$

Die verschiedenen störungstheoretischen Ansätze unterscheiden sich dabei durch die Konstruktionen der Wellenfunktionen, die für die Anfangs- und Endkanäle des Stoßprozesses verwendet werden. Details zur zeitabhängigen Störungstheorie können beispielsweise in den Büchern [107, 108] und den Übersichtsartikeln [109, 110] gefunden werden.

Der nichtperturbative Bereich der Lösungsmethoden lässt sich in drei prinzipiell verschiedene Ansätze unterteilen. Zum einen kann die Lösung der Schrödinger-Gleichung mit Hilfe einer finiten Differenzenmethode durch die Diskretisierung von Raum und Zeit gewonnen werden und zum anderen durch die Diskussion von gekoppelten Kanalgleichungen im Rahmen von Basisentwicklungen der Wellenfunktion. Die Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung durch eine numerische finite Differenzenapproximation kann zum Beispiel mit Hilfe des Crank-Nicholson-Verfahrens [111] geschehen. Dabei wird die

⁹CTMC: Classical Trajectory Monte Carlo Method

Unitarität der Schrödinger-Gleichung und somit ihre Zeitumkehrinvarianz in das Diskretisierungsschema eingebaut. Solche Verfahren sind auf einem Gitter im Konfigurationsraum [112, 113], im Impulsraum [114] oder einer Kombination aus beidem [115–118] durchgeführt worden. Problematisch ist dabei die Endlichkeit des durch die Diskretisierung erfassten Raumes sowie die endliche Gitterweite. Aus diesem Grund können Anteile der Wellenfunktion an den Gitterrand gelangen und unphysikalische Reflektionen hervorrufen.

Als Alternative hierzu finden im nichtperturbativen Bereich Basisentwicklungen der Wellenfunktion Verwendung. Traditionell werden Entwicklungen nach molekularen Orbitalen (MO) [119] oder nach atomaren Orbitalen (AO) vorgenommen (Einzentren-AO-Basis [120–125], Zweizentren-AO-Basis [126–128], Dreizentren-AO-Basis [129]), wobei sich die MO-Methode recht gut zur Beschreibung adiabatischer Stöße, die AO-Methode zur Beschreibung diabatischer Stöße eignet. Beide Methoden liefern physikalisch interpretierbare Übergangsamplituden, jedoch ist das Kontinuum, d.h. die Ionisationskanäle, nur schwer zu beschreiben. Diese Problematik wird beispielsweise darin deutlich, dass die molekularen Orbitale asymptotisch in gebundene atomare Zustände übergehen und sich so der Ionisationsanteil bei größeren Abständen von Projektil und Target in Einfang- oder angeregte Targetkanäle aufteilt. Es wird versucht, diese Problematik durch die Ergänzung der MO-Basis mit Pseudozuständen zwischen Projektil und Target zu umgehen [130, 131]. In analoger Vorgehensweise werden AO-Basisentwicklungen durch Pseudozustände zu positiven Energien auf beiden Zentren ergänzt, um Ionisationsprozesse zu beschreiben. Für Details zur Diskussion über die Verwendung von Pseudozuständen und auftretender linearer Abhängigkeiten siehe [132–136]. Darüber hinaus kann eine Kombination aus AO- und MO-Entwicklung zur Darstellung der Wellenfunktion verwendet werden [137–140]. Neben den AO- und MO-Ansätzen besteht auch die Möglichkeit, Sturmsche Funktionen (oder auch andere orthogonale Polynome, wie z.B. Gauss-Funktionen) als Entwicklungsfunktionen zu benutzen [141].

Eine Verbindung der beiden Ansätze – Basisentwicklung nach atomaren Orbitalen und Gitterrechnung – zur Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung wurde erst kürzlich in [142] vorgestellt und auf zustandsselektiven Einfang in $p + \text{He}$ Stößen angewendet.

Zur Beschreibung adiabatischer Stöße existiert neben den angesprochenen Gittermethoden und Basisentwicklungen als dritte Variante die sog. MEHC¹⁰-Methode [143–148]. Hierbei wird die Reaktionsdynamik des interatomaren Stoßes mit Hilfe von Kopplungsschemata eines komplexwertigen Korrelationsdiagrammes verfolgt. Eine aktuelle Erweiterung dieser Methode erlaubt auch die Ausdehnung auf den diabatischen Energiebereich [149, 150].

2.2.2 Das optische Potential

Aus numerischen Gründen muss eine Basisentwicklung in jeder praktischen Rechnung endlich, d.h. 'unvollständig', bleiben. Auf diese Weise ist die Zeitentwicklung der anfangs besetzten Orbitale immer auf einen endlichdimensionalen Teilraum \mathcal{A} des Hilbert-Raumes beschränkt und die Kopplung dieses Teilraumes an sein durch die Basis nicht dargestelltes Komplement \mathcal{B} muss vernachlässigt werden. Da auch in dieser Arbeit eine spezielle

¹⁰MEHC: Multi Electron Hidden Crossing

Basisentwicklung zur Lösung der Einteilchengleichungen verwendet wird, soll nun die angesprochene Kopplung näher beschrieben werden.

Ausgangspunkt hierfür ist ein quantenmechanisches System, dessen Hamilton-Operator $\hat{h}(t)$ in einen stationären Anteil \hat{h}_0 und ein zeitabhängiges Potential $\hat{v}(t)$ zerlegt werden kann

$$\hat{h}(t) = \hat{h}_0 + \hat{v}(t) . \quad (2.31)$$

Die Betrachtung der Zeitentwicklung des Systems erfolgt nun im Wechselwirkungsbild, welches durch eine unitäre Transformation bezüglich des ungestörten, stationären Hamilton-Operators \hat{h}_0

$$|\psi_I(t)\rangle = \exp[i\hat{h}_0(t-t_0)]|\psi(t)\rangle \quad (2.32)$$

definiert ist und im Folgenden durch den Index I gekennzeichnet wird.

Die entsprechende Schrödinger-Gleichung im Wechselwirkungsbild für jede Anfangsbedingung ergibt sich dann durch Einsetzen dieser Transformation in die Einteilchengleichungen (2.6) mit dem Hamilton-Operator (2.31) zu

$$\hat{O}_I(t)|\psi_I(t)\rangle \equiv \left(\hat{V}_I(t) - i\partial_t\right)|\psi_I(t)\rangle \quad (2.33)$$

$$\hat{V}_I(t) = \exp[i\hat{h}_0(t-t_0)]\hat{v}(t)\exp[-i\hat{h}_0(t-t_0)] . \quad (2.34)$$

Durch die Einführung der beiden idempotenten, hermiteschen Projektoren \hat{A} und \hat{B} , die zueinander orthogonal sind, wird dann die Abbildung eines beliebigen Zustandsvektors auf die Modellräume \mathcal{A} und \mathcal{B} ermöglicht

$$\hat{B} = \hat{1} - \hat{A} , \quad \hat{A}\hat{B} = \hat{B}\hat{A} = 0 . \quad (2.35)$$

Mit Hilfe dieser Projektoren kann die Schrödinger-Gleichung im Wechselwirkungsbild in zwei gekoppelte Gleichungen für die beiden Teilraumlösungen $|\psi_I^A\rangle \equiv \hat{A}|\psi_I\rangle$ und $|\psi_I^B\rangle \equiv \hat{B}|\psi_I\rangle$ aufgespalten werden [151, 152]

$$\hat{A}\hat{O}_I\hat{A}|\psi_I^A\rangle = -\hat{A}\hat{O}_I\hat{B}|\psi_I^B\rangle \quad (2.36)$$

$$\hat{B}\hat{O}_I\hat{B}|\psi_I^B\rangle = -\hat{B}\hat{O}_I\hat{A}|\psi_I^A\rangle . \quad (2.37)$$

Als formale Lösung der Gleichung für den \mathcal{B} -Raumanteil (2.37) erhält man dann

$$|\psi_I^B(t)\rangle = -i \int_{t_0}^t \hat{B}_I(t, t')\hat{O}_I(t')|\psi_I^A(t')\rangle dt' , \quad (2.38)$$

wobei die Definition

$$\hat{B}(t)\hat{O}_I(t)\hat{B}_I(t, t') = 0 , \quad \hat{B}_I(t, t) = \hat{B}(t) \quad (2.39)$$

für den Entwicklungsoperator der Zustände in \mathcal{B} verwendet wurde. Die Beziehung (2.38) kann nun in die Gleichung (2.36) eingesetzt werden, so dass sich für die Darstellung der Lösung im Teilraum \mathcal{A}

$$\hat{A}\hat{O}_I\hat{A}|\psi_I^A\rangle = \hat{V}_{\text{opt}}|\psi_I^A\rangle \quad (2.40)$$

$$\hat{V}_{\text{opt}}|\psi_I^A\rangle = i\hat{A}(t)\hat{O}_I(t) \int_{t_0}^t \hat{B}_I(t, t')\hat{O}_I(t')|\psi_I^A(t')\rangle dt' \quad (2.41)$$

ergibt. Es ist zu erkennen, dass diese Lösung über den nichthermiteschen Operator \hat{V}_{opt} , das *optische Potential*, an den Teilraum \mathcal{B} gekoppelt ist. Wird nun der Projektor \hat{A} durch ein orthonormales Funktionensystem $\{|\zeta_j(t)\rangle, j = 1, \dots, N\}$ definiert, so erhält man mit den Entwicklungskoeffizienten $c_k(t) = \langle \zeta_k(t) | \psi_I^A(t) \rangle$ aus (2.40) die gekoppelten Kanalgleichungen

$$i\dot{c}_k(t) = \sum_{j=1}^N c_j(t) \langle \zeta_k(t) | \hat{O}_I(t) | \zeta_j(t) \rangle - i \sum_{j=1}^N \int_{t_0}^t c_j(t') \langle \zeta_k(t) | \hat{O}_I(t) \hat{B}_I(t, t') \hat{O}_I(t') | \zeta_j(t') \rangle dt', \quad (2.42)$$

die vollkommen äquivalent zur Schrödinger-Gleichung (2.33) sind. In den vorher beschriebenen Lösungsansätzen endlicher Basisentwicklungen wird der Einfluss des optischen Potentials vollständig vernachlässigt und lediglich die Gleichung

$$\hat{A} \hat{O}_I \hat{A} | \psi_I^A \rangle = 0 \quad (2.43)$$

im vorgegebenen endlichen Modellraum \mathcal{A} gelöst. Durch möglichst vollständige Basisentwicklungen wird dabei versucht, ein Verschwinden des optischen Potentials zu erreichen. In dieser Arbeit soll eine alternative Strategie verfolgt werden, die auf eine Basisentwicklung hinausläuft, die möglichst optimal den eindimensionalen Unterraum des Hilbert-Raumes enthält, in dem die Lösung der Gleichung (2.33) zu einer vorgegebenen Anfangsbedingung liegt.

2.2.3 Die Basis Generator Methode

Um eine möglichst optimale Darstellung der Lösung der zeitabhängigen Gleichung (2.33) zu erhalten, muss ein entsprechender Modellraum \mathcal{A} so konstruiert werden, dass die Kopplung an den nicht erfassten Komplementärraum \mathcal{B} über das beschriebene optische Potential minimal wird. Ausgangspunkt dafür sind die gebundenen Eigenfunktionen des ungestörten Hamilton-Operators \hat{h}_0 , in denen für die Zeit $t \rightarrow -\infty$ die physikalische Anfangsbedingung enthalten ist, da dann das Potential $\hat{v}(t)$ verschwindet

$$\hat{h}_0 | \phi_v^0 \rangle = \varepsilon_v | \phi_v^0 \rangle = -i\partial_t | \phi_v^0 \rangle \quad v = 1, \dots, V. \quad (2.44)$$

Die Transformation ins Wechselwirkungsbild erfolgte gemäß der Gleichung (2.32) mit Hilfe einer Energiephase zu

$$| \phi_v^0 \rangle = \exp[i\varepsilon_v(t - t_0)] | \varphi_v^0 \rangle. \quad (2.45)$$

Aus diesen Funktionen kann durch sukzessive Anwendung des Schrödinger-Operators \hat{O}_I das nichtorthonormierte Funktionensystem

$$\begin{aligned} | \phi_v^u \rangle &= (\hat{O}_I(t) - \varepsilon_v) | \phi_v^{u-1} \rangle \\ &= (\hat{O}_I(t) - \varepsilon_v)^u | \phi_v^0 \rangle, \quad u = 1, \dots, U, \quad v = 1, \dots, V \end{aligned} \quad (2.46)$$

aufgebaut werden, dessen Funktionen linear unabhängig sind [153]. Die Basis $\{|\phi_v^u(t)\rangle\}$ ist durch die sukzessive Anwendung des Schrödinger-Operators, der ja \hat{h}_0 und die genaue

Form der systemspezifischen zeitabhängigen Wechselwirkung enthält, der jeweiligen Problemstellung angepasst und spannt einen $(U + 1) \times V$ dimensionalen Teilraum \mathcal{A}^{UV} des Hilbert-Raumes auf. Da die Zustände nichtorthonormiert sind, taucht im Projektor \hat{A}^{UV} auf diesen Teilraum \mathcal{A}^{UV} die Inverse der Überlappmatrix $\langle \phi_v^u | \phi_{v'}^{u'} \rangle^{-1}$ auf

$$\hat{A}^{UV} = \sum_{u,u'=0}^U \sum_{v,v'=1}^V |\phi_v^u\rangle \langle \phi_v^u | \phi_{v'}^{u'} \rangle^{-1} \langle \phi_{v'}^{u'}|. \quad (2.47)$$

Setzt man den Projektor \hat{A}^{UV} in die Bewegungsgleichung (2.40) ein, so nehmen die gekoppelten Kanalgleichungen in \mathcal{A}^{UV} die Gestalt

$$\begin{aligned} i \sum_{u=0}^U \sum_{v=1}^V \ddot{c}_v^u(t) \langle \phi_{v'}^{u'} | \phi_v^u \rangle &= \sum_{u=0}^U \sum_{v=1}^V c_v^u(t) \langle \phi_{v'}^{u'} | \hat{O}_I(t) | \phi_v^u \rangle \\ &- i \sum_{u=0}^U \sum_{v=1}^V \int_{t_0}^t c_v^u(t') \langle \phi_{v'}^{u'+1}(t) | \hat{B}_I^{UV}(t, t') | \phi_v^{u+1}(t') \rangle dt' \end{aligned} \quad (2.48)$$

an. Für die Kopplung eines Basiszustandes an den Komplementärraum \mathcal{B}^{UV} ist also die Projektion

$$\hat{B}^{UV} | \phi_v^{u+1} \rangle = (\hat{1} - \hat{A}^{UV}) | \phi_v^{u+1} \rangle = \begin{cases} 0 & \text{falls } u \leq U - 1 \\ | \phi_v^{u+1} \rangle & \text{falls } u \geq U \end{cases} \quad (2.49)$$

ausschlaggebend. Wie in Abb. 2.1 verdeutlicht wird, können die Zustände mit $u < U$ nur innerhalb des Modellraumes \mathcal{A}^{UV} koppeln, wohingegen Kopplungen zwischen \mathcal{A}^{UV} und dem komplementären Raum \mathcal{B}^{UV} über das optische Potential nur für Zustände der höchsten Ordnung $u = U$ möglich sind. Werden also während der Zeitentwicklung eines zu betrachtenden Systems diese Zustände nicht besetzt, so verschwindet die Kopplung an \mathcal{B}^{UV} und die gesamte Lösung der Schrödinger-Gleichung (2.33) ist in \mathcal{A}^{UV} exakt enthalten. Aus diesem Grund kann die Besetzung der Zustände dieses äußeren Unterraumes mit $u = U$ als Maß für die Konvergenz der Basis angesehen werden.

Um einen Eindruck von der konkreten Struktur der auf diese Weise konstruierten Funktionen zu gewinnen, sollen nun die Konstruktionsvorschriften für die Zustände der ersten Ordnungen $u = 1, 2, 3$ explizit ausgeschrieben werden. Gemäß der Vorschrift (2.46) ergeben sich diese zu

$$| \phi_v^1 \rangle = \hat{V}_I(t) | \phi_v^0 \rangle \quad (2.50)$$

$$| \phi_v^2 \rangle = (\hat{V}_I(t)^2 - i \partial_t \hat{V}_I(t)) | \phi_v^0 \rangle \quad (2.51)$$

$$| \phi_v^3 \rangle = (\hat{V}_I(t)^3 - 3i \hat{V}_I(t) \partial_t \hat{V}_I(t) - \partial_t^2 \hat{V}_I(t)) | \phi_v^0 \rangle. \quad (2.52)$$

Es ist zu erkennen, dass sie in u -ter Ordnung durch Anwendung eines Polynoms u -ten Grades im Operator \hat{V}_I gebildet werden. Wie in Referenz [153] für die allgemeine Konstruktion dieser Polynome bewiesen wurde, enthalten die auftretenden Zeitableitungen

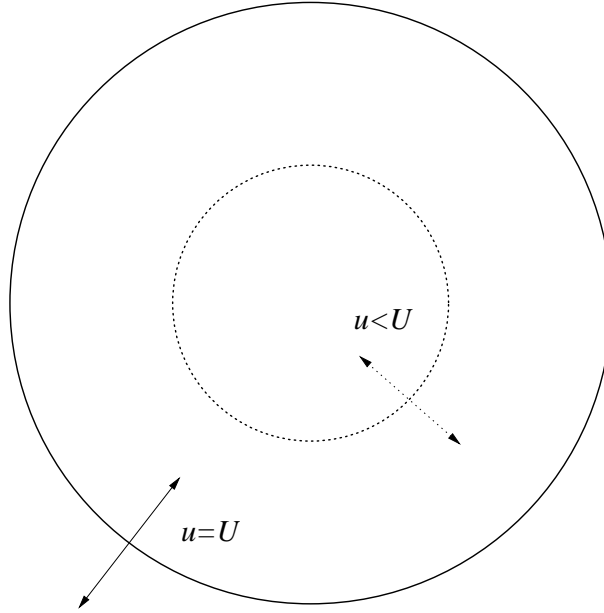


Abb. 2.1: Darstellung des Kopplungsschemas für den optimierten Darstellungsraum: Der endliche Modellraum \mathcal{A}^{UV} wird durch den durchgezogenen Kreis symbolisiert, dessen Komplementärraum \mathcal{B}^{UV} befindet sich außerhalb dieses Kreises. Die Pfeile weisen auf mögliche Kopplungen für die verschiedenen Ordnungen u hin.

von \hat{V}_I im Wechselwirkungsbild Kommutatorterme mit \hat{h}_0

$$\begin{aligned} \partial_t \hat{V}_I(t) &= \partial_t \left(\exp[i\hat{h}_0(t-t_0)] \hat{v}(t) \exp[-i\hat{h}_0(t-t_0)] \right) \\ &= \exp[i\hat{h}_0(t-t_0)] \left(i[\hat{h}_0, \hat{v}(t)] + \partial_t \hat{v}(t) \right) \exp[-i\hat{h}_0(t-t_0)] \end{aligned} \quad (2.53)$$

$$\begin{aligned} \partial_t^2 \hat{V}_I(t) &= \partial_t \left(\exp[i\hat{h}_0(t-t_0)] \left(i[\hat{h}_0, \hat{v}(t)] + \partial_t \hat{v}(t) \right) \exp[-i\hat{h}_0(t-t_0)] \right) \\ &= \exp[i\hat{h}_0(t-t_0)] \left(-[\hat{h}_0, [\hat{h}_0, \hat{v}(t)]] + 2i[\hat{h}_0, \partial_t \hat{v}(t)] + \partial_t^2 \hat{v}(t) \right) \\ &\quad \times \exp[-i\hat{h}_0(t-t_0)]. \end{aligned} \quad (2.54)$$

Eine explizite Auswertung dieser Vielfachkommutatoren mit dem Einteilchenoperator $\hat{h}_0 = -\frac{1}{2}\Delta + \hat{v}_0$ und Berücksichtigung der Eigenwertgleichung (2.44) ergibt schließlich

$$|\phi_v^1\rangle = \exp[i\hat{h}_0(t-t_0)] \hat{v}(t) |\varphi_v^0\rangle \quad (2.55)$$

$$|\phi_v^2\rangle = \exp[i\hat{h}_0(t-t_0)] \left(-\frac{1}{2}\Delta \hat{v}(t) + \hat{v}(t)^2 - i\partial_t \hat{v}(t) - \nabla \hat{v}(t) \cdot \nabla \right) |\varphi_v^0\rangle \quad (2.56)$$

$$\begin{aligned} |\phi_v^3\rangle &= \exp[i\hat{h}_0(t-t_0)] \left(\frac{1}{4}\Delta^2 \hat{v}(t) - (\nabla \hat{v}(t))^2 - \frac{3}{2}\hat{v}(t)\Delta \hat{v}(t) + i\partial_t \Delta \hat{v}(t) + \hat{v}(t)^3 \right. \\ &\quad - 3\hat{v}(t)i\partial_t \hat{v}(t) - \partial_t^2 \hat{v}(t) + \nabla^3 \hat{v}(t) \cdot \nabla - 3\hat{v}(t)\nabla \hat{v}(t) \cdot \nabla + 2i\partial_t \nabla \hat{v}(t) \cdot \nabla \\ &\quad \left. + \nabla(\nabla \hat{v}(t) \cdot \nabla) \cdot \nabla + \nabla \hat{v}(t) \cdot \nabla \hat{v}_0 \right) |\varphi_v^0\rangle. \end{aligned} \quad (2.57)$$

Der Übergang ins von nun an verwendete Schrödinger-Bild erfolgt durch die Transformation

$$|\phi_v^u\rangle = \exp[i\hat{h}_0(t - t_0)]|\varphi_v^u\rangle, \quad u = 0, \dots, U. \quad (2.58)$$

Es ist offensichtlich, dass die Struktur dieser Basiszustände $|\varphi_v^u\rangle$ mit steigender Ordnung u immer komplizierter wird und eine explizite Konstruktion über die ersten Ordnungen hinaus nicht möglich ist.

Im Rahmen der *Basis Generator Methode* (BGM) wird deshalb versucht, eine einfachere Konstruktionsvorschrift zur Definition eines neuen endlichen Modellraumes \mathcal{R}^{MN} zu finden, in dem der Modellraum \mathcal{A}^{UV} vollständig enthalten ist und somit auch die gesamte Lösung der gekoppelten Kanalgleichungen in diesem Raum liegt. Die Konstruktion des neuen Basissatzes $\{|\chi_\nu^\mu(t)\rangle, \nu = 1, \dots, N, \mu = 0, \dots, M\}$ erfolgt dabei durch eine Abbildung X , die nur die Potenzen des Potentials $\hat{v}(t)$ enthält

$$|\chi_\nu^\mu(t)\rangle = X(\hat{v}(t))^\mu |\chi_\nu^0\rangle \quad (2.59)$$

und die schon formulierte Bedingung

$$\mathcal{A}^{UV} \subseteq \mathcal{R}^{MN} \equiv \left[|\chi_\nu^\mu(t)\rangle, \nu = 1, \dots, N, \mu = 0, \dots, M \right] \quad (2.60)$$

erfüllt. Dabei sind die Entwicklungsgrenzen $M(U, V)$ und $N(U, V)$ als Funktion der ursprünglichen Grenzen (U, V) zu bestimmen. Wie in [154] gezeigt wird, sind zur Erfüllung der Bedingung (2.60) zwei Anforderungen an die Basis $\{|\chi_\nu^\mu(t)\rangle, \nu = 1, \dots, N, \mu = 0, \dots, M\}$ zu stellen. Zum einen müssen die Eigenzustände $|\varphi_v^0\rangle$, die ja die physikalische Anfangsbedingung beschreiben, in \mathcal{R}^{MN} enthalten sein

$$|\Psi_0\rangle = |\Psi(t_0)\rangle \in \mathcal{A}^{UV} \subseteq \mathcal{R}^{MN}, \quad (2.61)$$

zum anderen müssen sich die Zustände $|\chi_\nu^\mu\rangle$ unter der Abbildung $\hat{h}(t) - i\partial_t$ strukturell reproduzieren. Damit ist gemeint, dass eine Anwendung von $\hat{h}(t) - i\partial_t$ auf einen Basiszustand $|\chi_\nu^\mu\rangle$ wiederum eine endliche Linearkombination $\mathcal{L}_{\mu\nu}$ von Basiszuständen $\{|\chi_\lambda^\kappa(t)\rangle\}$ erzeugen muss

$$(\hat{h}(t) - i\partial_t)|\chi_\nu^\mu(t)\rangle = \mathcal{L}_{\mu\nu}(\{|\chi_\lambda^\kappa(t)\rangle\}) \in \left[|\chi_\lambda^\kappa(t)\rangle, \lambda = 1, \dots, L, \kappa = 0, \dots, K \right]. \quad (2.62)$$

Dabei gilt $L = L(\mu, \nu)$ und $K = K(\mu, \nu)$ und im allgemeinen auch $L > \nu$ und $K > \mu$. Der Beweis, dass zur Erfüllung der Bedingung (2.60) die Gleichungen (2.61) und (2.62) hinreichend sind, erfolgt induktiv nach dem Schema

$$\begin{aligned} |\varphi_n^0\rangle &\stackrel{(2.61)}{=} \mathcal{L}(|\chi\rangle) \\ |\varphi_n^1\rangle &= (\hat{h}(t) - i\partial_t)|\varphi_n^0\rangle = (\hat{h}(t) - i\partial_t)\mathcal{L}(|\chi\rangle) \\ &= \mathcal{L}\left((\hat{h}(t) - i\partial_t)|\chi\rangle\right) \stackrel{(2.62)}{=} \mathcal{L}(\mathcal{L}(|\chi\rangle)) = \mathcal{L}(|\chi\rangle) \\ &\vdots \\ \mathcal{A}^{UV} &\subseteq \mathcal{R}^{MN}. \end{aligned} \quad (2.63)$$

Die Formulierung dieser Bedingungen für die Auffindung eines neuen Modellraumes \mathcal{R}^{MN} , der den alten Modellraum \mathcal{A}^{UV} vollständig enthält, ist unabhängig von der Form der Wechselwirkung in der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung (2.33). Jedoch muss wechselwirkungsspezifisch eine Basis gefunden werden, die die Bedingungen (2.61) und (2.62) erfüllt. Ist dies geschehen, so kann der Indexbereich dieser Basis nach (2.63) so bestimmt werden, dass die vollständige Einbettung von \mathcal{A}^{UV} in \mathcal{R}^{MN} gewährleistet ist. In Referenz [154] wird gezeigt, dass für Streuprobleme, in denen Projektil- und Targetpotential *coulombartig* sind, eine solche Basis $\{|\chi_\nu^\mu(t)\rangle\}$ gefunden werden kann. Sie lautet

$$\chi_{nlm}^0(\mathbf{r}, \xi, \epsilon_T) = r_{\epsilon_T}^{n-1} \exp(-\xi r_{\epsilon_T}) (r/r_{\epsilon_T})^l Y_{lm}(\vartheta, \varphi) \quad (2.64)$$

$$\chi_{nlm}^\mu(\mathbf{r}, t, \xi, \epsilon_T, \epsilon_P) = (W_P(t, \epsilon_P))^\mu \chi_{nlm}^0(\mathbf{r}, \xi, \epsilon_T) \quad (2.65)$$

mit der Definition $r_{\epsilon_T} = [r^2 + \epsilon_T^2]^{1/2}$ und den Indexbereichen

$$\begin{aligned} l, \mu, L, N, M \in \mathbb{N}_0, \quad m, n, N_z \in \mathbb{Z} \\ -l \leq m \leq l \leq L, \quad l + N_z < n \leq N \\ N_z \leq 0 \leq L \leq N - 1, \quad 0 \leq \mu \leq M. \end{aligned} \quad (2.66)$$

Wie zu erkennen ist, treten in (2.64) für $n < 1$ negative Potenzen von r_{ϵ_T} auf. Allgemeiner kann man also die Konstruktionsvorschrift (2.65) gemäß

$$\chi_{nlm}^{\mu\mu'}(\mathbf{r}, t, \xi, \epsilon_T, \epsilon_P) = (W_P(t, \epsilon_P))^\mu (W_T(\epsilon_T))^{\mu'} \chi_{nlm}^0(\mathbf{r}, \xi, \epsilon_T) \quad (2.67)$$

umformulieren. Hierbei wurden die Coulomb-Potentiale der beiden Zentren durch die regularisierten Ausdrücke

$$\begin{aligned} -\frac{Q_T}{r} &\rightarrow -\frac{Q_T}{[r^2 + \epsilon_T^2]^{1/2}} \equiv -Q_T W_T(\epsilon_T) \\ -\frac{Q_P}{r_P(t)} &\rightarrow -\frac{Q_P}{[r_P^2(t) + \epsilon_P^2]^{1/2}} \equiv -Q_P W_P(t, \epsilon_P) \end{aligned} \quad (2.68)$$

ersetzt. Der Abstand des Elektrons vom Projektil ist mit $r_P(t) = |\mathbf{r} - \mathbf{R}(t)|$ definiert worden. Die auftretenden endlichen Konstanten ϵ_T und ϵ_P sind Regularisierungsparameter und können als endliche Kernradien interpretiert werden. Die Regularisierung ist notwendig, um andernfalls auftretende Divergenzen zu vermeiden. Unter Verwendung dieser Definitionen setzt sich der Hamilton-Operator des coulombartigen Eielektronensystems folgendermaßen zusammen

$$\hat{h}(t) = -\frac{1}{2}\Delta - Q_T W_T(\epsilon_T) - Q_P W_P(t, \epsilon_P). \quad (2.69)$$

Die so gefundene BGM-Basis für coulombartige Systeme ist unabhängig von der Projektilladung und -geschwindigkeit, hängt aber über die Abschirmkonstante ξ , die durch die physikalische Anfangsbedingung bestimmt wird, implizit von der Targetladung ab.

2.2.4 Numerische Umsetzung der BGM

Bei der bisherigen Umsetzung des BGM-Konzepts wurden einige Näherungen vorgenommen, die von der im vorhergehenden Abschnitt beschriebenen exakten Konstruktionsvorschrift für die Basisfunktionen abweichen, um den numerischen Aufwand zu reduzieren. Dabei wurde zunächst die generierende Basis $\{|\chi_{nlm}^0\rangle\}$ (Gleichung (2.64)) durch die atomaren Eigenfunktionen des ungestörten Targetatoms $\{|\varphi_{nlm}^0\rangle\}$ (Gleichung (2.44) und (2.45)) ersetzt

$$\chi_{nlm}^0(\mathbf{r}, \xi, \epsilon_T) \rightarrow \varphi_{nlm}^0(\mathbf{r}) \quad (2.70)$$

und die Konstruktionsvorschrift (2.67) auf diese Funktionen angewendet

$$\chi_{nlm}^{\mu\mu'}(\mathbf{r}, t, \epsilon_P) = (W_P(t, \epsilon_P))^\mu (W_T(\epsilon_T))^{\mu'} \varphi_{nlm}^0(\mathbf{r}) . \quad (2.71)$$

Formal werden durch diesen Schritt die Bedingungen (2.60) und (2.62) verletzt, wohingegen die Bedingung (2.61) nun natürlich explizit von der generierenden Basis erfüllt wird. Weiterhin hat sich gezeigt, dass es aufgrund numerischer Anforderungen nicht möglich ist, den Parameter $\epsilon_P \ll 1$ zu wählen, sondern mit dem Wert $\epsilon_P \approx 1$ zu arbeiten.

Es hat sich herausgestellt, dass es ausreichend ist, für positiv geladene Projektile lediglich mit BGM Zuständen aus (2.71) zu arbeiten, die durch $W_P(t, \epsilon_P)$ alleine erzeugt wurden. Analog wird für ein Antiproton als Projektil nur $W_T(\epsilon_T)$ verwendet, da in diesem Fall keine Einfangkanäle, d.h. am Projektil gebundene Funktionen, dargestellt werden müssen [56].

Konvergenzuntersuchungen für eine solche BGM Basis [153, 155] haben ergeben, dass sich sowohl mit wachsender Basisgröße (Index N) als auch mit der Hinzunahme höherer Potentialpotenzen (Index M) ein entsprechendes Konvergenzverhalten einstellt. Allerdings zeigt sich, dass erst die Hinzunahme höherer Potenzen von W_P die Beschreibung des Zweizentrencharakters eines Systems möglich macht. Diese Konvergenz der genähernten BGM-Basis mit steigender Ordnung M kann durch eine weitere Modifikation des Ansatzes (2.71) beschleunigt werden

$$\chi_{nlm}^\mu(\mathbf{r}, t, \epsilon_P, \alpha) = (W_P(t, \epsilon_P))^\mu (1 - \exp(-\alpha r_{P\epsilon}))^\mu \varphi_{nlm}^0(\mathbf{r}) , \quad (2.72)$$

der zur Simulation der exponentiellen Asymptotik atomarer Projektilzustände dient und eine verbesserte Darstellung solcher Zustände bewirkt. In dieser Gleichung wurde die Abkürzung $r_{P\epsilon} = [r_P^2(t) + \epsilon_P^2]^{1/2}$ verwendet. Die Wirkung des Zusatzterms wird offensichtlich, wenn man ihn gemäß dem Binomischen Lehrsatz entwickelt

$$(1 - \exp(-\alpha r_{P\epsilon}))^\mu = \sum_{\lambda=0}^{\mu} \binom{\mu}{\lambda} (-1)^\lambda \exp(-\alpha \lambda r_{P\epsilon}) . \quad (2.73)$$

In der μ -ten Ordnung der Basis werden folglich Exponentialfaktoren zu den Abschirmkonstanten α bis $\alpha \cdot \mu$ erzeugt, die die Darstellung der exponentiellen Asymptotik unterstützen und somit eine beschleunigte Darstellung bewirken. Die Verwendung dieses Zusatzterms $(1 - \exp(-\alpha r_{P\epsilon}))^\mu$ macht es gleichzeitig möglich, den Regularisierungsparameter ϵ_P beliebig klein zu wählen, da die auftretenden Divergenzen durch den Zusatzterm selbst

beseitigt werden. Der Parameter kann deshalb in der Praxis $\epsilon_P = 0$ gesetzt werden, so dass für die Konstruktionsvorschrift der Basis für positiv geladene Projektile schließlich

$$\begin{aligned}\chi_{nlm}^\mu(\mathbf{r}, t, \alpha) &= \left(\frac{1}{r_P(t)} (1 - \exp(-\alpha r_P(t))) \right)^\mu \varphi_{nlm}^0(\mathbf{r}) \\ &\equiv \left(\tilde{W}_P(t, \alpha) \right)^\mu \varphi_{nlm}^0(\mathbf{r})\end{aligned}\quad (2.74)$$

und für ein Antiproton als Projektil

$$\begin{aligned}\chi_{nlm}^{\mu'}(\mathbf{r}, \alpha) &= \left(\frac{1}{r} (1 - \exp(-\alpha r)) \right)^{\mu'} \varphi_{nlm}^0(\mathbf{r}) \\ &\equiv \left(\tilde{W}_T(\alpha) \right)^{\mu'} \varphi_{nlm}^0(\mathbf{r})\end{aligned}\quad (2.75)$$

übrigbleibt. Für den in dieser Formulierung auftretenden Parameter α wurde $\alpha = 1$ gewählt.

Um den Rechenaufwand bei der Lösung der Schrödinger-Gleichung in einer solchen Basis weiter zu reduzieren, kann die Invarianz des elektronischen Hamilton-Operators bezüglich Spiegelungen an der Streuebene ausgenutzt werden. Dabei werden statt der üblichen komplexen, symmetrieangepasste reelle Kugelflächenfunktionen für die Winkelanteile in den Basisfunktionen verwendet

$$\{Y_{lm}(\vartheta, \varphi), -l \leq m \leq l\} \rightarrow \begin{cases} P_l^m(\cos \vartheta) \cos(m\varphi) \\ P_l^m(\cos \vartheta) \sin(m\varphi) \end{cases}, 0 \leq m \leq l. \quad (2.76)$$

Wegen der angesprochenen Spiegelsymmetrie tritt während der Zeitentwicklung des Systems keine Mischung zwischen den Anteilen der Basis mit $\cos(m\varphi)$ ('gerader' Anteil) und denen mit $\sin(m\varphi)$ ('ungerader' Anteil) auf. Für einen Anfangszustand mit gegebener Symmetrie ist es folglich ausreichend, die Zeitentwicklung in dem entsprechenden 'geraden' oder 'ungeraden' Teilraum zu verfolgen¹¹.

Zur Stabilisierung der Numerik und einer möglichst direkten Interpretierbarkeit der Ergebnisse werden die Funktionen der Ordnungen $\mu, \mu' \geq 1$ orthogonal zu den atomaren Eigenfunktionen $\{|\varphi_{nlm}^0\rangle\}$ konstruiert. Eine solche Orthogonalisierung kann in allgemeiner Form durch den Polynomansatz

$$|\tilde{\chi}_v^\mu\rangle = \sum_{\lambda'=0}^{\mu} (\tilde{W}_X)^{\lambda'} \sum_{v'=1}^V a_{v'v}^{\lambda'\mu} |\varphi_{v'}^0\rangle, \quad X : P, T \quad (2.77)$$

erreicht werden, wobei die Quantenzahlen nlm wieder durch den Multiindex v abgekürzt wurden. Für die angesprochene spezielle Orthogonalisierung werden diese Koeffizienten $a_{v'v}^{\mu'\mu}$ im Anhang A.1 explizit bestimmt.

¹¹So setzt sich beispielsweise die Wellenfunktion $\varphi_{2p\pm 1}$ folgendermaßen aus einem 'geraden' Anteil φ_{2p1g} und einem 'ungeraden' Anteil φ_{2p1u} zusammen: $\varphi_{2p\pm 1} = \frac{1}{\sqrt{2}} (\varphi_{2p1g} \pm \varphi_{2p1u})$. Zustände mit $m = 0$ besitzen lediglich einen 'geraden' Anteil.

Die Lösung der Einteilchengleichungen (2.6) mit dem Hamilton-Operator (2.31) erfolgt dann durch Entwicklung der Einteilchenorbitale $|\psi_i(t)\rangle$ nach der Basis (2.77)

$$|\psi_i(t)\rangle = \sum_{\mu=0}^M \sum_{v=1}^V c_{\mu v}^i(t) |\tilde{\chi}_v^\mu\rangle \quad (2.78)$$

und der Lösung der sich daraus ergebenden gekoppelten Kanalgleichungen

$$i \sum_{\mu=0}^M \sum_{v=1}^V \dot{c}_{\mu v}^i(t) \langle \tilde{\chi}_w^\lambda | \tilde{\chi}_v^\mu \rangle = \sum_{\mu=0}^M \sum_{v=1}^V c_{\mu v}^i(t) \langle \tilde{\chi}_w^\lambda | \hat{h}(t) - i\partial_t | \tilde{\chi}_v^\mu \rangle \quad (2.79)$$

für alle anfänglich besetzten Zustände i . Da keine vollständige Orthogonalisierung der Basis (2.77) vorgenommen wurde, treten in dieser Gleichung neben den Wechselwirkungsmatrixelementen auf der rechten Seite auch Überlappmatrixelemente auf der linken Seite auf. Alle diese Matrixelemente können aus bestimmten Grundmatrixelementen aufgebaut werden, die in Anhang A.2 zusammengefasst sind. Details zur praktischen Lösung von (2.79) sind in Anhang A.3 zu finden.

Die in diesem Abschnitt beschriebene numerische Umsetzung des BGM-Konzeptes wurde bereits sehr erfolgreich in vielfältiger Weise auf Ion-Atom-Stöße [54–56], Ion-Ion-Stöße [57–60], Ion-Molekül-Stöße [61–63] und erst kürzlich auch auf Laser unterstützte Ion-Atom-Stöße [64, 65] angewendet.

2.3 Observablen für ein Zweiteilchen Spin-Singulett System

Wie schon in Abschnitt 2.1.1 beschrieben wurde, sind im Rahmen der TDDFT auf der Grundlage des Runge-Gross-Theorems alle Observablen Funktionale der zeitabhängigen Einteilchendichte n . Weil dieser funktionale Zusammenhang zwischen der Dichte und den meisten interessierenden Observablen jedoch nicht bekannt ist, sind weitere vereinfachende Annahmen bei der Auswertung der Einteilchenlösungen und der Interpretation dieser Ergebnisse unumgänglich. Da in der vorliegenden Arbeit lediglich Zweiteilchen-Systeme mit einer Spin-Singulett-Anfangsbedingung untersucht werden sollen, beschränken sich die Detailaussagen der folgenden Abschnitte auf diesen Spezialfall.

2.3.1 Nettowahrscheinlichkeiten

Nettowahrscheinlichkeiten als Erwartungswerte der Einteilchendichte sind unter bestimmten Voraussetzungen explizite Dichtefunktionale und enthalten Informationen über die mittlere Anzahl von Elektronen in bestimmten Endzuständen des Vielelektronensystems. Bedingung dafür ist, dass man die Einteilchendichte eindeutig in einen endlichen Targetanteil (T), einen endlichen Projektilanteil (P) und einen unendlichen Komplementäranteil (I) aufteilen kann, die jeweils klar voneinander getrennten Gebieten im Ortsraum entsprechen und keinen Überlapp aufweisen, d.h. keine Interferenzen untereinander zeigen. Ist

dies der Fall, so ist das Gesamtvolumen des Einteilchenraums gegeben durch $V = T + P + I$ und die Teilchenzahl N kann als

$$\begin{aligned} N &= \int_V n(\mathbf{r}, t) d^3r = \int_T n(\mathbf{r}, t) d^3r + \int_P n(\mathbf{r}, t) d^3r + \int_I n(\mathbf{r}, t) d^3r \\ &= P_T^{net} + P_P^{net} + P_I^{net} \end{aligned} \quad (2.80)$$

geschrieben werden. P_x^{net} stellt die mittlere Anzahl von Elektronen dar, die im Teilraum x detektiert werden können. Für den Fall eines anfänglich neutralen Targets und vollständig ionisierten Projektils werden diese mittleren Teilchenzahlen als Nettowahrscheinlichkeiten für Ionisation und Einfang interpretiert. Eine entsprechende Nettowahrscheinlichkeit für Elektronenverlust ist gemäß der Teilchenzahlerhaltung durch

$$P_{loss}^{net} = P_P^{net} + P_I^{net} = N - P_T^{net} \quad (2.81)$$

definiert und charakterisiert die mittlere Targetladung.

Problematisch bei obigen Ausführungen ist jedoch, dass eine Separation des Ortsraums in die angesprochenen Teilgebiete für endliche Zeiten nach dem Stoß im allgemeinen nicht möglich ist. Kontinuumslektronen werden beispielsweise auch für sehr große Abstände zwischen Projektil und Target in der näheren Umgebung beider Zentren gefunden.

2.3.2 Zweiteilchen-Übergangswahrscheinlichkeiten

Ausgangspunkt zur Berechnung von Vielteilchenwahrscheinlichkeiten stellt die in (2.4) definierte q -Teilchendichte dar, die die inklusive Wahrscheinlichkeit dafür angibt, q Elektronen an bestimmten Positionen des Konfigurationsraumes zu beobachten, während die verbleibenden $N - q$ nicht explizit detektiert werden. Zwischen den q -Teilchendichten kann unmittelbar über ihre Definition (2.4) der Zusammenhang

$$\gamma^q(\mathbf{x}_1, \dots, \mathbf{x}_q, t) = \frac{q+1}{N-q} \int d^4x_{q+1} \gamma^{q+1}(\mathbf{x}_1, \dots, \mathbf{x}_{q+1}, t) \quad (2.82)$$

hergeleitet werden. Des Weiteren sind die q -Teilchendichten normiert

$$\int_{V^q} d^4x_1 \dots d^4x_q \gamma^q(\mathbf{x}_1, \dots, \mathbf{x}_q, t) = \binom{N}{q}, \quad (2.83)$$

wobei V^q symbolisiert, dass sich die Koordinaten aller q Elektronen über das gesamte Volumen V erstrecken. Teilt man dieses Volumen in Teilbereiche auf, beispielsweise $V = T + I$ für ein Zweielektronen-System, das durch einen Antiprotonenstoß entweder angeregt oder ionisiert werden kann, so wird aus dem Normierungsintegral [156]

$$\begin{aligned} 1 &= \int_{V^2} \gamma^2 = \int_{T^2} \gamma^2 + 2 \int_{TI} \gamma^2 + \int_{I^2} \gamma^2 \\ &= P_{T^2} + P_{TI} + P_{I^2}. \end{aligned} \quad (2.84)$$

Die auftretenden Wahrscheinlichkeiten stehen für: Verbleib beider Elektronen am Target (P_{T^2}), Einfachionisation bei möglicher gleichzeitiger Anregung (P_{TI}) und Zweifachionisation (P_{I^2}). In verallgemeinerter Form für N Elektronen lautet das Normierungsintegral

$$1 = \int_{V^N} \gamma^N = \int_{(T+P+I)^N} \gamma^N = \sum_{\nu=0}^N \sum_{\mu=0}^{\nu} \binom{N}{\nu} \binom{\nu}{\mu} \int_{T^{N-\nu} P^{\nu-\mu} I^{\mu}} \gamma^N. \quad (2.85)$$

Die einzelnen Terme der Summe stellen die Wahrscheinlichkeiten dar, gleichzeitig $N - \nu$ Elektronen am Target vorzufinden, $\nu - \mu$ am Projektil und μ im Kontinuum, also ionisiert. Dabei ist es immer möglich, die Integration über den unendlichen Teilraum I in eine Integration über T oder T und P aufzutrennen. Im Beispiel (2.84) kann die Wahrscheinlichkeit für Einfachionisation unter Verwendung von (2.82) als

$$\begin{aligned} P_{TI} &= 2 \int_{TI} \gamma^2 = 2 \int_{T(V-T)} \gamma^2 = \int_T \gamma^1 - 2 \int_{T^2} \gamma^2 \\ &= P_T^{net} - 2 \int_{T^2} \gamma^2 \end{aligned} \quad (2.86)$$

geschrieben werden. Mit Hilfe dieser Wahrscheinlichkeiten kann man bei Kenntnis des Anfangszustandes also den Ladungszustand des Systems analysieren. Da jedoch der analytische Zusammenhang zwischen der auftretenden q-Teilchendichte γ^q und der Einteilchendichte n nicht bekannt ist, sind diese Wahrscheinlichkeiten nicht exakt im Sinne des Konzepts der DFT berechenbar. An dieser Stelle sind Näherungen unumgänglich.

Am naheliegendsten ist, die Wahrscheinlichkeiten im *Modell unabhängiger Teilchen* (IPM¹²) auszuwerten. Die q-Teilchendichte ergibt sich darin als q \times q- Determinante der Einteilchendichtematrix [69], da sowohl der Anfangs- als auch der Endzustand des Viel-elektronenproblems als einzelne Slater-Determinante genähert werden

$$\gamma^q(x_1, \dots, x_q) = \frac{1}{q!} \begin{vmatrix} \gamma^1(x_1, x_1) & \cdots & \gamma^1(x_1, x_q) \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \gamma^1(x_q, x_1) & \cdots & \gamma^1(x_q, x_q) \end{vmatrix}. \quad (2.87)$$

Für den Spezialfall eines *Zweiteilchen-Systems* mit einer *Spin-Singulett-Anfangsbedingung* bricht die Determinantenstruktur (2.87) zusammen, und es ergeben sich die relevanten Zweiteilchen-Übergangswahrscheinlichkeiten durch einfache Binomialstatistik zu [62]

$$\text{Einfacheinfang : } P_{1P} = 2p_P p_T = 2p_P(1 - p_P - p_I) \quad (2.88a)$$

$$\text{Zweifacheinfang : } P_{2P} = p_P^2 \quad (2.88b)$$

$$\text{Einfachionisation : } P_{1I} = 2p_I p_T = 2p_I(1 - p_P - p_I) \quad (2.88c)$$

$$\text{Zweifachionisation : } P_{2I} = p_I^2 \quad (2.88d)$$

$$\text{Transferionisation : } P_{PI} = 2p_P p_I \quad (2.88e)$$

$$\text{Nettoeinfang : } P_P^{net} = 2p_P \quad (2.88f)$$

$$\text{Nettoionisation : } P_I^{net} = 2p_I \quad (2.88g)$$

$$\text{Nettoverlust : } P_{loss}^{net} = 2(p_P + p_I) = 2p_{loss} \quad (2.88h)$$

$$\text{Einfachverlust : } P_{1loss} = 2p_{loss}(1 - p_{loss}) = P_{1P} + P_{1I} \quad (2.88i)$$

$$\text{Zweifachverlust : } P_{2loss} = p_{loss}^2 = P_{2P} + P_{2I} + P_{PI} \quad (2.88j)$$

¹²IPM: Independent Particle Model

mit den Einteilchen-Übergangswahrscheinlichkeiten

$$\text{Anregung : } p_T = \frac{1}{2} \int_T n(\mathbf{r}, t \rightarrow \infty) d^3r \quad (2.89a)$$

$$\text{Einfang : } p_P = \frac{1}{2} \int_P n(\mathbf{r}, t \rightarrow \infty) d^3r \quad (2.89b)$$

$$\text{Ionisation : } p_I = \frac{1}{2} \int_I n(\mathbf{r}, t \rightarrow \infty) d^3r \quad (2.89c)$$

und der Normierung

$$p_T + p_P + p_I = 1. \quad (2.90)$$

Weitere Beispiele für Übergangswahrscheinlichkeiten, die Funktionale der q-Teilchendichte darstellen, findet man in [82]. Da man den Korrelationsanteil der Wellenfunktion in dieser Näherung vollständig vernachlässigt, ist davon auszugehen, dass deren Vielteilchencharakter nicht vollständig erfasst wird. Ausdruck dieser Problematik ist die Tatsache, dass sich die Einfach-Prozesse vollständig durch Zweifach-Prozesse ausdrücken lassen:

$$P_{1P} = 2 \left(\sqrt{P_{2P}} - P_{2P} - \sqrt{P_{2I}} \right) \quad (2.91a)$$

$$P_{1I} = 2 \left(\sqrt{P_{2I}} - P_{2I} - \sqrt{P_{2P}} \right) \quad (2.91b)$$

$$P_{1loss} = 2 \left(\sqrt{P_{2loss}} - P_{2loss} \right). \quad (2.91c)$$

Diese Abhängigkeiten sind offensichtlich unphysikalisch und ein Artefakt der Näherung der Wellenfunktion als eine einzige Slater-Determinante [156].

In der praktischen Umsetzung werden innerhalb einer Kanaldarstellung für asymptotische Zeiten nach dem Stoß ($t \rightarrow \infty$) Endzustände f festgelegt, deren Besetzungen dann als Anregung (p_T) (2.89a), Einfang (p_P) (2.89b) und Ionisation (p_I) (2.89c) betrachtet werden. Die generierende BGM Basis (2.70) repräsentiert die Kanäle für elastische Streuung und Anregung. Die Übergangswahrscheinlichkeiten für Einfang müssen durch Projektion auf bewegte Projektilorbitale gewonnen werden, die Ionisationswahrscheinlichkeit ergibt sich dann aufgrund der Normerhaltung (2.90). Eine detaillierte Beschreibung, wie diese Projektion im Rahmen des BGM-Konzeptes ausgeführt werden kann, findet man in Anhang A.4.

2.3.3 Berechnung von Wirkungsquerschnitten

Aus den im vorhergehenden Abschnitt abgeleiteten Wahrscheinlichkeiten P_x für die verschiedenen Prozesse ergeben sich im Rahmen der semiklassischen Näherung des Stoßparametermodells durch das Integral

$$\sigma_x = 2\pi \int_0^\infty db b P_x(b) \quad (2.92)$$

die entsprechenden *totalen Wirkungsquerschnitte* σ_x , die direkt mit experimentellen Ergebnissen verglichen werden können.

Eine Bessel-Transformation der zugehörigen Übergangsamplituden erlaubt [157] – obwohl eine gerade Bahn für das Projektil zugrundegelegt wurde – die Berechnung bezüglich des Projektilstreuwinkels differentieller Wirkungsquerschnitte

$$\frac{d\sigma_{ki}}{d\Omega}(\Theta) = \mu^2 v^2 \left| \int_0^\infty db b c_k^{iP} J_{m_k - m_i} \left(2\mu v \sin \frac{\Theta}{2} b \right) \right|^2, \quad (2.93)$$

wobei Θ den Streuwinkel, μ die reduzierte Masse und v die Projektilgeschwindigkeit bezeichnen. Solche differentiellen Wirkungsquerschnitte wurden mit Hilfe der BGM für den Ladungsaustausch in $\text{He}^{2+} - \text{B}^{2+}$ Stößen berechnet und eine sehr gute Übereinstimmung mit experimentellen Daten erzielt [60].

Kapitel 3

Modelle für das Responspotential

Quantenmechanische Systeme mit vielen aktiven Elektronen können in systematischer Art und Weise mit Hilfe der im vorhergehenden Kapitel dargestellten TDDFT beschrieben werden. Den kritischen Punkt in der theoretischen Formulierung stellt dabei die Einbeziehung der Elektron-Elektron-Wechselwirkung dar. Die Modellierung und Untersuchung verschiedener Bestandteile der Elektron-Elektron-Wechselwirkung soll Inhalt dieses Kapitels sein.

3.1 Die 'no-response' Näherung

Das in Abschnitt 2.1.3 eingeführte, zeitabhängige Kohn-Sham-Potential $v_{\text{TDKS}}[n](\mathbf{r}, t)$ setzt sich gemäß (2.9) aus dem externen Potential $v_{\text{ext}}(\mathbf{r}, t)$ und dem effektiven Potential $v_{ee}[n](\mathbf{r}, t)$, das die Elektron-Elektron-Wechselwirkung beschreibt, zusammen

$$v_{\text{TDKS}}[n](\mathbf{r}, t) = v_{\text{ext}}(\mathbf{r}, t) + v_{ee}[n](\mathbf{r}, t) . \quad (3.1)$$

$v_{ee}[n](\mathbf{r}, t)$ kann wiederum in den klassischen Hartree-Anteil $v_H[n](\mathbf{r}, t)$ und den quantenmechanischen Austausch-Korrelationsanteil $v_{xc}[n](\mathbf{r}, t)$ aufgespalten werden (siehe (2.12))

$$\begin{aligned} v_{ee}[n](\mathbf{r}, t) &= v_H[n](\mathbf{r}, t) + v_{xc}[n](\mathbf{r}, t) \\ &= v_H[n](\mathbf{r}, t) + v_x[n](\mathbf{r}, t) + v_c[n](\mathbf{r}, t) . \end{aligned} \quad (3.2)$$

Da, wie in Abschnitt 2.1.4 erläutert, das exakte, zeitabhängige Funktional für den Korrelationsanteil $v_c[n](\mathbf{r}, t)$ bisher nicht gefunden werden konnte, wird dieser vernachlässigt

$$v_{ee}[n](\mathbf{r}, t) \approx v_H[n](\mathbf{r}, t) + v_x[n](\mathbf{r}, t) . \quad (3.3)$$

Im Folgenden wird diese Näherung auch mit 'x-only' bezeichnet. Um verschiedene Aspekte der effektiven Elektron-Elektron-Wechselwirkung untersuchen zu können, wird (3.3) nun in einen stationären Anteil $v_{ee}^0[n_0](r)$ und einen zeitabhängigen Responsanteil $\delta v_{ee}[n](\mathbf{r}, t)$ aufgespalten

$$\boxed{v_{ee}[n](\mathbf{r}, t) = v_{ee}^0[n_0](r) + \delta v_{ee}[n](\mathbf{r}, t) .} \quad (3.4)$$

Der stationäre Anteil beschreibt dabei die Wechselwirkung der Elektronen im Grundzustand des Targetatoms, der Responsanteil die Veränderung dieser Wechselwirkung aufgrund der Anwesenheit des Projektils. Für schnelle Stöße, d.h. Stöße, bei denen die Projektilgeschwindigkeit groß im Vergleich zu typischen Orbitalgeschwindigkeiten der aktiven Elektronen ist, kann das Responspotential vernachlässigt werden

$$\boxed{\delta v_{ee}[n](\mathbf{r}, t) \approx 0 .} \quad (3.5)$$

Da die Wechselwirkungszeit für solch schnelle Stöße zu kurz ist, um wesentliche Veränderungen der elektronischen Dichte bewirken zu können, ist diese Näherung gerechtfertigt. Im Weiteren soll sie mit 'no-response' bezeichnet werden.

In früheren Arbeiten [155, 158, 159] wurden statische Austauscheffekte im Rahmen der no-response Näherung untersucht. Dabei wurden sowohl Latter-korrigierte LDA Potentiale als auch OPM Potentiale für den stationären Anteil $v_{ee}^0[n_0](r)$ verwendet. Es zeigt sich, dass die Nettowirkungsquerschnitte für Ionisation und Einfang durch das LDA Potential im Vergleich zum OPM Potential systematisch überschätzt werden. Ursache hierfür ist die unvollständige Korrektur der Selbstwechselwirkung im Falle der LDA, was zu einem zu kleinen ersten Ionisationspotential und somit falschen Bindungsverhältnissen führt. Für große Einschussenergien ergibt das OPM Potential sehr gute Ergebnisse, Abweichungen treten im Bereich kleiner Stoßenergien hauptsächlich für Vielteilchenprozesse auf. Der Grund dafür sind Responseeffekte, deren Modellierung im Folgenden beschrieben werden soll.

3.2 Globales Responsmodell

Wird während eines Stoßes elektronische Dichte vom Target durch Ionisation oder Einfang entfernt, so nimmt die Bindungsenergie der verbleibenden Elektronen aufgrund der schwächer werdenden Abschirmung zu. Es wird folglich zunehmend schwieriger, die verbleibenden Elektronen zu entfernen. Ein Modell, das diesen Sachverhalt in globaler Weise beschreibt, wurde in [160] entwickelt. Hierbei wird der Responsterm $\delta v_{ee}[n](\mathbf{r}, t)$ durch eine Linearkombination ionischer Targetpotentiale $v_q[n_0](r)$ dargestellt, die mit der zeitabhängigen Wahrscheinlichkeit gewichtet werden, das entsprechende Ion während des Stoßes zu erzeugen

$$\delta v_{ee}[n](\mathbf{r}, t) \approx \sum_{q=1}^N P_{q,loss}(t) v_q[n_0](r) . \quad (3.6)$$

$P_{q,loss}$ stellt die Wahrscheinlichkeit für q-fach Verlust dar. Die ionischen Potentiale werden dabei durch das atomare Grundzustandspotential $v_{ee}^0[n_0](r)$ genähert, dessen Asymptotik

$$v_{ee}^0[n_0](r) = v_{ee}^{OPM}[n_0](r) \xrightarrow{r \rightarrow \infty} \frac{N-1}{r} \quad (3.7)$$

entsprechend der jeweiligen Ladung angepasst wird

$$v_q[n_0](r) \xrightarrow{r \rightarrow \infty} -\frac{q-1}{r} = -\lim_{r \rightarrow \infty} \frac{q-1}{N-1} v_{ee}^0[n_0](r) . \quad (3.8)$$

Da das aktive Elektron nicht mit sich selbst wechselwirken kann, verhindert der Faktor $(q - 1)$, dass die Reduzierung der elektronischen Abschirmung zu früh einsetzt und sorgt dafür, dass das Responsmodell erst ab zweifachem Verlust, d.h. $q \geq 2$, wirksam wird. Man erhält so

$$\delta v_{ee}[n](\mathbf{r}, t) \approx \delta v_{ee}[n_0](r, t) = \frac{-1}{N-1} \sum_{q=1}^N (q-1) P_{q,loss}(t) v_{ee}^0[n_0](r) . \quad (3.9)$$

Mit Hilfe der Normierungsrelation

$$P_{loss}^0(t) = 1 - \sum_{q=1}^N P_{q,loss}(t) , \quad (3.10)$$

wobei $P_{loss}^0(t)$ für die Wahrscheinlichkeit steht, dass keine Elektronen vom Target entfernt werden, und der Definition für Nettoverlust

$$P_{loss}^{net}(t) = \sum_{q=1}^N q P_{q,loss}(t) , \quad (3.11)$$

findet man schließlich

$$\delta v_{ee}[n](\mathbf{r}, t) \approx \delta v_{ee}[n_0](r, t) = - \frac{P_{loss}^{net}(t) + P_{loss}^0(t) - 1}{N-1} v_{ee}^0[n_0](r) . \quad (3.12)$$

Dieses globale Responsmodell wurde beispielsweise benutzt, um Nettoeinfang, Nettoionisation und Vielfachverluste [161] sowie zustandsselektiven Einfang [162, 163] in p-Ar Stößen zu berechnen.

In analoger Weise zu (3.9) bzw. (3.12) kann ein globales Responsmodell für das Projektil konstruiert werden, welches der Tatsache Rechnung trägt, dass mit einsetzendem Einfang elektronischer Dichte das Projektil zunehmend abgeschirmt, d.h. seine Ladung vermindert, wird [164]. Es hat sich allerdings gezeigt, dass die Auswirkungen eines solchen Potentials für Projektile im niederen und mittleren Ladungsbereich vernachlässigt werden können.

Ein Problem bei der Berücksichtigung des zeitabhängigen Responspotentials besteht in der Berechnung zeitlich stabiler Übergangswahrscheinlichkeiten. Im no-response Fall werden zur Beschreibung der gebundenen Targetanteile die Eigenfunktionen $\{|\varphi_k^0\rangle\}$ des ungestörten Targetatoms, d.h. die Funktionen der generierenden BGM Basis (2.44), verwendet. Unterscheidet sich jedoch der Hamilton-Operator vor dem Stoß vom Hamilton-Operator nach dem Stoß infolge des Responspotentials $\delta v_{ee}(t)$, da

$$v_{ee}^0(r) = \lim_{t \rightarrow -\infty} v_{ee}(\mathbf{r}, t) \neq \lim_{t \rightarrow +\infty} v_{ee}(\mathbf{r}, t) , \quad (3.13)$$

so kann man zeigen [160], dass eben durch dieses Responspotential alle Kanäle miteinander gekoppelt werden

$$\dot{c}_k(t)|_{t \rightarrow \infty} = -i \left(\varepsilon_k c_k(t) + \sum_j \langle \varphi_k | \delta v_{ee}(t) | \varphi_j \rangle c_j(t) \right)_{t \rightarrow \infty} \quad (3.14)$$

und somit fluktuierende Übergangswahrscheinlichkeiten auftreten. Verwendet man allerdings zur Analyse die Eigenfunktionen $\{|\tilde{\varphi}_k\rangle\}$ des zeitabhängigen Hamilton-Operators, der das Responspotential selbst enthält

$$\begin{aligned} \hat{h}(t)|\tilde{\varphi}_k(t)\rangle &= \left(\underbrace{-\frac{1}{2}\Delta - \frac{Q_T}{r} + v_{ee}^0(r)}_{=\hat{h}_0} - \frac{Q_P}{|\mathbf{r} - \mathbf{R}(t)|} + \delta v_{ee}(\mathbf{r}, t) \right) |\tilde{\varphi}_k(t)\rangle \\ &= \tilde{\varepsilon}_k(t)|\tilde{\varphi}_k(t)\rangle, \end{aligned} \quad (3.15)$$

so erfolgt die Kopplung der Kanäle nicht mehr durch das Responspotential, sondern dessen zeitliche Ableitung

$$\dot{\tilde{c}}_k(t)|_{t \rightarrow \infty} = -i \left(\tilde{\varepsilon}_k(t)\tilde{c}_k(t) - \sum_{j, j \neq k} \frac{i}{\tilde{\varepsilon}_k(t) - \tilde{\varepsilon}_j(t)} \langle \tilde{\varphi}_k(t) | \delta \dot{v}_{ee}(t) | \tilde{\varphi}_j(t) \rangle \tilde{c}_j(t) \right)_{t \rightarrow \infty}. \quad (3.16)$$

Für das globale Responspotential (3.12), dessen zeitliche Abhängigkeit allein durch den Nettoverlust gegeben ist, kann gezeigt werden [160], dass der Kopplungsterm in (3.16) für asymptotische Zeiten verschwindet und somit eine Analyse mit den Funktionen $\{|\tilde{\varphi}_k\rangle\}$ auf stabile Übergangswahrscheinlichkeiten führt. Für ein mikroskopisches Responspotential ist dies im Allgemeinen jedoch nicht der Fall (für Details und Beispiele hierzu siehe Kapitel 5.2.3). Das Problem oszillierender Übergangswahrscheinlichkeiten wird in der Literatur unter dem Stichwort 'TDHF-Oszillationen' diskutiert und ist seit langem bekannt [21, 24].

Durch die globale Darstellung des Responspotentials können keine zeitabhängigen Polarisations- und Austauscheffekte berücksichtigt werden, da man die mikroskopischen Eigenschaften der zeitabhängigen Dichte gänzlich vernachlässigt, indem sie selbst lediglich in integraler Form als Nettowahrscheinlichkeit in das Responsmodell eingeht. Für den Spezialfall zweier aktiver Elektronen einer Spin-Singulett Konfiguration wird ein entsprechendes mikroskopisches Responspotential in Abschnitt 3.4 untersucht.

3.3 Adiabatisches Responsmodell

Um einen anderen Aspekt der Elektron-Elektron-Wechselwirkung zu modellieren, wurde im Gegensatz zum erläuterten, globalen Responsmodell für das Stoßsystem $\bar{p} - \text{He}$ eine adiabatische, d.h. nicht explizit zeitabhängige, Modellierung entwickelt [165, 166]. Die Begründung dafür findet sich in der Tatsache, dass im Rahmen der no-response Näherung ein instabiles Quasimolekül ($\bar{p}\text{He}$) für internukleare Abstände $R \leq 0,5$ a.u. vorhergesagt wird, obwohl die wahre Grundzustandsenergie auch für diesen Bereich negativ bleibt, d.h. ein gebundener Zustand vorliegt [167, 168]. Als Ansatz verwendet man

$$\begin{aligned} \delta v_{ee}[n](\mathbf{r}, t) \approx v_{\text{mod}}(\mathbf{r}, R(t)) &= v_{\text{mono}}(r, R) + v_{\text{dip}}(\mathbf{r}, R) \\ &= -a(R) \exp(-r) - \frac{p(R)r \cos \theta}{[d(R)]^3 + r^3}, \end{aligned} \quad (3.17)$$

wobei der Monopolanteil $v_{\text{mono}}(r, R)$ Bindungseffekte und der Dipolanteil $v_{\text{dip}}(\mathbf{r}, R)$ Polarisierungseffekte modellieren soll. Die Parameter $a(R)$, $p(R)$ und $d(R)$ werden so gewählt,

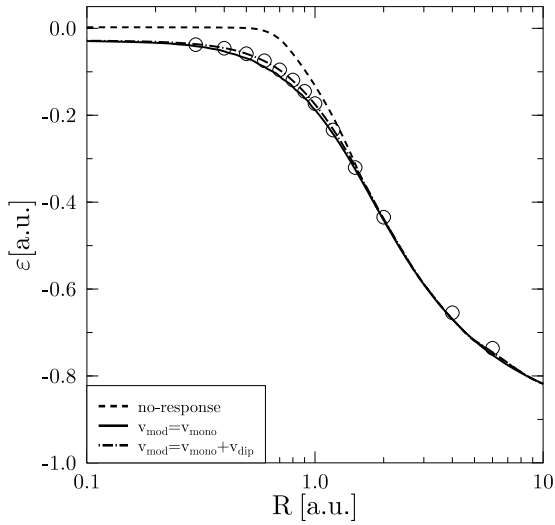


Abb. 3.1: Einteilchen-Grundzustandsenergie des Quasimoleküls ($\bar{p}\text{He}$) für verschiedene Wahlen von v_{mod} in (3.17) [165, 166]. (○) CI-Rechnung [167]. ($\varepsilon_{\text{H}^-} = -0,0276$ a.u., $\varepsilon_{\text{He}} = -0,918$ a.u.)

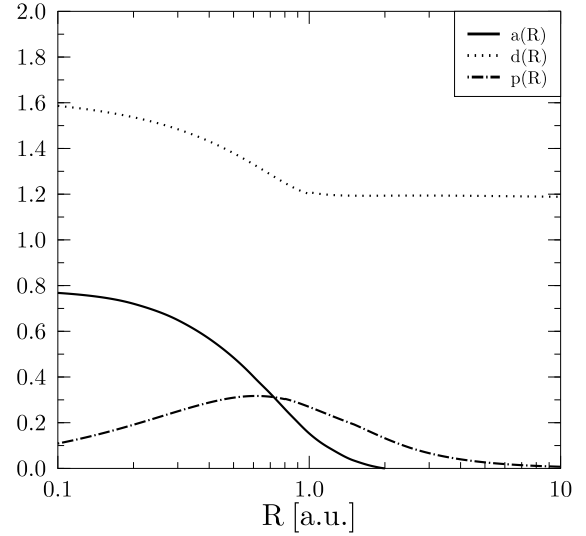


Abb. 3.2: Parameter $a(R)$, $p(R)$ und $d(R)$ für v_{mod} in (3.17) [165, 166].

dass die Bindungsenergie des niedrigsten Einteilchenzustandes das Ionisationspotential des Quasimoleküls ($\bar{p}\text{He}$) als Funktion von R ergibt. Als exakte Werte werden die Ergebnisse einer CI¹-Rechnung [167] verwendet, die Resultate sind in Abb. 3.1 und Abb. 3.2 dargestellt. Wie in Abb. 3.1 zu sehen ist, werden die beiden Elektronen bei Verwendung des entsprechenden Modellpotentials im Zweizentren-Coulomb-Potential über den gesamten R -Bereich hinweg stabilisiert. Im Grenzfall $R \rightarrow 0$ korrespondiert dies mit der Formation eines H^- -Ions. Mit der Verwendung des eingefrorenen atomaren Targetpotentials alleine (no-response Näherung, $v_{\text{mod}} = 0$) kann dieser Sachverhalt nicht erreicht werden. Die Parameter $a(R)$, $p(R)$ und $d(R)$ sind in Abb. 3.2 dargestellt. Man erkennt, dass der Monopolanteil $a(R)$ kurzreichweitig ist, wohingegen die Dipolkomponenten $p(R)$ und $d(R)$ langreichweitig sind. Eine ausführliche Diskussion über Auswirkungen dieses Modellpotentials erfolgt in Kapitel 5.

3.4 Mikroskopische Respons

Für den speziellen Fall eines Zweiteilchen-Systems mit einer Spin-Singulett Konfiguration, vereinfacht sich die OPM-Gleichung (2.26) erheblich. Das Austauschpotential

$$v_x[n](\mathbf{r}, t) = -\frac{1}{2} \int \frac{n(\mathbf{r}', t)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d^3r' \quad (3.18)$$

kompensiert dann lediglich den im Hartree-Potential enthaltenen Selbstwechselwirkungsanteil. Für diese Situation ergibt sich aus der TDHF-Theorie der identische Ausdruck.

¹CI: Configuration Interaction

Das effektive Elektron-Elektron-Potential wird also mit (2.11) durch das *Poisson-Integral*

$$\boxed{v_{ee}[n](\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \int \frac{n(\mathbf{r}', t)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d^3 r'} \quad (3.19)$$

mit der Dichte

$$n(\mathbf{r}, t) = 2|\psi(\mathbf{r}, t)|^2 \quad (3.20)$$

beschrieben. Es ist unmittelbar ersichtlich, dass $v_{ee}[n](\mathbf{r}, t)$ die *Poisson-Gleichung*

$$\boxed{\Delta v_{ee}(\mathbf{r}, t) = -2\pi n(\mathbf{r}, t)} \quad (3.21)$$

erfüllt. Man kann nun entweder die integrale Variante (3.19) oder die differentielle Form (3.21) benutzen, um $v_{ee}(\mathbf{r}, t)$ begleitend zur Lösung der KS-Gleichungen (2.6) zu berechnen. Beides soll im Folgenden erläutert werden. Details zur Berechnung der entsprechenden Matrixelemente für beide Varianten des mikroskopischen Responspotentials in der BGM-Darstellung sind in Anhang A.2.2 zusammengestellt.

3.4.1 Näherung durch Multipolentwicklung

Verwendet man das Poisson-Integral (3.19) direkt, um das Responspotential aus der Dichte zu ermitteln, so sind effektiv für die Matrixelemente in der BGM-Darstellung in jedem Zeitschritt eine Vielzahl sechsdimensionaler Integrale zu berechnen. Das ist numerisch mit erheblicher Rechenzeit verbunden und in dieser Form nicht praktikabel. Um den Rechenaufwand zu verkleinern, ist es naheliegend, nach einer Möglichkeit zu suchen, diese sechsdimensionalen Integrationen in zwei dreidimensionale Integrationen zu faktorisieren. Dazu betrachtet man die Multipolentwicklung

$$\begin{aligned} \delta v_{ee}[n](\mathbf{r}, t) &= \frac{1}{2} \int \frac{\delta n(\mathbf{r}', t)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d^3 r' \\ &= \frac{1}{2} \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \frac{4\pi}{2l+1} Y_{lm}(\Omega) \int \frac{r_{<}^l}{r_{>}^{l+1}} Y_{lm}^*(\Omega') \delta n(\mathbf{r}', t) d^3 r' \\ &= \frac{1}{2} \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \frac{4\pi}{2l+1} Y_{lm}(\Omega) \left(\underbrace{\frac{1}{r^{l+1}} \int_0^r r'^{l+2} \int Y_{lm}^*(\Omega') \delta n(\mathbf{r}', t) d\Omega' dr'}_{\text{Außenbereich: } r_{<}=r', r_{>}=r} + \right. \\ &\quad \left. \underbrace{r^l \int_r^{\infty} \frac{r'^2}{r'^{l+1}} \int Y_{lm}^*(\Omega') \delta n(\mathbf{r}', t) d\Omega' dr'}_{\text{Innenbereich: } r_{<}=r, r_{>}=r'} \right) \end{aligned} \quad (3.22)$$

des Responspotentials, wobei

$$\delta n(\mathbf{r}, t) = n(\mathbf{r}, t) - n_0(r) \quad (3.23)$$

die Differenzdichte, d.h. die Differenz aus zeitabhängiger Dichte und Grundzustandsdichte, bezeichnet. Die angestrebte Faktorisierung kann nur dann erreicht werden, wenn man

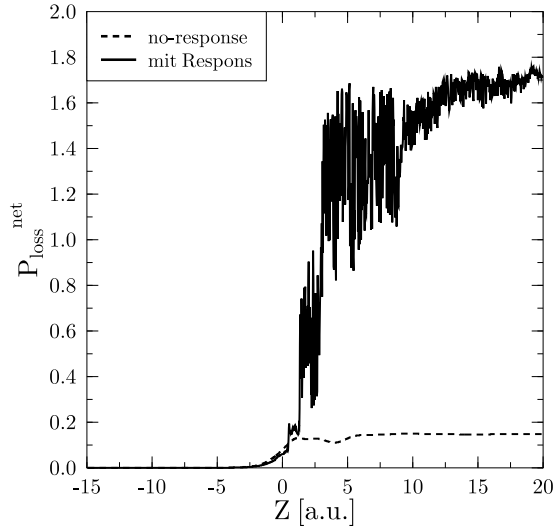


Abb. 3.3: $\bar{p} - \text{He}$: Zeitentwicklung $Z = vt$ der Nettoverlustwahrscheinlichkeit für $E_P = 10$ keV, $b = 1,0$ a.u.. Gestrichelte Linie, no-response Näherung; durchgezogene Linie, Rechnung mit Respons (3.24).

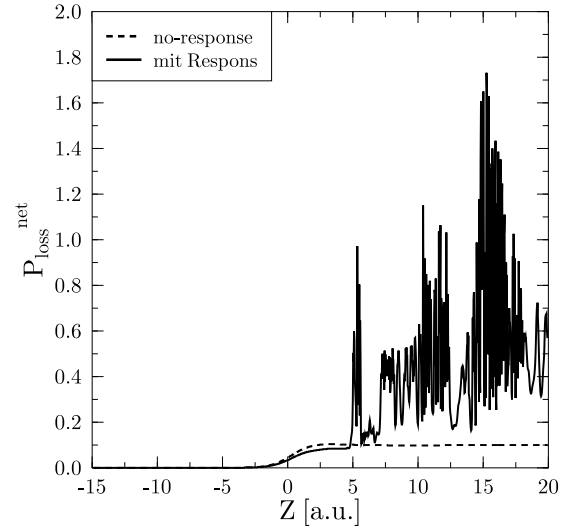


Abb. 3.4: $\bar{p} - \text{He}$: Zeitentwicklung $Z = vt$ der Nettoverlustwahrscheinlichkeit für $E_P = 70$ keV, $b = 1,5$ a.u.. Gestrichelte Linie, no-response Näherung; durchgezogene Linie, Rechnung mit Respons (3.24).

die r -Abhängigkeit der Integrale beseitigt, da dann die dreidimensionalen Integrale über die Differenzdichte vollständig ausgeführt werden können. Die einfachste Möglichkeit besteht nun darin, das r -Integral für den Außenbereich nach $r \rightarrow \infty$ auszudehnen und den Innenbereich somit gänzlich zu vernachlässigen

$$\delta v_{ee}[n](\mathbf{r}, t) \approx \frac{1}{2} \sum_{l=1}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \frac{4\pi}{2l+1} Y_{lm}(\Omega) \frac{1}{r^{l+1}} \int r'^l Y_{lm}^*(\Omega') \delta n(\mathbf{r}', t) d^3 r' . \quad (3.24)$$

Hierbei ist zu beachten, dass die Drehimpulssumme jetzt bei $l = 1$ beginnt, da der Monopolanteil der Differenzdichte in dieser Näherung aufgrund der Normierung von $n_0(r)$ und $n(\mathbf{r}, t)$ immer verschwindet. Auf diese Weise müssen in jedem Zeitschritt nur noch die Multipolmomente der Differenzdichte durch eine dreidimensionale Integration ausgerechnet werden. Die Matrixelemente der BGM-Darstellung dieser Näherung ergeben sich also als Produkte der Multipolmomente und ebenfalls dreidimensionaler Integrale mit $\frac{4\pi}{2l+1} Y_{lm}(\Omega) \frac{1}{r^{l+1}}$ als Integranden.

Wie man leicht erkennen kann, ist es unbedingt notwendig, die Differenzdichte und nicht die Dichte selbst für diese Näherung zu verwenden. Für $n(\mathbf{r}, t)$ ergibt sich als Monopolanteil ein $1/r$ -Potential, was zu einer falschen Targetladung führt.

Abb. 3.3 und Abb. 3.4 zeigen für zwei beispielhafte Situationen die zeitlichen Verläufe der Nettoverlustwahrscheinlichkeiten für diese Näherung im Vergleich zum no-response Fall für das Stoßsystem $\bar{p} - \text{He}$. Man erkennt deutlich, dass es im auslaufenden Bereich zu einer Resonanzkatastrophe kommt. Ursache ist offensichtlich die nichtlineare Rückkopplung des durch (3.24) zu grob genäherten und somit falschen Responspotentials. Ähnliche

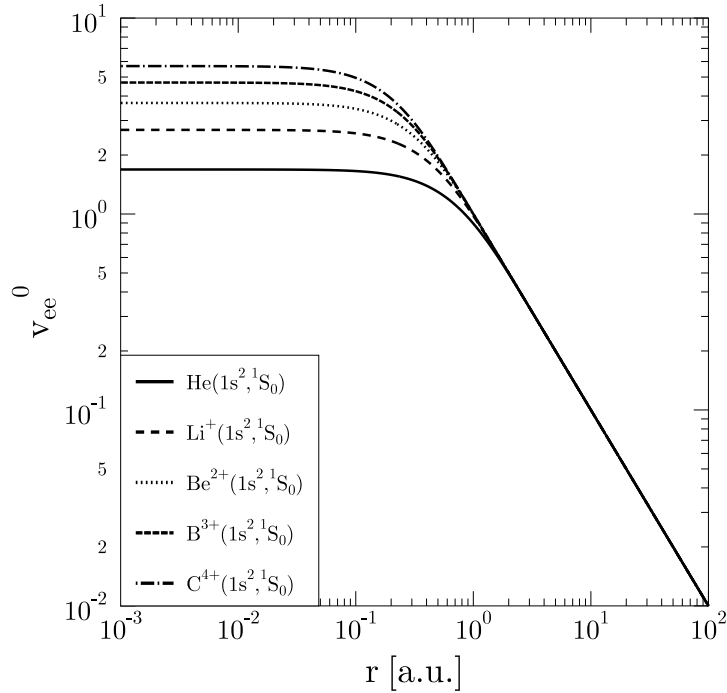


Abb. 3.5: $v_{ee}^0(r)$ für den Grundzustand von Helium und die Grundzustände verschiedener heliumähnlicher Ionen, berechnet mit der x-only Näherung der OPM [94, 169].

Zeitverläufe ergeben sich für positiv geladene Projektile, was zeigt, dass die Näherung (3.24) zur Berechnung des Responspotentials unbrauchbar ist.

3.4.2 Lösung der Poisson-Gleichung

Da sich das Poisson-Integral (3.19) zur Berechnung des Responspotentials als ungeeignet herausgestellt hat, muss hierfür auf die Poisson-Gleichung (3.21) zurückgegriffen werden. Dazu muss man zunächst eine geeignete Entwicklung für $v_{ee}(\mathbf{r}, t)$ finden, um dann (3.21) in der üblichen Matrixdarstellung lösen zu können. Ausgangspunkt sind die Grundzustandspotentiale $v_{ee}^0(r)$ von Helium und verschiedener heliumähnlicher Ionen, die mit der x-only Näherung der OPM berechnet wurden [94, 169] und in Abb. 3.5 zu sehen sind. Eine zur Darstellung des Responspotentials geeignete Basis muss also dazu in der Lage sein, sowohl ein nahezu konstantes Potential für kleine Abstände als auch die $1/r$ -Asymptotik für große Abstände wiederzugeben. STO²-ähnliche Funktionen erwiesen sich als ungeeignet, wohingegen der Ansatz

$$v_{ee}[n](\mathbf{r}, t) = \sum_{\lambda=1}^{\Lambda} \sum_{l=0}^D \sum_{m=0}^l d_{lm}^{\lambda}(t) \tilde{W}_T(r, \alpha)^{\lambda} Y_{lm}(\Omega) \quad (3.25)$$

zum Ziel führt [52, 170]. Die r -Abhängigkeit ist durch Potenzen des regularisierten Coulombpotentials (2.75) gegeben, die Winkelabhängigkeit, die die Berücksichtigung von

²STO: Slater-Type Orbitals

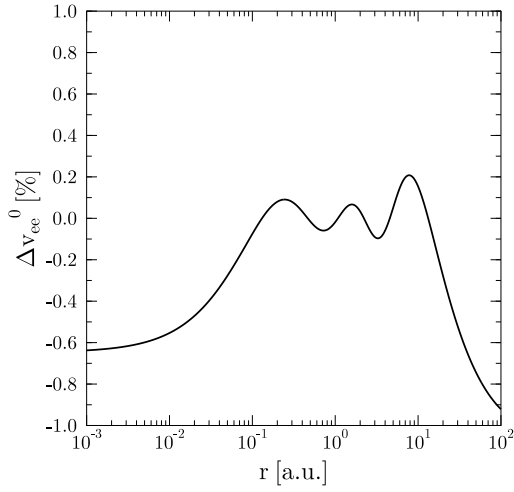


Abb. 3.6: Relative Abweichung von $v_{ee}^0(r)$ berechnet mit (3.25) ($\Lambda = 6, D = 0$) und der x-only Näherung der OPM für den Helium-Grundzustand [94, 169].

Orbital	OPM x-only [94, 169]	Modell (3.25)
1s	-0,91796	-0,91796
2s	-0,15833	-0,15835
2p _{0,±1}	-0,12743	-0,12746
3s	-0,06466	-0,06468
3p _{0,±1}	-0,05636	-0,05637
3d _{0,±1,±2}	-0,05557	-0,05567

Tab. 3.1: Eigenwerte der K-,L- und M-Schale des Helium-Grundzustandes, berechnet mit (3.25) ($\Lambda = 6, D = 0$) und der x-only Näherung der OPM [94, 169].

Polarisationseffekten ermöglichen soll, durch Kugelflächenfunktionen. Setzt man die Entwicklung (3.25) in die Poisson-Gleichung (3.21) ein, so ist in jedem Zeitschritt das lineare Gleichungssystem

$$\sum_{\lambda=1}^{\Lambda} \sum_{l=0}^D \sum_{m=0}^l d_{lm}^{\lambda}(t) \langle \tilde{W}_{\Gamma}^{\lambda'} Y_{l'm'} | \Delta | \tilde{W}_{\Gamma}^{\lambda} Y_{lm} \rangle = -2\pi \langle \tilde{W}_{\Gamma}^{\lambda'} Y_{l'm'} | \hat{n} \rangle \quad (3.26)$$

zur Bestimmung der zeitabhängigen Koeffizienten $d_{lm}^{\lambda}(t)$ zu lösen. Dabei wird die Definition

$$n(\mathbf{r}) = \langle \mathbf{r} | \hat{n} \rangle \quad (3.27)$$

verwendet.

Die Konvergenz der Entwicklung (3.25) im Hinblick auf die Parameter Λ und die Drehimpulse D wird auf zwei Arten überprüft. Abb. 3.6 zeigt die relative Abweichung zwischen dem mit diesem Ansatz und den Parametern $\Lambda = 6$ und $D = 0$ berechneten Grundzustandspotential von Helium und dem exakten x-only Potential [94, 169], berechnet mit der OPM. Man erkennt, dass über den gesamten Bereich hinweg die Abweichung kleiner als $\pm 1\%$ ist. Darüber hinaus sind in Tab. 3.1 die Eigenwerte der Orbitale der K-, L- und M-Schale des Helium-Grundzustandes für beide Varianten zusammengefasst. Man sieht deutlich, dass die OPM-Eigenwerte bis auf einige Mikrohartree reproduziert werden.

Die Konvergenz bezüglich der Obergrenze der Drehimpulskomponenten D der Entwicklung (3.25) wird durch die Betrachtung des Quasimoleküls ($\bar{p}\text{He}$) überprüft. In Abb. 3.7 wird dessen adiabatische Einteilchen-Grundzustandsenergie als Funktion des internuklearen Abstandes in der no-response Näherung mit den durch $\Lambda = 6$ und $D = 2$ ermittelten Werten und den Ergebnissen einer exakten x-only OPM-Rechnung [169] verglichen. Über den gesamten R -Bereich hinweg ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung

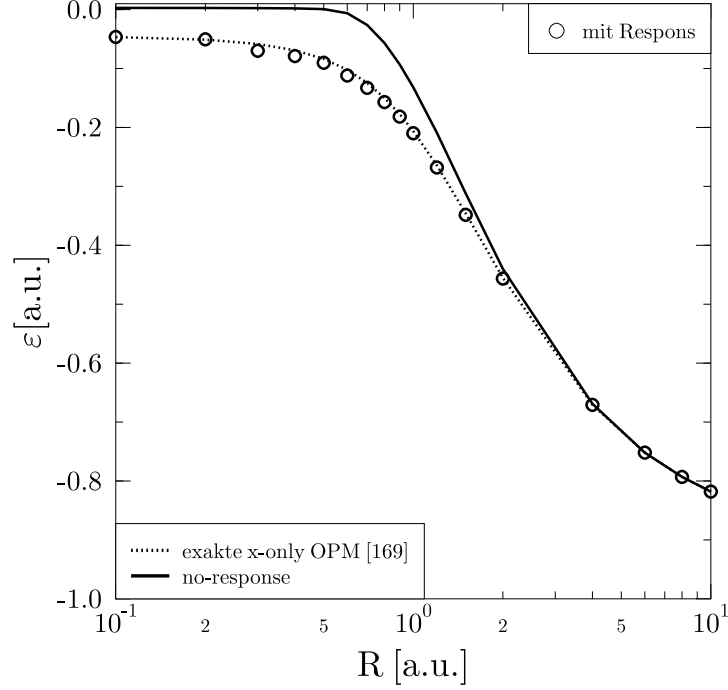


Abb. 3.7: Adiabatische Einteilchen-Grundzustandsenergie des Quasimoleküls ($\bar{p}\text{He}$) als Funktion des internuklearen Abstandes. Gepunktete Linie, exakte x-only OPM [169]; durchgezogene Linie, no-response Näherung; (\circ) Rechnung mit Respons (3.25) und $\Lambda = 6$, $D = 2$.

zwischen der OPM-Rechnung und der Entwicklung (3.25). Für sehr kleine Abstände wird die Einteilchenenergie des H^- -Ions ($\varepsilon_{\text{H}^-} = -0,046223 \text{ a.u.}$) und für sehr große Abstände die des Heliumatoms ($\varepsilon_{\text{He}} = -0,9179 \text{ a.u.}$) erreicht. Darüber hinaus erkennt man, dass, wie schon in Abschnitt 3.2 erwähnt, für die no-response Näherung keine H^- -Formation möglich ist, da der zugehörige Eigenwert für kleine R positiv wird. Es reicht also aus, Drehimpulskomponenten bis zum Quadrupol zu berücksichtigen, um Polarisierungseffekte in ausreichender Art und Weise zu beschreiben.

Für ein positiv geladenes Projektil kann der Ansatz (3.25) leicht erweitert werden, um auch die Abschirmung des Projektilzentrums durch Einfang elektronischer Dichte in ausreichender Weise berücksichtigen zu können. Dazu wird (3.25) um am Projektil zentrierte Funktionen $\tilde{W}_{\text{P}}(\mathbf{r}, t, \alpha')^{\lambda'} Y_{l'm'}^P$ ergänzt [53]

$$v_{ee}[n](\mathbf{r}, t) = \sum_{\lambda=1}^{\Lambda} \sum_{l=0}^D \sum_{m=0}^l d_{lm}^{\lambda}(t) \tilde{W}_{\text{T}}(r, \alpha)^{\lambda} Y_{lm}(\Omega) + \sum_{\lambda'=1}^{\Lambda'} \sum_{l'=0}^{D'} \sum_{m'=0}^{l'} b_{l'm'}^{\lambda'}(t) \tilde{W}_{\text{P}}(\mathbf{r}, t, \alpha')^{\lambda'} Y_{l'm'}^P(\Omega_{\text{P}}). \quad (3.28)$$

Simultan zur Lösung der KS-Gleichungen (2.6) müssen nun die Entwicklungskoeffizienten $d_{lm}^{\lambda}(t)$ und $b_{l'm'}^{\lambda'}(t)$ in jedem Zeitschritt bestimmt werden. Analog zum linearen

Gleichungssystem (3.26) treten nun auf der rechten Seite der Darstellung der Poisson-Gleichung (3.21) Matrixelemente der Form

$$-2\pi \langle \tilde{W}_{X'}^{\lambda'} Y_{l'm'}^{X'} | \hat{n} \rangle, \quad X' : P, T \quad (3.29)$$

auf, die als Summe über berechnete BGM-Matrixelemente (siehe Anhang A.2.2) ausgeführt werden können. Die Matrixelemente der linken Seite der Poisson-Gleichung in der Darstellung (3.28) haben die Form

$$\langle \tilde{W}_{X'}^{\lambda'} Y_{l'm'}^{X'} | \Delta | \tilde{W}_X^\lambda Y_{lm}^X \rangle, \quad X, X' : P, T. \quad (3.30)$$

Details zur Berechnung von (3.29) und (3.30) finden sich in Anhang B.

Kapitel 4

Numerische Darstellung des Responspotentials

In diesem Abschnitt sollen einige Eigenschaften der numerischen Darstellung der mikroskopischen Responspotentiale (3.25) und (3.28) zusammengestellt und genauer betrachtet werden, bevor sie in Kapitel 5 bzw. 6 für Stöße mit Antiprotonen bzw. positiv geladenen Projektilen zur Anwendung kommen.

Es zeigt sich, dass zur Ermittlung des Responspotentials eine numerisch möglichst genau berechnete Dichte, und somit Wellenfunktion, verwendet werden muss. Für die numerische Umsetzung der Lösung der KS-Gleichungen (2.6) bedeutet das, dass zur zeitlichen Diskretisierung möglichst kleine Inkremente Δt_i verwendet werden müssen. Zur Illustration dieses Verhaltens dient Abb. 4.1. Hier sind für das Stoßsystem $\bar{p} - \text{He}$ bei einer Einschussenergie $E_P = 5 \text{ keV}$ und Stoßparameter $b = 0,5 \text{ a.u.}$ die zeitlichen Verläufe der Nettoverlustwahrscheinlichkeiten für die no-response Näherung und eine Rechnung mit dem mikroskopischen Responspotential (3.25) für verschiedene Inkremente Δt_i dargestellt. Dabei gilt $\Delta t_1 > \Delta t_2 > \Delta t_3 > \Delta t_4$, das größte Inkrement Δt_1 führt also numerisch zur ungenauesten, das kleinste Inkrement Δt_4 zur numerisch genauesten Lösung. Zur Analyse der Wellenfunktion sind die Eigenfunktionen $\{|\varphi_k^0\rangle\}$ (2.44) des ungestörten Targetatoms verwendet worden, so dass man deutlich das in Abschnitt 3.2 angesprochene, oszillierende Verhalten der Übergangswahrscheinlichkeiten für die Rechnungen mit Respons erkennt. Eine genauere Betrachtung dieser Oszillationen folgt im Abschnitt 5.2.3. Man sieht deutlich, wie unterschiedlich sich die Verläufe der Nettoverlustwahrscheinlichkeiten im no-response Fall und für die Rechnungen mit Respons bei verschiedenen Δt_i verhalten. Das größte Inkrement Δt_1 ergibt für die no-response Näherung schon einen recht stabilen Verlauf im auslaufenden Bereich ($Z > 0 \text{ a.u.}$), während die entsprechende Rechnung mit dem mikroskopischen Responspotential für diesen Fall einen deutlichen Drift zeigt. Eine zunehmende Verkleinerung des Inkrements Δt_i führt schließlich zu einem 'stabilen' Verlauf für beide Fälle.

Die Abb. 4.2 und Abb. 4.3 zeigen die Zeitentwicklungen der Koeffizienten $d_{00}^{1,\dots,6}(t)$ für die Monopolanteile der Darstellung (3.25) des mikroskopischen Responspotentials für $E_P = 10 \text{ keV}$, $b = 1,0 \text{ a.u.}$ und $E_P = 5 \text{ keV}$, $b = 0,5 \text{ a.u.}$ im Stoßsystem $\bar{p} - \text{He}$. Für den Koeffizienten $d_{00}^1(t)$ ergibt sich über den gesamten Bereich hinweg der Wert $d_{00}^1(t) = \sqrt{4\pi} = \frac{1}{Y_{00}}$, da er die richtige $1/r$ -Asymptotik des effektiven Elektron-Elektron-

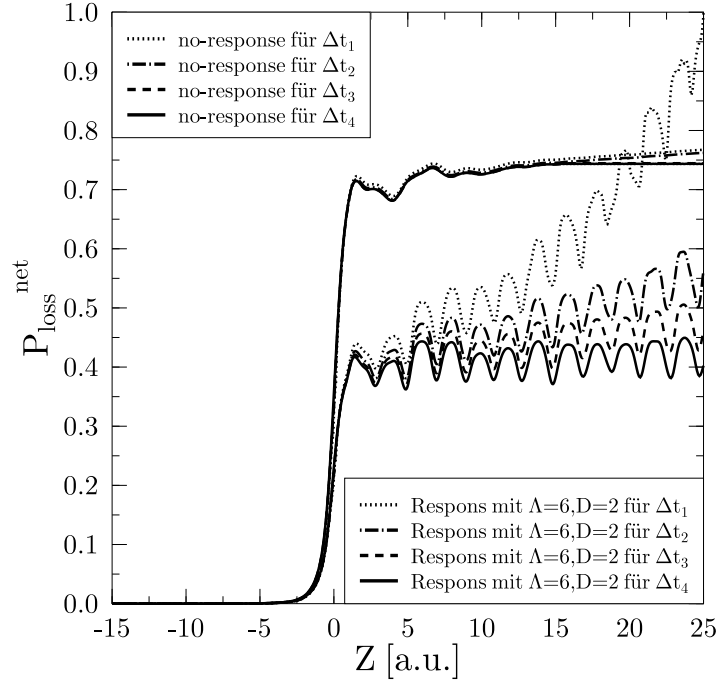


Abb. 4.1: $\bar{p} - \text{He}$: Zeitentwicklung $Z = vt$ der Nettoverlustwahrscheinlichkeit für $E_P = 5$ keV, $b = 0,5$ a.u., ausgewertet mit den Funktionen $\{|\varphi_k^0\rangle\}$ (2.44) und verschiedenen Inkrementen Δt_i . Es gilt $\Delta t_1 > \Delta t_2 > \Delta t_3 > \Delta t_4$. Obere Kurven, no-response Näherung; untere Kurven, Rechnung mit Respons und den Parametern $\Lambda = 6$, $D = 2$.

Potentials gewährleistet. Für die übrigen Koeffizienten erkennt man im einlaufenden Bereich ($Z < 0$ a.u.) zunächst stetiges Verhalten, im auslaufenden Bereich ($Z > 0$ a.u.) zum Teil sehr hochfrequente und unregelmäßige Oszillationen. Ein ähnliches Bild ergibt sich für die restlichen Koeffizienten und auch für die Darstellung (3.28). Die Abb. 4.4 und Abb. 4.5 stellen die analogen Bilder für die Stoßsysteme $p - \text{He}$ ($E_P = 20$ keV, $b = 1,5$ a.u.) und $\text{He}^{2+} - \text{He}$ ($E_P = 20$ keV, $b = 1,6$ a.u.) dar. An dieser Stelle muss betont werden, dass sich für *jeden* Zeitschritt der angesprochenen und dargestellten zeitlichen Verläufe ein numerisch stabiles und *physikalisch sinnvolles* Responspotential ergibt, obwohl die zugehörigen Koeffizienten ein solch stark unregelmäßiges Verhalten zeigen. Die Ursache dafür ist die hochgradige Nichtorthogonalität der Funktionen $\tilde{W}_T(\mathbf{r}, t, \alpha)^\lambda Y_{lm}$ und $\tilde{W}_P(\mathbf{r}, t, \alpha')^\lambda Y_{l'm'}^P$ zu- und untereinander. Die Lösung des sich aus der Poisson-Gleichung (3.21) ergebenden linearen Gleichungssystems zur Bestimmung der Koeffizienten $d_{lm}^\lambda(t)$ und $b_{l'm'}^\lambda(t)$ ist deshalb numerisch äußerst anspruchsvoll. Man kann hierzu verschiedene Verfahren der linearen Algebra, wie z.B.

- Multiplikation mit der Inversen
- Lösung mit Hilfe des Gauss-Verfahrens
- Lösung durch LU-Zerlegung
- Iteratives Lösungsschema

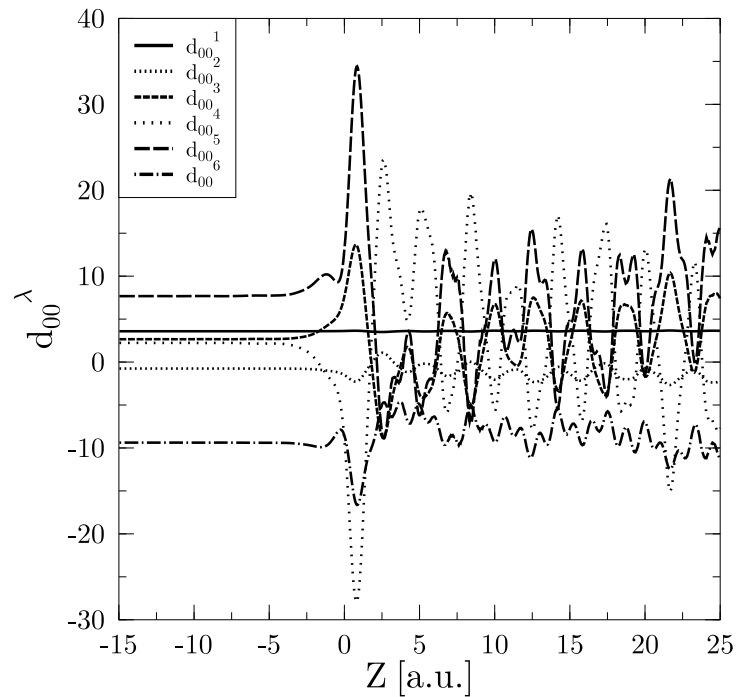


Abb. 4.2: $\bar{p} - \text{He}$: Zeitentwicklung $Z = vt$ der Koeffizienten $d_{00}^{1,\dots,6}(t)$ aus (3.25) für $E_P = 10$ keV, $b = 1,0$ a.u., Rechnung mit Respon und den Parametern $\Lambda = 6$, $D = 2$.

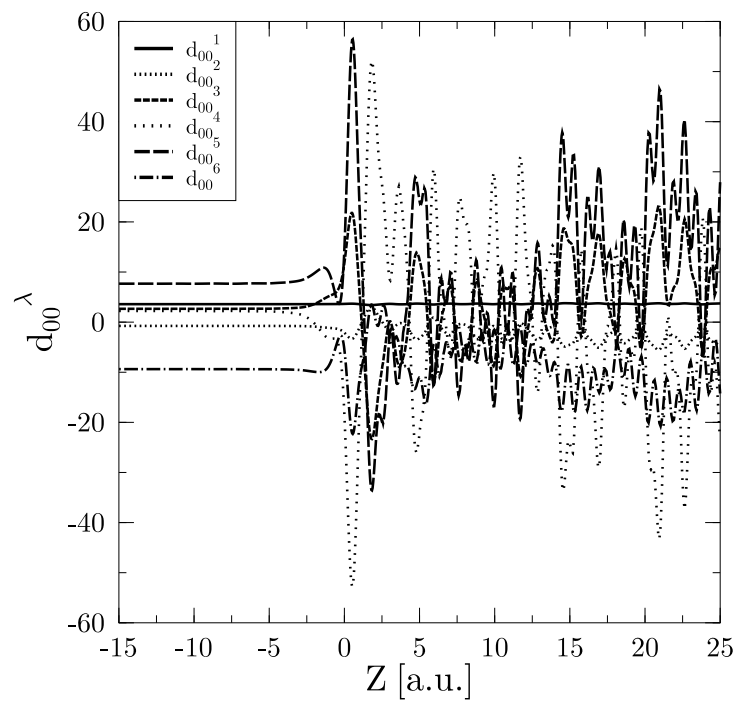


Abb. 4.3: $\bar{p} - \text{He}$: Wie Abb. 4.2, jedoch für $E_P = 5$ keV, $b = 0,5$ a.u..

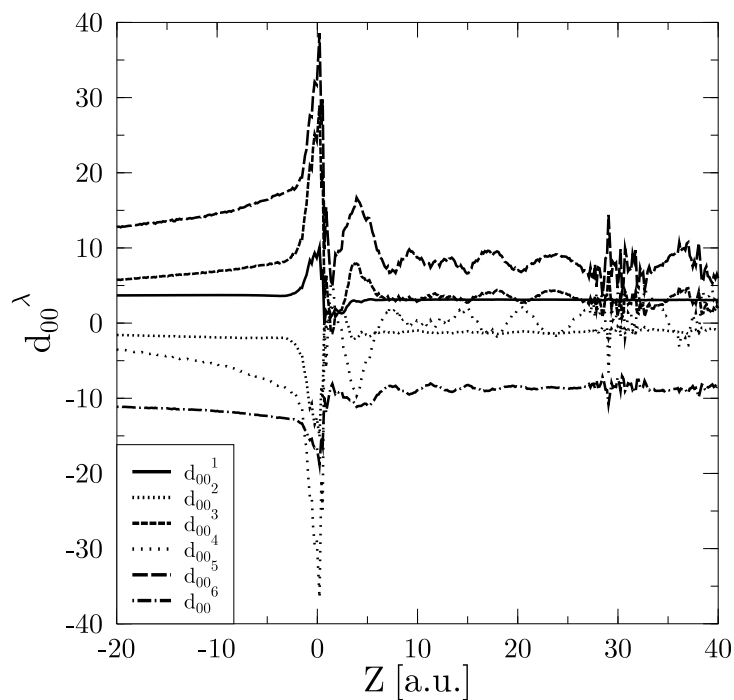


Abb. 4.4: p – He: Zeitentwicklung $Z = vt$ der Koeffizienten $d_{00}^{1,\dots,6}(t)$ aus (3.28) für $E_P = 20$ keV, $b = 1,5$ a.u., Rechnung mit Respons und den Parametern $\Lambda = \Lambda' = 6$, $D = D' = 2$.

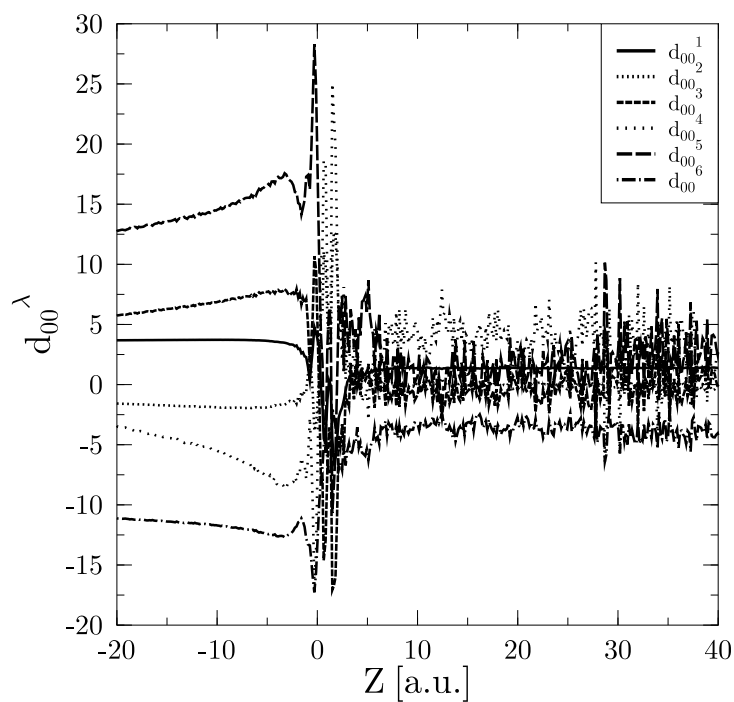


Abb. 4.5: He²⁺ – He: Wie Abb. 4.4, jedoch für $E_P = 20$ keV, $b = 1,6$ a.u..

verwenden [111, 171, 172]. Alle vier Varianten wurden zur Lösung benutzt, es zeigt sich jedoch, dass dies nur geringen Einfluss auf die Oszillationen der Koeffizienten hat.

Auch eine Modifikation des Responspotentials selbst, wie z.B.

- Respons über mehrere Zeitschritte hinweg konstant halten
- Verzögerung der Respons um mehrere Zeitschritte

ergibt keine entscheidenden Verbesserungen. Einziger Ausweg wäre die Verwendung orthogonaler Polynome zur Darstellung des Responspotentials. Da jedoch die Untersuchungen in Kapitel 3.4.2 gezeigt haben, dass die Funktionen $\tilde{W}_T(\mathbf{r}, t, \alpha)^\lambda Y_{lm}$ und $\tilde{W}_P(\mathbf{r}, t, \alpha')^{\lambda'} Y_{l'm'}^P$ die gewünschten Eigenschaften des effektiven interelektronischen Potentials sehr gut wiedergeben und kein Satz orthogonaler Polynome gefunden werden konnte, der diese Eigenschaften in ähnlicher Qualität reproduziert, werden im Weiteren die Darstellungen (3.25) und (3.28) für das mikroskopische Responspotential verwendet.

Wie bereits erwähnt, ergibt sich trotz der starken Fluktuationen der Koeffizienten ein stabiles Responspotential, das wiederum bei entsprechend kleinem Inkrement Δt_i zu einer 'stabilen' Verlustwahrscheinlichkeit führt. Eine detaillierte physikalische Betrachtung erfolgt in Abschnitt 5.2.4. Unter Umständen ist eine der Ursachen für das oszillierende Verhalten der Koeffizienten neben der *Nichtorthogonalität* der Entwicklungsfunktionen, in der *Nichtlinearität* der zugrundeliegenden TDKS-Gleichungen zu suchen.

Kapitel 5

Stöße mit Antiprotonen

In diesem Kapitel werden die erläuterten Responmodelle auf Ionisationsprozesse in Stößen von Antiprotonen mit Helium und heliumähnlichem Lithium angewendet und die Ergebnisse vorgestellt. Um verschiedene Aspekte der Elektron-Elektron-Wechselwirkung genau untersuchen zu können, liegt der Schwerpunkt dabei auf der vergleichenden Analyse der Resultate, die mit dem adiabatischen bzw. dem mikroskopischen Responpotential berechnet wurden, und den Ergebnissen anderer theoretischer Ansätze. Die zugehörigen experimentellen Daten wurden im Rahmen des LEAR-Projektes am europäischen Kernforschungszentrum CERN durch die PS194-Kollaboration gewonnen. Im Bereich atomarer Stoßsysteme wurden hier sowohl totale Wirkungsquerschnitte für Ionisation in Stößen von Antiprotonen mit atomarem Wasserstoff [173,174] als auch mit einer Reihe von Molekülen und Edelgasatomen [35,175–180] gemessen. Einen Überblick über die experimentellen und theoretischen Arbeiten auf diesem Gebiet geben die Übersichtsartikel [42,181,182]. Im Bereich kleiner Stoßenergien zeigen sich bei fast allen Systemen teilweise erhebliche Diskrepanzen zwischen den theoretischen Ergebnissen und den experimentellen Daten. Da es äußerst problematisch ist, niederenergetische Strahlen von Antiprotonen ausreichender Intensität zu erzeugen, bleibt abzuwarten, ob die Ursachen für die erwähnten Abweichungen auf der experimentellen oder der theoretischen Seite zu suchen sind. In naher Zukunft sollen die Stoßexperimente durch die ASACUSA-Kollaboration am CERN wiederholt und überprüft werden. In ferner Zukunft werden im Zuge des Ausbaus der GSI im Rahmen des FLAIR-Projektes sehr niederenergetische Antiprotonenstrahlen hoher Intensität für Stoßexperimente zur Verfügung stehen.

Ziel der vorliegenden Untersuchungen ist es festzustellen, welchen Einfluss adiabatische bzw. zeitabhängige Responseeffekte auf die Beschreibung des Ionisationsprozesses in den Systemen $\bar{p} - \text{He}$ und $\bar{p} - \text{Li}^+$ haben. Da sowohl statische als auch dynamische Korrelationseffekte gänzlich vernachlässigt werden, kann zugleich eine Aussage über deren Tragweite gemacht werden.

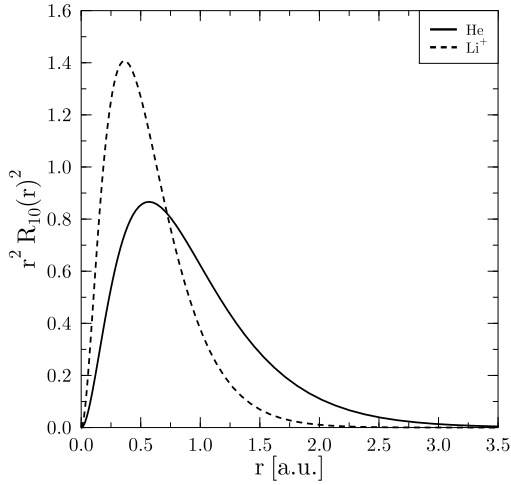


Abb. 5.1: Radiale Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der Elektronen der K-Schale für die Grundzustände von He und Li^+ , berechnet mit der x-only Näherung der OPM [94, 169].

Atom	ϵ_{10} [a.u.]	$\langle r_{10} \rangle$ [a.u.]
He	-0,91796	0,92727
Li^+	-2,79237	0,57237

Tab. 5.1: Eigenwerte und r -Erwartungswerte der Elektronen der K-Schale für die Grundzustände von He und Li^+ , berechnet mit der x-only Näherung der OPM [94, 169].

Zunächst wird hierzu im folgenden Abschnitt die Konvergenz der verwendeten einzentrigen Entwicklung (3.25) des effektiven Elektron-Elektron-Potentials (3.19) in einer dynamischen Situation betrachtet.

Zur Orientierung über die atomaren Eigenschaften der untersuchten Targetatome zeigt Abb. 5.1 die radialen Aufenthaltswahrscheinlichkeiten und Tab. 5.1 die energetischen Eigenwerte und r -Erwartungswerte der Elektronen der K-Schale für die jeweiligen Grundzustände von He und Li^+ , die auf Grundlage der x-only Näherung der OPM [94, 169] berechnet worden sind.

5.1 Konvergenz der einzentrigen Entwicklung des Responsopotentials

Für zwei Situationen, nämlich für den stationären Helium-Grundzustand und für das adiabatische Quasimolekül ($\bar{p}\text{He}$), wurde das Konvergenzverhalten der einzentrigen Entwicklung (3.25) für das effektive Elektron-Elektron-Potential bereits in Abschnitt 3.4.2 untersucht. Hier sollen nun beispielhaft die dynamischen Situationen $E_P = 10$ keV, $b = 1,0$ a.u. und $E_P = 5$ keV, $b = 0,5$ a.u. für das System $\bar{p} - \text{He}$ betrachtet werden. Abb. 5.2 und Abb. 5.3 zeigen die zeitlichen Verläufe der Nettoverlustwahrscheinlichkeiten für verschiedene Wahl des Parameters D der Drehimpulssumme in der Entwicklung (3.25) mit $\Lambda = 6$, im Vergleich zur no-response Näherung. Da zur Analyse der Wellenfunktion die Eigenfunktionen $\{|\varphi_k^0\rangle, k = 1s, \dots, 4f\}$ (2.44) des ungestörten Targetatoms verwendet werden, erkennt man deutlich das in Abschnitt 3.2 angesprochene, oszillierende Verhalten der Übergangswahrscheinlichkeiten für die Rechnungen mit Respons. An

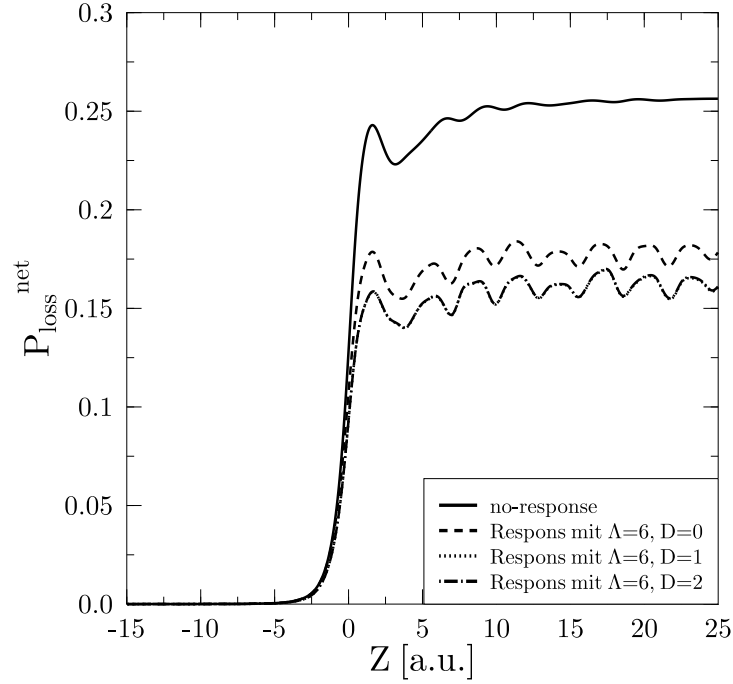


Abb. 5.2: $\bar{p} - \text{He}$: Zeitentwicklung $Z = vt$ der Nettoverlustwahrscheinlichkeit für $E_P = 10 \text{ keV}$, $b = 1,0 \text{ a.u.}$, ausgewertet mit den Funktionen $\{|\varphi_k^0|\}$ (2.44). Durchgezogene Linie, no-response Näherung; gestrichelte Linie, Rechnung mit Respons (3.25) $\Lambda = 6$ und $D = 0$; gepunktete Linie, $\Lambda = 6$ und $D = 1$; strichpunktierte Linie, $\Lambda = 6$ und $D = 2$.

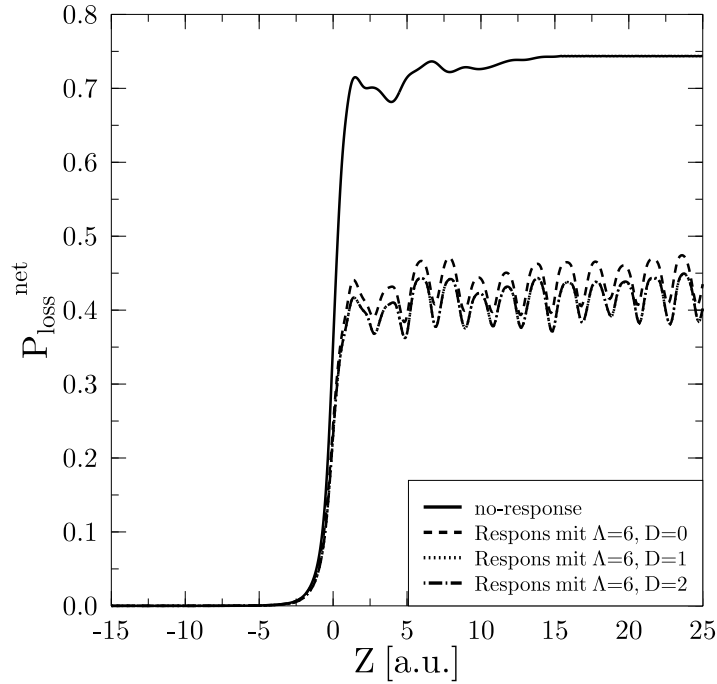


Abb. 5.3: $\bar{p} - \text{He}$: Wie Abb. 5.2, jedoch für $E_P = 5 \text{ keV}$, $b = 0,5 \text{ a.u.}$.

dieser Stelle soll jedoch lediglich eine Aussage über die Konvergenz der Entwicklung des Responspotentials gemacht werden, so dass diesen Oszillationen keinerlei weitere Bedeutung beigemessen wird. Eine detaillierte Betrachtung erfolgt im Abschnitt 5.2.3. Man sieht klar, dass schon die Berücksichtigung der Monopolanteile ($D = 0$) zu einer Verminderung der Nettoverlustwahrscheinlichkeit im Vergleich zum no-response Fall führt. Werden auch noch die Dipolkomponenten ($D = 1$) hinzugenommen, so tritt eine weitere Verminderung ein. Die Ergänzung um die Quadrupolanteile ($D = 2$) ergibt schließlich keine sichtbaren Veränderungen mehr, was als Zeichen der Konvergenz der Entwicklung des Responspotentials (3.25) angesehen werden kann. Ein ähnliches Verhalten zeigt sich bei anderen Einschussenergien und anderen Stoßparametern, so dass man davon ausgehen kann, dass die Parameterkombination $\Lambda = 6$ und $D = 2$ für eine konvergente Beschreibung des effektiven interelektronischen Potentials ausreichend ist. Sie wird im Folgenden verwendet.

5.2 Ionisation in $\bar{p} - \text{He}$ Stößen

In diesem Abschnitt wird der Einfluss der Modellierung des Responspotentials auf den Ionisationsprozess im System $\bar{p} - \text{He}$ untersucht und die Ergebnisse werden untereinander sowie mit anderen Theorien und den verfügbaren experimentellen Daten verglichen. Da das globale Responsmodell (3.12), wie in Abschnitt 3.2 erläutert, so konstruiert wurde, dass es erst ab zweifachem Verlust ($q \geq 2$) wirksam wird, unterscheiden sich die Ergebnisse dieses Ansatzes so gut wie überhaupt nicht von denen der no-response Rechnung. Der Grund hierfür ist, dass für $\bar{p} - \text{He}$ Stöße der totale Wirkungsquerschnitt für Zweifachionisation – in diesem Fall ist die Zweifachionisation identisch mit zweifachem Verlust – praktisch über den gesamten betrachteten Energiebereich hinweg mindestens um einen Faktor 30 kleiner ist als der totale Wirkungsquerschnitt für Einfachionisation. Somit tritt keine wesentliche Schwächung der Targetabschirmung im Laufe des Stoßes auf und das globale Responsmodell bleibt nahezu wirkungslos. Deshalb werden nur das adiabatische und das mikroskopische Responsmodell untersucht, wozu eine BGM-Basis (2.75) aus 107 Zuständen mit einer generierenden Basis der Größe $N = 20$ und einer reinen Targetpotential-Hierarchie bis zur Ordnung $M = 8$ verwendet worden ist. Die Ergebnisse für das adiabatische Responsmodell sind den Referenzen [165, 166] entnommen.

5.2.1 Einfachionisation

Um einen Eindruck von der Wirkungsweise des adiabatischen Responspotentials (3.17) zu bekommen, sind in Abb. 5.4 und Abb. 5.5 die gewichteten Nettoionisationswahrscheinlichkeiten $bP_{loss}^{net}(b)$ für die Stoßenergien $E_P = 20$ keV und $E_P = 200$ keV für verschiedene Wahl von v_{mod} dargestellt. Die no-response Näherung entspricht dem Fall $v_{mod} = 0$. Man erkennt, dass eine Berücksichtigung des Modellpotentials in jedem Fall zu einer Verminderung der Ionisationswahrscheinlichkeit im Vergleich zur no-response Rechnung führt. Dies ist offensichtlich, wurde v_{mod} in Abschnitt 3.3 doch so konstruiert, dass die Elektronen im Zweizentren-Coulomb-Potential der Kerne stabilisiert werden. Der Monopolanteil alleine ($v_{mod} = v_{mono}$) beeinflusst die Resultate nur für $b \leq 1,5$ a.u. und wird unbedeu-

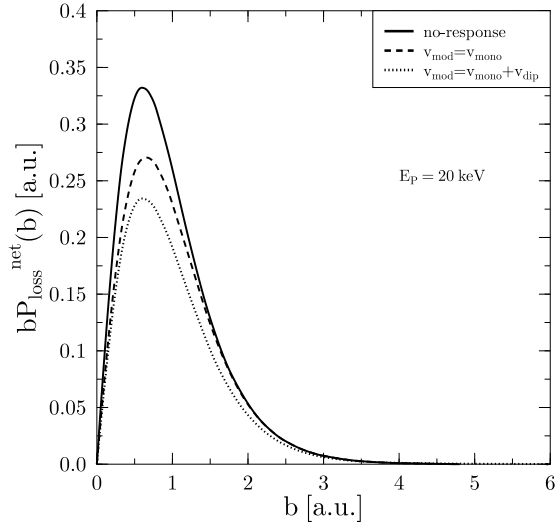


Abb. 5.4: \bar{p} – He: Gewichtete Nettoionisationswahrscheinlichkeit $bP_{loss}^{net}(b)$ für $E_P = 20$ keV und verschiedene Wahl von v_{mod} in (3.17) [165, 166].

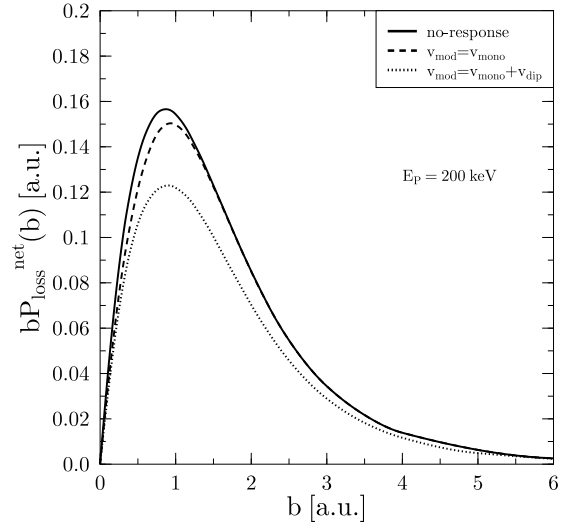


Abb. 5.5: \bar{p} – He: Gewichtete Nettoionisationswahrscheinlichkeit $bP_{loss}^{net}(b)$ für $E_P = 200$ keV und verschiedene Wahl von v_{mod} in (3.17) [165, 166].

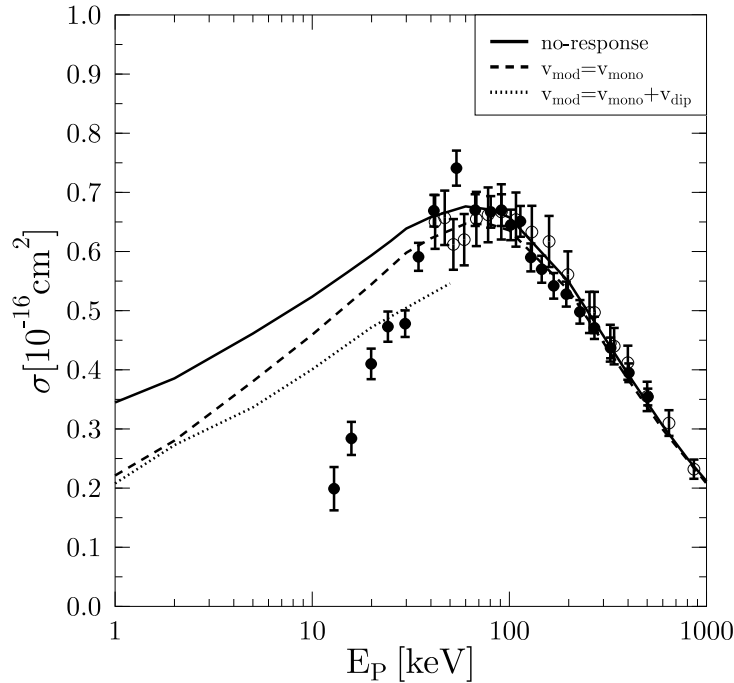


Abb. 5.6: \bar{p} – He: Totaler Wirkungsquerschnitt für Einfachionisation als Funktion der Einschussenergie für verschiedene Wahl von v_{mod} in (3.17) im Vergleich zur no-response Rechnung [165, 166]. Experiment: (●) [35], (○) [178].

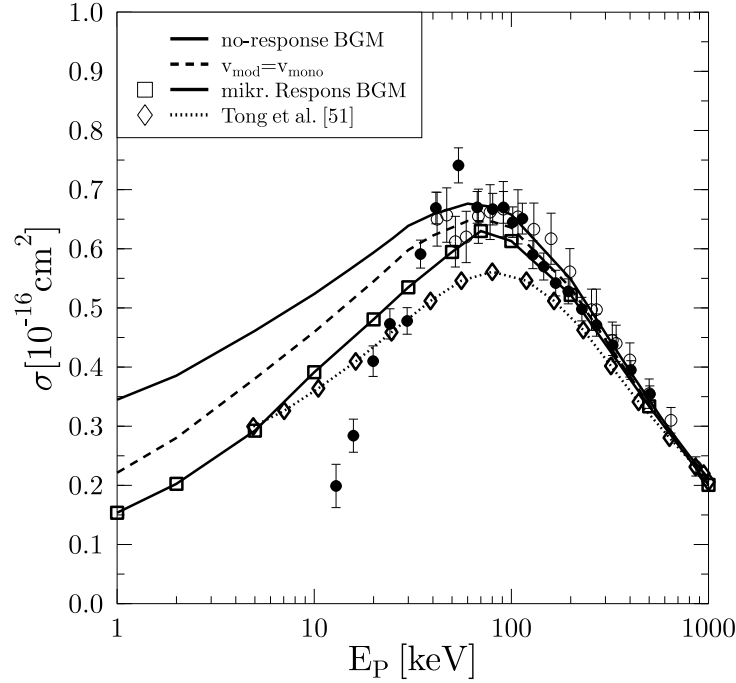


Abb. 5.7: $\bar{p} - \text{He}$: Totaler Wirkungsquerschnitt für Einfachionisation als Funktion der Einschussenergie. Vergleich der BGM-Rechnungen mit anderen Ein-Elektron-Theorien: $v_{\text{mod}} = v_{\text{mono}}$ [165, 166], Tong et al. [51]. Experiment: (●) [35], (○) [178].

tend für höhere Stoßenergien, bei denen immer größere Stoßparameter beitragen. Dies ist eine Konsequenz der Kurzreichweitigkeit des Parameters $a(R)$ in (3.17), der den Monopolanteil charakterisiert (siehe auch Abb. 3.2). Im Gegensatz dazu bewirkt die zusätzliche Dipolkorrektur ($v_{\text{mod}} = v_{\text{mono}} + v_{\text{dip}}$) eine drastische Verringerung der $bP_{\text{loss}}^{\text{net}}(b)$ über den gesamten b -Bereich hinweg für beide Einschussenergien, was durch die Langreichweitigkeit der beiden Parameter $p(R)$ und $d(R)$ in (3.17) erklärt werden kann, deren Verläufe in Abb. 3.2 dargestellt sind. Der Dipolanteil schaltet sich also mit zunehmender Stoßenergie nicht von selbst ab und wird für $E_P \gtrsim 50$ keV unphysikalisch. Diese Stoßenergie entspricht dabei ungefähr der klassischen Orbitalgeschwindigkeit der Elektronen (*'Matching-Geschwindigkeit'*), oberhalb derer kein Einfluss von Responseeffekten, d.h. hier Polarisierungseffekten, auf den Ionisationsprozess mehr zu erwarten ist, da die Elektronen nicht genügend Zeit haben, sich der schnellen Potentialveränderung anzupassen.

Die entsprechenden totalen Wirkungsquerschnitte für Einfachionisation bei verschiedener Wahl von v_{mod} im Vergleich zur no-response Rechnung und zum Experiment zeigt Abb. 5.6. Im Niederenergiebereich ergeben die Rechnungen mit $v_{\text{mod}} = v_{\text{mono}}$ und $v_{\text{mod}} = v_{\text{mono}} + v_{\text{dip}}$ vergleichbare Ergebnisse und führen gegenüber der no-response Näherung zu einer Reduzierung des Wirkungsquerschnittes. Die experimentellen Daten werden in diesem Energiebereich allerdings dennoch erheblich überschätzt. Oberhalb $E_P \approx 40$ keV liegen die Ergebnisse mit der Dipolkorrektur unter den Resultaten mit dem Monopolterm, die hier schon recht gut mit der no-response Rechnung und auch dem Experiment übereinstimmen. Gerade bei höheren Energien sollte sich jedoch aus obigen Gründen v_{mod} von selbst abschalten, wie es für $v_{\text{mod}} = v_{\text{mono}}$ auch der Fall ist. Deshalb wurden die Ergebnisse

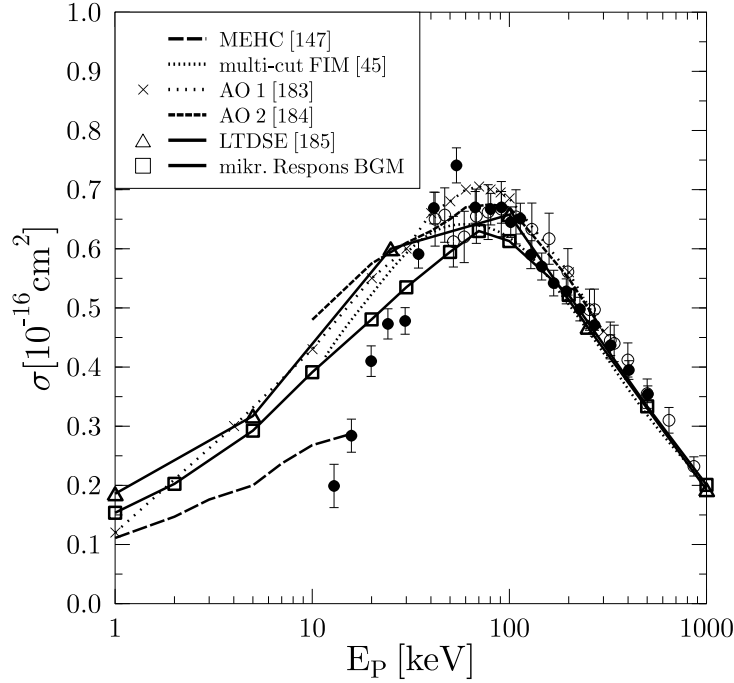


Abb. 5.8: \bar{p} – He: Totaler Wirkungsquerschnitt für Einfachionisation als Funktion der Einschussenergie. Vergleich der BGM-Rechnungen mit anderen Zwei-Elektronen-Theorien: MEHC [147], Multi-cut FIM [45], AO1 [183], AO2 [184], LTDSE [185]. Experiment: (●) [35], (○) [178].

für $v_{\text{mod}} = v_{\text{mono}} + v_{\text{dip}}$ nur bis $E_P \approx 40$ keV in Abb. 5.6 eingezeichnet. Für schnelle Stöße ($E_P \geq 50$ keV) können Responseeffekte vernachlässigt werden und die no-response Näherung sowie die Rechnung mit dem Monopolpotential geben die experimentellen Daten sehr gut wieder. An dieser Stelle ergibt sich die Frage, ob ein wirklich zeitabhängiges, mikroskopisches Responspotential zu einer weiteren Verminderung des Wirkungsquerschnittes und somit zu einer besseren Übereinstimmung mit dem Experiment im Bereich kleiner Stoßenergien führt. Darüber hinaus ist es interessant mit den Resultaten anderer theoretischer Ansätze zu vergleichen.

Ein solches mikroskopisches Responspotential auf Ebene der x-only Näherung der TDDFT wurde in Abschnitt 3.4 erläutert und seine Darstellung in Abschnitt 3.4.2 behandelt. Abb. 5.7 zeigt den totalen Wirkungsquerschnitt für Einfachionisation, berechnet mit diesem Responspotential im Vergleich zum Experiment und anderen Ein-Elektron-Theorien, die auf verschiedene Art und Weise das effektive Einteilchenpotential v_{ee} nähern. Die BGM-Rechnung mit mikroskopischer Respons ergibt gegenüber der Rechnung mit dem adiabatischen Responspotential $v_{\text{mod}} = v_{\text{mono}}$ eine weitere Verminderung des Wirkungsquerschnittes für kleine Stoßenergien, wohingegen der Querschnitt für große Einschussenergien nicht verändert wird. Dennoch bleibt die Diskrepanz zum Experiment unterhalb von $E_P \approx 20$ keV bestehen. Der Vergleich mit den Ergebnissen von [51], die ebenfalls eine Einteilchenrechnung mit selbstwechselwirkungskorrigiertem, mikroskopischem Responspotential darstellen, zeigt, wie sensitiv der Querschnitt auf die Wahl von v_{ee} reagiert. Die Kurve von [51] unterschätzt den Querschnitt im Maximum um ca. 16% und

verläuft im Bereich kleiner Stoßenergien flacher als die Kurve der BGM-Rechnung, die außerdem das Maximum sehr gut reproduziert. Beide Kurven schneiden sich bei etwa $E_P \approx 5$ keV. Da gemäß den Erläuterungen in [51] das verwendete Elektron-Elektron-Potential ebenfalls selbstwechselwirkungskorrigiert ist, seine explizite Form jedoch nicht angegeben wird, ist die Ursache der Diskrepanz dieser Rechnung zur BGM-Rechnung mit Respons unklar. Es kann nur vermutet werden, dass die Abweichungen von einer unzureichenden Behandlung der Selbstwechselwirkungskorrektur herrühren, wenn man von einer ausreichenden Konvergenz beider Rechnungen ausgeht.

In Abb. 5.8 ist der Vergleich der BGM-Einteilchenrechnung mit mikroskopischer Respons mit anderen Theorien zu sehen, die dynamische Korrelationseffekte enthalten, d.h. echte Zwei-Elektronen-Rechnungen sind. AO1 [183] und AO2 [184] bezeichnen Basisdarstellungen nach atomaren Orbitalen, die nach jeweils verschiedenartigen, einzentrigen Funktionen die Zweiteilchenwellenfunktion entwickeln. Multi-cut FIM¹ beschreibt eine Methode, bei der die Elektron-Elektron-Wechselwirkung für einige diskrete Zeitpunkte während der Propagation der Wellenfunktion eingeschaltet wird [45]. Die MEHC ist nur für adiabatische Stöße gültig, wobei die Reaktionsdynamik des Stoßes mit Hilfe einer komplexen Fortsetzung des Korrelationsdiagramms verfolgt wird [147]. LTDSE² schließlich bezeichnet die Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung auf einem vierdimensionalen, kartesischen Gitter [185]. Diese Rechnung ist jedoch als Näherung zu betrachten, da die Dimension des Problems reduziert wurde. Aus der Übereinstimmung der BGM-Ergebnisse mit den Resultaten der korrelierten Theorien, vor allem mit denen der LTDSE [185], zeigt sich insbesondere bei niedrigen und hohen Energien, dass zeitabhängige Korrelationseffekte für die Einfachionisation *keine* Rolle spielen, sondern mikroskopische Responseeffekte dominieren. Allenfalls im Bereich um $E_P \approx 25$ keV könnten zeitabhängige Korrelationseffekte beitragen und den in der BGM-Rechnung berücksichtigten Responseeffekten entgegenwirken. Darüber hinaus ist bemerkenswert, dass sich die BGM-Kurve für kleine Einschussenergien sehr gut den Resultaten der MEHC-Rechnung [147] annähert, die den korrekten adiabatischen Limes reproduzieren sollte. Dabei wird in [147] allerdings angezweifelt, ob diese Methode dazu geeignet ist, die Stoßdynamik bis $E_P = 10$ keV zu beschreiben. Sehr aufschlussreich können an dieser Stelle weitere experimentelle Ergebnisse im Bereich $E_P \leq 40$ keV sein, die, wie schon in der Einleitung zu diesem Kapitel erwähnt, in der nahen und fernen Zukunft geplant sind.

5.2.2 Zweifachionisation

Die totalen Wirkungsquerschnitte für Zweifachionisation bei verschiedener Wahl von v_{mod} im Vergleich zur no-response Rechnung und zum Experiment zeigt Abb. 5.9. Die Rechnung mit $v_{\text{mod}} = v_{\text{mono}}$ führt zu einer wesentlichen Verminderung des Querschnitts, während die Auswirkungen des Dipolanteils v_{dip} im Energiebereich, in dem dieses Potential physikalisch sinnvoll ist, nur geringfügig sind. Für mittlere und kleine Einschussenergien wird das Experiment erheblich überschätzt. Den Vergleich mit anderen Theorien zeigt Abb. 5.10. CFCA³ stellt eine Rechnung dar, bei der dynamische Korrelationseffekte explizit ver-

¹FIM: Forced Impulse Method

²LTDSE: Lattice Time Dependent Schrödinger Equation

³CFCA: Convergent Frozen Correlation Approximation

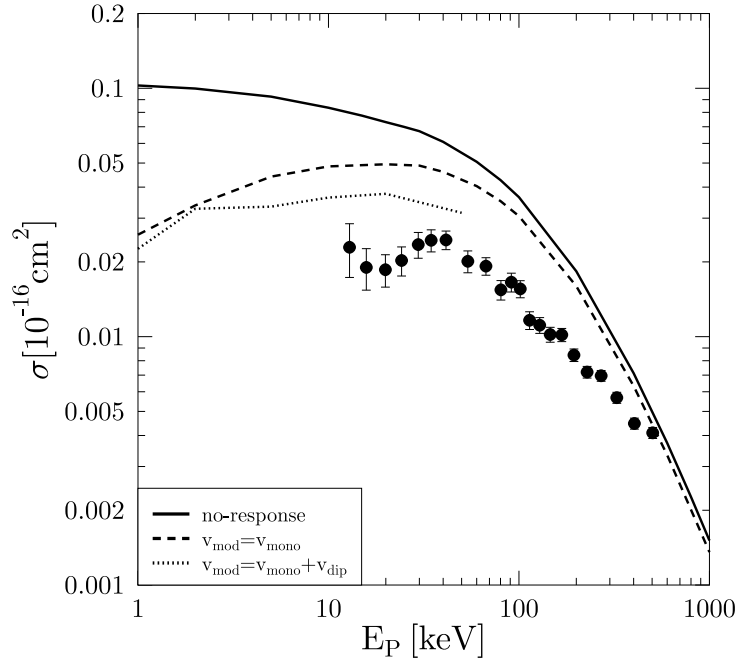


Abb. 5.9: $\bar{p} - \text{He}$: Totaler Wirkungsquerschnitt für Zweifachionisation als Funktion der Einschussenergie für verschiedene Wahl von v_{mod} in (3.17) im Vergleich zur no-response Rechnung [165, 166]. Experiment: (\bullet) [35].

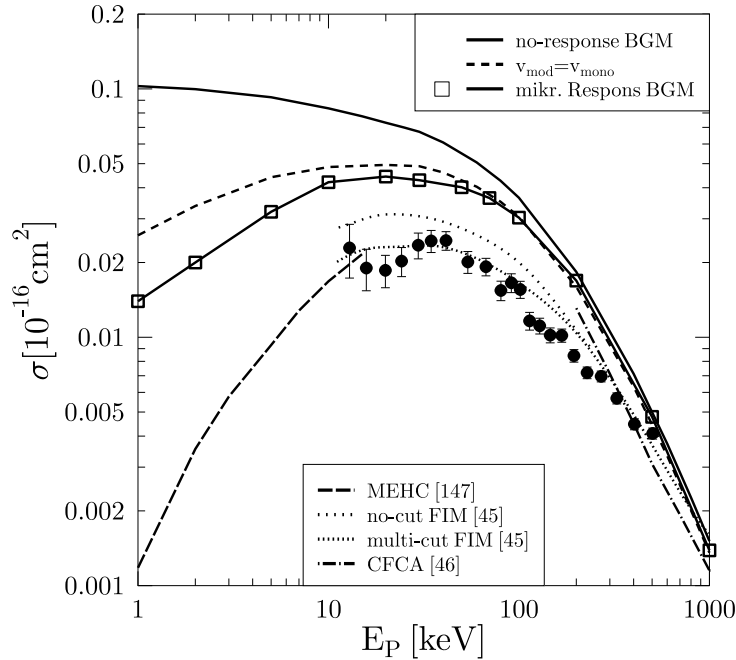


Abb. 5.10: $\bar{p} - \text{He}$: Totaler Wirkungsquerschnitt für Zweifachionisation als Funktion der Einschussenergie. Vergleich der BGM-Rechnungen mit anderen Theorien: $v_{\text{mod}} = v_{\text{mono}}$ [165, 166], MEHC [147], no-cut FIM [45], multi-cut FIM [45], CFCA [46]. Experiment: (\bullet) [35].

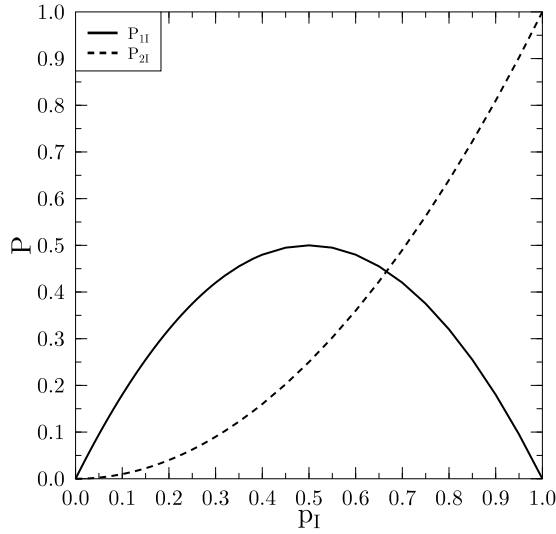


Abb. 5.11: P_{1I} und P_{2I} als Funktionen von p_I (2.88c, 2.88d).

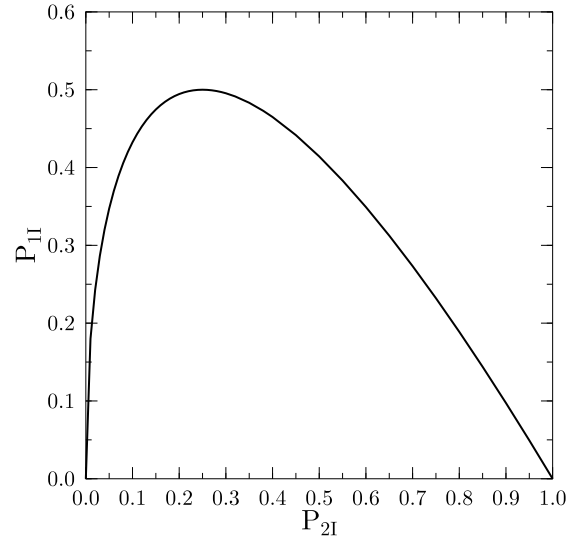


Abb. 5.12: P_{1I} als Funktion von P_{2I} (2.91b).

nachlässigt werden [46]. Wie weiter oben schon erläutert, beschreibt der multi-cut FIM Ansatz gerade dynamische Korrelation, wohingegen in der no-cut FIM Rechnung Korrelation lediglich im Anfangs- und im Endzustand berücksichtigt wird. Die BGM-Rechnung mit mikroskopischer Responns reduziert den Wirkungsquerschnitt im Vergleich zur Rechnung mit dem adiabatischen Responspotential im Bereich kleiner und mittlerer Energien weiter. Allerdings bleibt die Überschätzung der experimentellen Daten bestehen. Da die in Abb. 5.10 eingezeichneten korrelierten Rechnungen das Experiment wesentlich besser beschreiben, ist davon auszugehen, dass es zur Behandlung der Zweifachionisation unumgänglich ist, Korrelation wenigstens im Anfangs- und Endzustand zu berücksichtigen. Die Auswirkungen dynamischer Korrelationseffekte verdeutlicht die Differenz zwischen den no-cut FIM [45] und den multi-cut FIM [45] Resultaten.

An dieser Stelle muss allerdings auch auf das Problem der Binomialauswertung im Rahmen der x-only Näherung bei der Berechnung der Zweifachionisation aus Einteilchenwahrscheinlichkeiten hingewiesen werden, das schon in Abschnitt 2.3.2 angesprochen worden ist. Abb. 5.11 und Abb. 5.12 verdeutlichen die Zusammenhänge (2.88c, 2.88d) und (2.91b). Man sieht, dass P_{2I} den Wert 1 erreichen kann, wohingegen P_{1I} maximal 0,5 wird. Die Wahrscheinlichkeit für Einfachionisation P_{1I} wird zunehmend unterdrückt, wenn die entsprechende Wahrscheinlichkeit für Zweifachionisation P_{2I} den Wert 0,5 überschreitet. Dies ist eine direkte Konsequenz der x-only Näherung und führt zu einer Überschätzung der Zweifachionisation, hat jedoch keinerlei physikalische Bedeutung (für eine detailliertere Diskussion siehe [186]).

5.2.3 Ionisationsmechanismus

Wie schon in Abschnitt 3.2 erläutert worden ist, tritt bei den vorgestellten Rechnungen mit dem zeitabhängigen, mikroskopischen Responspotential bei der Auswertung das Problem oszillierender Übergangswahrscheinlichkeiten auf, wenn man die Eigenfunktionen

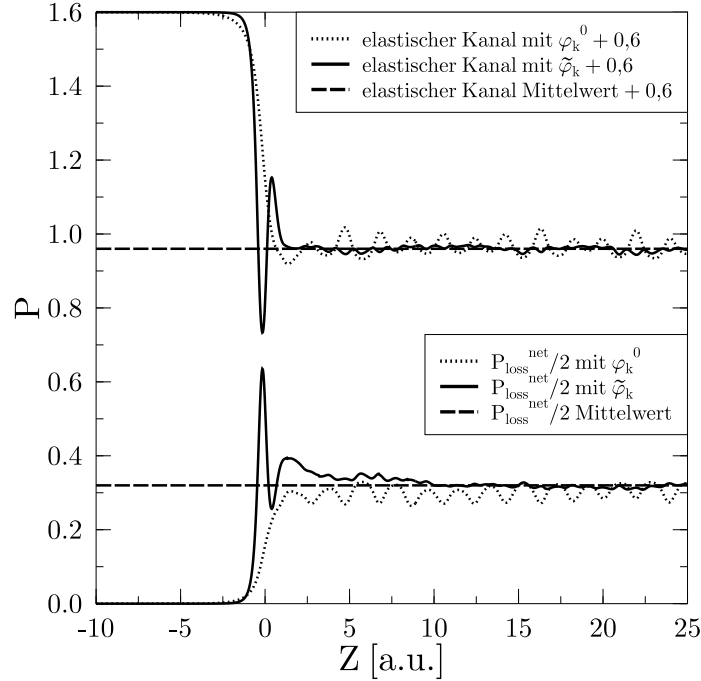


Abb. 5.13: \bar{p} – He: Zeitentwicklung $Z = vt$ von $P_{loss}^{net}/2$ und des elastischen Kanals für $E_P = 5$ keV, $b = 0,3$ a.u., ausgewertet mit verschiedenen Eigenfunktionen. Gepunktete Linien, Eigenfunktionen $\{|\varphi_k^0\rangle\}$ (2.44); durchgezogene Linien, Eigenfunktionen $\{|\tilde{\varphi}_k\rangle\}$ (3.15); obere Kurven, elastischer Kanal; untere Kurven, $P_{loss}^{net}/2$; gestrichelte horizontale Linien, Mittelwerte für $z \rightarrow \infty$. Zur besseren Übersicht sind die Kurven für den elastischen Kanal um 0,6 nach oben verschoben.

$\{|\varphi_k^0\rangle\}$ des ungestörten Targetatoms, d.h. die Funktionen der generierenden BGM Basis (2.44), zur Analyse der Wellenfunktion verwendet. Die Ursache hierfür ist darin zu finden, dass der Hamilton-Operator vor dem Stoß nicht mehr identisch ist mit dem nach dem Stoß, wie es für die no-response Näherung der Fall ist. In [160] konnte allerdings gezeigt werden, dass die Eigenfunktionen $\{|\tilde{\varphi}_k\rangle\}$ (3.15) des zeitabhängigen Hamilton-Operators eine geeignete Wahl für die exakten Endzustände darstellen. Jedoch ist anzumerken, dass für ein allgemeines mikroskopisches Resonspotential die angesprochenen Oszillationen nur vermindert werden und nicht gänzlich verschwinden, da auch die $\{|\tilde{\varphi}_k\rangle\}$ nicht die formal korrekten Randbedingungen des Systems erfüllen (siehe Kopplungsmatrixelemente in (3.14) und (3.16)). Für den speziellen Fall des globalen Resonspotentials (3.12) führt die Analyse mit den Eigenfunktionen $\{|\tilde{\varphi}_k\rangle\}$ auf stabile Übergangswahrscheinlichkeiten. Zur genaueren Betrachtung des Ionisationsmechanismus im System \bar{p} – He werden im Folgenden die zeitlichen Verläufe für die Analyse mit beiden Sätzen von Eigenfunktionen miteinander verglichen.

Abb. 5.13-5.16 zeigt die zeitlichen Entwicklungen der Wahrscheinlichkeiten für den elastischen Kanal und für Nettoionisation (skaliert mit 0,5) berechnet bezüglich der Eigenfunktionen $\{|\varphi_k^0\rangle\}$ und $\{|\tilde{\varphi}_k\rangle\}$ für $E_P = 5$ keV und verschiedene Stoßparameter b . Vergleicht man in jeder Abbildung die Verläufe mit den Eigenfunktionen $\{|\varphi_k^0\rangle\}$ mit de-

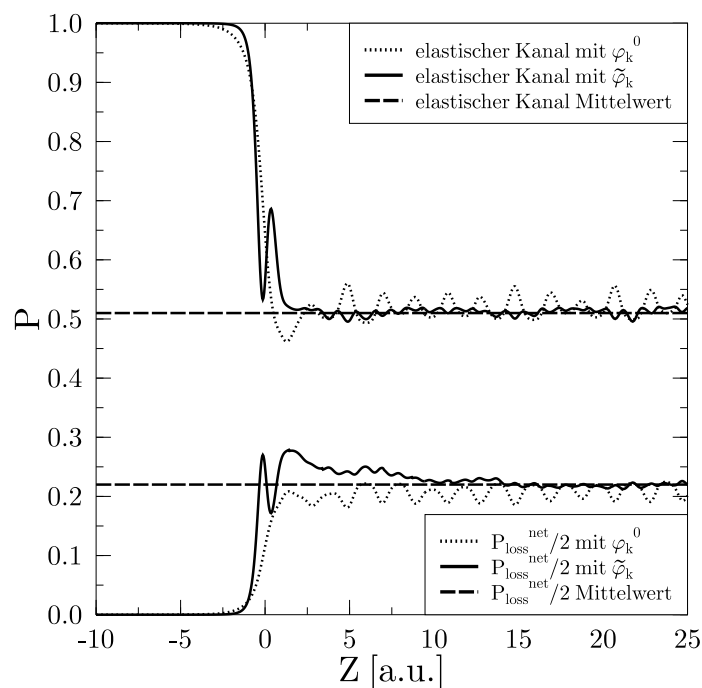


Abb. 5.14: $\bar{p} - \text{He}$: Wie Abb. 5.13, jedoch für $E_P = 5$ keV, $b = 0,5$ a.u..

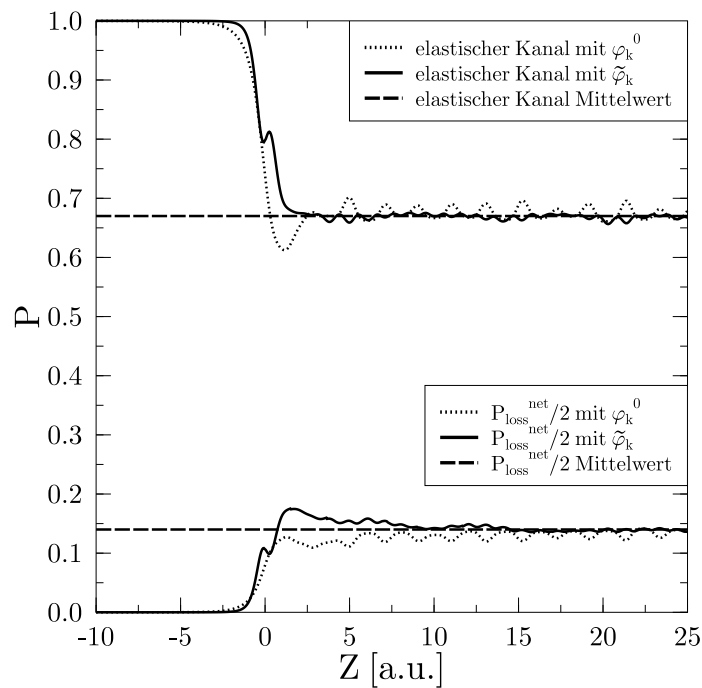


Abb. 5.15: $\bar{p} - \text{He}$: Wie Abb. 5.13, jedoch für $E_P = 5$ keV, $b = 0,7$ a.u..

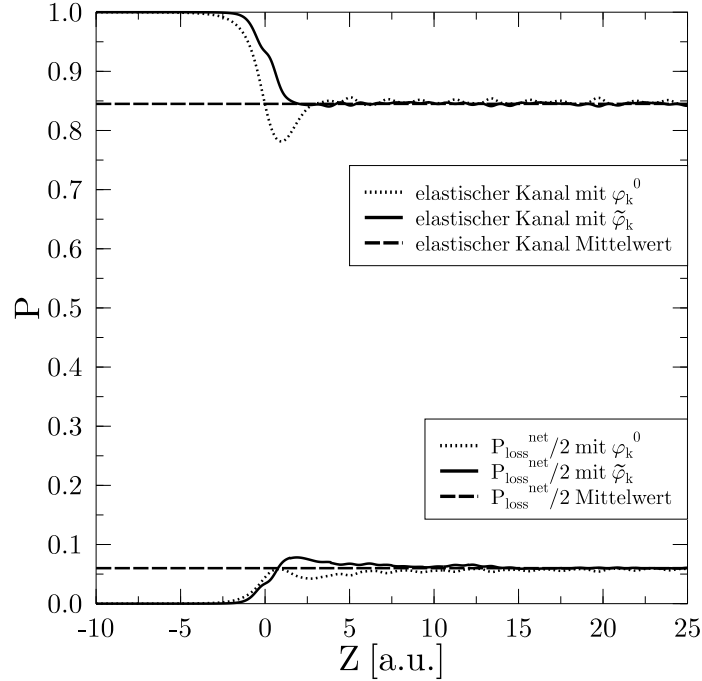


Abb. 5.16: \bar{p} – He: Wie Abb. 5.13, jedoch für $E_P = 5$ keV, $b = 1,0$ a.u..

nen der Eigenfunktionen $\{|\tilde{\varphi}_k\rangle\}$, so erkennt man deutlich die Verminderung des oszillatorischen Verhaltens. Physikalische Aussagen über den Ablauf des Ionisationsprozesses können jedoch nur mit Hilfe der Funktionen $\{|\tilde{\varphi}_k\rangle\}$ gemacht werden, da in den Funktionen $\{|\varphi_k^0\rangle\}$ die zeitliche Veränderung der Potentialverhältnisse zwischen Projektil, Target und elektronischer Dichte nicht berücksichtigt wird. Für Stoßparameter, die kleiner sind als der r -Erwartungswert der Elektronen der K-Schale des Grundzustandes von Helium (siehe auch Tab. 5.1), also in Abb. 5.13-5.15, erkennt man, dass ein rapider Abfall des elastischen Kanals begleitet von einem Anstieg der Ionisation um den 'closest approach' herum stattfindet. Daraufhin erfolgt eine Relaxation der Ionisationswahrscheinlichkeit bei sofortiger Stabilisation des elastischen Kanals. Als closest approach bezeichnet man den Punkt im zeitlichen Verlauf, bei dem Projektil- und Targetkern die geringste Entfernung voneinander besitzen, d.h. $Z = t = 0$ a.u. gilt.

Das Verhalten in unmittelbarer Nähe des closest approach kann einer Art 'Targetkern-eclipse' zugeschrieben werden. Für Stöße mit Stoßparametern kleiner als der r -Erwartungswert des aktiven Elektrons, die den Hauptbeitrag zum Querschnitt liefern, schirmt die Ladung des Antiprotons den Targetkern ab. Dies führt zu einer Verminderung seiner Attraktivität und zu einer Expansion der elektronischen Dichte. Wenn das Antiproton diesen Bereich wieder verlässt, wird der Targetkern wieder attraktiver und der Ionisationsprozess abrupt gestoppt. Das beschriebene sich anschließende Relaxationsverhalten der Ionisationswahrscheinlichkeit im Bereich $2, 5 < Z < 15$ a.u. ist auf einen Wiedereinfang ('recapture') der Elektronen in niedrig liegende angeregte Zustände des Heliumtargets zurückzuführen. Für entferntere Stöße mit Stoßparametern, die größer sind als der r -Erwartungswert des aktiven Elektrons (Abb. 5.16), verschwindet der Effekt der Target-

kerneklipse, da dann das Antiproton die elektronische Dichteverteilung in zu großem Abstand passiert und eine abschirmende Wirkung nicht mehr in ausreichendem Maße auftritt. Diese Idee der Targetkerneklipse wurde schon in [186] entwickelt und konnte hier detailliert bestätigt werden.

5.2.4 Betrachtung des Responspotentials

Um einen Eindruck von der mikroskopischen Veränderung des effektiven elektronischen Potentials während des Stoßes zu bekommen, soll in diesem Abschnitt exemplarisch für das Stoßsystem $\bar{p} - \text{He}$ die dynamische Situation für eine Einschussenergie $E_P = 5 \text{ keV}$ und Stoßparameter $b = 0,5 \text{ a.u.}$ betrachtet werden. In Abb. 5.17, Abb. 5.18 und Abb. 5.19 sind die mit der radialen Koordinate r gewichteten Radialanteile der Y_{00} -, Y_{10} - und Y_{11} -Komponenten der Entwicklung (3.25) des Responspotentials $\delta v_{ee}(r, t) = v_{ee}(r, t) - v_{ee}^0(r)$ für verschiedene Zeitpunkte der Kollision dargestellt. Der Monopolanteil zeigt dabei die Veränderung der *Abschirmungsverhältnisse* im Laufe des Stoßes, während die Dipolkomponenten zusätzlich Aufschluss über *Polarisationseffekte* geben. Im Zusammenhang mit den Ausführungen in Kapitel 4 wird hier deutlich, dass sich trotz der stark oszillierenden Entwicklungskoeffizienten aufgrund der nichtorthogonalen Darstellung (3.25) ein physikalisch sinnvolles und interpretierbares effektives interelektronisches Potential ergibt.

Die Entwicklung des Monopolanteils (Abb. 5.17) für Zeiten kurz vor und nach dem closest approach ($-1, 0 < Z < 0, 4 \text{ a.u.}$) verdeutlicht die zunehmende Verminderung der Abschirmung des Targetkerns durch die Wechselwirkung mit dem Projektil, d.h. das elektronische Potential wird im Vergleich zum Grundzustandspotential weniger repulsiv: es entsteht ein '*Abschirmungsloch*'. Für Zeiten $0, 5 < Z < 15, 0 \text{ a.u.}$ wird das Responspotential diffuser als Konsequenz der sich ausbreitenden elektronischen Dichte durch Besetzung angeregter Zustände und Ionisation. Dies führt zu einer abwechselnden Verschiebung der Minima der dargestellten Potentialkurven zu größeren und kleineren Abständen und korrespondiert zu einer '*pumpenden*' Bewegung der elektronischen Dichte. Der Potentialverlauf für die Zeiten $16, 0 < Z < 25, 0 \text{ a.u.}$ verdeutlicht schließlich die Relaxationsphase des effektiven elektronischen Potentials des verbleibenden, teilweise angeregten Targetkerns.

Bei Betrachtung der Dipolkomponenten des Responspotentials (Abb. 5.18 und Abb. 5.19) wird die polarisierende Wirkung des negativ geladenen Antiprotons auf die anfänglich kugelsymmetrisch verteilte elektronische Dichte im Anfangszustand des Heliumatoms deutlich (wegen der kugelsymmetrischen Verteilung der Dichte im Anfangszustand des Heliumatoms hat $v_{ee}^0(r)$ nur einen Monopolanteil, die höheren Multipolmomente verschwinden). Es muss dabei allerdings beachtet werden, dass in Abb. 5.18 und Abb. 5.19 nur der mit r gewichtete Radialanteil des Responspotentials der jeweiligen Dipolkomponente dargestellt ist. Um eine Vorstellung von der geometrischen Struktur dieser Komponenten zu bekommen, darf man die Winkelanteile

$$Y_{10}(\vartheta, 0) \sim \cos \vartheta = \begin{cases} \text{positiv} & z > 0 \text{ a.u.} \\ \text{negativ} & z < 0 \text{ a.u.} \end{cases} \quad (5.1)$$

und

$$Y_{11}(\vartheta, 0) \sim -\sin \vartheta = \begin{cases} \text{negativ} & x > 0 \text{ a.u.} \\ \text{positiv} & x < 0 \text{ a.u.} \end{cases} \quad (5.2)$$

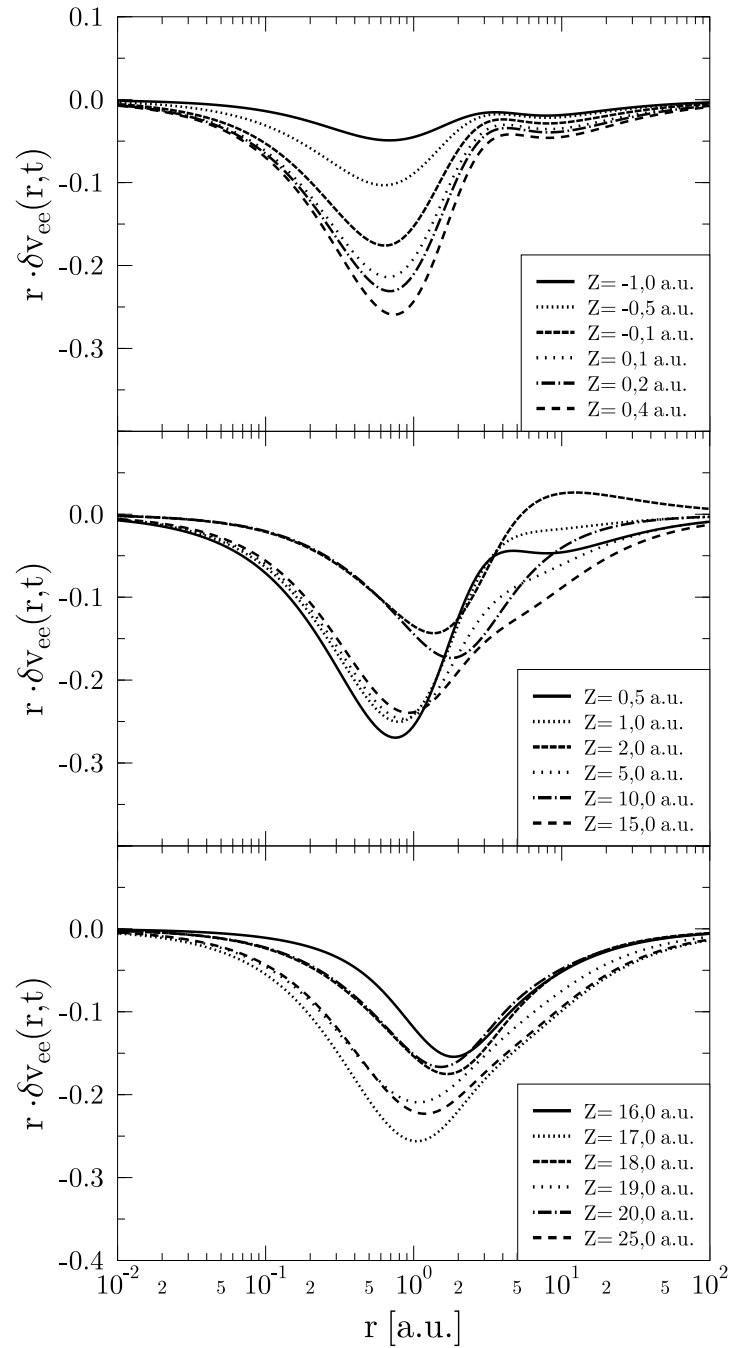


Abb. 5.17: \bar{p} – He: Mit r gewichteter Radialanteil des Responspotentials $\delta v_{ee}(r, t) = v_{ee}(r, t) - v_{ee}^0(r)$ für $E_P = 5$ keV, $b = 0,5$ a.u. für verschiedene Zeiten $Z = vt$. Rechnung mit $\Lambda = 6$ und $D = 2$, in der Darstellung wurde für $v_{ee}(r, t)$ nur die Y_{00} -Komponente (Monopolanteil) aus (3.25) berücksichtigt.

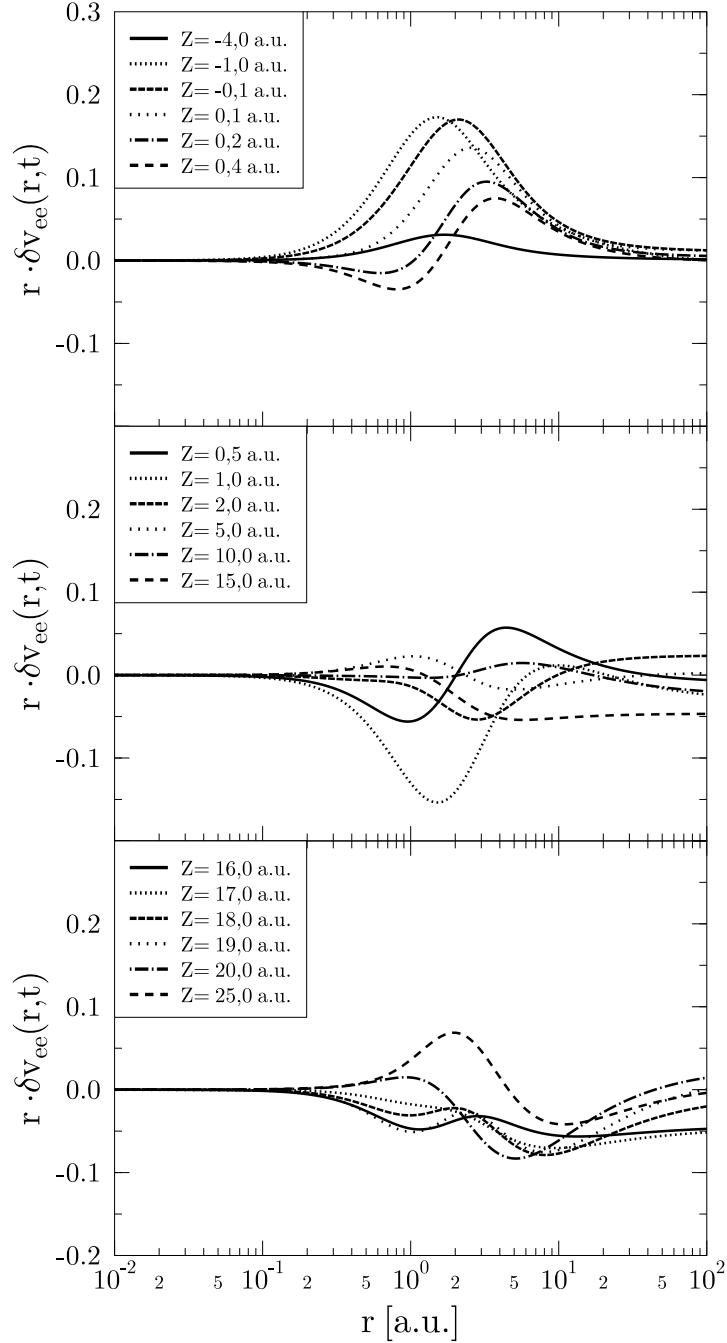


Abb. 5.18: $\bar{p} - \text{He}$: Mit r gewichteter Radialanteil des Responspotentials $\delta v_{ee}(r, t) = v_{ee}(r, t) - v_{ee}^0(r)$ für $E_P = 5$ keV, $b = 0,5$ a.u. für verschiedene Zeiten $Z = vt$. Rechnung mit $\Lambda = 6$ und $D = 2$, in der Darstellung wurde für $v_{ee}(r, t)$ nur die Y_{10} -Komponente (Y_{10} -Dipolanteil) aus (3.25) berücksichtigt. Man beachte $Y_{10}(\vartheta, 0) \sim \cos \vartheta$.

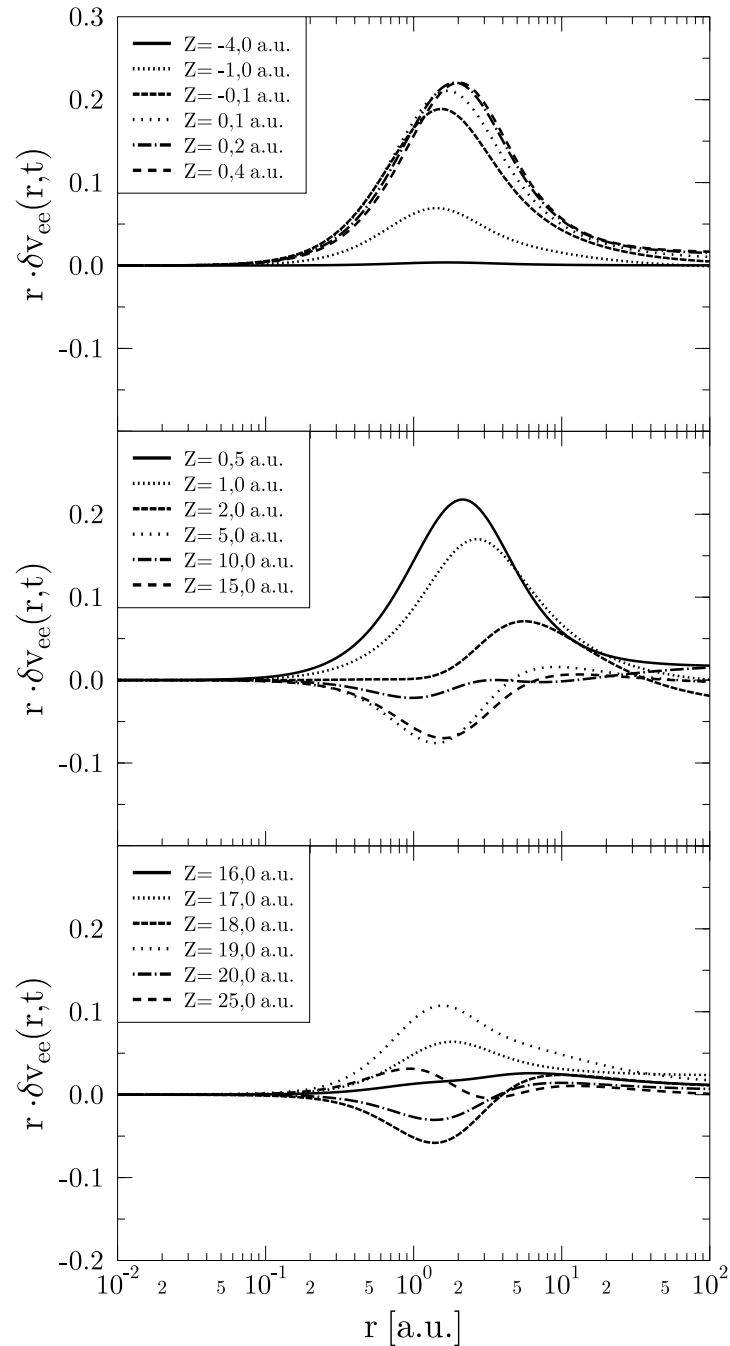


Abb. 5.19: \bar{p} – He: Mit r gewichteter Radialanteil des Responspotentials $\delta v_{ee}(r, t) = v_{ee}(r, t) - v_{ee}^0(r)$ für $E_P = 5$ keV, $b = 0,5$ a.u. für verschiedene Zeiten $Z = vt$. Rechnung mit $\Lambda = 6$ und $D = 2$, in der Darstellung wurde für $v_{ee}(r, t)$ nur die Y_{11} -Komponente (Y_{11} -Dipolanteil) aus (3.25) berücksichtigt. Man beachte $Y_{11}(\vartheta, 0) \sim -\sin \vartheta$.

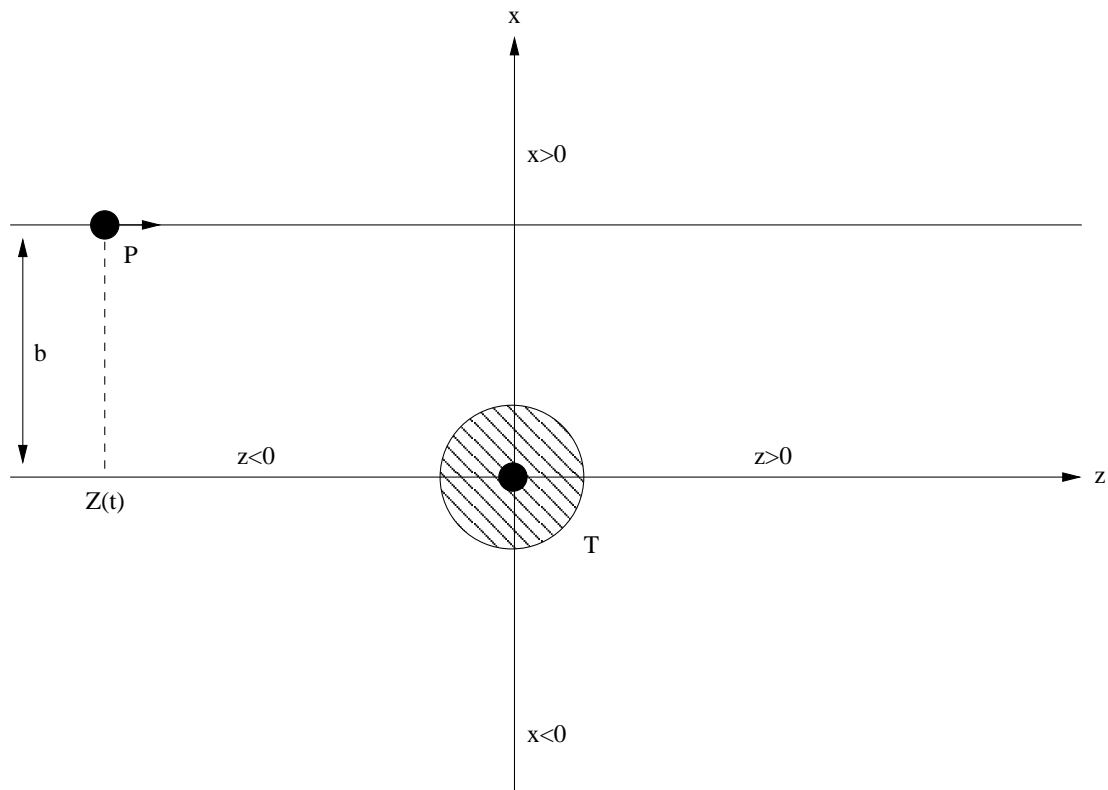


Abb. 5.20: Geometrie des interatomaren Stoßes. T: Target, P: Projektil, b: Stoßparameter. Durch den schraffierten Bereich um das Target wird die kugelsymmetrische Verteilung der Dichte im Grundzustand des Heliumatoms angedeutet.

nicht vernachlässigen, durch die das Vorzeichen des Responspotentials für bestimmte Raumbereiche beeinflusst wird (zur Darstellung der Geometrie des interatomaren Stoßes siehe Abb. 5.20). Das sich dem Target nähernde Antiproton führt zu einer Polarisierung der zunächst kugelsymmetrischen elektronischen Dichteverteilung des Heliumatoms entlang der Strahlachse (z -Achse). Vor dem closest approach $Z < 0$ a.u. wird durch die repulsive Wirkung des Projekttils Dichte von der dem Projektil zugewandten Seite der Targetelektronen ($z < 0$ a.u.) verdrängt und auf die gegenüberliegende Seite des Targets ($z > 0$ a.u.) verlagert. Es entsteht eine 'Beule' in der Dichteverteilung und als unmittelbare Konsequenz ein zunehmend positiver Radialanteil der Y_{10} -Komponente des Responspotentials. Gleichzeitig resultiert ein positiver Radialanteil für die Y_{11} -Komponente des Responspotentials, da durch die Vorgabe der Projekttilbewegung im positiven Bereich der x -Achse durch die repulsive Wirkung des Antiprotons zunehmend Dichte in den negativen Bereich der x -Achse gedrängt wird. Ist das Projektil vollständig in die Dichteverteilung eingedrungen, so wirkt es in alle Richtungen abstoßend auf die umgebende Dichte und verdrängt sie nach allen Seiten hin. Dieses Verhalten führt zu einem Vorzeichenwechsel des radialen Verlaufs des Responspotentials in der Y_{10} -Komponente für $Z \approx 0,2$ a.u.. Im weiteren Zeitverlauf ($Z > 1,0$ a.u.) zeigen die Radialanteile beider Dipolkomponenten die reichhaltige Struktur des sich ausbreitenden Ionisationsanteils und die Zeitentwicklung des angeregten Targets.

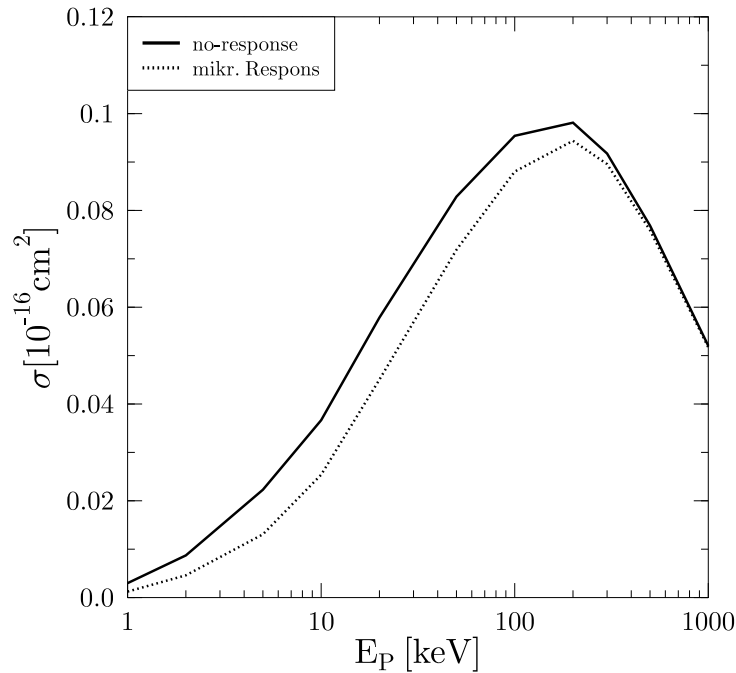


Abb. 5.21: $\bar{p} - \text{Li}^+$: Totaler Wirkungsquerschnitt für Einfachionisation als Funktion der Einschussenergie. Vergleich der BGM-Rechnung mit mikroskopischer Respons mit der no-response Näherung.

5.3 Einfachionisation in $\bar{p} - \text{Li}^+$ Stößen

Wird für Stöße mit Antiprotonen anstatt Helium das heliumähnliche Lithiumion Li^+ verwendet, so bilden sich im zugehörigen totalen Wirkungsquerschnitt für Einfachionisation (Abb. 5.21) direkt Skalierungseigenschaften der Schrödinger-Gleichung ab. Gemäß der in Tab. 5.1 zusammengestellten Eigenschaften sind die Elektronen im Lithiumion stärker gebunden als im Helium und somit schwerer zu ionisieren. Der Querschnitt ist folglich kleiner als für Helium und sein Maximum zu größeren Einschussenergien hin verschoben. Ganz analog zum Stoßsystem $\bar{p} - \text{He}$ stimmen die Wirkungsquerschnitte für die no-response Näherung und die Rechnung mit mikroskopischer Respons für große Stoßenergien überein, hat in diesem Fall doch auch hier die elektronische Dichte nicht genügend Zeit, um sich den schnell verändernden Potentialverhältnissen anzupassen. Für immer langsamere Stöße, d.h. bei kleinen Einschussenergien, führen beide Kurven zu einem verschwindenden Querschnitt, da das Quasimolekül ($\bar{p}\text{Li}^+$) im Gegensatz zum Quasimolekül ($\bar{p}\text{He}$), bei dem in der no-response Näherung die Bildung eines H^- -Ions nicht möglich ist, auch in der no-response Rechnung für alle Abstände gebunden bleibt. Dies ist eine direkte Folge der höheren Ladung des Targetkerns. Bemerkenswert ist jedoch, dass Responseeffekte in beiden Fällen (He und Li^+) von vergleichbarer Größe sind, obwohl man erwarten könnte, dass solche Effekte aufgrund der stärkeren Elektron-Kern-Wechselwirkung für das ionische Target zunehmend kompensiert werden. Für $E_P = 10$ keV beispielsweise führen Responseeffekte zu einer Verminderung des totalen Wirkungsquerschnittes für Einfachionisation um 25% für Helium und um 30% für das heliumähnliche Lithiumion.

5.4 Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse

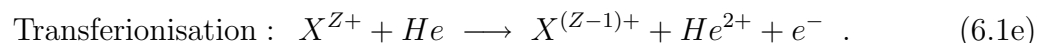
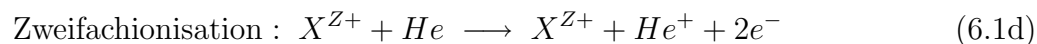
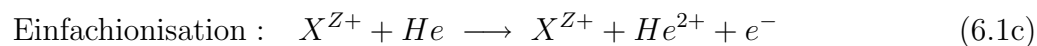
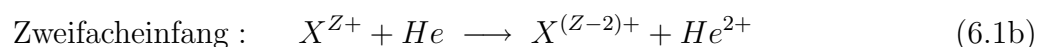
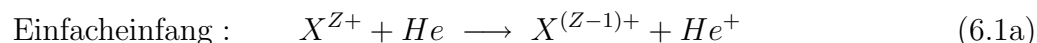
In diesem Kapitel wurden mikroskopische Responseeffekte in Stößen von Antiprotonen mit Helium und Lithiumionen mit Hilfe zeitabhängiger Dichtefunktionaltheorie im Rahmen einer effektiven Einteilchenbeschreibung untersucht. Das effektive Elektron-Elektron-Potential wurde dabei innerhalb der x-only Näherung betrachtet, Korrelationseffekte bleiben gänzlich unberücksichtigt. Folgende Aussagen konnten gewonnen werden:

- **Einfachionisation im System $\bar{p} - \text{He}$:**
Der Vergleich der Ergebnisse korrelierter Rechnungen mit der BGM-Rechnung zeigt, dass Korrelationseffekte eine untergeordnete Rolle spielen. Eine substantielle Verminderung des Querschnittes wird durch adiabatische und dynamische Responseeffekte erreicht. Der Wirkungsquerschnitt reagiert sehr sensitiv auf die Wahl des Responspotentials, wobei eine vollständige Selbstwechselwirkungskorrektur unerlässlich ist.
- **Zweifachionisation im System $\bar{p} - \text{He}$:**
Auch bei Berücksichtigung des mikroskopischen Responspotentials wird der experimentelle Wirkungsquerschnitt erheblich überschätzt. Zur Erklärung dieses Prozesses sind Korrelationseffekte in der Auswertung der Zweiteilchenobservablen bzw. in der Stoßdynamik mit einzubeziehen. Verwendet man eine Slater-Determinante als Ansatz für die Wellenfunktion (x-only Näherung), so sind im Rahmen der Binomialstatistik die Wahrscheinlichkeiten für Einfachionisation und Zweifachionisation nicht mehr unabhängig voneinander und erfüllen eine physikalisch unbegründete feste Relation. Dieses Problem ist bisher ungelöst, da im Rahmen der TDDFT die zugehörigen Funktionale zur Auswertung von Vielteilchenobservablen nicht bekannt sind.
- **Ionisationsmechanismus im System $\bar{p} - \text{He}$:**
Bei Verwendung der Eigenfunktionen des zeitabhängigen Hamilton-Operators zur Analyse der Wellenfunktion kann der Ionisationsmechanismus als eine Art Targetkerneklipse beschrieben werden. Dieser Effekt ist abhängig vom Stoßparameter b und sehr stark, wenn b kleiner als der r -Erwartungswert des aktiven Elektrons ist, d.h. das Projektil während des Stoßes die elektronische Dichteverteilung nahezu vollständig durchquert.
- **Betrachtung des Responspotentials im System $\bar{p} - \text{He}$:**
Die Betrachtung des Responspotentials zu verschiedenen Zeiten verdeutlicht die Veränderung der Abschirmungs- und Polarisationsverhältnisse im Verlauf des Stoßes. Darüber hinaus zeigen sich Charakteristika von Anregung und Ionisation.
- **Einfachionisation im System $\bar{p} - \text{Li}^+$:**
Obwohl hier im Vergleich zum System $\bar{p} - \text{He}$ ein stärker geladener Targetkern vorliegt, sind Responseeffekte von vergleichbarer relativer Größe.

Kapitel 6

Stöße mit positiv geladenen Projektilen

Im Gegensatz zu Stößen mit Antiprotonen, wie sie im vorhergehenden Kapitel untersucht worden sind, besteht bei interatomaren Stößen mit positiv geladenen Projektilen neben der Ionisation auch die Möglichkeit, dass Elektronen vom Projektil eingefangen werden. Auf diese Weise sind für Stöße vollständig ionisierter Projektile X der Kernladung Z mit Helium (oder auch heliumähnlichen Ionen) folgende Zweiteilchen-Übergänge denkbar:



Für jeden dieser Stoßprozesse existieren eine Vielzahl experimenteller Daten und Rechnungen. Den kritischen Punkt bei der theoretischen Beschreibung stellt wiederum die Behandlung der Elektron-Elektron-Wechselwirkung dar. In den folgenden Abschnitten sollen die Resultate des erläuterten mikroskopischen Responsmodells vorgestellt und mit vorhandenen experimentellen Daten und den Ergebnissen anderer theoretischer Ansätze verglichen werden. Ziel der vorliegenden Untersuchungen ist es festzustellen, welchen Einfluss zeitabhängige Responseeffekte auf die Beschreibung der inelastischen Prozesse (6.1a-e) in den Systemen $p - He$ und $He^{2+} - He$ haben (Kapitel 6.2). Eine Erhöhung der Projektilladung ($Li^{3+} - He$) bzw. der Targetladung ($p - Li^+$) führt zu einer Verschiebung der energetischen Lage der Reaktionskanäle zueinander und damit zu einer Stärkung bzw. Schwächung bestimmter Kopplungen und soll ebenfalls genauer betrachtet werden (Kapitel 6.3). Von besonderem Interesse ist dabei, inwieweit die Berücksichtigung zeitabhängiger Polarisations- und Austauscheffekte ausreichend ist, um die Prozesse (6.1a-e) zu beschreiben, um auf diese Weise wiederum eine Aussage über die Tragweite von Korrelationseffekten machen zu können. Zunächst wird hierzu im folgenden Abschnitt die Konvergenz der verwendeten zweizentrierten Entwicklung (3.28) des effektiven Elektron-Elektron-Potentials (3.19) betrachtet.

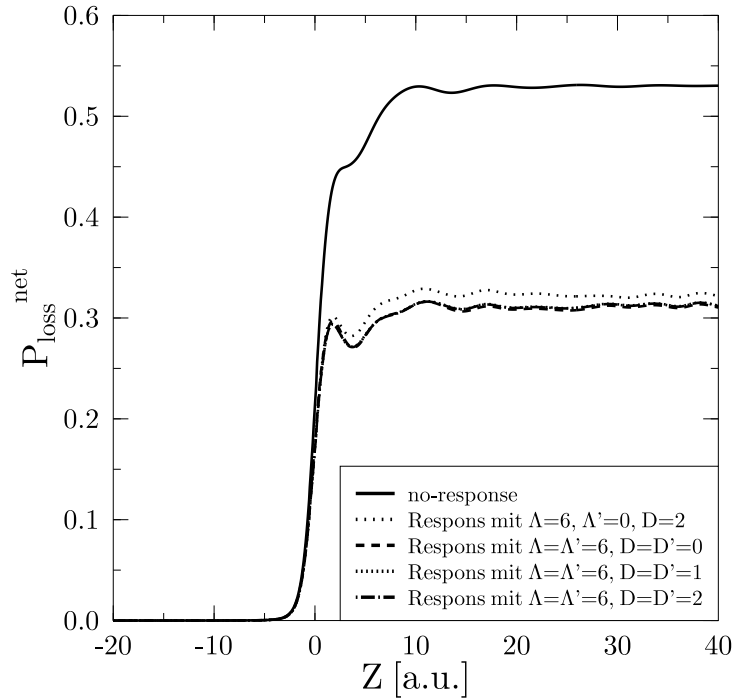


Abb. 6.1: p – He: Zeitentwicklung $Z = vt$ der Nettoverlustwahrscheinlichkeit für $E_P = 20$ keV/amu, $b = 1,5$ a.u., ausgewertet mit den Funktionen $\{|\varphi_k^0\rangle\}$ (2.44). Durchgezogene Linie, no-response Näherung; weit gepunktete Linie, Rechnung mit Respons (3.28) $\Lambda = 6$, $\Lambda' = 0$ und $D = 2$; gestrichelte Linie, $\Lambda = \Lambda' = 6$ und $D = D' = 0$; eng gepunktete Linie, $\Lambda = \Lambda' = 6$ und $D = D' = 1$; strichpunktierte Linie, $\Lambda = \Lambda' = 6$ und $D = D' = 2$.

Für alle nachfolgenden Rechnungen ist eine BGM-Basis (2.74) aus 107 Zuständen mit einer generierenden Basis der Größe $N = 20$ und einer reinen Projektilpotential-Hierarchie bis zur Ordnung $M = 8$ verwendet worden.

6.1 Konvergenz der zweizentrierten Entwicklung des Responspotentials

Zur Untersuchung der Konvergenz der zweizentrierten Entwicklung des Responspotentials sollen - analog zum Vorgehen in Abschnitt 5.1 - exemplarisch die beiden dynamischen Situationen $E_P = 20$ keV/amu, $b = 1,5$ a.u. für das System p – He und $E_P = 20$ keV/amu, $b = 1,6$ a.u. für das System He²⁺ – He betrachtet werden. Abb. 6.1 und Abb. 6.2 zeigen dazu die zeitlichen Verläufe der Nettoverlustwahrscheinlichkeiten für verschiedene Wahlen der Parameter Λ , Λ' , D und D' im Vergleich zur no-response Näherung. Der Fall $\Lambda' = 0$ entspricht folglich der einzentrierten Entwicklung des Responspotentials (3.25), wie sie in Kapitel 5 zur Beschreibung von Stößen mit Antiprotonen verwendet worden ist. Da zur Analyse der Wellenfunktion ebenfalls die Eigenfunktionen $\{|\varphi_k^0\rangle\}$ (2.44) des ungestörten Targetatoms benutzt werden, erkennt man wiederum das in Abschnitt 3.2 angesproche-

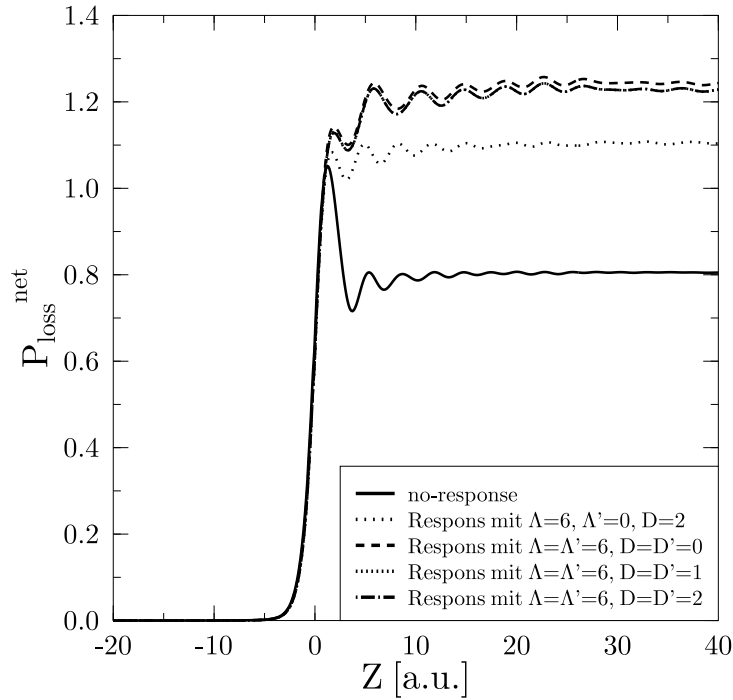


Abb. 6.2: He²⁺ – He: Wie Abb. 6.1, jedoch für $E_P = 20$ keV/amu, $b = 1,6$ a.u..

ne oszillierende Verhalten der Übergangswahrscheinlichkeiten für die Rechnungen mit Respons. Wird nur die einzentrig Entwicklung zur Beschreibung der Respons verwendet ($\Lambda = 6$, $\Lambda' = 0$ und $D = 2$), so kommt es für das Stoßsystem p – He zu einer Verminderung und für das Stoßsystem He²⁺ – He zu einer Vergrößerung der jeweiligen Nettoverlustwahrscheinlichkeit im Vergleich zum no-response Fall. Eine physikalische Erläuterung für diese Sachverhalte wird im Abschnitt 6.2.1 gegeben. Verwendet man lediglich die Monopolanteile ($D = D' = 0$) der zweizentrig Entwicklung ($\Lambda = \Lambda' = 6$) des Responspotentials, berücksichtigt also zusätzlich die Abschirmung des Projektils durch während des Stoßes eingefangene Elektronen, so ergibt sich eine weitere Verminderung bzw. Vergrößerung der jeweiligen Nettoverlustwahrscheinlichkeit. Die Hinzunahme der Dipol- ($D = D' = 1$) und Quadrupolkomponenten ($D = D' = 2$) für beide Zentren verdeutlicht schließlich die Konvergenz der Entwicklung (3.28). Da sich ähnliche Bilder bei anderen Einschussenergien, Stoßparametern und Projektilladungen ergeben, wird für die folgenden Rechnungen die Parameterkombination $\Lambda = \Lambda' = 6$ und $D = D' = 2$ für die zweizentrig Entwicklung des Responspotentials verwendet.

6.2 Vergleich der Stoßsysteme p – He und He²⁺ – He

Die beiden Stoßsysteme p – He und He²⁺ – He gehören, wie schon in der Einleitung erläutert, zu den sowohl aus experimenteller als auch theoretischer Sicht am längsten und häufigsten betrachteten zeitabhängigen Vielteilchensystemen. In diesem Abschnitt sollen beide detailliert untersucht und miteinander verglichen werden. Ausgangspunkt stellt dabei die Betrachtung 'dynamischer Korrelationsdiagramme' dar, mit deren Hilfe

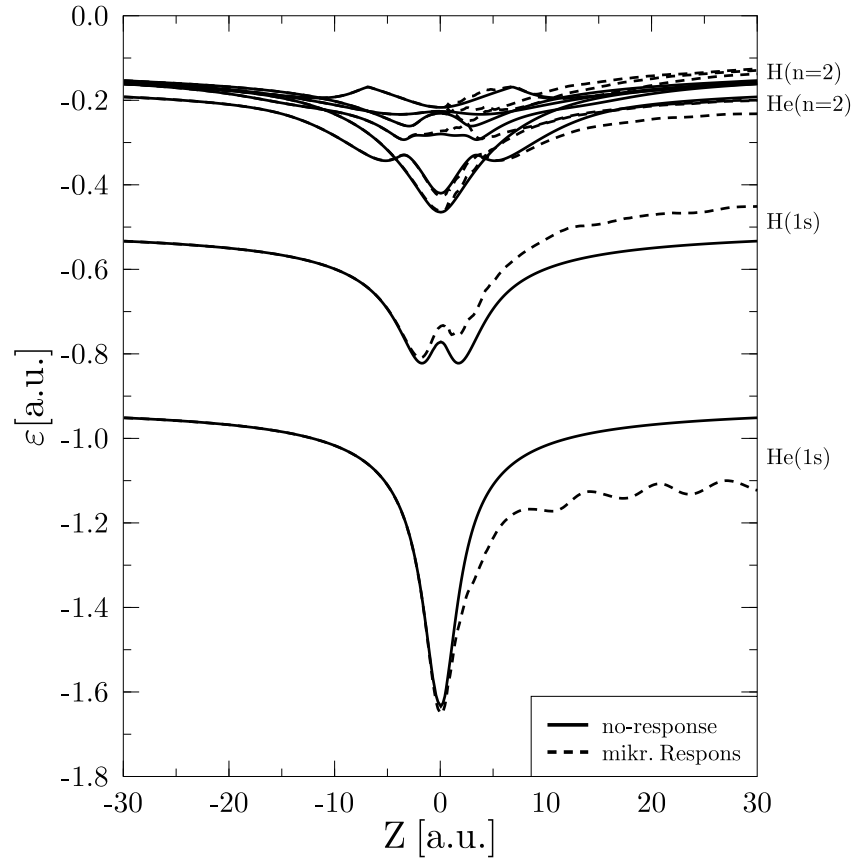


Abb. 6.3: p – He: Dynamisches Korrelationsdiagramm ($Z = vt$) für $E_P = 20$ keV/amu, $b = 1,5$ a.u.. Durchgezogene Linien, no-response Näherung; gestrichelte Linien, Rechnung mit mikroskopischer Respons (3.28).

man physikalische Aussagen über mögliche Reaktionsmechanismen und die Auswirkungen von Responseeffekten machen kann. Anschließend sollen am Beispiel von totalen Nettowirkungsquerschnitten das globale Responsmodell (3.12) und die mikroskopische Entwicklung (3.28) gegenübergestellt und miteinander verglichen werden, bevor die denkbaren Zweiteilchen-Wirkungsquerschnitte betrachtet werden sollen. Die Untersuchung einer alternativen Form der Multinomialauswertung befindet sich am Ende dieses Abschnitts.

6.2.1 Dynamische Korrelationsdiagramme

Um eine qualitative Einsicht in die Auswirkungen des mikroskopischen Responspotentials zu bekommen, kann man die Eigenwerte $\tilde{\varepsilon}_k(t)$ der Eigenfunktionen $\{|\tilde{\varphi}_k\rangle\}$ (3.15) des zeitabhängigen Hamilton-Operators, der das Responspotential selbst enthält, betrachten. Eine solche Darstellung kann als 'dynamisches Korrelationsdiagramm' aufgefasst werden und wird für einige ausgewählte kinematische Situationen untersucht. Abb. 6.3 zeigt ein solches dynamisches Korrelationsdiagramm für das Stoßsystem p – He bei einer Einschussenergie $E_P = 20$ keV/amu und Stoßparameter $b = 1,5$ a.u., wobei die korrespondierenden Eigenwerte für die no-response Näherung mit eingezeichnet sind. In Abb. 6.4

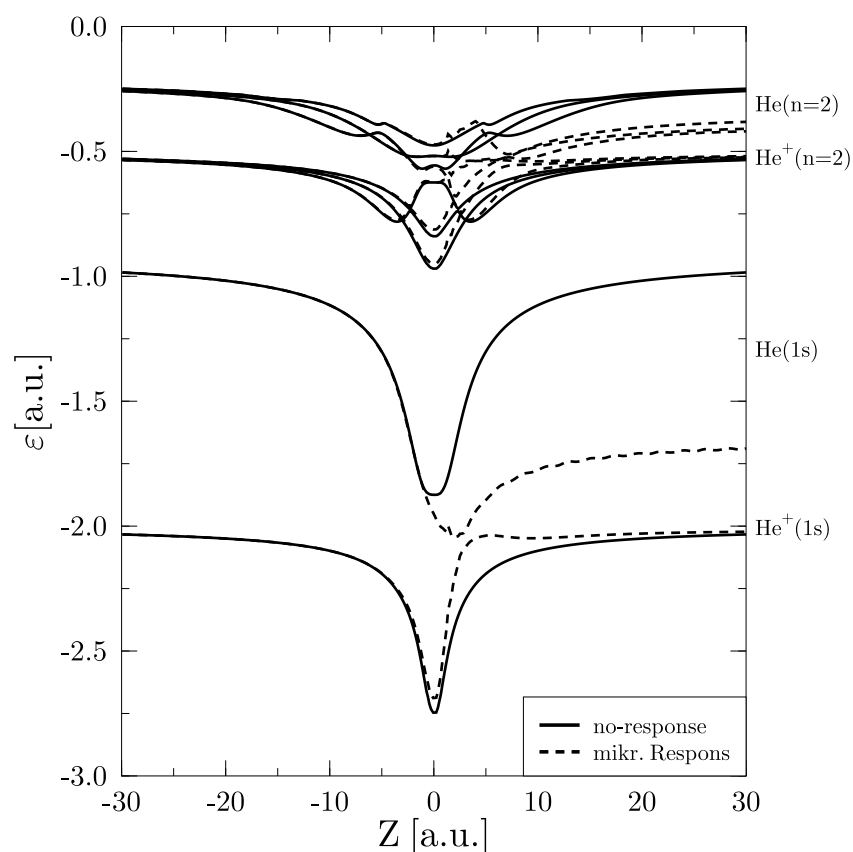


Abb. 6.4: $\text{He}^{2+} - \text{He}$: Dynamisches Korrelationsdiagramm ($Z = vt$) für $E_P = 5 \text{ keV/amu}$, $b = 1,6 \text{ a.u.}$. Durchgezogene Linien, no-response Näherung; gestrichelte Linien, Rechnung mit mikroskopischer Respons (3.28).

ist die analoge Darstellung für das Stoßsystem $\text{He}^{2+} - \text{He}$ für $E_P = 5 \text{ keV/amu}$ und $b = 1,6 \text{ a.u.}$ zu sehen. Die Kanäle sind im auslaufenden Bereich in den atomaren Limes von Projektil und Target für beide Varianten beschriftet. Da die Hamilton-Operatoren vor dem Stoß und nach dem Stoß für den no-response Fall identisch sind, sind folglich die zugehörigen Energiekurven symmetrisch zum closest approach, d.h. dem Punkt $Z = 0 \text{ a.u.}$. Wird das Responspotential jedoch berücksichtigt, so beginnen sich die Kurven in etwa ab dem closest approach im Vergleich zur no-response Näherung zu unterscheiden. Einerseits wird der Grundzustandskanal des Heliumtargets stärker gebunden, da elektronische Dichte vom Target entfernt wird und somit die Abschirmung des Targetkerns nachlässt, andererseits wird die Bindung des Grundzustandskanals des Projektils geschwächt, da eingefangene elektronische Dichte den Projektilkern immer mehr abschirmt. Dies führt also für das System $p - \text{He}$ zu einer verminderten energetischen Kopplung beider Kanäle und für das System $\text{He}^{2+} - \text{He}$ zu einer stärkeren Kopplung. Zu erwarten ist damit für $p - \text{He}$ eine Reduzierung und für $\text{He}^{2+} - \text{He}$ eine Zunahme des totalen Wirkungsquerschnittes für Einfang im Vergleich zu den Ergebnissen einer no-response Rechnung. Da für die Ionisation die Bindungsenergie des aktiven Elektrons maßgeblich ist, die infolge des Responspotentials zunimmt, dann also eine stärkere Bindung vorliegt, ist ganz analog zu den beiden im vorhergehenden Kapitel betrachteten Stoßsystemen $\bar{p} - \text{He}$ und

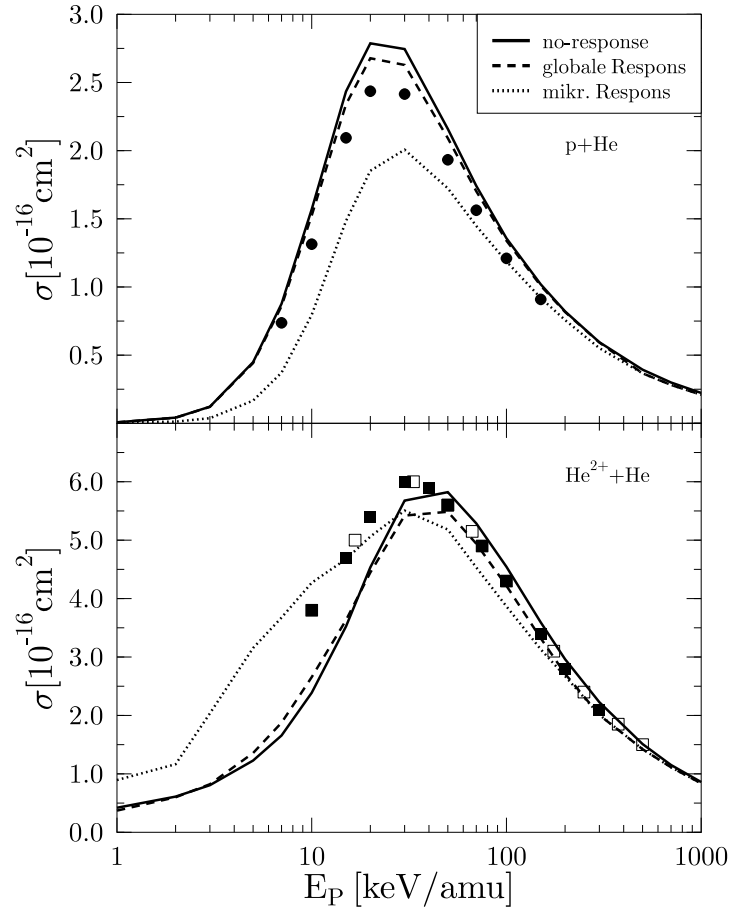


Abb. 6.5: $p - \text{He}$, $\text{He}^{2+} - \text{He}$: Totaler Wirkungsquerschnitt für Nettoverlust als Funktion der Einschussenergie. Rechnung mit mikroskopischer Respons (3.28) und globaler Respons (3.12) im Vergleich zur no-response Näherung. Experiment: (●) [187, 188]; (■) [189] (Unsicherheit 9 %); (□) [190, 191] (Unsicherheit 15 %).

$\bar{p} - \text{Li}^+$ mit einer Abnahme des totalen Ionisationswirkungsquerschnitts, verglichen mit dem no-response Fall, zu rechnen. Für schnelle bzw. sehr entfernte Stöße stimmen die dynamischen Korrelationsdiagramme für die no-response Näherung und die mikroskopische Respons überein, da hier Responseffekte keinen wesentlichen Einfluss mehr haben. Die besonders in Abb. 6.3 sichtbaren Oszillationen der gestrichelten Kurven korrespondieren zu dem in Abschnitt 3.2 erläuterten oszillierenden Verhalten der Übergangswahrscheinlichkeiten für die Rechnungen mit Respons.

6.2.2 Nettowirkungsquerschnitte und Auswirkungen des globalen Responsmodells

Gemäß den Ausführungen in Kapitel 2.3.1 können Nettowahrscheinlichkeiten unter bestimmten Voraussetzungen als explizite Dichtefunktionale aufgefasst werden. Sie sind damit exakt im Sinne der DFT und man kann sie unmittelbar und ohne weitere Näherung zur Berechnung totaler Nettowirkungsquerschnitte verwenden.

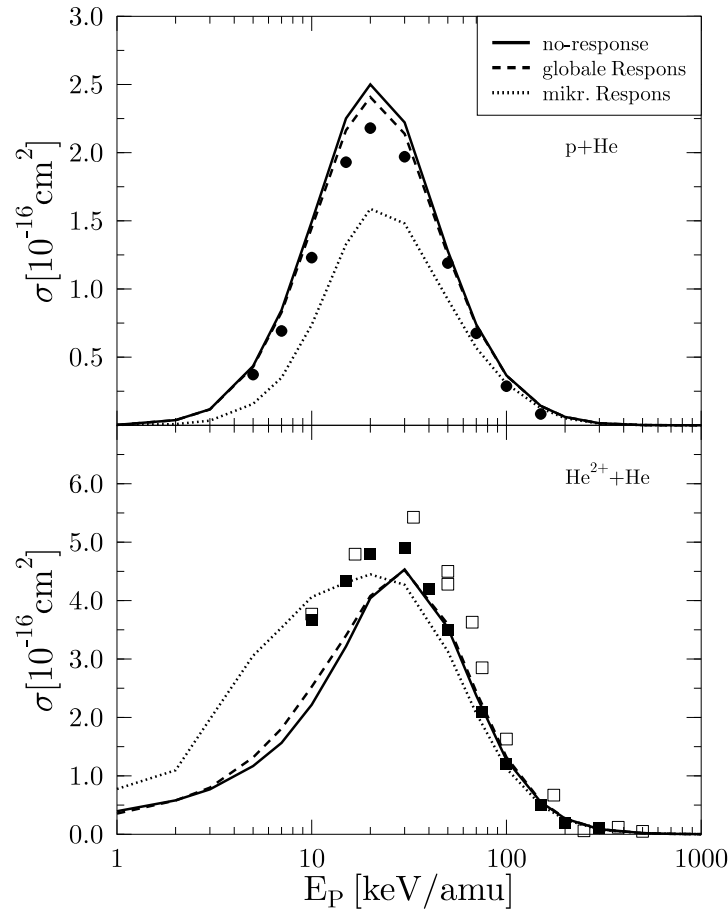


Abb. 6.6: $p - \text{He}$, $\text{He}^{2+} - \text{He}$: Totaler Wirkungsquerschnitt für Nettoeinfang als Funktion der Einschussenergie. Rechnung mit mikroskopischer Respons (3.28) und globaler Respons (3.12) im Vergleich zur no-response Näherung. Experiment: (●) [187, 188] (Unsicherheit 8.8 %); (■) [189]; (□) [190, 191] (Unsicherheit 15 %).

Für die Stoßsysteme $p - \text{He}$ und $\text{He}^{2+} - \text{He}$ sind die entsprechenden totalen Nettowirkungsquerschnitte für Verlust, Einfang und Ionisation in den Abb. 6.5, 6.6 und 6.7 zusammengestellt. Es werden jeweils die Ergebnisse der no-response Rechnung, der Rechnung mit dem globalen Responsmodell (3.12) und die Resultate der Rechnung mit mikroskopischer Respons (3.28) miteinander verglichen. Waren die Auswirkungen des globalen Responsmodells auf das in Kapitel 5 behandelte Stoßsystem $\bar{p} - \text{He}$ aufgrund des zu kleinen Zweifachverlustes nur äußerst gering, so ergeben sich für Stöße mit positiv geladenen Projektilen für dieses Modell kleine, aber sichtbare Auswirkungen. Ursache hierfür ist, dass für solche Stöße nach (2.88j) neben der Zweifachionisation (6.1d) auch die Transferionisation (6.1e) und der Zweifacheinfang (6.1b) zum Zweifachverlust beitragen und zur Verringerung der elektronischen Abschirmung des Targets für das globale Responsmodell führen. Wie zu erwarten, stimmen die Wirkungsquerschnitte der Rechnungen mit beiden Responspotentialen für schnelle Stöße mit denen der no-response Näherung überein und geben die experimentellen Daten für Nettoverlust, -einfang und -ionisation sehr gut wieder. Erst für mittlere und kleine Einschussenergien werden Unterschiede und somit

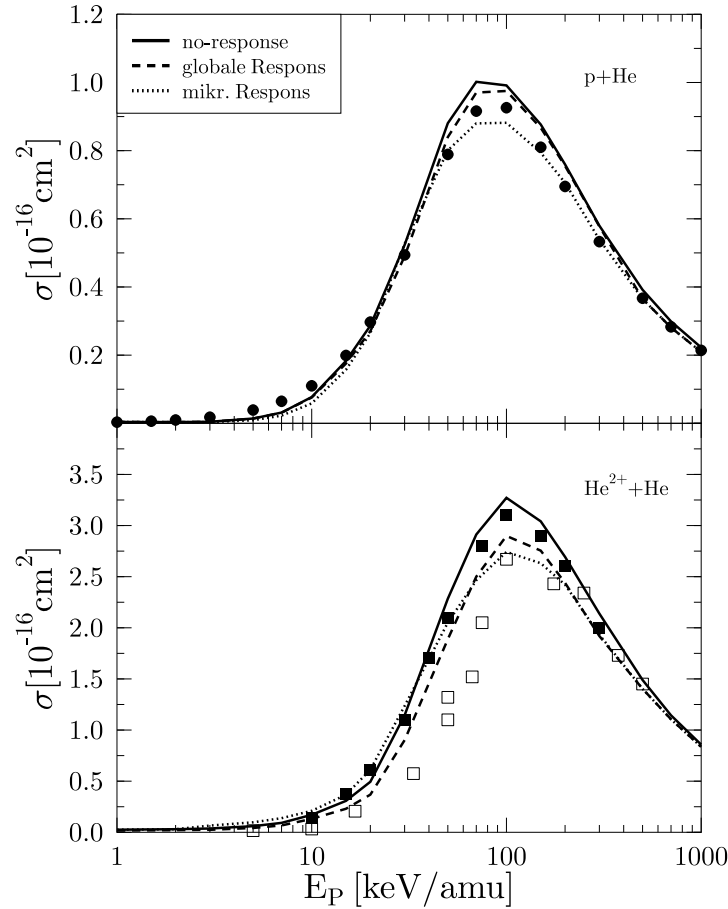


Abb. 6.7: $p - \text{He}$, $\text{He}^{2+} - \text{He}$: Totaler Wirkungsquerschnitt für Nettoionisation als Funktion der Einschussenergie. Rechnung mit mikroskopischer Respons (3.28) und globaler Respons (3.12) im Vergleich zur no-response Näherung. Experiment: (\bullet) [187, 188] (Unsicherheit 8.7 %); (\blacksquare) [189] (Unsicherheit 80 %); (\square) [190, 191] (Unsicherheit 15 %).

Responseeffekte sichtbar. Während sich der Nettoverlust für das System $p - \text{He}$ bei kleinen Stoßenergien verringert, vergrößert er sich für das System $\text{He}^{2+} - \text{He}$ im Vergleich zur no-response Rechnung bei Berücksichtigung der mikroskopischen Respons (Abb. 6.5). Ursache hierfür sind die durch die veränderten Abschirmungsverhältnisse modifizierten Kopplungsschemata der Reaktionskanäle, deren Verschiebungen durch das Responspotential mit Hilfe der dynamischen Korrelationsdiagramme aus dem vorhergehenden Abschnitt erklärt werden konnten.

Ganz analog zur Veränderung des Nettoverlustes verhält sich der Nettoeinfang für die mikroskopische Respons in beiden Stoßsystemen (Abb. 6.6), wird doch der Verlust für kleine Einschussenergien vom Einfang dominiert. Für $\text{He}^{2+} - \text{He}$ findet man so eine wesentlich bessere Übereinstimmung mit den experimentellen Daten, während für $p - \text{He}$ das Experiment bei Berücksichtigung der Respons unterschätzt wird.

Die totalen Wirkungsquerschnitte für Nettoionisation (Abb. 6.7) werden für beide Systeme im Maximum durch das mikroskopische Responspotential verringert, was durch die Verminderung der elektronischen Abschirmung durch die Respons der elektronischen

Dichte und die damit unmittelbar verbundene stärkere Bindung des aktiven Elektrons erklärt werden kann. Der Vergleich mit dem Experiment für Ionisation liefert wiederum für $p - \text{He}$ bei Berücksichtigung des mikroskopischen Responspotentials eine leichte Unterschätzung, wohingegen für $\text{He}^{2+} - \text{He}$ eine recht gute Übereinstimmung erzielt wird.

Die Auswirkungen des globalen Responssmodells weisen für das jeweilige Stoßsystem im Vergleich zur no-response Näherung sowohl für Verlust als auch für Einfang und Ionisation in die gleiche Richtung wie die mikroskopische Darstellung, sind jedoch wesentlich schwächer. Ursache ist einerseits die Konstruktion des Modells, erst ab zweifachem Verlust wirksam zu werden, und andererseits die Tatsache, dass Polarisierungseffekte durch dieses Modell nicht erfasst werden können. Darüber hinaus erfüllt das Potential der globalen Responss (3.12) nicht die Poisson-Gleichung (3.21) und ist in diesem Sinne lediglich als Modellierung zu betrachten. Geht man davon aus, dass durch das mikroskopische Responspotential sowohl statische als auch dynamische Abschirmungs- und Austausch-effekte vollständig dargestellt werden, so können die auftretenden Diskrepanzen zu den experimentellen Daten nur auf Korrelationseffekte zurückgeführt werden. Bemerkenswert ist dabei, dass die Auswirkungen auf die Wirkungsquerschnitte für Einfang stärker sind als für die Ionisation und die Einfangwirkungsquerschnitte sehr sensitiv bezüglich der energetischen Lagen der ausschlaggebenden molekularen Kopplungen reagieren.

Zur genaueren Untersuchung werden im folgenden Abschnitt für beide Stoßsysteme die totalen Wirkungsquerschnitte für die möglichen Zweiteilchen-Übergänge (6.1a-e) betrachtet. Dabei ist zu beachten, dass deren Auswertung nicht über explizite Dichtefunktionale vorgenommen werden kann und erst durch die Näherung (2.87), also die Darstellung des Anfangs- und Endzustandes des Vielelektronenproblems als einzelne Slater-Determinante, ermöglicht wird.

6.2.3 Zweiteilchen-Wirkungsquerschnitte

Die Abb. 6.8 bis 6.12 zeigen die totalen Wirkungsquerschnitte für Einfacheinfang (6.1a), Einfachionisation (6.1c), Zweifachionisation (6.1d), Transferionisation (6.1e) und Zweifacheinfang (6.1b) für die Stoßsysteme $p - \text{He}$ und $\text{He}^{2+} - \text{He}$, wobei der Zweifacheinfang lediglich für $\text{He}^{2+} - \text{He}$ physikalisch sinnvoll ist (die Möglichkeit der Bildung eines H^- -Ions soll aufgrund der sehr geringen Wahrscheinlichkeit nicht berücksichtigt werden). Es werden jeweils die Ergebnisse der no-response Näherung und der Rechnung mit mikroskopischer Responss mit anderen theoretischen Ansätzen und den verfügbaren experimentellen Daten verglichen. Für alle Wirkungsquerschnitte gilt bei beiden Stoßsystemen, dass no-response Näherung und mikroskopische Responss für große Einschussenergien übereinstimmen.

Form und Maximum des experimentellen Wirkungsquerschnittes für Einfacheinfang werden für $p - \text{He}$ Stöße schon durch die no-response Rechnung sehr gut wiedergegeben (Abb. 6.8). Die mikroskopische Responss führt ab $E_P \approx 70 \text{ keV/amu}$ zu einer Unterschätzung des Experiments. Die TDHF-Rechnung von Stich et al. [23] (Entwicklung nach Hylleraas-Funktionen) zeigt ein ähnliches Verhalten, wobei beachtet werden muss, dass mit dieser Rechnung keine Ionisationsanteile beschrieben werden können. In der Rechnung von Slim et al. [192, 193] wird eine zweizentrierte AO-Entwicklung aus Pseudozuständen, bestehend aus 22 Zuständen am Target und 29 Zuständen am Projektil,

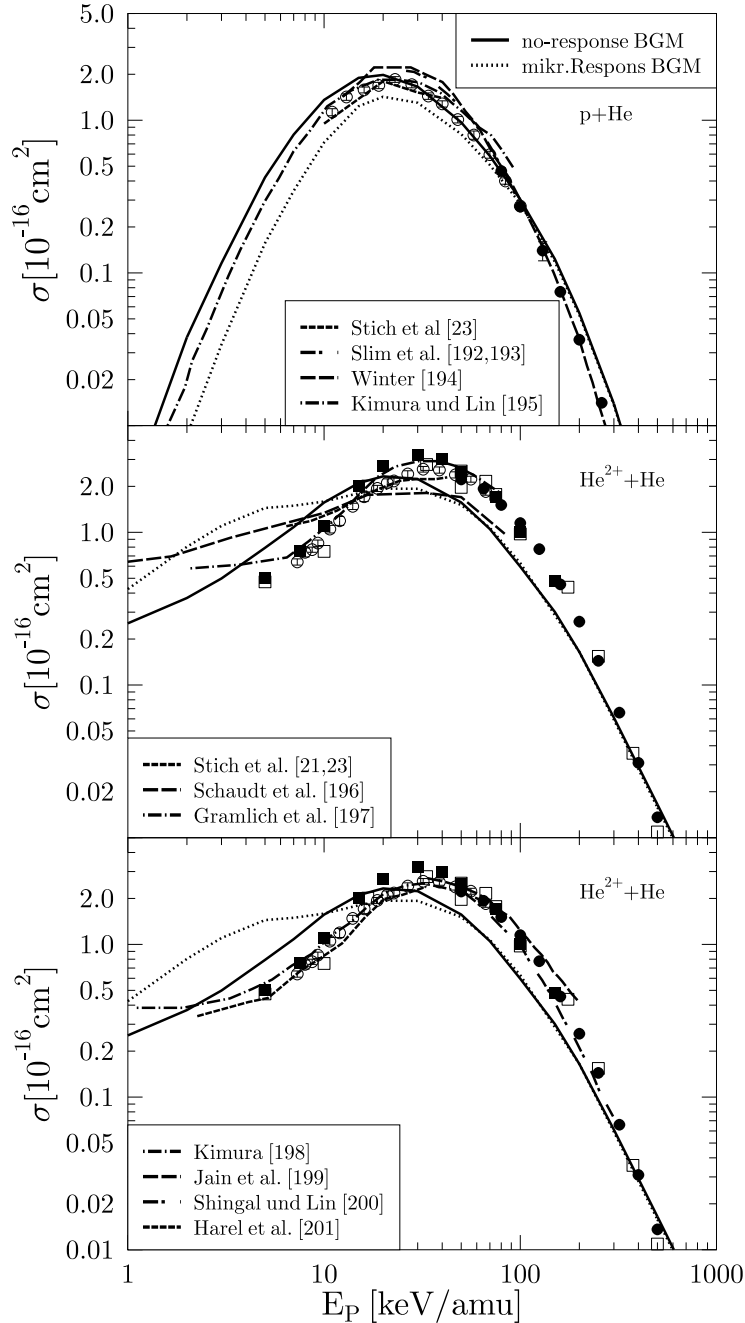


Abb. 6.8: $p - \text{He}$, $\text{He}^{2+} - \text{He}$: Totaler Wirkungsquerschnitt für Einfacheinfang als Funktion der Einschussenergie. Rechnung mit mikroskopischer Respons (3.28) im Vergleich zur no-response Näherung und anderen Theorien: Stich et al. [21, 23]; Slim et al. [192, 193]; Winter [194]; Kimura und Lin [195]; Schaudt et al. [196]; Gramlich et al. [197]; Kimura [198]; Jain et al. [199]; Shingal und Lin [200]; Harel et al. [201]. Experiment: (■) [189] (Unsicherheit 13 %); (□) [190, 191] (Unsicherheit 15 %); (●) [202]; (○) [203].

verwendet. Bei $E_P = 20$ keV/amu überschätzt diese Rechnung die experimentellen Werte leicht. Da der Austausch explizit berücksichtigt wird, können die Diskrepanzen zur BGM-Rechnung mit Respons, die das Experiment leicht unterschätzt, nur auf Defizite in der Beschreibung der Ionisation und der molekularen Zwischenzustände durch die verwendeten Pseudoorbitale zurückgeführt werden. Noch größere Diskrepanzen ergeben sich zur Rechnung von Winter [194], bei der eine Basis aus 51 Sturmischen Funktionen verwendet worden ist. Dabei wurde allerdings der Austausch nicht berücksichtigt. Am besten werden die experimentellen Daten im gesamten Energiebereich durch die Rechnung von Kimura und Lin [195] beschrieben, die eine Kombination aus AO- und MO-Entwicklung darstellt. Da darin Korrelationseffekte explizit enthalten sind, liegt es nahe zu vermuten, dass sie die Ursache für die Diskrepanz zur BGM-Rechnung mit Respons darstellen.

Für das Stoßsystem He²⁺ – He ergibt sich bei Verwendung des mikroskopischen Responspotentials eine Vergrößerung des Wirkungsquerschnittes für Einfacheinfang bei kleinen Einschussenergien im Vergleich zur no-response Rechnung (Abb. 6.8). Gleichzeitig führt dies dazu, dass unterhalb $E_P \approx 10$ keV/amu die experimentellen Daten überschätzt werden und das Maximum des Wirkungsquerschnittes zu kleinen Energien hin verschoben wird. Die TDHF-Rechnungen von Stich et al. [21, 23] (Entwicklung nach Hylleraas-Funktionen) und Schaudt et al. [196] (Lösung mit Hilfe der finiten Differenzenmethode) zeigen ein ähnliches Verhalten. Da die korrelierten Ansätze von Gramlich et al. [197] (Entwicklung nach Pseudozuständen aus GTO's¹) und Kimura [198] (MO-Entwicklung) eine wesentlich bessere Beschreibung des Experiments liefern, müssen für die Differenzen zur BGM-Rechnung mit Respons wieder Korrelationseffekte verantwortlich gemacht werden. Auch die IPM-Rechnungen von Jain et al. [199] und Shingal und Lin [200] geben den experimentellen Verlauf des Wirkungsquerschnittes für Einfacheinfang sehr gut wieder. Hier wurden jeweils insgesamt aus 19 bzw. 79 Zuständen bestehende zweizentrierte AO-Entwicklungen verwendet, die zur Beschreibung der Ionisation mit Pseudozuständen an beiden Zentren ergänzt worden sind. Da jedoch der Austausch durch ein effektives Potential modelliert wird und die verwendete Unterscheidung nach passivem und aktivem Elektron künstlich ist, ist unklar, was die physikalische Ursache für die bessere Beschreibung des Experiments darstellt. Ähnliches gilt für das OEDM²-Modell von Harel et al. [201], das das Experiment ebenfalls recht gut wiedergibt.

Der totale Wirkungsquerschnitt für Einfachionisation im Stoßsystem p – He wird durch die BGM-Rechnung mit Respons über den gesamten Energiebereich hinweg nahezu perfekt beschrieben, wohingegen die no-response Näherung für kleine Energien eine leichte Überschätzung ergibt (Abb. 6.9). Eine weitaus schlechtere Übereinstimmung zeigt die Rechnung von Chen und Msezane [204]. Hier wurde eine einzentrierte Entwicklung aus Pseudozuständen verwendet und das Heliumtarget durch ein effektives Potential modelliert. Für große Einschussenergien ergibt diese Rechnung eine gute Übereinstimmung mit dem Experiment, ab $E_P = 100$ keV/amu zeigen sich die Schwächen der verwendeten Beschreibung. Wesentlich bessere Resultate liefern die bereits erwähnten Rechnungen von Winter [194, 205] (Basis aus 51 Sturmischen Funktionen), Slim et al. [193] (zweizentrierte AO-Entwicklung aus Pseudozuständen, 22 Zuständen am Target und 29 Zuständen am Projektil) und Anton et al. [206] (kombinierter AO-MO-Ansatz), wobei letztere für

¹GTO: Gaussian-type Orbitals

²OEDM: One-electron diatomic molecular orbitals

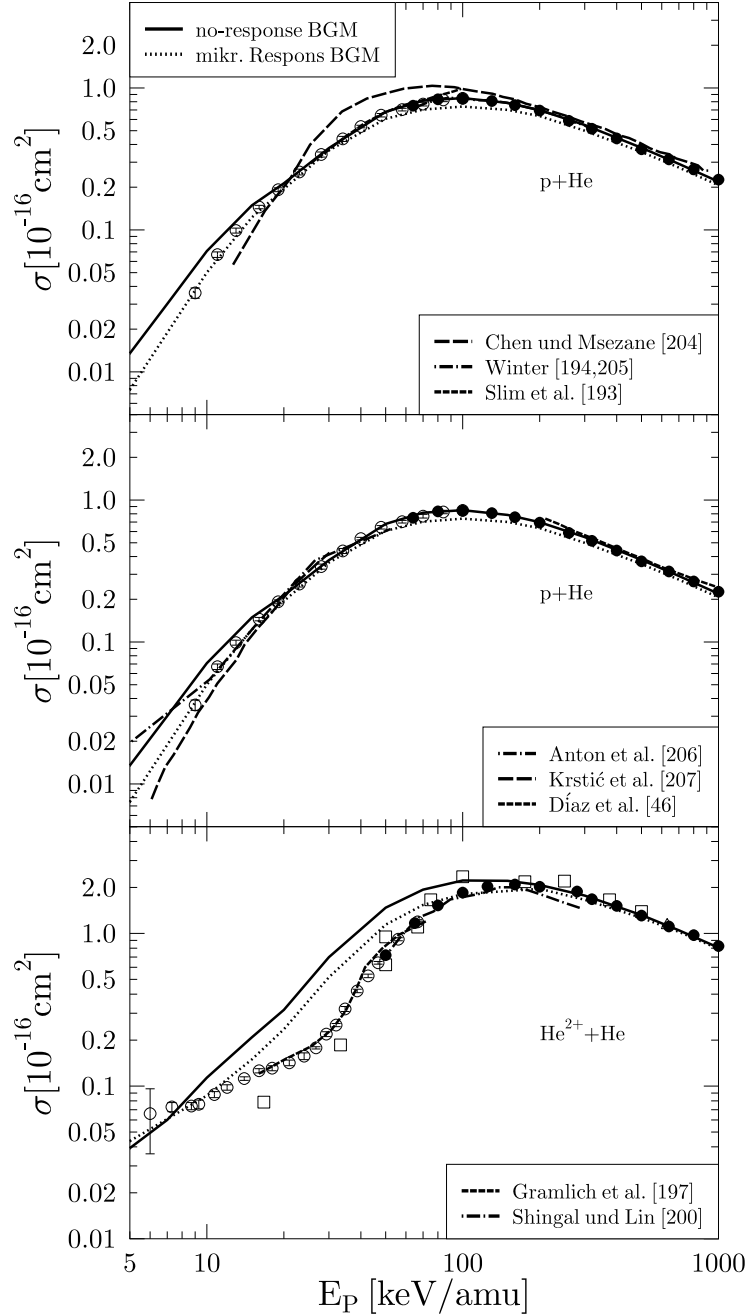


Abb. 6.9: $p - \text{He}$, $\text{He}^{2+} - \text{He}$: Totaler Wirkungsquerschnitt für Einfachionisation als Funktion der Einschussenergie. Rechnung mit mikroskopischer Respons (3.28) im Vergleich zur no-response Näherung und anderen Theorien: Chen und Msezane [204]; Winter [194, 205]; Slim et al. [193]; Anton et al. [206]; Krstić et al. [207]; Díaz et al. [46]; Gramlich et al. [197]; Shingal und Lin [200]. Experiment: (\square) [190, 191] (Unsicherheit 15 %); (\bullet) [202]; (\circ) [203]; (\triangle) [208] (Unsicherheit 8 %).

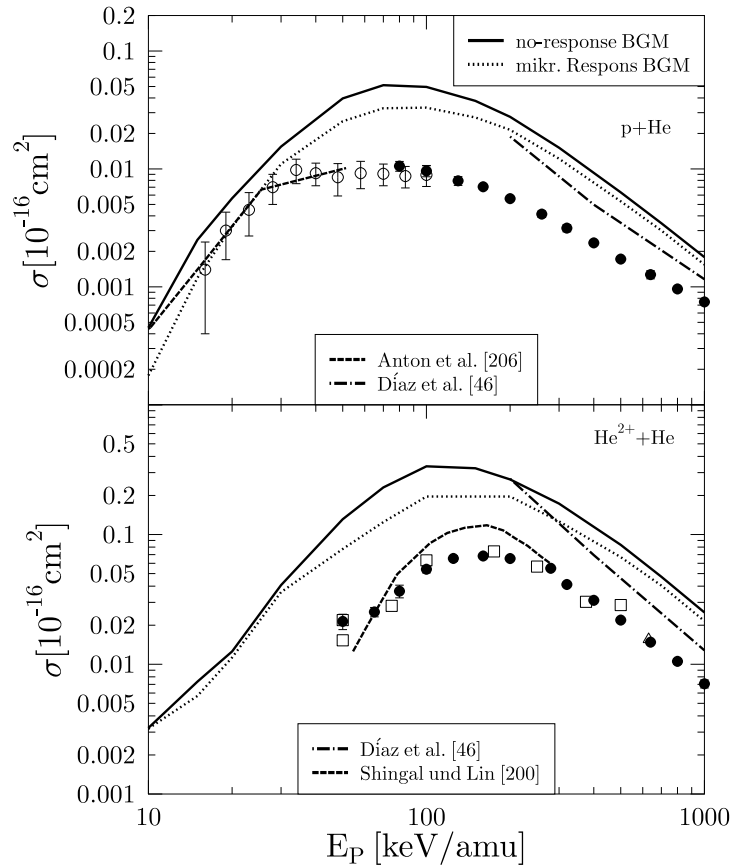


Abb. 6.10: $p - \text{He}$, $\text{He}^{2+} - \text{He}$: Totaler Wirkungsquerschnitt für Zweifachionisation als Funktion der Einschussenergie. Rechnung mit mikroskopischer Respons (3.28) im Vergleich zur no-response Näherung und anderen Theorien: Anton et al. [206]; Díaz et al. [46]; Shingal und Lin [200]. Experiment: (\square) [190,191] (Unsicherheit 15 %); (\bullet) [202]; (\circ) [203]; (\triangle) [208] (Unsicherheit 8 %).

kleine Einschussenergien eine leichte Überhöhung liefert. In diesem Energiebereich reproduziert auch die nur für sehr langsame Stöße anwendbare, korrelierte MEHC-Rechnung von Krstić et al. [207] sehr gut das Experiment, wie auch im Bereich großer Einschussenergien die CFCA-Rechnung von Díaz et al. [46], bei der dynamische Korrelationseffekte explizit vernachlässigt werden.

Für Einfachionisation im Stoßsystem $\text{He}^{2+} - \text{He}$ ergibt sich für die BGM-Rechnung mit Respons eine geringe Verkleinerung des totalen Wirkungsquerschnittes für mittlere Einschussenergien (Abb. 6.9). Hier werden die experimentellen Daten etwas überschätzt, während für kleine und große Energien eine sehr gute Übereinstimmung erzielt wird. Sowohl die korrelierte Rechnung von Gramlich et al. [197] (Entwicklung nach Pseudozuständen aus GTO's) als auch der Modellpotential-Ansatz von Shingal und Lin [200] zeigen eine bessere Übereinstimmung. Während der Vergleich mit Gramlich et al. [197] auf das Fehlen von Korrelationseffekten in der BGM-Rechnung hinweist, ist die Ursache für die Diskrepanz zur Modellpotential-Rechnung von Shingal und Lin [200] unklar.

In Abb. 6.10 sind die totalen Wirkungsquerschnitte für Zweifachionisation in den Sy-

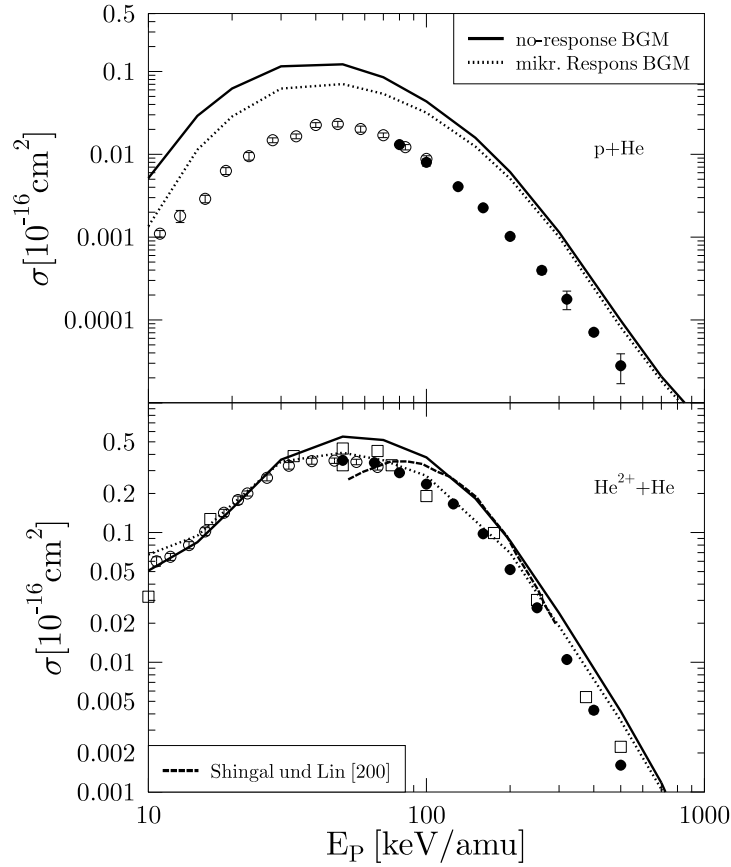


Abb. 6.11: p – He, He²⁺ – He: Totaler Wirkungsquerschnitt für Transferionisation als Funktion der Einschussenergie. Rechnung mit mikroskopischer Respons (3.28) im Vergleich zur no-response Näherung und anderen Theorien: Shingal und Lin [200]. Experiment: (\square) [190, 191] (Unsicherheit 15 %); (\bullet) [202]; (\circ) [203].

stemem p – He und He²⁺ – He dargestellt. In beiden Fällen führt die Verwendung des mikroskopischen Responspotentials zu einer Verminderung des Querschnittes im Vergleich zur no-response Näherung über den gesamten Energiebereich hinweg. Das Maximum beider Wirkungsquerschnitte wird dennoch im Vergleich zum Experiment erheblich überschätzt. Eine wesentliche Ursache dafür ist die Näherung (2.87), also die Darstellung des Anfangs- und Endzustandes des Vielelektronenproblems als einzelne Slater-Determinante und die damit unmittelbar verbundenen unphysikalischen Zusammenhänge (2.91a-c). Für Zweifachionisation im System p – He ergibt der kombinierte AO-MO-Ansatz von Anton et al. [206] ähnliche Resultate wie die BGM-Rechnung mit Respons. Lediglich für $E_P \approx 50$ keV/amu wird das Experiment besser wiedergegeben. Die Ursache dafür ist unklar, da nicht bekannt ist, wie in dieser Rechnung die Wahrscheinlichkeit für Zweifachionisation extrahiert wurde. Der Vergleich mit der CFCA-Rechnung von Díaz et al. [46] bei großen Einschussenergien zeigt den Einfluss statischer Korrelationseffekte. Für die restliche Diskrepanz zwischen dieser Rechnung und den experimentellen Daten müssen folglich dynamische Korrelationseffekte verantwortlich gemacht werden. Ein sehr ähnliches Bild zeigt sich bezüglich der CFCA-Rechnung [46] für den totalen Wirkungs-

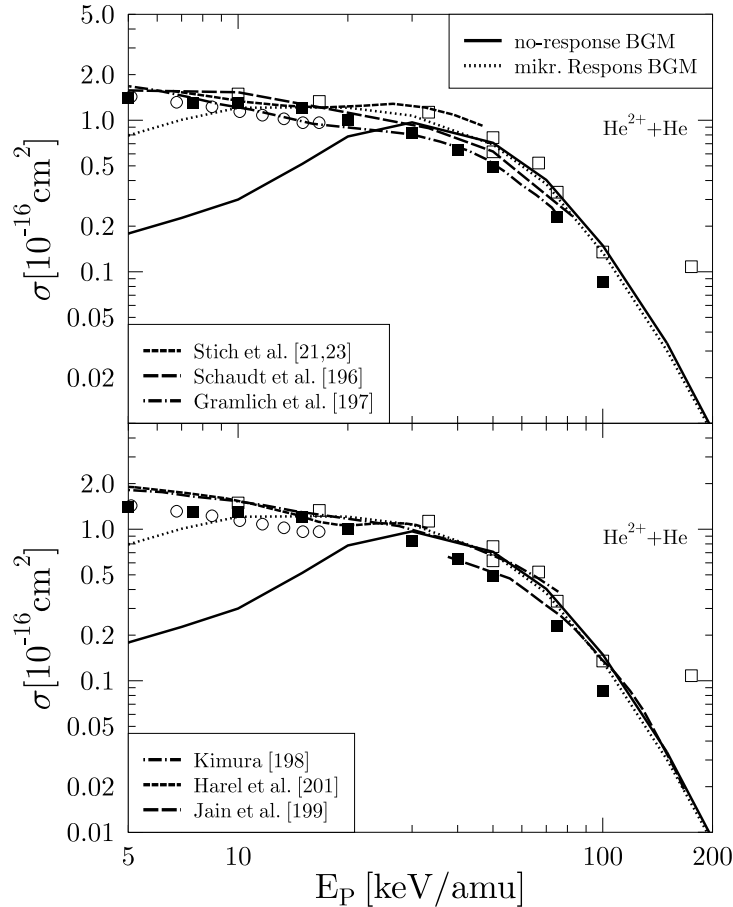


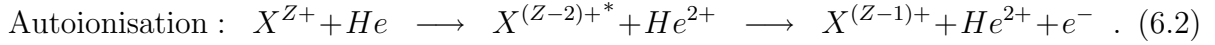
Abb. 6.12: He²⁺ – He: Totaler Wirkungsquerschnitt für Zweifacheinfang als Funktion der Einschussenergie. Rechnung mit mikroskopischer Respons (3.28) im Vergleich zur no-response Näherung und anderen Theorien: Stich et al. [21, 23]; Schaudt et al. [196]; Gramlich et al. [197]; Kimura [198]; Harel et al. [201]; Jain et al. [199]. Experiment: (■) [189] (Unsicherheit 15 %); (□) [190, 191] (Unsicherheit 15 %); (○) [209].

querschnitt für Zweifachionisation im System He²⁺ – He. Die Modellpotential-Rechnung von Shingal und Lin [200] reproduziert das Maximum des experimentellen Querschnittes sehr gut, jedoch ist wiederum die genaue Ursache hierfür unklar.

Die zum Prozess der Transferionisation gehörigen totalen Wirkungsquerschnitte werden für beide Stoßsysteme p – He und He²⁺ – He in Form und Lage des Maximums durch die BGM-Rechnung mit Respons sehr gut wiedergegeben (Abb. 6.11). Während die Übereinstimmung für He²⁺ – He über den gesamten Energiebereich hinweg sehr gut ist, überschätzt die BGM-Kurve das Experiment im gesamten Bereich. Die Modellpotential-Rechnung von Shingal und Lin [200] liegt für das System He²⁺ – He sehr ähnlich zur BGM-Rechnung in der no-response Näherung, fällt jedoch für Einschussenergien $E_P < 80$ keV/amu zu steil ab. Die Ursachen für beide Sachverhalte, die Diskrepanz für p – He und die gute Übereinstimmung für He²⁺ – He, sind an dieser Stelle unklar, da beide Auswertungen mit den Einschränkungen der Näherung (2.87) behaftet sind.

Wie bereits zu Beginn dieses Abschnitts erwähnt, ist Zweifacheinfang lediglich für das

Stoßsystem $\text{He}^{2+} - \text{He}$ möglich. Bei Betrachtung dieses Prozesses muss beachtet werden, dass zweifacher Einfang in angeregte Zustände des Projektils durch Autoionisation zur Transferionisation beitragen kann:



Da jedoch der zugehörige Wirkungsquerschnitt für einen solchen zweifachen Einfang in angeregte Projektilzustände sehr viel kleiner ist als der Wirkungsquerschnitt für Einfang in den Grundzustand, soll die Autoionisation im Folgenden unberücksichtigt bleiben. Den entsprechenden totalen Wirkungsquerschnitt für Zweifacheinfang zeigt Abb. 6.12. Im Vergleich zur no-response Näherung führt das mikroskopische Resonspotential zu einer erheblichen Vergrößerung des Wirkungsquerschnittes im Bereich kleiner Einschussenergien. Die BGM-Kurve liegt dann sehr ähnlich zu den Resultaten der beiden TDHF-Rechnungen von Stich et al. [21,23] (Entwicklung nach Hylleraas-Funktionen) und Schaudt et al. [196] (Lösung mit Hilfe der finiten Differenzenmethode). Gleiches gilt für die korrelierten Ansätze von Gramlich et al. [197] (Entwicklung nach Pseudozuständen aus GTO's) und Kimura [198] (MO-Entwicklung), sowie das OEDM-Modell von Harel et al. [201]. Die IPM-Rechnung von Jain et al. [199] (aus 19 Zuständen bestehende zweizentrierte AO-Entwicklung mit Pseudoorbitalen) zeigt ab $E_P \approx 80 \text{ keV/amu}$ einen etwas zu flachen Verlauf. Da der zweifache Einfang für das homonukleare Stoßsystem $\text{He}^{2+} - \text{He}$ im adiabatischen Limes ein resonanter Prozess ist, ist für jede Einteilchenrechnung bei kleinen Stoßenergien mit einer Abnahme des Wirkungsquerschnittes zu rechnen, wie es für die BGM-Rechnung bei $E_P \approx 5 \text{ keV/amu}$ sichtbar wird. Lediglich explizite Zweiteilchenbeschreibungen bzw. Beschreibungen, bei denen der volle Vielteilchencharakter der Wellenfunktion erfasst wird, können das experimentell beobachtete ansteigende Verhalten reproduzieren. Im Sinne der DFT ist hierzu ein zeitabhängiges Korrelationsfunktional sowie der funktionale Zusammenhang für die Auswertung der Zweifacheinfangwahrscheinlichkeit, d.h. eine Aufgabe der Näherung (2.87), notwendig.

6.2.4 Betrachtung verschiedener Multinomialauswertungen in $p - \text{He}$ Stößen

Neben den unphysikalischen Zusammenhängen (2.91a-c) besteht ein Problem bei der Auswertung von Vielteilchen-Übergangswahrscheinlichkeiten im IPM durch die Näherung (2.87) im Auftreten von unphysikalischen Wahrscheinlichkeiten für Vielfacheinfang beispielsweise für Stöße mit Protonen. Dies ist unvermeidlich, wird dadurch doch die Erhaltung der Gesamtwahrscheinlichkeit gewährleistet. Um solche Wahrscheinlichkeiten für Vielfacheinfang zu unterdrücken, kann man z.B., wie in [210] angewendet, eine neue Wahrscheinlichkeit für Einfacheinfang definieren

$$\tilde{P}_{1P} = 1 - (1 - p_P)^N , \quad (6.3)$$

durch die Vielfacheinfang vermieden wird. Allerdings ist fraglich, ob \tilde{P}_{1P} wirklich als Wahrscheinlichkeit für Einfacheinfang interpretiert werden kann, steht der Ausdruck (6.3) doch eigentlich für das Komplement einer Wahrscheinlichkeit, das Elektron nicht N -mal einzufangen. Hier soll deshalb die in [211] vorgeschlagene Alternative angewendet

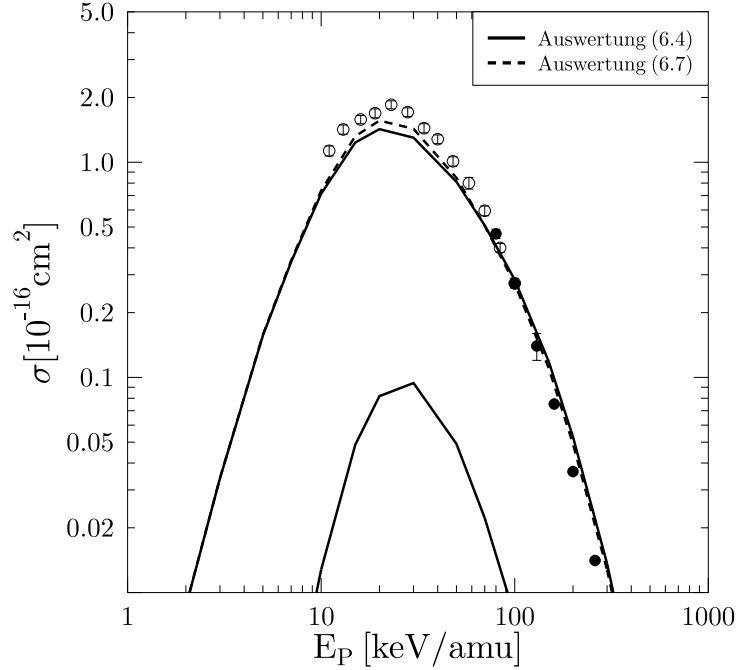


Abb. 6.13: p – He: Totaler Wirkungsquerschnitt für Einfacheinfang als Funktion der Einschussenergie. Rechnung mit mikroskopischer Respons (3.28), Vergleich der Multinomialauswertungen (6.4) und (6.7). Untere durchgezogene Kurve: unphysikalischer Zweifacheinfang bei Verwendung der Multinomialauswertung (6.4). Experiment: (●) [202]; (○) [203].

werden. Um aus den Einteilchen-Übergangswahrscheinlichkeiten Vielteilchen-Übergangswahrscheinlichkeiten $P_{m,n}$ für den Einfang von m Elektronen und die gleichzeitige Ionisation von n Elektronen bei insgesamt N äquivalenten Elektronen zu berechnen, können die Gleichungen (2.88a-e) in der allgemeineren Form

$$P_{m,n} = \frac{N!}{m! n! (N - m - n)!} p_P^m p_I^n p_T^{N-m-n} \quad (6.4)$$

zusammengefasst werden. Definiert man M als die Zahl der Elektronen, die zur Neutralisation des Projektils notwendig sind (für Protonen $M = 1$) und betrachtet $\tilde{p}_P = N p_P$ als die durchschnittliche Anzahl eingefangener Elektronen, so kann die Wahrscheinlichkeit m (und höchstens M) Elektronen einzufangen mit Hilfe der neuen Einteilchen-Wahrscheinlichkeit \tilde{p}_P/M als

$$\tilde{P}_m = \frac{M!}{m! (M - m)!} \left(\frac{\tilde{p}_P}{M} \right)^m \left(1 - \frac{\tilde{p}_P}{M} \right)^{M-m} \quad (6.5)$$

geschrieben werden. Multipliziert mit der Wahrscheinlichkeit, n von N Elektronen zu ionisieren

$$\tilde{P}_n = \frac{N!}{n! (N - n)!} p_I^n (1 - p_I)^{N-n} \quad (6.6)$$

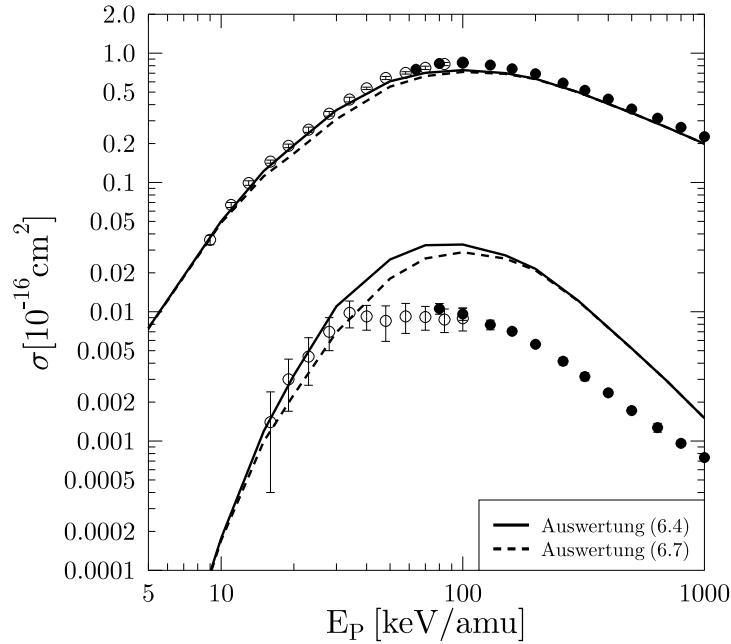


Abb. 6.14: p – He: Totale Wirkungsquerschnitte für Einfachionisation (obere Kurven) und Zweifachionisation (untere Kurven) als Funktionen der Einschussenergie. Rechnung mit mikroskopischer Respons (3.28), Vergleich der Multinomialauswertungen (6.4) und (6.7). Experiment: (●) [202]; (○) [203].

bleibt dann als modifizierte Wahrscheinlichkeit $\tilde{P}_{m,n}$ für den Einfang von m Elektronen und die gleichzeitige Ionisation von n Elektronen

$$\tilde{P}_{m,n} = \tilde{P}_m \tilde{P}_n . \quad (6.7)$$

Offensichtlich ist dies nur sinnvoll für $M < N$ bzw. solange $\frac{N_{PP}}{M} < 1$ ist. In dieser modifizierten Konstruktion zur Berechnung von Vielteilchen-Übergangswahrscheinlichkeiten wird der unphysikalische Anteil der Wahrscheinlichkeiten für vielfachen Einfang in die anderen Kanäle umverteilt. Sie soll im Folgenden für die BGM-Rechnungen mit mikroskopischer Respons für das Stoßsystem p – He betrachtet und der ursprünglichen Auswertung gegenübergestellt werden.

Die Abb. 6.13 zeigt den totalen Wirkungsquerschnitt für Einfacheinfang. Zusätzlich ist der in der Auswertung (6.4) auftretende unphysikalische Wirkungsquerschnitt für Zweifacheinfang eingezeichnet. Die Formation eines H^- -Ions ist als spezieller Prozess zu betrachten, der hier nicht näher untersucht werden soll und vernachlässigt werden kann. Man erkennt, dass bei Verwendung der modifizierten Multinomialauswertung (6.7) der Einfacheinfang im Maximum leicht erhöht wird und etwas näher an die experimentellen Werte heranrückt. Die totalen Wirkungsquerschnitte für Einfach- und Zweifachionisation sind in Abb. 6.14 dargestellt. Beide werden ebenfalls bei Verwendung der Auswertung (6.7) gegenüber dem Verfahren (6.4) nur leicht verändert. Am stärksten ist der Einfluss der modifizierten Multinomialauswertung für die Transferionisation (Abb. 6.15). Hier wird der Querschnitt über den gesamten Energiebereich hinweg vergrößert und entfernt sich weiter vom Experiment. Es zeigt sich, dass die grundlegenden Schwächen der Auswer-

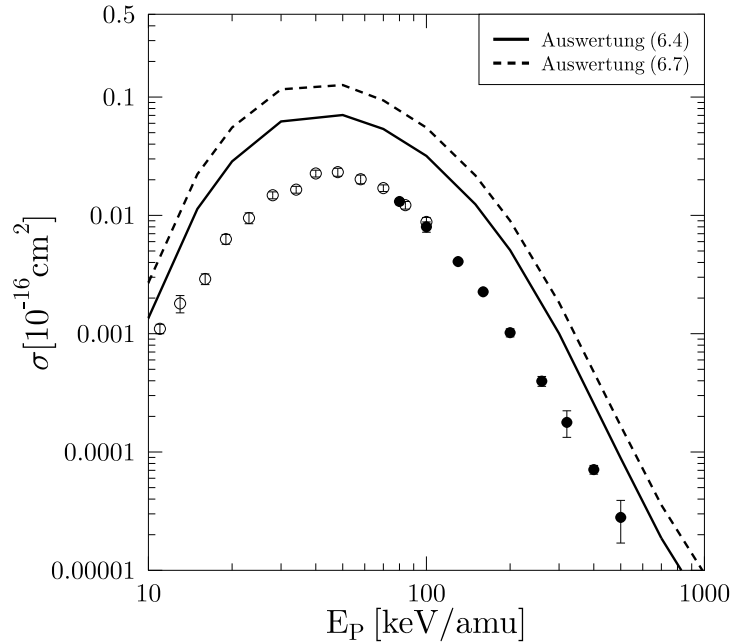


Abb. 6.15: $\text{p} - \text{He}$: Totaler Wirkungsquerschnitt für Transferionisation als Funktion der Einschussenergie. Rechnung mit mikroskopischer Respons (3.28), Vergleich der Multinomialauswertungen (6.4) und (6.7). Experiment: (●) [202]; (○) [203].

tung der Vielteilchen-Übergangswahrscheinlichkeiten im IPM auch durch die modifizierte Multinomialauswertung (6.7) nicht behoben werden können. Es kommt lediglich zu einer Umverteilung und damit zu einer Beseitigung der Wahrscheinlichkeiten für unphysikalischen Vielfacheinfang.

6.3 Vergleich der Stoßsysteme $\text{Li}^{3+} - \text{He}$ und $\text{p} - \text{Li}^+$

Werden Projektil- oder Targetladung verändert, so verschiebt sich die energetische Lage des Eingangskanals des aktiven Elektrons relativ zu den möglichen Einfangkanälen des Projektils, wie bei Betrachtung der dynamischen Korrelationsdiagramme in den Abb. 6.3 und Abb. 6.4 plausibel wird. Als Beispiele sollen in diesem Abschnitt die beiden Stoßsysteme $\text{Li}^{3+} - \text{He}$ und $\text{p} - \text{Li}^+$ in der no-response Näherung und mit mikroskopischem Responspotential betrachtet werden. Alle gezeigten Querschnitte haben gemeinsam, dass Responseffekte bei mittleren und kleinen Einschussenergien auftreten, während für große Stoßenergien no-response Rechnungen und die Rechnung mit Respons übereinstimmen.

Wird im Vergleich zum System $\text{He}^{2+} - \text{He}$ ein Li^{3+} -Ion als Projektil verwendet, so ist im atomaren Limes der Grundzustandskanal des Heliumatoms ($\varepsilon_{\text{He}} = -0,918$ a.u.) energetisch nahezu resonant zur L-Schale des Projektils ($\varepsilon_{\text{Li}^{2+(n=2)}} = -1,125$ a.u.). Folglich ist hier dominant Ladungstransfer in diese Schale zu erwarten.

Den entsprechenden totalen Wirkungsquerschnitt für Einfacheinfang zeigt Abb. 6.16. Eine Berücksichtigung der mikroskopischen Respons führt bei kleinen Einschussenergien zu einer Verminderung des Querschnitts im Vergleich zur no-response Näherung,

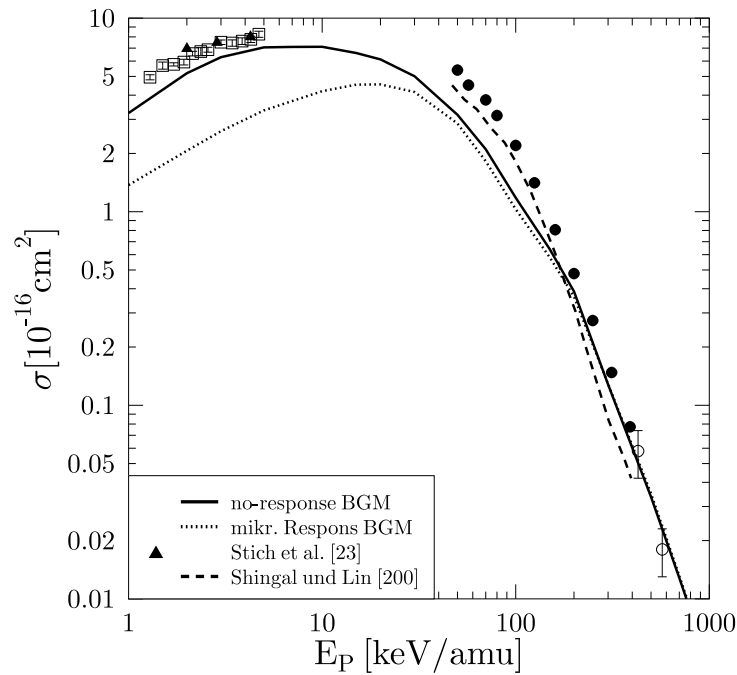


Abb. 6.16: $\text{Li}^{3+} - \text{He}$: Totaler Wirkungsquerschnitt für Einfacheinfang als Funktion der Einschussenergie. Theorie: (\blacktriangle) Stich et al. [23]; Shingal und Lin [200]. Experiment: (\bullet) [202]; (\circ) [212]; (\square) [213].

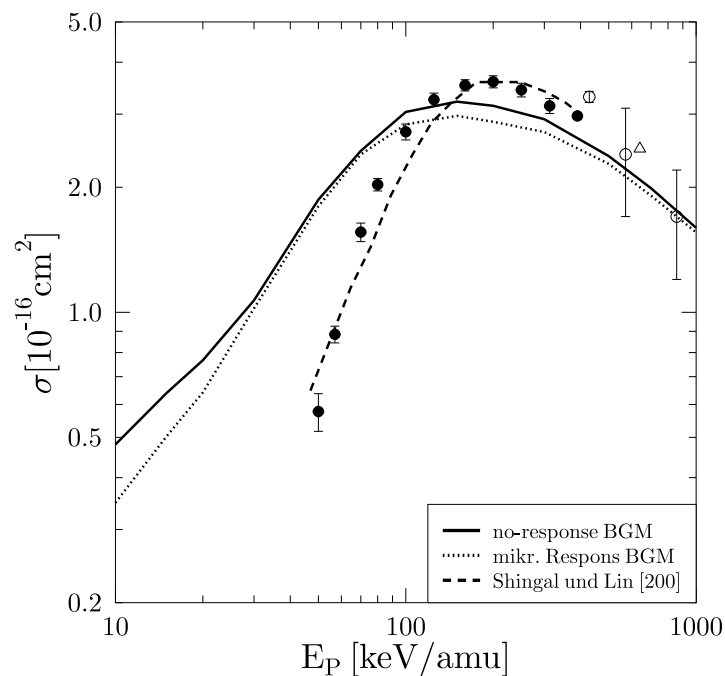


Abb. 6.17: $\text{Li}^{3+} - \text{He}$: Totaler Wirkungsquerschnitt für Einfachionisation als Funktion der Einschussenergie. Theorie: Shingal und Lin [200]. Experiment: (\bullet) [202]; (\triangle) [208] (Unsicherheit 8 %); (\circ) [212].

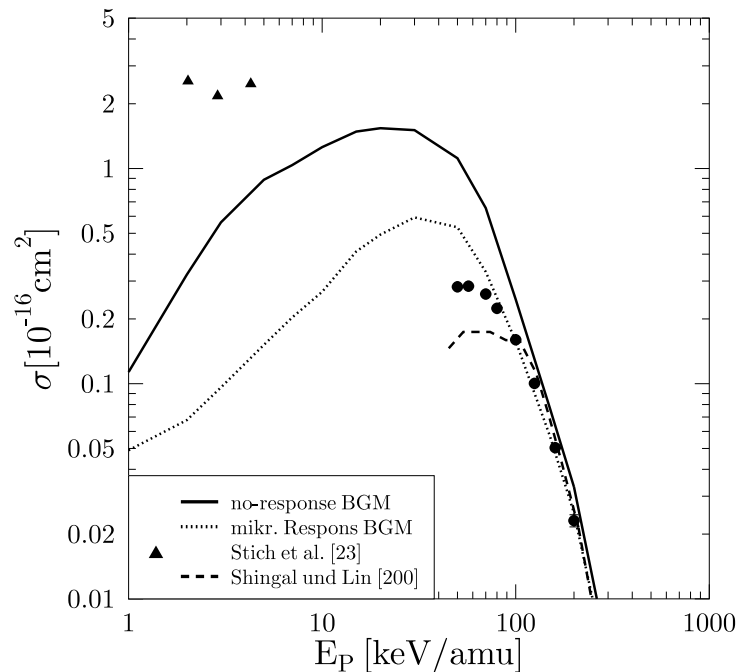


Abb. 6.18: $\text{Li}^{3+} - \text{He}$: Totaler Wirkungsquerschnitt für Zweifacheinfang als Funktion der Einschussenergie. Theorie: (\blacktriangle) Stich et al. [23]; Shingal und Lin [200]. Experiment: (\bullet) [202].

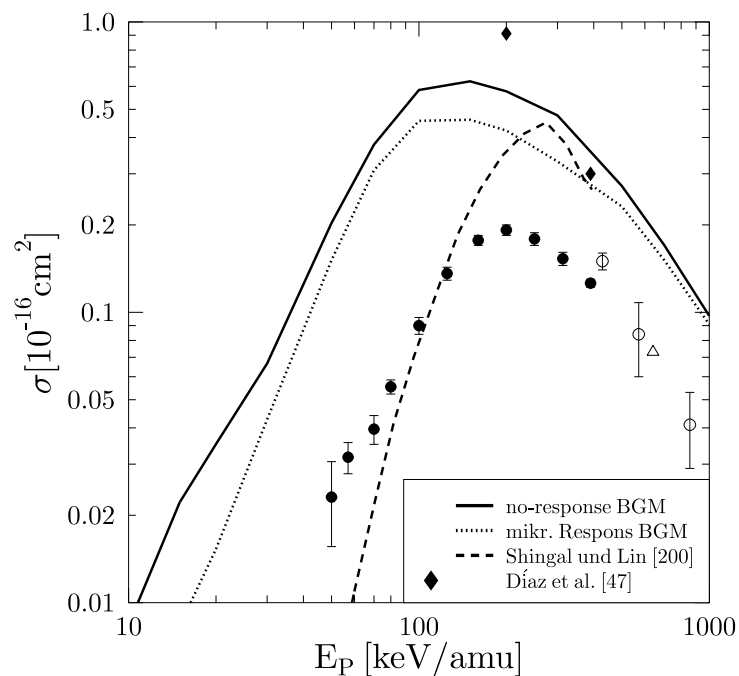


Abb. 6.19: $\text{Li}^{3+} - \text{He}$: Totaler Wirkungsquerschnitt für Zweifachionisation als Funktion der Einschussenergie. Theorie: Shingal und Lin [200]; (\blacklozenge) Díaz et al. [47]. Experiment: (\bullet) [202]; (\triangle) [208] (Unsicherheit 8 %); (\circ) [212].

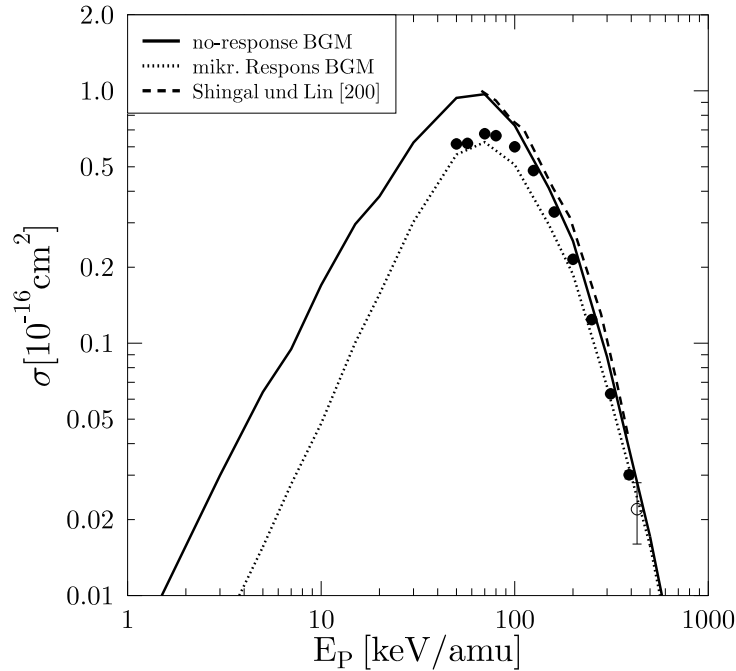


Abb. 6.20: $\text{Li}^{3+} - \text{He}$: Totaler Wirkungsquerschnitt für Transferionisation als Funktion der Einschussenergie. Theorie: Shingal und Lin [200]. Experiment: (●) [202]; (○) [212].

jedoch hat dies zur Konsequenz, dass dann die experimentellen Daten in diesem Bereich stark unterschätzt werden. Für schnelle Stöße reproduziert die BGM-Rechnung das Experiment sehr gut. Die TDHF-Rechnung von Stich et al. [23] (Entwicklung nach Hylleraas-Funktionen) liegt hier nahezu perfekt auf den experimentellen Werten. Das ist ein klarer Widerspruch zu den BGM-Resultaten mit Respons. Eine mögliche Erklärung besteht in der numerisch äußerst anspruchsvollen Aufgabe, durch das nichtorthogonale BGM-Konstruktionsschema, Projektilzustände darzustellen (siehe auch Diskussion in [62,155,186]). Unter Umständen ist es notwendig, zur genaueren Überprüfung der Konvergenz der BGM-Basis bezüglich der Darstellung der L-Schale des Projektils, die Größe der generierenden Basis von $N = 20$ auf $N = 35$ zu erhöhen. Aufgrund der erheblichen Zunahme der Zahl der Matrixelemente für diesen Fall und der damit unmittelbar verbundenen Steigerung der Rechenzeit, konnte dies hier nicht geschehen. Der Vergleich mit der Modellpotential-Rechnung von Shingal und Lin [200] fällt unsystematisch aus, da unklar ist, inwieweit die gemachten Voraussetzungen und Modellannahmen gültig sind. Darüber hinaus fällt diese Rechnung für große Einschussenergien etwas zu steil ab.

Ein ähnliches Bild ergibt sich für den in Abb. 6.17 gezeigten totalen Wirkungsquerschnitt für Einfachionisation, nur wird hier, als direkte Folge der Unterschätzung des Wirkungsquerschnittes für Einfacheinfang durch die BGM-Rechnung, der Querschnitt für kleine Energien überschätzt. Für große Einschussenergien werden die experimentellen Daten sehr gut wiedergegeben.

Analog zum Stoßsystem $\text{He}^{2+} - \text{He}$ fällt der Vergleich mit dem Experiment für die Wirkungsquerschnitte für Zweifacheinfang (Abb. 6.18), Zweifachionisation (Abb. 6.19) und Transferionisation (Abb. 6.20) aus. Während experimenteller Zweifacheinfang und

-ionisation auch von der BGM-Rechnung mit Respons erheblich überschätzt werden, findet man für die Transferionisation eine sehr gute Übereinstimmung. Der Vergleich mit dem Modellpotential-Ansatz von Shingal und Lin [200] ist für alle drei Querschnitte unsystematisch. Die TDHF-Rechnung von Stich et al. [23] (Entwicklung nach Hylleraas-Funktionen) ergibt für den Zweifacheinfang einen stark überhöhten Wirkungsquerschnitt, während das Experiment einen wesentlich flacheren Verlauf andeutet. Für die Zweifachionisation wird für große Einschussenergien im Vergleich zum Experiment und zur CFCA-Rechnung von Díaz et al. [47] der Einfluss dynamischer und statischer Korrelationseffekte deutlich.

Zusammenfassend muss für das Stoßsystem $\text{Li}^{3+} - \text{He}$ gesagt werden, dass eine Überprüfung der Konvergenz der verwendeten BGM-Basis notwendig ist, um die berechneten Wirkungsquerschnitte zu bestätigen. Darüber hinaus wären experimentelle Messungen im Bereich kleiner Stoßenergien für Zweifacheinfang und Transferionisation sehr hilfreich, um den weiteren Verlauf der bereits vorhandenen Wirkungsquerschnitte fortzuführen und den Vergleich mit den theoretischen Rechnungen zu ermöglichen.

Wird im Vergleich zum System $\text{p} - \text{He}$ ein Li^+ -Ion als Target verwendet, so kommt es bei Betrachtung des atomaren Limes zu einer vergrößerten energetischen Separation der Grundzustandskanäle von Projektil ($\varepsilon_{\text{H}} = -0,5$ a.u.) und Target ($\varepsilon_{\text{He}} = -0,918$ a.u., $\varepsilon_{\text{Li}^+} = -2,792$ a.u.) (siehe auch Tab. 5.1). Hier ist also genau wie für $\text{p} - \text{He}$ Stöße dominant mit Ladungstransfer in den Grundzustand zu rechnen. Ganz analog wie im System $\text{p} - \text{He}$ wird bei Berücksichtigung des mikroskopischen Responspotentials eine Schwächung der zugehörigen energetischen Kopplung durch die veränderten Abschirmungsverhältnisse erwartet.

Die totalen Wirkungsquerschnitte für Einfachverlust, -einfang und -ionisation berechnet in der no-response Näherung und mit mikroskopischem Responspotential, sowie den Vergleich mit den verfügbaren experimentellen Daten und anderen theoretischen Ansätzen zeigt Abb. 6.21. Aufgrund der größeren Targetladung und der damit verbundenen stärkeren Bindung der Elektronen sind im Vergleich zu den entsprechenden Querschnitten im System $\text{p} - \text{He}$ die totalen Wirkungsquerschnitte für $\text{p} - \text{Li}^+$ Stöße kleiner und ihre Maxima zu größeren Einschussenergien hin verschoben. In der POHCE³-Rechnung von Ford et al. [214] wird eine Basis, bestehend aus 29 am Target zentrierten Funktionen, in der einige Pseudozustände zur Beschreibung des Kontinuums enthalten sind, und einem Projektilorbital zur Beschreibung des Einfangs verwendet. Der Ansatz von Kuang [215] stellt eine Zwei-Zustands-Rechnung dar, in der ein effektives Modellpotential benutzt wird. Ionisation kann folglich nicht beschrieben werden. Wie zu erwarten war, führt das mikroskopische Responspotential im Vergleich zur no-response Näherung zu einer Verminderung aller drei Wirkungsquerschnitte. Für den Einfachverlust ergibt sich dabei eine sehr gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Auch die POHCE-Rechnung von Ford et al. [214] verläuft nur leicht unterhalb der BGM-Ergebnisse. Der Einfacheinfang wird hingegen im gesamten Verlauf schon von der no-response Rechnung unterschätzt. Durch das mikroskopische Responspotential wird diese Diskrepanz noch leicht vergrößert. Die POHCE-Rechnung entspricht den BGM-Ergebnissen bei großen Einschussenergien, liegt im Maximum des Querschnitts jedoch etwas höher. Der Ansatz von Kuang [215] repro-

³POHCE: Perturbative One-and-a-Half-Centre Expansion

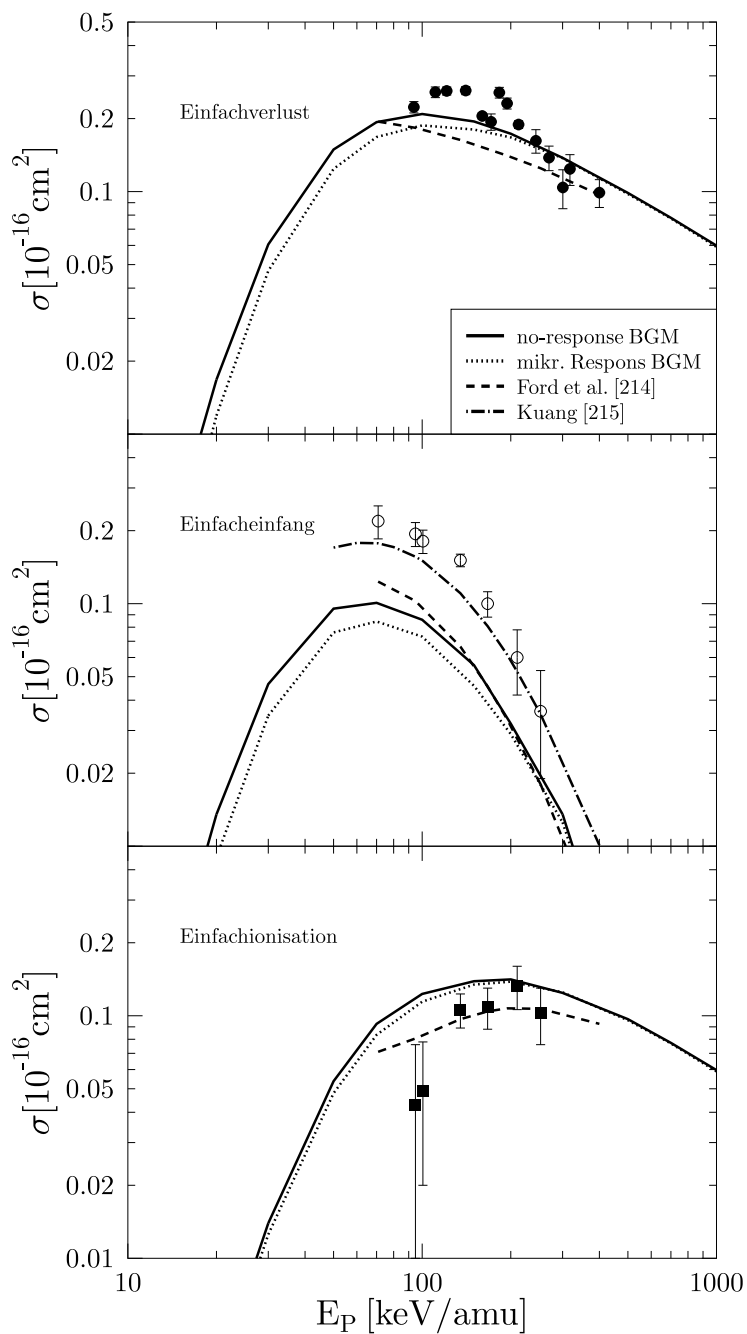


Abb. 6.21: $p - \text{Li}^+$: Totale Wirkungsquerschnitte für Einfachverlust, Einfacheinfang und Einfachionisation als Funktionen der Einschussenergie. Theorie: Ford et al. [214]; Kuang [215]. Experiment: ($\bullet, \circ, \blacksquare$) [216].

duziert den experimentellen Verlauf für Einfacheinfang sehr gut. Da mit dieser Rechnung keine Ionisation beschrieben werden kann, ist fraglich, was die Ursache für die gute Übereinstimmung ist, da auch die POHCE-Ergebnisse deutlich niedriger liegen. Die qualitativ beste Darstellung der Wellenfunktion sollte hier die BGM-Basis liefern, die aus wesentlich mehr Zuständen aufgebaut ist. Der totale Wirkungsquerschnitt für Einfachionisation wird von der BGM-Rechnung für kleine Energien überschätzt, für größere Einschussenergien jedoch sehr gut reproduziert. Die Kurve der POHCE-Methode verläuft etwas niedriger, fällt zu kleinen Energien hin allerdings zu flach ab. Auch hier sollte die BGM-Basis eine erheblich bessere Beschreibung des Kontinuums und damit des Ionisationsquerschnittes ergeben. Da für dieses System der Einfang praktisch vollständig in den Grundzustand des Projektils erfolgt, kann von einer konvergenten Darstellung dieses Kanals durch die BGM-Basis ausgegangen werden. Zukünftige Experimente zu kleineren Einschussenergien hin könnten sehr hilfreich sein, um die bestehenden Diskrepanzen aufzuklären.

6.4 Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse

In diesem Kapitel wurden mikroskopische Responseeffekte in den Stoßsystemen $p - \text{He}$, $\text{He}^{2+} - \text{He}$, $\text{Li}^{3+} - \text{He}$ und $p - \text{Li}^+$ mit Hilfe zeitabhängiger Dichtefunktionaltheorie im Rahmen einer effektiven Einteilchenbeschreibung untersucht. Im Vergleich zu den verfügbaren experimentellen Daten und mit anderen theoretischen Rechnungen konnten folgende Aussagen gewonnen werden:

- **Dynamische Korrelationsdiagramme:**
Die Auswirkungen mikroskopischer Responseeffekte können mit Hilfe dynamischer Korrelationsdiagramme in qualitativer Weise beurteilt werden. Dazu werden im Zeitverlauf die Eigenwerte des Hamilton-Operators betrachtet, in dem alle auftretenden zeitabhängigen Potentiale, also Projektil- und Responspotential, enthalten sind. Es kann durch die veränderten Abschirmungsverhältnisse infolge der Respons der elektronischen Dichte sowohl zu einer Stärkung als auch zu einer Schwächung bestimmter molekularer Kopplungen kommen.
- **Vergleich des globalen Responsmodells und der mikroskopischen Respons am Beispiel von Nettowirkungsquerschnitten:**
Es stellt sich heraus, dass die Auswirkungen der globalen Responsmodellierung für ein Stoßsystem mit nur zwei Elektronen sehr gering sind, verglichen zum mikroskopischen Responspotential jedoch in die gleiche Richtung weisen. Ursache für die geringen Veränderungen im Vergleich zur no-response Näherung ist die Konstruktion dieses Modells, erst ab zweifachem Elektronenverlust wirksam zu werden und die Vernachlässigung von Polarisierungseffekten. Im Gegensatz dazu hat die mikroskopische Respons teilweise erheblichen Einfluss. Während der Wirkungsquerschnitt für Einfang im System $p - \text{He}$ kleiner wird, vergrößert er sich im System $\text{He}^{2+} - \text{He}$ bei kleinen Einschussenergien. Die Erklärung hierfür liefern die dynamischen Korrelationsdiagramme. Die Ionisation nimmt in beiden Systemen infolge der geringer werdenden Abschirmung des Targets und der damit stärkeren Bindung der Elektronen

ab. Verbleibende Diskrepanzen zu experimentellen Daten müssen Korrelationseffekten zugeordnet werden.

- Zweiteilchen-Wirkungsquerschnitte der Stoßsysteme $p - \text{He}$ und $\text{He}^{2+} - \text{He}$:
Während Einfacheinfang und Einfachionisation in beiden Stoßsystemen recht gut wiedergegeben werden, macht sich vor allem bei der Auswertung der Zweifachionisation aber auch des Zweifacheinfangs und der Transferionisation die Näherung der Wellenfunktion als eine Slater-Determinante bemerkbar. Der Vergleich mit älteren TDHF-Rechnungen fällt zufriedenstellend aus, der Einfluss von Korrelationseffekten wird im Vergleich zu anderen korrelierten Ansätzen sichtbar.
- Alternative Form der Multinomialauswertung für $p - \text{He}$:
Der in der üblichen Multinomialauswertung auftretende unphysikalische Zweifacheinfang für das Stoßsystem $p - \text{He}$ kann durch eine Modifikation dieser Auswertung beseitigt werden. Dadurch kommt es zu einer Umverteilung dieses unphysikalischen Anteils des Einfangs in die anderen möglichen Reaktionskanäle. Während sich die Übereinstimmung mit den experimentellen Daten für den Einfacheinfang leicht verbessert, verschlechtert sich die Transferionisation im Vergleich zum Experiment.
- Betrachtung der Stoßsysteme $\text{Li}^{3+} - \text{He}$ und $p - \text{Li}^+$:
Mikroskopische Responseffekte führen für beide Systeme zu einer Verkleinerung der Wirkungsquerschnitte bei kleinen Einschussenergien. Wird ein Li^{3+} -Ion als Projektil verwendet, so dominiert Einfang in die L-Schale des Projektils den Ladungstransfer im System $\text{Li}^{3+} - \text{He}$. Der Vergleich mit den zur Verfügung stehenden experimentellen Daten ist unsystematisch, wofür möglicherweise eine unzureichende Darstellung der Projektilezustände durch die BGM-Basis verantwortlich ist. Eine Vergrößerung der generierenden BGM-Basis ist zur genaueren Untersuchung notwendig. Für das System $p - \text{Li}^+$ gilt Ähnliches, jedoch zeigt hier der Vergleich mit anderen Theorien, dass weitere Experimente erforderlich sind, um die bestehenden Diskrepanzen aufzuklären. Für dieses System ist nicht von einer zu geringen BGM-Basisgröße auszugehen.

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit werden Responseeffekte in interatomaren Stößen mit zwei aktiven Elektronen im Bereich nichtrelativistischer Stoßenergien untersucht. Ausgangspunkt ist die Abbildung des zeitabhängigen wechselwirkenden Vielelektronensystems auf ein effektives Einteilchenbild auf der Grundlage der zeitabhängigen Dichtefunktionaltheorie (TDDFT). Hierbei werden alle interelektronischen Wechselwirkungseffekte durch ein multiplikatives effektives Potential berücksichtigt, das ebenso wie alle relevanten Observablen prinzipiell eindeutig aus der Einteilchendichte bestimmt werden kann. Da die exakten funktionalen Zusammenhänge für das effektive Potential und die meisten Observablen nicht bekannt sind, werden Näherungen unumgänglich. Für die betrachteten Stoßsysteme werden verschiedene Modellierungen für das effektive zeitabhängige Responspotential verwendet. Als Responspotential bezeichnet man die Veränderung des effektiven interelektronischen Potentials gegenüber dem Grundzustandspotential der effektiven Elektron-Elektron-Wechselwirkung im ungestörten Targetatom durch die Anwesenheit des Projektils. Korrelationseffekte werden in dieser Arbeit gänzlich vernachlässigt. Mit Hilfe der *Basis Generator Methode* (BGM) werden die im Rahmen des TDDFT-Konzepts entstehenden Einteilchengleichungen in einem endlichdimensionalen Modellraum gelöst. Da durch dieses Lösungsschema eine dynamische Anpassung des endlichen Darstellungsraumes an die Zeitentwicklung der Einteilchenprobleme erreicht wird, kann die Ankopplung dieses Modellraumes an sein unendlichdimensionales Komplement im Hilbert-Raum minimiert werden. Eine Vernachlässigung dieser Kopplung ist somit bei ausreichender Basisgröße gerechtfertigt. Der durch die einfache Konstruktionsvorschrift der BGM aufgespannte optimierte Modellraum sollte in guter Näherung die gesamte Lösung des Streuproblems enthalten, die dann nach den Streukanälen Anregung, Einfang und Ionisation analysiert wird.

Besonders im Bereich kleiner Einschussenergien, d.h. für Projektilgeschwindigkeiten, die kleiner sind als die Orbitalgeschwindigkeiten der aktiven Elektronen, müssen Responseeffekte während des Stoßes in die theoretische Beschreibung einbezogen werden. Diese werden in der vorliegenden Arbeit exakt behandelt und die Ergebnisse mit den bestehenden globalen und adiabatischen Modellierungen verglichen. Hierdurch und durch die Gegenüberstellung anderer theoretischer Ansätze sowie den Vergleich mit den verfügbaren experimentellen Daten, werden Rückschlüsse auf verschiedene Aspekte der interelektronischen Wechselwirkung für inelastische Streuquerschnitte möglich.

Im Spezialfall eines Zweiteilchen-Systems mit einer Spin-Singulett-Anfangsbedingung und bei Vernachlässigung von Korrelation erfüllt das zeitabhängige effektive Potential eine Poisson-Gleichung. Diese wird begleitend zu den Einteilchengleichungen in jedem Zeitschritt der Propagation der Wellenfunktion gelöst. Dazu wird ein geeigneter Satz von Basisfunktionen verwendet, der es erlaubt, Polarisierungseffekte zu beschreiben.

Durch die Verwendung eines zeitabhängigen Responspotentials unterscheidet sich der Hamilton-Operator vor dem Stoß vom Hamilton-Operator des Systems nach dem Stoß. Das hat zur Folge, dass keine zeitlich stabilen Übergangswahrscheinlichkeiten bezüglich der Zustände des ungestörten Targetatoms berechnet werden können (siehe Erläuterungen in Abschnitt 3.2). Es zeigt sich jedoch, dass die angesprochenen Fluktuationen minimiert werden, wenn man die Eigenfunktionen des Hamilton-Operators zur Analyse verwendet, der alle zeitabhängigen Potentiale, d.h. also Projektil- und Responspotential, beinhaltet. Darüber hinaus bieten diese Funktionen die Möglichkeit, 'dynamische Korrelationsdiagramme' zu berechnen, mit deren Hilfe man Aussagen über die Auswirkungen des Responspotentials und mögliche Reaktionsmechanismen machen kann. Das zugehörige Responspotential erlaubt Rückschlüsse auf die Veränderung der Abschirmungs- und Polarisationsverhältnisse im Laufe des Stoßes.

Bei der Untersuchung von Ionisationsquerschnitten im Stoßsystem $\bar{p} - \text{He}$ zeigt sich, dass durch adiabatische und noch stärker durch mikroskopische Responseffekte eine erhebliche Verminderung der Querschnitte im Vergleich zum no-response Fall erreicht wird. Der Verlust von Elektronen im Laufe des Stoßes führt für das Target zu einer schwächeren Abschirmung und damit zu einer stärkeren Bindung der verbleibenden Elektronen. Es wird folglich immer schwerer, elektronische Dichte vom Target zu entfernen, was sich in der Verminderung des Ionisationsquerschnittes widerspiegelt. Da korrelierte Rechnungen sehr ähnliche Resultate liefern, ist davon auszugehen, dass für diesen Prozess Korrelationseffekte eine untergeordnete Rolle spielen. Es stellt sich heraus, dass der Ionisationsmechanismus als eine Art 'Targetkern-Eklipse' aufgefasst werden kann. Auch für das System $\bar{p} - \text{Li}^+$ findet man trotz der stärkeren Targetladung einen deutlichen Einfluss von Responseffekten auf den Ionisationswirkungsquerschnitt.

Ganz analog verhalten sich die Ionisationsquerschnitte für die Stoßsysteme $p - \text{He}$, $\text{He}^{2+} - \text{He}$, $\text{Li}^{3+} - \text{He}$ und $p - \text{Li}^+$. Bei Berücksichtigung eines zeitabhängigen Responspotentials wird die Ionisation für jedes der Systeme im Vergleich zur no-response Rechnung verkleinert. Das globale Responsmodell ist dabei aufgrund seiner speziellen Konstruktion fast wirkungslos, während das mikroskopische Responspotential deutliche Auswirkungen zeigt. Ein anderes Bild ergibt sich für die Einfangwirkungsquerschnitte in Stößen mit positiv geladenen Projektilen. Hier kommt es einerseits für das System $p - \text{He}$ zu einer Verminderung des Einfangs bei kleinen Einschussenergien und andererseits für das System $\text{He}^{2+} - \text{He}$ zu einer Vergrößerung des Einfangs verglichen zum no-response Fall. Die Erklärungen dafür liefern die veränderten molekularen Kopplungen in den dynamischen Korrelationsdiagrammen durch die modifizierten Abschirmungsverhältnisse aufgrund der Respons der elektronischen Dichte. Während der Vergleich mit den experimentellen Daten für Einfachionisation und Einfacheinfang für beide Stoßsysteme durchgehend zufriedenstellend ist, verhalten sich die Wirkungsquerschnitte für Zweifacheinfang, Zweifachionisation und Transferionisation unsystematisch. Ein Grund hierfür ist, dass ein explizites Dichtefunktional nur für Nettowahrscheinlichkeiten formuliert werden kann und man zur

Auswertung der Zweiteilchen-Übergänge auf die Näherung der Wellenfunktion als eine Slater-Determinante angewiesen ist.

Bei Betrachtung des Stoßsystems $\text{Li}^{3+} - \text{He}$ zeigt sich, dass Ladungstransfer dominant in die L-Schale des Projektils erfolgt. Die Darstellung der Projektilzustände dieser Schale ist eine sehr anspruchsvolle Aufgabe für das BGM-Schema, der Vergleich zum Experiment fällt unsystematisch aus. Die Diskrepanzen der berechneten totalen Wirkungsquerschnitte zu den experimentellen Daten müssen vermutlich auf eine zu geringe BGM-Basisgröße zurückgeführt werden. Für das System $p - \text{Li}^+$ wären weitere Experimente sehr hilfreich, um bestehende Differenzen zu klären. In diesem Fall erfolgt der Einfang praktisch vollständig in den Grundzustand des Projektils, der von der verwendeten BGM-Basis sehr gut dargestellt wird.

Zusammenfassend ergibt sich aus den Untersuchungen dieser Arbeit, dass mikroskopische Responseeffekte bei kleinen Einschussenergien erheblichen Einfluss auf die möglichen inelastischen Prozesse haben. Die vorgestellte Modellierung erlaubt eine detaillierte Betrachtung im Rahmen der Genauigkeit der BGM-Methode.

Die verwendete theoretische Beschreibung kann an mehreren Stellen erweitert und ausgebaut werden. Dies betrifft einerseits eine Modifikation der BGM-Basis, andererseits eine Erweiterung des Modells auf mehr als zwei aktive Elektronen und die Einbeziehung von Korrelation. Jeder dieser drei Punkte soll im Folgenden kurz erläutert werden:

- **Erweiterung der BGM-Basis:**

Bei der Untersuchung des Stoßsystems $\text{Li}^{3+} - \text{He}$ hat sich gezeigt, dass zur Darstellung angeregter Projektilzustände unter Umständen eine erheblich größere generierende BGM-Basis im Konstruktionsschema (2.74) notwendig ist (Index V in der Entwicklung (2.78)), als in dieser Arbeit verwendet wurde. Es ist wenig erfolgversprechend, die Hierarchieordnung der BGM-Basis (2.74) zu erhöhen (Index M in der Entwicklung (2.78)), da mit der zunehmenden Nichtorthogonalität der erzeugten Funktionen erhebliche numerische Schwierigkeiten verbunden sind. Um diese Problematik zu vermeiden, können explizit bewegte Projektilzustände in die BGM-Basis aufgenommen werden. Zur Berechnung der zugehörigen Übergangswahrscheinlichkeiten für Einfang ist dann die im Anhang A.4 beschriebene Projektion der Wellenfunktion nicht mehr erforderlich. Gleichzeitig kann eine niedrigere Hierarchieordnung M zum Aufbau der BGM-Basis verwendet werden, da die relevanten Projektilzustände dann explizit in der Basis enthalten sind und keine hohen Potenzen von \tilde{W}_P mehr zu deren Beschreibung benötigt werden. Darüber hinaus wird die Behandlung aktiver Elektronen am Projektil während des Stoßes möglich.

Jedoch ist diese Erweiterung der BGM-Basis mit einer erheblichen Steigerung des numerischen Aufwandes verbunden, da die benötigten Matrixelemente nicht mehr in Form universeller Grundmatrixelemente - wie im Anhang A.2 erläutert - abgespeichert werden können, sondern in jedem Zeitschritt der Kollision neu berechnet werden müssen. Die Ergänzung des BGM-Schemas (2.74) um gebundene Projektilzustände befindet sich gegenwärtig in der Entwicklung.

- **Ausdehnung der Methode auf Systeme mit mehr als zwei aktiven Elektronen:**

Sollen mikroskopische Responseeffekte auch für Systeme mit mehr als zwei aktiven Elektronen berücksichtigt werden, so tritt an die Stelle der in dieser Arbeit betrachteten Poisson-Gleichung (3.21), die in dieser Form nur für ein Zweiteilchen-System mit einer Spin-Singulett-Anfangsbedingung gültig ist, die zeitabhängige OPM-Gleichung [217]. In adiabatischer Näherung entspricht sie der Integralgleichung (2.26), wobei $n(\mathbf{r})$ durch die zeitabhängige Dichte $n(\mathbf{r}, t)$ zu ersetzen ist. Diese ist strukturell erheblich komplizierter als die Poisson-Gleichung, kann aber dennoch in der Darstellung (3.25) bzw. (3.28) gelöst werden, die sich als geeignet für die Entwicklung des effektiven interelektronischen Potentials erwiesen hat, wie in dieser Arbeit gezeigt wird.

- **Betrachtung der Korrelation:**

Um einen genaueren Eindruck über die Tragweite und den Einfluss verschiedener Aspekte der Korrelation in den betrachteten Stoßsystemen zu bekommen, kann man versuchen, in drei Stufen vorzugehen:

- a) Für den speziellen Fall des Heliumatoms bzw. heliumähnlicher Ionen, kann die stationäre Zweiteilchen-Schrödingergleichung numerisch sehr genau gelöst werden [218], so dass die exakte Zweiteilchen-Wellenfunktion $\Psi(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2)$ bekannt ist. Gemäß der Gleichung (2.82) gilt der Zusammenhang

$$\gamma^1(\mathbf{x}_1) = 2 \int d^4x_2 \gamma^2(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2), \quad (7.1)$$

woraus mit (2.4) und (2.5) für die Einteilchendichte nach Integration über die Koordinaten eines Elektrons

$$n(\mathbf{r}_1) = 2 \int d^3r_2 \sum_{s_1, s_2} |\Psi(\mathbf{r}_1 s_1, \mathbf{r}_2 s_2)|^2 \quad (7.2)$$

folgt. Da nach (3.20) für ein solches Zweiteilchen-System mit einer Spin-Singulett Konfiguration

$$\psi(\mathbf{r}) = \left(\frac{n(\mathbf{r})}{2} \right)^{1/2} \quad (7.3)$$

gilt, kann man aus $\Psi(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2)$ direkt die exakten KS-Orbitale berechnen. Verwendet man diese an Stelle der x-only OPM-Orbitale als generierende BGM-Basis, so sollten die Ergebnisse den Einfluss *statischer Korrelationseffekte* widerspiegeln. Hierfür ist jedoch aufgrund der geringen Differenz der Orbitale ein nur sehr geringer Einfluss zu erwarten. Eine graphische Illustration der Einteilchendichte von Helium findet man in [219].

- b) Eine Möglichkeit, den Einfluss *zeitabhängiger Korrelationseffekte* abzuschätzen, besteht in der Berücksichtigung eines approximierten stationären Korrelationspotentials in adiabatischer Näherung, wie es z.B. das Perdew-Wang-91-Funktional (PW91) [220–222] darstellt. Da dieses Funktional jedoch auf der

LDA (siehe Kapitel 2.1.4) aufbaut, ergibt es für v_{xc} nicht die korrekte $-1/r$ -Asymptotik, sondern einen exponentiellen Abfall. Es ist deshalb fraglich, ob die Einbeziehung eines solchen Funktionals interpretierbare Ergebnisse liefern kann, hat sich in dieser Arbeit doch gezeigt (Kapitel 5.2.1), dass die Ergebnisse sehr sensitiv bezüglich der richtigen Asymptotik des effektiven interelektronischen Potentials sind. Darüber hinaus muss angemerkt werden, dass das mit dem PW91-Funktional berechnete Korrelationspotential v_c nicht nur die falsche Asymptotik besitzt, sondern in einigen Bereichen auch das falsche Vorzeichen [218]. Diese Feststellungen führen unmittelbar zum nächsten Punkt.

- c) Um Korrelation exakt im Sinne der TDDFT berücksichtigen zu können, ist es notwendig, ein zeitabhängiges Korrelationsfunktional zu konstruieren und so über die x-only OPM hinauszugehen. Systematische Ansätze für den stationären Fall sind vielversprechend, aber bei weitem zu kompliziert, um sie praktikabel auf zeitabhängige Probleme übertragen zu können [97–99].

Um die Näherung der Wellenfunktion als eine Slater-Determinante (2.87) aufgeben zu können, müssen geeignete Auswertungsfunktionale für Vielelektronen-Übergänge gefunden werden. Konkret heißt das, dass der analytische Zusammenhang (bzw. ein geeignetes Näherungsverfahren) zwischen der q-Teilchendichte γ^q und der Einteilchendichte n gefunden werden muss. Ansonsten ist man auf Näherungen angewiesen, im Rahmen derer der Vielteilchencharakter der zu bestimmenden Wellenfunktion nicht vollständig erfasst wird.

Beides, sowohl die Konstruktion eines zeitabhängigen Korrelationsfunktionals, als auch die Suche nach geeigneten Auswertungsfunktionalen für Vielelektronen-Übergänge sind fundamentale Probleme innerhalb des DFT-Konzepts, für die zur Zeit keine Lösungen greifbar sind.

Anhang A

Details zur praktischen Umsetzung des BGM-Konzepts

A.1 Vororthogonalisierung der Basis

Die Teilräume zu den Hierarchiestufen $\mu = 0$ und $\mu \geq 1$ der durch die Wechselwirkung \tilde{W}_P bzw. \tilde{W}_T generierten Basen (2.74) bzw. (2.75) sollen zueinander orthogonalisiert werden. Hierfür verwendet man den Projektor \hat{P} auf den durch V orthonormierte atomare Funktionen aufgespannten Teilraum zur Ordnung $\mu = 0$

$$\hat{P} = \sum_{v=1}^V |\varphi_v^0\rangle\langle\varphi_v^0|. \quad (\text{A.1})$$

Zu diesem Teilraum orthogonale Zustände der Ordnung $\mu \geq 1$ ergeben sich über den Ansatz

$$|\tilde{\chi}_v^\mu\rangle = (\hat{1} - \hat{P})(\tilde{W}_X)^\mu |\varphi_v^0\rangle, \quad X : P, T. \quad (\text{A.2})$$

Nach dem Einsetzen der Definition (A.1) für \hat{P} in (A.2) und Sortieren nach den auftretenden Potenzen von \tilde{W}_X ($X : P, T$) erhält man schließlich

$$|\tilde{\chi}_v^\mu\rangle = (\tilde{W}_X)^\mu |\varphi_v^0\rangle - \sum_{v'=1}^V (W_{v'v})^\mu |\varphi_{v'}^0\rangle, \quad X : P, T, \quad (\text{A.3})$$

wobei die Matrixelemente bezüglich der atomaren Zustände mit

$$(W_{v'v})^\mu \equiv \langle\varphi_{v'}^0|(\tilde{W}_X)^\mu|\varphi_v^0\rangle, \quad X : P, T \quad (\text{A.4})$$

abgekürzt wurden. Im Anhang der Referenz [153] wurde gezeigt, dass eine allgemeine Transformation der Basis zur orthogonalen Konstruktion aller Teilräume mit Hilfe des Polynomansatzes

$$|\tilde{\chi}_v^\mu\rangle = \sum_{\mu'=0}^{\mu} (\tilde{W}_X)^{\mu'} \sum_{v'=1}^V a_{v'v}^{\mu'\mu} |\varphi_{v'}^0\rangle, \quad X : P, T \quad (\text{A.5})$$

vorgenommen werden kann. Im Rahmen der hier angestrebten speziellen Orthogonalisierung ergeben sich die nicht verschwindenden Koeffizienten $a_{v'v}^{\mu'\mu}$ zu

$$\begin{aligned} a_{v'v}^{\mu'\mu} &= \delta_{v'v} \\ a_{v'v}^{0\mu} &= (W_{v'v})^\mu . \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

Da die Matrixelemente in Bezug auf Potenzen der Wechselwirkung \tilde{W}_X ($X : P, T$) reell sind, sind auch die Koeffizienten $a_{v'v}^{\mu'\mu}$ reell.

A.2 Berechnung der Matrixelemente

Im ersten Abschnitt soll die Berechnung der Matrixelemente in der BGM-Darstellung für die 'no-response' Näherung erläutert werden. Der zweite Teil enthält Details zur Berechnung von Matrixelementen in der BGM-Darstellung für ein mikroskopisches Responspotential, wie es in den Abschnitten 3.4.1 und 3.4.2 hergeleitet worden ist.

A.2.1 Matrixelemente für die 'no-response' Näherung

Unter Verwendung des Polynomansatzes (2.77) für die Basisfunktionen lauten die in den gekoppelten Kanalgleichungen (2.79) vorkommenden Matrixelemente

$$\begin{aligned} S_{wv}^{\lambda\mu} &\equiv \langle \tilde{\chi}_w^\lambda | \tilde{\chi}_v^\mu \rangle = \sum_{\lambda'=0}^{\lambda} \sum_{\mu'=0}^{\mu} \sum_{w',v'=1}^V a_{w'w}^{\lambda'\lambda} a_{v'v}^{\mu'\mu} \langle \varphi_{w'}^0 | (\tilde{W}_X)^{\lambda'+\mu'} | \varphi_{v'}^0 \rangle , \quad X : P, T \quad (\text{A.7}) \\ M_{wv}^{\lambda\mu} &\equiv \langle \tilde{\chi}_w^\lambda | \hat{h}(t) - i\partial_t | \tilde{\chi}_v^\mu \rangle = \sum_{\lambda'=0}^{\lambda} \sum_{\mu'=0}^{\mu} \sum_{w',v'=1}^V \left\{ a_{w'w}^{\lambda'\lambda} a_{v'v}^{\mu'\mu} \left(\langle \varphi_{w'}^0 | (\tilde{W}_X)^{\lambda'} \hat{h}_0 (\tilde{W}_X)^{\mu'} | \varphi_{v'}^0 \rangle \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + \langle \varphi_{w'}^0 | (\tilde{W}_X)^{\lambda'+\mu'} \hat{v}(t) | \varphi_{v'}^0 \rangle - \langle \varphi_{w'}^0 | (\tilde{W}_X)^{\lambda'} i\partial_t (\tilde{W}_X)^{\mu'} | \varphi_{v'}^0 \rangle \right) \right. \\ &\quad \left. - i a_{w'w}^{\lambda'\lambda} a_{v'v}^{\mu'\mu} \langle \varphi_{w'}^0 | (\tilde{W}_X)^{\lambda'+\mu'} | \varphi_{v'}^0 \rangle \right\} , \quad X : P, T . \quad (\text{A.8}) \end{aligned}$$

Da die Eigenfunktionen $|\varphi_v^0\rangle$ von \hat{h}_0 zeitunabhängig sind, kann man das in (A.8) auftauchende innere Matrixelement mit dem Zeitableitungsoperator als Kern mit Hilfe der Kettenregel in Zeitableitungen von Potentialmatrixelementen umschreiben

$$\langle \varphi_{w'}^0 | (\tilde{W}_X)^{\lambda'} i\partial_t (\tilde{W}_X)^{\mu'} | \varphi_{v'}^0 \rangle = \frac{\mu'}{\mu' + \lambda'} i\partial_t \langle \varphi_{w'}^0 | (\tilde{W}_X)^{\lambda'+\mu'} | \varphi_{v'}^0 \rangle , \quad X : P, T . \quad (\text{A.9})$$

Für das innere Matrixelement mit dem Operator Kern \hat{h}_0 konnte im Anhang D der Referenz [153] die Beziehung

$$\begin{aligned} \langle \varphi_{w'}^0 | (\tilde{W}_X)^{\lambda'} \hat{h}_0 (\tilde{W}_X)^{\mu'} | \varphi_{v'}^0 \rangle &= \\ \langle \varphi_{w'}^0 | \frac{\mu'}{\mu' + \lambda'} \hat{h}_0 (\tilde{W}_X)^{\lambda'+\mu'} + \frac{\lambda'}{\mu' + \lambda'} (\tilde{W}_X)^{\lambda'+\mu'} \hat{h}_0 | \varphi_{v'}^0 \rangle & \quad (\text{A.10}) \\ + \langle \varphi_{w'}^0 | \frac{1}{2} \lambda' \mu' (\nabla \tilde{W}_X)^2 (\tilde{W}_X)^{\lambda'+\mu'-2} | \varphi_{v'}^0 \rangle , & \quad X : P, T \end{aligned}$$

bewiesen werden. Unter Verwendung der Eigenwertgleichung (2.44) für die atomaren Zustände erhält man

$$\begin{aligned} \langle \varphi_{w'}^0 | (\tilde{W}_X)^{\lambda'} \hat{h}_0 (\tilde{W}_X)^{\mu'} | \varphi_{v'}^0 \rangle = \\ \left(\frac{\mu'}{\mu' + \lambda'} \varepsilon_{w'} + \frac{\lambda'}{\mu' + \lambda'} \varepsilon_{v'} \right) \langle \varphi_{w'}^0 | (\tilde{W}_X)^{\lambda' + \mu'} | \varphi_{v'}^0 \rangle \\ + \frac{1}{2} \lambda' \mu' \langle \varphi_{w'}^0 | (\nabla \tilde{W}_X)^2 (\tilde{W}_X)^{\lambda' + \mu' - 2} | \varphi_{v'}^0 \rangle, \quad X : P, T. \end{aligned} \quad (\text{A.11})$$

Die inneren Matrixelemente der Überlapp- und Wechselwirkungsmatrix (A.7, A.8) lassen sich auf diese Weise durch drei Typen von Grundmatrixelementen

$$\alpha_{w'v', \lambda' + \mu'} \equiv \langle \varphi_{w'}^0 | (\tilde{W}_X)^{\lambda' + \mu'} | \varphi_{v'}^0 \rangle, \quad X : P, T \quad (\text{A.12})$$

$$\beta_{w'v', \lambda' + \mu'} \equiv \langle \varphi_{w'}^0 | (\tilde{W}_X)^{\lambda' + \mu'} \hat{v}(t) | \varphi_{v'}^0 \rangle, \quad X : P, T \quad (\text{A.13})$$

$$\gamma_{w'v', \lambda' + \mu'} \equiv \langle \varphi_{w'}^0 | (\nabla \tilde{W}_X)^2 (\tilde{W}_X)^{\lambda' + \mu' - 2} | \varphi_{v'}^0 \rangle, \quad X : P, T \quad (\text{A.14})$$

ausdrücken. Dabei wird die Zeitableitung von $\alpha_{w'v', \lambda' + \mu'}$ für das Matrixelement (A.9) numerisch durch eine Splines-Differentiation berechnet. Für den Fall einer mit \tilde{W}_T generierten stationären Basis (2.75), d.h. $X = T$, gilt natürlich $\dot{\alpha} = 0$. Auch die Koeffizienten $a_{v'v}^{\mu'\mu}$ lassen sich vollständig auf die Matrixelemente $\alpha_{w'v', \lambda' + \mu'}$ (vergleiche A.6) zurückführen.

Wie zu erkennen ist, sind alle Grundmatrixelemente Zweizentrenintegrale (im Falle einer durch \tilde{W}_T generierten Basis (2.75) trifft dies nur auf das Matrixelement (A.13) zu) der Form

$$\langle \varphi_{nlm}^0 | F(r_P) | \varphi_{n'l'm'}^0 \rangle \quad (\text{A.15})$$

mit den in die Quantenzahlen (nlm) aufgelösten Multiindizes, wobei sich die magnetischen Quantenzahlen auf die symmetrisierten Winkelfunktionen $\cos(m\varphi), \sin(m\varphi)$ (2.76) beziehen. Auf diese Weise zerfallen die Matrixelemente in nicht-mischende Anteile (g)erader und (u)ngerader Symmetrie, deren Berechnung jeweils durch die Ausführung einer dreidimensionalen Integration erfolgt. Durch eine Transformation auf das rotierende Koordinatensystem z kann diese dreidimensionale Integration in einer Dimension analytisch vorgenommen werden (Abb. A.1).

Dazu werden die Matrixelemente zunächst bezüglich in Richtung der internuklearen Achse quantisierter Basisfunktionen berechnet (z -Achse). Anschließend werden die Matrixelemente mit Hilfe der Wignerschen d -Matrizen auf in Richtung der Strahlachse des Intertialsystems z_I quantisierte Basisfunktionen transformiert. Hierzu schiebt man den Drehoperator $\hat{R}(\theta)$, der die Drehung der Quantisierungsachse der Basiszustände von der Strahlachse in die Richtung der internuklearen Achse um den Winkel

$$\theta = \begin{cases} \pi - \arcsin \frac{b}{R} & \text{vor dem } \textit{closest approach} \\ \arcsin \frac{b}{R} & \text{nach dem } \textit{closest approach} \end{cases} \quad (\text{A.16})$$

beschreibt

$$|\tilde{\varphi}_{nlm}^0\rangle = \hat{R}(\theta) |\varphi_{nlm}^0\rangle = \exp[-i\hat{l}_y\theta] |\varphi_{nlm}^0\rangle, \quad (\text{A.17})$$

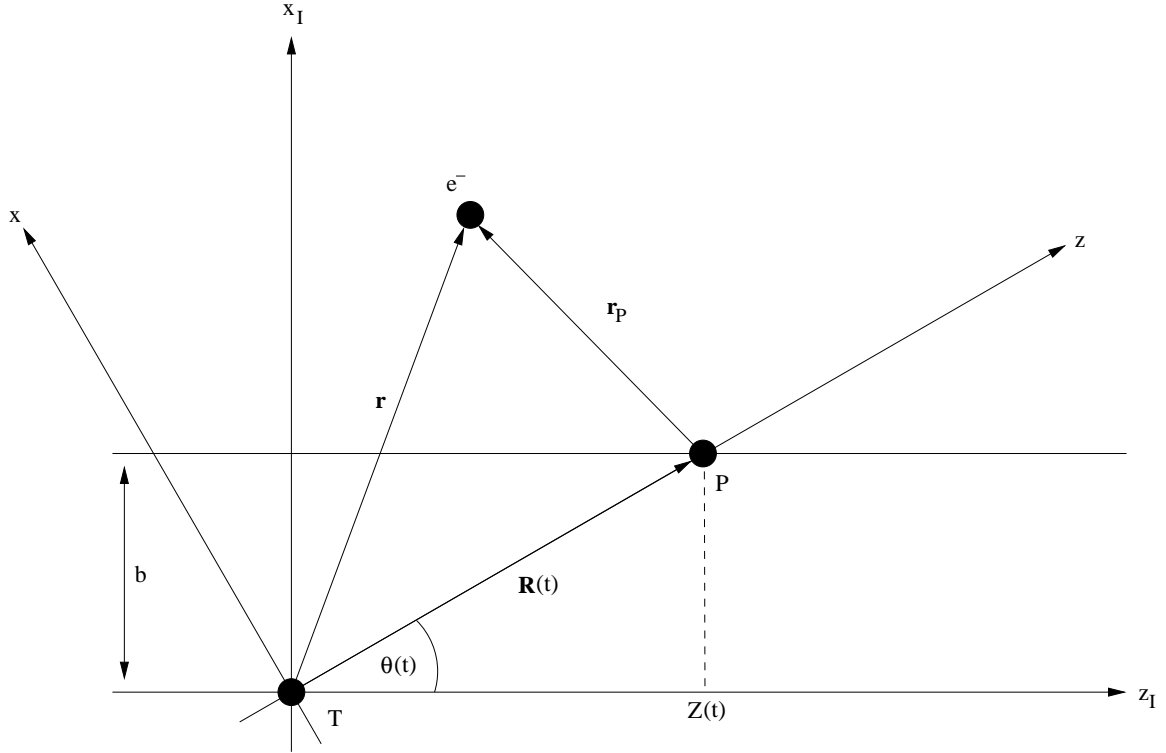


Abb. A.1: Geometrie interatomarer Stöße. T: Target, P: Projektil, b: Stoßparameter.

auf beiden Seiten von $F(r_P)$ in (A.15) ein und erhält

$$\begin{aligned}
 \langle \varphi_{nlm}^0 | F(r_P) | \varphi_{n'l'm'}^0 \rangle^{(g/u)} &= \langle \varphi_{nlm}^0 | \hat{R}^{-1}(\theta) \hat{R}(\theta) F(r_P) \hat{R}^{-1}(\theta) \hat{R}(\theta) | \varphi_{n'l'm'}^0 \rangle^{(g/u)} \\
 &= \langle \tilde{\varphi}_{nlm}^0 | \hat{R}(\theta) F(r_P) \hat{R}^{-1}(\theta) | \tilde{\varphi}_{n'l'm'}^0 \rangle^{(g/u)} \\
 &= \sum_{M=0}^l \sum_{M'=0}^{l'} \tilde{d}_{mM}^{l(g/u)}(\theta) \tilde{d}_{m'M'}^{l(g/u)}(\theta) \langle \tilde{\varphi}_{nlM}^0 | F(r_P) | \tilde{\varphi}_{n'l'M'}^0 \rangle^{(g/u)}.
 \end{aligned}
 \tag{A.18}$$

Die Koeffizienten $\tilde{d}_{mM}^{l(g/u)}(\theta)$ bezeichnen die Matrixelemente des Drehoperators (A.17) in Bezug auf die symmetrisierten Wellenfunktionen

$$\tilde{d}_{mM}^{l(g/u)}(\theta) = \langle \tilde{\varphi}_{nlm}^0 | \hat{R}(\theta) | \tilde{\varphi}_{nlM}^0 \rangle^{(g/u)}, \tag{A.19}$$

die sich aus den gewöhnlichen Wignerschen d-Matrizen

$$\tilde{d}_{mM}^{l(g)}(\theta) = \begin{cases} d_{mM}^l(\theta) & \text{falls } m = M = 0 \\ \sqrt{2} d_{mM}^l(\theta) & \text{falls } m = 0 \text{ oder } M = 0 \\ d_{mM}^l(\theta) + (-1)^M d_{m-M}^l(\theta) & \text{sonst} \end{cases}$$

$$\tilde{d}_{mM}^{l(u)}(\theta) = \begin{cases} d_{mM}^l(\theta) - (-1)^M d_{m-M}^l(\theta) & \text{falls } m, M > 0 \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \tag{A.20}$$

zusammensetzen. In (A.18) wurde die Symmetrierelation

$$\tilde{d}_{Mm}^{l(g/u)}(-\theta) = \tilde{d}_{mM}^{l(g/u)}(\theta) \quad (\text{A.21})$$

benutzt. Um nun das innere Integral in Gleichung (A.18) zu berechnen, werden prolat-elliptische Koordinaten verwendet, die dem Zweizentrencharakter des Integrals angepasst sind. Diese Koordinaten werden durch die Abstände eines Raumpunktes zu den beiden Zentren (Projektile und Target) definiert

$$\begin{aligned} \xi &= \frac{r + r_P}{R} & 1 \leq \xi < \infty & & r \equiv r_T = \frac{R}{2}(\xi + \eta) \\ \eta &= \frac{r - r_P}{R} & -1 \leq \eta \leq 1 & & r_P = \frac{R}{2}(\xi - \eta). \end{aligned} \quad (\text{A.22})$$

Dabei stellt der gewöhnliche Azimutwinkel $0 \leq \varphi < 2\pi$ bezüglich der z-Achse die dritte benötigte Koordinate dar ($\varphi \equiv \varphi_T = \varphi_P$). Die Verknüpfung der prolat-elliptischen Koordinaten mit den kartesischen Koordinaten (x, y, z) des rotierenden Systems ergibt sich durch die Transformationsgleichungen

$$\begin{aligned} x &= \frac{R}{2}[(1 - \eta^2)(\xi^2 - 1)]^{\frac{1}{2}} \cos \varphi \\ y &= \frac{R}{2}[(1 - \eta^2)(\xi^2 - 1)]^{\frac{1}{2}} \sin \varphi \\ z &= \frac{R}{2}(\xi\eta + 1). \end{aligned} \quad (\text{A.23})$$

Daraus folgen für die Polarwinkel ϑ, ϑ_P bezüglich beider Zentren die Beziehungen

$$\cos \vartheta \equiv \cos \vartheta_T = \frac{z}{r} = \frac{\xi\eta + 1}{\xi + \eta} \quad (\text{A.24})$$

$$\cos \vartheta_P = \frac{(z - R)}{r_P} = \frac{\xi\eta - 1}{\xi - \eta}. \quad (\text{A.25})$$

Das Volumenelement d^3r lautet für prolat-elliptische Koordinaten

$$d^3r = \frac{R^3}{8}(\xi^2 - \eta^2)d\xi d\eta d\varphi, \quad (\text{A.26})$$

so dass sich für das Matrixelement (A.15) schließlich

$$\begin{aligned} \langle \tilde{\varphi}_{nlM}^0 | F(r_P) | \tilde{\varphi}_{n'l'M'}^0 \rangle^{(g/u)} &= \frac{R^3}{8} \int_1^\infty d\xi \int_{-1}^1 d\eta (\xi^2 - \eta^2) \\ &\times \tilde{\varphi}_{nlM}^{0*}(r(\xi, \eta), \cos \vartheta(\xi, \eta)) F(r_P(\xi, \eta)) \tilde{\varphi}_{n'l'M'}^0(r(\xi, \eta), \cos \vartheta(\xi, \eta)) \\ &\times \int_0^{2\pi} d\varphi \begin{cases} \cos(M\varphi) \cos(M'\varphi) & g \\ \sin(M\varphi) \sin(M'\varphi) & u \end{cases} \\ &= \frac{R^3}{8} I(\xi, \eta) \begin{cases} (1 + \delta_{M0})\pi\delta_{MM'} & g \\ (1 - \delta_{M0})\pi\delta_{MM'} & u \end{cases} \end{aligned} \quad (\text{A.27})$$

ergibt, mit den entsprechenden symmetrisierten Wellenfunktionen

$$\tilde{\varphi}_{nlM}^0(\mathbf{r}) = \begin{cases} \tilde{\varphi}_{nlM}^0(r(\xi, \eta), \cos \vartheta(\xi, \eta)) \cos(M\varphi) & g \\ \tilde{\varphi}_{nlM}^0(r(\xi, \eta), \cos \vartheta(\xi, \eta)) \sin(M\varphi) & u \end{cases} . \quad (\text{A.28})$$

Die Berechnung des verbleibenden zweidimensionalen Integrals $I(\xi, \eta)$ wird numerisch mit Hilfe einer Gauss-Legendre-Quadratur [111, 171, 172] ausgeführt (wird nur eine durch \tilde{W}_T generierte Basis (2.75) verwendet, so kann zur Berechnung der Matrixelemente (A.12) und (A.14) auch die Gauss-Laguerre-Quadratur [111, 171, 172] benutzt werden). Die Matrixelemente (A.27) müssen dabei für die drei Typen von Grundmatrixelementen (A.12), (A.13) und (A.14) als Funktion des internuklearen Abstandes berechnet werden. Da sie weder von der Projektilgeschwindigkeit v noch vom Stoßparameter b abhängig sind und die Projektilladung Q_P für Coulomb-artige Projektilpotentiale lediglich als globaler Vorfaktor im Grundmatrixelement $\beta_{w'v', \lambda'+\mu'}$ auftritt, können sie für ein gegebenes Targetsystem universell für alle interessierenden Kombinationen von v , b und Q_P zur Lösung der gekoppelten Kanalgleichungen (2.79) eingesetzt werden.

A.2.2 Matrixelemente für das mikroskopische Responspotential

Wird ein mikroskopisches Responspotential in die zeitabhängigen KS-Gleichungen mit einbezogen, so sind zusätzlich zu den erläuterten Grundmatrixelementen (A.12), (A.13) und (A.14) die Matrixelemente

$$\delta_{w'v', \lambda'+\mu'} \equiv \langle \varphi_{w'}^0 | (\tilde{W}_X)^{\lambda'+\mu'} \hat{v}_{ee}(t) | \varphi_{v'}^0 \rangle , \quad X : P, T \quad (\text{A.29})$$

zu berechnen. Für ein mikroskopisches Responspotential der Art (3.24) oder (3.28) haben diese Matrixelemente die Form

$$\langle \varphi_{nlm}^0 | \overbrace{F(r_X)^{\lambda'+\mu'}}^{=(\tilde{W}_X)^{\lambda'+\mu'}} \underbrace{G(r_{X'}) Y_{l'm'}^{X'}(\vartheta_{X'}, \varphi)}_{v_{ee}(\mathbf{r}, t) \text{ nach (3.24) oder (3.28)}} | \varphi_{n'l'm'}^0 \rangle , \quad X, X' : P, T . \quad (\text{A.30})$$

Im rotierenden Koordinatensystem kann die φ -Integration wiederum analytisch ausgeführt werden, so dass schließlich

$$\begin{aligned} \langle \tilde{\varphi}_{nlM}^0 | F(r_X) G(r_{X'}) Y_{l'm'}^{X'}(\vartheta_{X'}, \varphi) | \tilde{\varphi}_{n'l'M'}^0 \rangle^{(g/u)} &= \frac{R^3}{8} \int_1^\infty d\xi \int_{-1}^1 d\eta (\xi^2 - \eta^2) \\ &\times \tilde{\varphi}_{nlM}^{0*}(r(\xi, \eta), \cos \vartheta(\xi, \eta)) \\ &\times F(r_X(\xi, \eta)) G(r_{X'}(\xi, \eta)) Y_{l'm'}^{X'}(\vartheta_{X'}(\xi, \eta)) \\ &\times \tilde{\varphi}_{n'l'M'}^0(r(\xi, \eta), \cos \vartheta(\xi, \eta)) \\ &\times \int_0^{2\pi} d\varphi \begin{cases} \cos(M\varphi) \cos(M''\varphi) \cos(M'\varphi) & g \\ \sin(M\varphi) \cos(M''\varphi) \sin(M'\varphi) & u \end{cases} \\ &= \frac{R^3}{8} I(\xi, \eta) \\ &\times \begin{cases} \frac{\pi}{2} (\delta_{M0} \delta_{MM'} \delta_{MM''} + \delta_{M+M', M''} + \delta_{M+M'', M'} + \delta_{M'+M'', M}) & g \\ \frac{\pi}{2} (1 - \delta_{M0}) (\delta_{M+M'', M'} + \delta_{M'+M'', M} - \delta_{M+M', M''}) & u \end{cases} , \quad X, X' : P, T \end{aligned} \quad (\text{A.31})$$

bleibt. Die verbleibenden zweidimensionalen Integrale $I(\xi, \eta)$ müssen, wie im vorhergehenden Abschnitt beschrieben, numerisch berechnet werden. Da $\hat{v}_{ee}(t)$ gerade bezüglich Spiegelung an der Streuebene ist, treten nur Kugelflächenfunktionen $Y_{l''m''}^{X'}$ mit geradem φ -Anteil $\cos(M''\varphi)$ auf.

A.3 Dreieckszerlegung der Überlappmatrix

Wenn man die Koeffizienten $c_{\mu\nu}^i$ der Basisentwicklung (2.78) zu einem Vektor \mathbf{c}_i zusammenfasst, lassen sich die gekoppelten Kanalgleichungen (2.79) in der Matrixform

$$i\mathbf{S}\dot{\mathbf{c}}_i = \mathbf{M}\mathbf{c}_i \quad i = 1, \dots, N \quad (\text{A.32})$$

schreiben. Die Matrixelemente von \mathbf{S} und \mathbf{M} sind durch die Gleichungen (A.7, A.8) gegeben. Die reelle Überlappmatrix \mathbf{S} ist symmetrisch und positiv definit, und aus der Normierung der Einteilchenlösungen

$$1 = \langle \psi_i | \psi_i \rangle = \mathbf{c}_i^\dagger \mathbf{S} \mathbf{c}_i \quad (\text{A.33})$$

folgt für ihre Determinante

$$\det \mathbf{S} = 1. \quad (\text{A.34})$$

Für eine Matrix mit solchen Eigenschaften existiert die eindeutig bestimmte Dreieckszerlegung

$$\mathbf{S} = \mathbf{L}\mathbf{U} \quad (\text{A.35})$$

mit der unteren Dreiecksmatrix \mathbf{L} und der oberen Dreiecksmatrix \mathbf{U} , die gegenseitig ihrer Transponierten entsprechen

$$\mathbf{L} = \mathbf{U}^\top \quad \mathbf{U} = \mathbf{L}^\top, \quad (\text{A.36})$$

und für deren Inverse die Beziehungen

$$\mathbf{L}^{-1} = \mathbf{U}\mathbf{S}^{-1} \quad \mathbf{U}^{-1} = \mathbf{S}^{-1}\mathbf{L} \quad (\text{A.37})$$

gelten (siehe [171], Kapitel 6.1.2). Da \mathbf{S} reell ist, sind auch \mathbf{L} und \mathbf{U} reell. Definiert man einen Koeffizientenvektor \mathbf{d}_i durch

$$\mathbf{d}_i = \mathbf{U}\mathbf{c}_i, \quad (\text{A.38})$$

so zeigt Einsetzen in Gl. (A.33) unter Ausnutzung der Eigenschaft (A.36), dass \mathbf{U} eine Transformation auf eine Orthonormalbasis vermittelt

$$1 = \langle \psi_i | \psi_i \rangle = \mathbf{c}_i^\dagger \mathbf{S} \mathbf{c}_i = \mathbf{c}_i^\dagger \mathbf{L}\mathbf{U} \mathbf{c}_i = \mathbf{c}_i^\dagger \mathbf{U}^\top \mathbf{U} \mathbf{c}_i = \mathbf{d}_i^\dagger \mathbf{d}_i. \quad (\text{A.39})$$

Die gekoppelten Kanalgleichungen bezüglich der Orthonormalbasis erhält man durch Einsetzen der zu Gl. (A.38) inversen Transformation $\mathbf{c}_i = \mathbf{U}^{-1}\mathbf{d}_i$ in Gl. (A.32)

$$i\mathbf{S} \left(\dot{\mathbf{U}}^{-1} \mathbf{d}_i + \mathbf{U}^{-1} \dot{\mathbf{d}}_i \right) = \mathbf{M}\mathbf{U}^{-1} \mathbf{d}_i. \quad (\text{A.40})$$

Multiplikation von links mit $\mathbf{U}\mathbf{S}^{-1}$ und Benutzung von Gl. (A.37) führt auf die Form

$$i\dot{\mathbf{d}}_i = \tilde{\mathbf{M}}\mathbf{d}_i, \quad (\text{A.41})$$

mit der Definition

$$\tilde{\mathbf{M}} = \mathbf{L}^{-1}\mathbf{M}\mathbf{U}^{-1} - i\mathbf{U}\dot{\mathbf{U}}^{-1} \quad (\text{A.42})$$

für die Wechselwirkungsmatrix $\tilde{\mathbf{M}}$. Aus der Normerhaltung folgt unmittelbar

$$\begin{aligned} 0 &= \partial_t (\mathbf{d}^+ \mathbf{d}) = (\dot{\mathbf{d}}^+) \mathbf{d} + \mathbf{d}^+ \dot{\mathbf{d}} = \\ &= (\dot{\mathbf{d}})^+ \mathbf{d} + \mathbf{d}^+ \dot{\mathbf{d}} = -i\mathbf{d}^+ \tilde{\mathbf{M}}^+ \mathbf{d} - i\mathbf{d}^+ \tilde{\mathbf{M}} \mathbf{d}, \end{aligned} \quad (\text{A.43})$$

also

$$\tilde{\mathbf{M}} = \tilde{\mathbf{M}}^+, \quad (\text{A.44})$$

d.h. die Hermitizität von $\tilde{\mathbf{M}}$. Der Vorteil der Dreieckszerlegung gegenüber anderen Transformationen auf Orthonormalbasen liegt darin, dass die Matrix $\tilde{\mathbf{M}}$ allein durch die Matrixelemente des ersten Terms $\mathbf{L}^{-1}\mathbf{M}\mathbf{U}^{-1}$ gegeben ist, und damit die Zeitableitung $\dot{\mathbf{U}}^{-1}$ nicht berechnet werden muss. Zum Beweis betrachtet man zunächst die Diagonalelemente von $\tilde{\mathbf{M}}$. Weil $\tilde{\mathbf{M}}$ hermitesch ist, sind die Diagonalelemente reell. Da die Transformationsmatrix \mathbf{U} ebenfalls reell ist, bleibt der zweite Term auf der rechten Seite von Gl. (A.42) rein imaginär. Daraus folgt

$$(\tilde{\mathbf{M}})_{kk} = \Re(\mathbf{L}^{-1}\mathbf{M}\mathbf{U}^{-1})_{kk} \quad (\text{A.45})$$

und

$$\Im(\mathbf{L}^{-1}\mathbf{M}\mathbf{U}^{-1})_{kk} = i(\mathbf{U}\dot{\mathbf{U}}^{-1})_{kk}. \quad (\text{A.46})$$

Im zweiten Schritt werden Matrixelemente des unteren Dreiecks von $\tilde{\mathbf{M}}$ berechnet. Da sowohl \mathbf{U} , $\dot{\mathbf{U}}$ als auch $\dot{\mathbf{U}}^{-1}$ und $\mathbf{U}\dot{\mathbf{U}}^{-1}$ obere Dreiecksmatrizen sind, gilt

$$(\tilde{\mathbf{M}})_{k>j} = (\mathbf{L}^{-1}\mathbf{M}\mathbf{U}^{-1})_{k>j}, \quad (\text{A.47})$$

und aufgrund der Hermitizität sind die Elemente des oberen Dreiecks von $\tilde{\mathbf{M}}$

$$(\tilde{\mathbf{M}})_{j>k} = (\mathbf{L}^{-1}\mathbf{M}\mathbf{U}^{-1})_{j>k} - i(\mathbf{U}\dot{\mathbf{U}}^{-1})_{j>k} \quad (\text{A.48})$$

allein gegeben durch

$$(\tilde{\mathbf{M}})_{j>k} = (\tilde{\mathbf{M}})_{k>j}^*. \quad (\text{A.49})$$

Durch die Beziehungen (A.45), (A.47) und (A.49) wird die Behauptung bewiesen. Das lineare Differentialgleichungssystem (A.41) kann mit einem herkömmlichen Algorithmus, wie z.B. dem Adams-Verfahren [172], numerisch gelöst werden.

A.4 Projektion auf bewegte Projektilzustände

Die Berechnung der Übergangsamplituden für Einfang $c_{n_k l_k m_k}^{iP}$ erfolgt wie im Abschnitt A.2.1 in Bezug auf entlang der internuklearen Achse quantisierter Orbitale. Da Einfang nur für positiv geladene Projektile auftreten kann, wird im Folgenden nur eine durch die Wechselwirkung \tilde{W}_P generierte BGM-Basis (2.74) betrachtet. Dazu werden wie zuvor Drehoperatoren $\hat{R}(\theta)$ auf beiden Seiten der Übergangsamplituden eingeschoben und die Definitionen (A.17, A.19) für die gedrehten Zustände und die Matrixelemente des

Drehoperators benutzt. Die Übergangsamplituden lassen sich analog den Matrixelementen nach (g)erader und (u)ngerader Symmetrie bezüglich Spiegelungen an der Streuebene unterscheiden

$$\begin{aligned}
c_{n_k l_k m_k}^{iP}(t_f)^{(g/u)} &= \langle \varphi_{n_k l_k m_k}^P(t_f) | \psi_i(t_f) \rangle^{(g/u)} \\
&= \langle \varphi_{n_k l_k m_k}^P(t_f) | \hat{R}^{-1}(\theta) \hat{R}(\theta) | \psi_i(t_f) \rangle^{(g/u)} \\
&= \sum_{M_k=0}^{l_k} \langle \tilde{\varphi}_{n_k l_k m_k}^P(t_f) | \hat{R}(\theta) | \tilde{\varphi}_{n_k l_k M_k}^P(t_f) \rangle \langle \tilde{\varphi}_{n_k l_k M_k}^P(t_f) | \psi_i(t_f) \rangle^{(g/u)} \\
&= \sum_{M_k=0}^{l_k} \tilde{d}_{m_k M_k}^{l_k(g/u)}(\theta) \langle \tilde{\varphi}_{n_k l_k M_k}^P(t_f) | \psi_i(t_f) \rangle^{(g/u)}. \tag{A.50}
\end{aligned}$$

Um das angegebene Überlappintegral zu berechnen, betrachtet man zunächst die Entwicklung der Orbitale $|\psi_i\rangle$ nach den nichtorthogonalen Basiszuständen (2.77)

$$|\psi_i(t)\rangle = \sum_{\mu=0}^M \sum_{v=1}^V c_{\mu v}^i(t) |\tilde{\chi}_v^\mu\rangle = \sum_{\mu'=0}^M \sum_{v'=1}^V b_{\mu' v'}^i(t) (\tilde{W}_P)^{\mu'} |\varphi_{v'}^0\rangle, \tag{A.51}$$

wobei die Entwicklungskoeffizienten durch

$$b_{\mu' v'}^i(t) = \sum_{\mu=\mu'}^M \sum_{v=1}^V c_{\mu v}^i(t) a_{v' v}^{\mu' \mu} \tag{A.52}$$

gegeben sind, mit den Koeffizienten $a_{v' v}^{\mu' \mu}$ aus dem Ausdruck (A.6). Die Auflösung des Multiindex v' in die Quantenzahlen $n' l' m'$ und nochmaliges Einschleiben von $\hat{R}^{-1}(\theta) \hat{R}(\theta)$ in Gleichung (A.50) führt auf

$$\begin{aligned}
c_{n_k l_k m_k}^{iP}(t_f)^{(g/u)} &= \sum_{\mu'=0}^M \sum_{n' l' m'} \sum_{M_k=0}^{l_k} \sum_{M'=0}^{l'} b_{\mu', n' l' m'}^i(t_f) \tilde{d}_{m_k M_k}^{l_k(g/u)}(\theta) \tilde{d}_{m' M'}^{l'(g/u)}(\theta) \\
&\quad \times \langle \tilde{\varphi}_{n_k l_k M_k}^P(t_f) | (\tilde{W}_P)^{\mu'} | \tilde{\varphi}_{n' l' M'}^0 \rangle^{(g/u)}. \tag{A.53}
\end{aligned}$$

Liegen auch die Projektilzustände als Entwicklung nach den nichtorthogonalen Basiszuständen (2.77) vor

$$|\varphi_{n_k l_k m_k}^P(t)\rangle = \sum_{\mu''=0}^M \sum_{v''=1}^V a_{\mu'' v''}^{n_k l_k m_k}(t) (\tilde{W}_P)^{\mu''} |\varphi_{v''}^0\rangle, \tag{A.54}$$

so findet man für die entsprechenden Übergangsamplituden analog zu (A.53)

$$\begin{aligned}
c_{n_k l_k m_k}^{iP}(t_f)^{(g/u)} &= \sum_{\mu'', \mu'=0}^M \sum_{n'' l'' m''} \sum_{n' l' m'} \sum_{M''=0}^{l''} \sum_{M'=0}^{l'} a_{\mu'', n'' l'' m''}^{i n_k l_k m_k^*}(t_f) b_{\mu', n' l' m'}^i(t_f) \\
&\quad \times \tilde{d}_{m'' M''}^{l''(g/u)}(\theta) \tilde{d}_{m' M'}^{l'(g/u)}(\theta) \\
&\quad \times \langle \tilde{\varphi}_{n'' l'' M''}^0 | (\tilde{W}_P)^{\mu'' + \mu'} | \tilde{\varphi}_{n' l' M'}^0 \rangle^{(g/u)}. \tag{A.55}
\end{aligned}$$

Anders als im Matricelement (A.27) tragen in (A.53) und (A.55) die im Bravektor auftauchenden Zustände aus der Sicht des inertialen Targetsystems eine Translationsphase. Diese resultiert aus ihrer Bewegung mit der Projektilgeschwindigkeit v entlang der Strahlachse (vergleiche Abschnitt 3.7 in [67]). In der hier verwendeten Geometrie einer geraden Projektilbahn ergibt sich für das Integral in Gleichung (A.53) (und in ähnlicher Weise auch für (A.55))

$$\begin{aligned} W_{\mu', n_k l_k M_k, n' l' M'} &\equiv \langle \tilde{\varphi}_{n_k l_k M_k}^P(t_f) | (\tilde{W}_P)^{\mu'} | \tilde{\varphi}_{n' l' M'}^0 \rangle \\ &= \exp \left[i \left(\frac{v^2}{2} + \varepsilon_k \right) t_f \right] \int d^3 r \tilde{\varphi}_{n_k l_k M_k}^{*P}(\mathbf{r}_P, t_f) \exp[-i v z_I] (\tilde{W}_P(r_P, t_f))^{\mu'} \tilde{\varphi}_{n' l' M'}^0(\mathbf{r}), \end{aligned} \quad (\text{A.56})$$

wobei z_I die z -Koordinate im inertialen Targetsystem bezeichnet, während die anderen Koordinaten auf das rotierende System bezogen sind (siehe Abbildung A.1). Durch die Koordinatentransformation

$$z_I = z \cos \theta - x \sin \theta \quad (\text{A.57})$$

und Verwendung der Beziehung (A.23, A.24, A.25) kann der Integrand in (A.56) vollständig durch die im rotierenden System definierten prolat-elliptischen Koordinaten (A.22) ausgedrückt werden. Mit Hilfe der Definitionen

$$\delta = \frac{R}{2} v \cos \theta \quad (\text{A.58})$$

und

$$\kappa(\xi, \eta) = \frac{R}{2} v \sin \theta [(1 - \eta^2)(\xi^2 - 1)]^{\frac{1}{2}} \quad (\text{A.59})$$

sowie dem Volumenelement (A.26) bleibt dann

$$\begin{aligned} W_{\mu', n_k l_k M_k, n' l' M'} &= \exp \left[i \left(\frac{v^2}{2} + \varepsilon_k \right) t_f \right] \frac{R^3}{8} \int_1^\infty d\xi \int_{-1}^1 d\eta (\xi^2 - \eta^2) \exp[-i\delta(\xi\eta + 1)] \\ &\times \tilde{\varphi}_{n_k l_k M_k}^{*P}(r_P(\xi, \eta), \cos \vartheta_P(\xi, \eta)) (\tilde{W}_P(r_P(\xi, \eta)))^{\mu'} \tilde{\varphi}_{n' l' M'}^0(r(\xi, \eta), \cos \vartheta(\xi, \eta)) \\ &\times \int_0^{2\pi} d\varphi \exp[i\kappa(\xi, \eta) \cos \varphi] \begin{cases} \cos(M_k \varphi) \cos(M' \varphi) & g \\ \sin(M_k \varphi) \sin(M' \varphi) & u \end{cases} \end{aligned} \quad (\text{A.60})$$

zu berechnen, wobei die $\xi\eta$ -Anteile der Projektil- und Targetwellenfunktionen entsprechend Gleichung (A.28) definiert worden sind. Wegen des x -Anteils der Translationsphase gestaltet sich die φ -Integration hier komplizierter als im Matricelement (A.27). Es ist jedoch möglich, sowohl für den (g) als auch für den (u) Anteil diese Bestandteile der Integrale auf Kombinationen einer Integraldarstellung der Bessel-Funktionen $J_m(x)$ zurückzuführen. Gemäß Formel 9.1.41 aus [223] gilt für $t \neq 0$ die Entwicklung

$$\exp \left[\frac{1}{2} x \left(t - \frac{1}{t} \right) \right] = \sum_{n=-\infty}^{\infty} t^n J_n(x). \quad (\text{A.61})$$

Nach Durchführung der Substitution $t = i \exp[i\varphi]$, Multiplikation mit $\exp[-im\varphi]$ und Integration über φ erhält man aus (A.61)

$$J_m(x) = \frac{i^{-m}}{2\pi} \int_0^{2\pi} d\varphi \exp[i(x \cos \varphi - m\varphi)] , \quad (\text{A.62})$$

wobei die Relationen

$$J_{-m}(x) = (-1)^m J_m(x) = J_m(-x) \quad (\text{A.63})$$

gelten. Löst man die trigonometrischen Funktionen in (A.60) mit Hilfe der Additionstheoreme in Exponentialfunktionen auf und verwendet die Beziehungen (A.62, A.63), so können die φ -Integrale als

$$\begin{aligned} I_g &= \int_0^{2\pi} d\varphi \exp[i\kappa \cos \varphi] \cos(M_k \varphi) \cos(M' \varphi) \\ &= \pi \left((i)^{M_k+M'} J_{M_k+M'}(\kappa) + (i)^{|M_k-M'|} J_{|M_k-M'|}(\kappa) \right) \end{aligned} \quad (\text{A.64})$$

$$\begin{aligned} I_u &= \int_0^{2\pi} d\varphi \exp[i\kappa \cos \varphi] \sin(M_k \varphi) \sin(M' \varphi) \\ &= -\pi \left((i)^{M_k+M'} J_{M_k+M'}(\kappa) - (i)^{|M_k-M'|} J_{|M_k-M'|}(\kappa) \right) \end{aligned} \quad (\text{A.65})$$

geschrieben werden. Die (ξ, η) -Integration in Gleichung (A.60) wird wie bei den Grundmatrixelementen in Abschnitt A.2.1 numerisch durchgeführt.

Anhang B

Matrizelemente zur Darstellung der Poisson-Gleichung

Die Matrizelemente der linken Seite der Poisson-Gleichung (3.21) in der Darstellung (3.28) haben die Form

$$\langle \tilde{W}_{X'}^{\lambda'} Y_{l'm'}^{X'} | \Delta | \tilde{W}_X^\lambda Y_{lm}^X \rangle, \quad X, X' : P, T. \quad (\text{B.1})$$

In Kugelkoordinaten ausgedrückt lautet der Laplace-Operator

$$\Delta = \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial}{\partial r} - \frac{1}{r^2} \hat{l}^2, \quad (\text{B.2})$$

wobei die Kugelflächenfunktionen die Eigenwertgleichung

$$\hat{l}^2 Y_{lm} = l(l+1) Y_{lm} \quad (\text{B.3})$$

erfüllen. Nach Ausführung der Differentiationen

$$\begin{aligned} \Delta \left(\tilde{W}_X^\lambda Y_{lm}^X \right) &= \left(\frac{\partial^2}{\partial r_X^2} \left(\tilde{W}_X^\lambda \right) + \frac{2}{r_X} \frac{\partial}{\partial r_X} \left(\tilde{W}_X^\lambda \right) - \frac{1}{r_X^2} \tilde{W}_X^\lambda \hat{l}^2 \right) Y_{lm}^X \\ &= \left(\lambda(\lambda-1) \tilde{W}_X^{\lambda-2} \left(-\frac{1}{r_X} \tilde{W}_X + \frac{\alpha}{r_X} \exp(-\alpha r_X) \right) \right)^2 \\ &\quad \underbrace{- \lambda \tilde{W}_X^{\lambda-1} \frac{\alpha^2}{r_X} \exp(-\alpha r_X) - \frac{1}{r_X^2} l(l+1) \tilde{W}_X^\lambda}_{K(r_X)} Y_{lm}^X, \quad X : P, T \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

findet man für (B.1) schließlich

$$\begin{aligned} \langle \tilde{W}_{X'}^{\lambda'} Y_{l'm'}^{X'} | \Delta | \tilde{W}_X^\lambda Y_{lm}^X \rangle &= \frac{R^3}{8} \int_1^\infty d\xi \int_{-1}^1 d\eta (\xi^2 - \eta^2) \\ &\quad \times \tilde{W}_{X'}^{\lambda'}(r_{X'}(\xi, \eta)) P_{l'}^{m'}(\cos \vartheta(\xi, \eta)) K(r_X(\xi, \eta)) P_l^m(\cos \vartheta(\xi, \eta)) \\ &\quad \times \int_0^{2\pi} d\varphi \cos(m\varphi) \cos(m'\varphi) \\ &= \frac{R^3}{8} I(\xi, \eta) (1 + \delta_{m0}) \pi \delta_{mm'}, \quad X, X' : P, T. \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

Die φ -Integration wurde wie in (A.27) analytisch ausgeführt, das Integral $I(\xi, \eta)$ muss numerisch berechnet werden.

Die Matricelemente auf der rechten Seite der Poisson-Gleichung (3.21) in der Darstellung (3.28) haben die Form

$$-2\pi \langle \tilde{W}_{X'}^{\lambda'} Y_{l'm'}^{X'} | \hat{n} \rangle, \quad X' : P, T, \quad (\text{B.6})$$

wobei die Definition

$$n(\mathbf{r}) = \langle \mathbf{r} | \hat{n} \rangle \quad (\text{B.7})$$

verwendet wird. Im rotierenden Koordinatensystem ergibt sich die Dichte für ein Zweiteilchen-System mit einer Spin-Singulett Konfiguration zu

$$n(\mathbf{r}, t) = 2|\psi(\mathbf{r}, t)|^2 = 2 \sum_{\mu, \mu'=0}^M \sum_{\nu, \nu'=1}^V \tilde{a}_{\mu'\nu'}^*(t) \tilde{a}_{\mu\nu}(t) \tilde{\varphi}_{\nu'}^0(\mathbf{r}) \tilde{W}_X(\mathbf{r}, t)^{\mu'+\mu} \tilde{\varphi}_{\nu}^0(\mathbf{r}), \quad X : P, T, \quad (\text{B.8})$$

so dass man für (B.6) schließlich

$$\begin{aligned} -2\pi \langle \tilde{W}_{X'}^{\lambda'} Y_{l'm'}^{X'} | \hat{n} \rangle &= -4\pi \sum_{\mu, \mu'=0}^M \sum_{\nu, \nu'=1}^V \tilde{a}_{\mu'\nu'}^*(t) \tilde{a}_{\mu\nu}(t) \\ &\times \langle \tilde{\varphi}_{\nu'}^0 | (\tilde{W}_X)^{\mu'+\mu} \tilde{W}_{X'}^{\lambda'} Y_{l'm'}^{X'} | \tilde{\varphi}_{\nu}^0 \rangle, \quad X, X' : P, T \end{aligned} \quad (\text{B.9})$$

findet. Die hier auftretenden Matricelemente haben die Form (A.30) und wurden in Abschnitt A.2.2 berechnet.

Die Koeffizienten $a_{\mu\nu}(t) \equiv a_{nlm}^\mu(t)$ der Wellenfunktion bezüglich in Richtung der Strahlachse des Inertialsystems z_I quantisierter Basisfunktionen $|\varphi_\nu^0\rangle$ können mit Hilfe der Wignerschen d-Matrizen ((A.19),(A.20),(A.21)) auf Koeffizienten $\tilde{a}_{\mu\nu}(t) \equiv \tilde{a}_{nlm}^\mu(t)$, bezüglich in Richtung der internuklearen Achse (z-Achse) quantisierter Basisfunktionen $|\tilde{\varphi}_\nu^0\rangle$ transformiert werden

$$\tilde{a}_{nlm}^\mu(t) = \sum_{M'=0}^l d_{M'm}^l(\theta) a_{nlM'}^\mu(t). \quad (\text{B.10})$$

Anhang C

Verzeichnis der Abkürzungen

AO:	<u>A</u> tomic <u>O</u> rbitals
ASACUSA:	<u>A</u> tomic <u>S</u> pectroscopy <u>A</u> nd <u>C</u> ollisions <u>U</u> sing <u>S</u> low <u>A</u> ntiprotons
BGM:	<u>B</u> asis <u>G</u> enerator <u>M</u> ethod
CDW:	<u>C</u> ontinuum <u>D</u> istorted <u>W</u> ave
CERN:	<u>C</u> entre <u>E</u> uropéen pour la <u>R</u> echerche <u>N</u> ucléaire
CFCA:	<u>C</u> onvergent <u>F</u> rozen <u>C</u> orrelation <u>A</u> pproximation
CI:	<u>C</u> onfiguration <u>I</u> nteraction
COLTRIMS:	<u>C</u> old <u>T</u> arget <u>R</u> ecoil <u>I</u> on <u>M</u> omentum <u>S</u> pectroscopy
CTMC:	<u>C</u> lassical <u>T</u> rajectory <u>M</u> onte <u>C</u> arlo <u>M</u> ethod
DFT:	<u>D</u> ensity <u>F</u> unctional <u>T</u> heory
FIM:	<u>F</u> orced <u>I</u> mpulse <u>M</u> ethod
FLAIR:	<u>F</u> acility for <u>L</u> ow-energy <u>A</u> ntiproton and <u>I</u> on <u>R</u> esearch
GSI:	<u>G</u> esellschaft für <u>S</u> chwerionenforschung
GTO:	<u>G</u> aussian-type <u>O</u> rbitals
HF:	<u>H</u> artree <u>F</u> ock
IPM:	<u>I</u> ndependent <u>P</u> article <u>M</u> odel
KLI:	<u>K</u> rieger <u>L</u> i <u>I</u> afrate
KS:	<u>K</u> ohn <u>S</u> ham
LDA:	<u>L</u> ocal <u>D</u> ensity <u>A</u> pproximation
LDTSE:	<u>L</u> attice <u>T</u> ime <u>D</u> ependent <u>S</u> chrödinger <u>E</u> quation
LEAR:	<u>L</u> ow-energy <u>A</u> ntiproton <u>R</u> ing
MEHC:	<u>M</u> ulti <u>E</u> lectron <u>H</u> idden <u>C</u> rossing
MO:	<u>M</u> olecular <u>O</u> rbitals
OEDM:	<u>O</u> ne-electron <u>d</u> iatomic <u>m</u> olecular orbitals
OPM:	<u>O</u> ptimized <u>P</u> otential <u>M</u> ethod
POHCE:	<u>P</u> erturbative <u>O</u> ne-and-a- <u>H</u> alf- <u>C</u> entre <u>E</u> xpansion

PW91:	<u>P</u> erdew- <u>W</u> ang-91
SCA:	<u>S</u> emi- <u>C</u> lassical <u>A</u> pproximation
STO:	<u>S</u> later- <u>T</u> ype <u>O</u> rbitals
TDDFT:	<u>T</u> ime <u>D</u> ependent <u>D</u> ensity <u>F</u> unctional <u>T</u> heory
TDHF:	<u>T</u> ime <u>D</u> ependent <u>H</u> artree <u>F</u> ock
TDKS:	<u>T</u> ime <u>D</u> ependent <u>K</u> ohn <u>S</u> ham
TDSE:	<u>T</u> ime <u>D</u> ependent <u>S</u> chrödinger <u>E</u> quation
xc:	<u>e</u> xchange <u>c</u> orrelation

Literaturverzeichnis

- [1] S. K. Allison, *Experimental Results on Charge-Changing Collisions of Hydrogen and Helium Atoms and Ions at Kinetic Energies above 0.2 keV*, Rev. Mod. Phys. **30**, 1137 (1958).
- [2] S. K. Allison, *Double Electron Capture and Loss by Helium Ions Traversing Gases*, Phys. Rev. **109**, 76 (1958).
- [3] J. F. Williams und D. N. F. Dunbar, *Charge Exchange and Dissociation Cross Sections for H_1^+ , H_2^+ , and H_3^+ Ions of 2- to 50-keV Energy Incident Upon Hydrogen and Inert Gases*, Phys. Rev. **149**, 62 (1966).
- [4] J. Ullrich, R. Moshhammer, R. Dörner, O. Jagutzki, V. Mergel, H. Schmidt-Böcking und L. Spielberger, *Recoil Ion Momentum Spectroscopy*, J. Phys. B **30**, 2917 (1997).
- [5] R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich und H. Schmidt-Böcking, *Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy: A 'Momentum Microscope' to View Atomic Collision Dynamics*, Phys. Rep. **330**, 95 (2000).
- [6] J. Ullrich, R. Moshhammer, A. Dorn, R. Dörner, L. Schmidt und H. Schmidt-Böcking, *Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: reaction-microscopes*, Rep. Prog. Phys. **66**, 1463 (2003).
- [7] R. Moshhammer, D. Fischer und H. Kollmus, *Recoil-Ion Momentum Spectroscopy and 'Reaction Microscopes'*, in *Many-Particle quantum dynamics in atomic and molecular fragmentation*, herausgegeben von V. P. Shevelko und J. Ullrich, Seite 33, Springer-Verlag, Heidelberg, 2003.
- [8] N. Stolterfoht, R. D. DuBois und R. D. Rivarola, *Electron Emission in Heavy Ion-Atom Collisions*, Springer Series on Atomic, Optical, and Plasma Physics, Band 20, Springer-Verlag, Heidelberg, 1997.
- [9] V. Mergel, *Dynamische Elektronenkorrelationen in Helium*, Shaker Verlag, Aachen, 1996.
- [10] V. Mergel, R. Dörner, K. Khayyat, M. Achler, T. Weber, O. Jagutzki, H. J. Lüdde, C. L. Cocke und H. Schmidt-Böcking, *Strong correlations in the He ground state momentum wave function observed in the fully differential momentum distributions for the p+He transfer ionization process*, Phys. Rev. Lett. **86**, 2257 (2001).
- [11] H. T. Schmidt, A. Fardi, R. Schuch, S. H. Schwartz, H. Zettergren, H. Cederquist, L. Bagge, H. Danared, A. Källberg, J. Jensen, K.-G. Rensfelt, V. Mergel, L. Schmidt, H. Schmidt-Böcking und C. L. Cocke, *Double-to-Single Target Ionization Ratio for Electron Capture in Fast p-He Collisions*, Phys. Rev. Lett. **89**, 163201 (2002).
- [12] H. Schmidt-Böcking, V. Mergel, R. Dörner, O. Jagutzki, L. Schmidt, T. Weber, C. L. Cocke, H. J. Lüdde, E. Weigold, Y. Popov, H. Cederquist, H. T. Schmidt, R. Schuch und J. Berakdar, *Experimental investigation of the asymptotic momentum wave function of the He ground state*, in *Correlation, polarization, and ionization in atomic systems*, herausgegeben von D. Madison und M. Schulz, AIP Conference Proceedings 604, Seite 120, American Institute of Physics, Melville, New York, 2002.

- [13] H. Schmidt-Böcking, V. Mergel, R. Dörner, H. J. Lüdde, L. Schmidt, T. Weber, E. Weigold und A. S. Kheifets, *Fast p-He Transfer Ionization Processes: A Window to Reveal the Non- s^2 Contributions in the Momentum Wave Function of Ground-State He*, in *Many-Particle quantum dynamics in atomic and molecular fragmentation*, herausgegeben von V. P. Shevelko und J. Ullrich, Seite 353, Springer-Verlag, Heidelberg, 2003.
- [14] H. Schmidt-Böcking, V. Mergel, R. Dörner, C. L. Cocke, O. Jagutzki, L. Schmidt, T. Weber, H. J. Lüdde, E. Weigold, J. Berakdar, H. Cederquist, H. T. Schmidt, R. Schuch und A. S. Kheifets, *Revealing the non- s^2 contributions in the momentum wave function of ground state He*, *Europhys. Lett.* **62**, 477 (2003).
- [15] H. Schmidt-Böcking, V. Mergel, L. Schmidt, R. Dörner, O. Jagutzki, K. Ullmann, T. Weber, H. J. Lüdde, E. Weigold und A. S. Kheifets, *Dynamics of ionization processes studied with the COLTRIMS method - new insight into e-e correlation*, *Radiation Physics and Chemistry* **68**, 41 (2003).
- [16] B. Helmes, *Untersuchung der Transferionisation in protoninduzierten Stoßprozessen an Heliumatomen*, Dissertation, Institut für Theoretische Physik, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt, 2003.
- [17] A. L. Godunov, C. T. Whelan und H. R. J. Walters, *Fully differential cross sections for transfer ionization - a sensitive probe of high level correlation effects in atoms*, *J. Phys. B* **37**, L201 (2004).
- [18] K. R. Sandhya Devi und S. E. Koonin, *Mean-Field Approximation to p+He Scattering*, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 27 (1981).
- [19] K. C. Kulander, K. R. Sandhya Devi und S. E. Koonin, *Time-dependent Hartree-Fock theory of charge exchange: Application to $He^{2+} + He$* , *Phys. Rev. A* **25**, 2968 (1982).
- [20] K. R. Sandhya Devi und J. D. Garcia, *$He^{2+} + He$ collisions in time-dependent Hartree-Fock theory*, *J. Phys. B* **16**, 2837 (1983).
- [21] W. Stich, H. J. Lüdde und R. M. Dreizler, *Time-dependent Hartree-Fock description of one and two electron capture in collisions of $(He - He)^{2+}$* , *Phys. Lett. A* **99**, 41 (1983).
- [22] K. R. Sandhya Devi und J. D. Garcia, *Coriolis coupling effects in time-dependent Hartree-Fock calculations of ion-atom collisions*, *Phys. Rev. A* **30**, 600 (1984).
- [23] W. Stich, H. J. Lüdde und R. M. Dreizler, *TDHF calculations for two-electron systems*, *J. Phys. B* **18**, 1195 (1985).
- [24] K. Gramlich, N. Grün und W. Scheid, *The time-dependent Hartree-Fock method within a Gauss-lobe basis and application to proton-He collisions*, *J. Phys. B* **19**, 1457 (1986).
- [25] N. C. Deb und D. S. F. Crothers, *Double ionization of helium by alpha-particle impact*, *J. Phys. B* **23**, L799 (1990).
- [26] N. C. Deb und D. S. F. Crothers, *Double ionization of helium by fully stripped ions in the independent-event model*, *J. Phys. B* **24**, 2359 (1991).
- [27] D. Belkić, *Two-electron capture from helium-like atomic systems by completely stripped ions*, *J. Phys. B* **26**, 497 (1993).
- [28] D. Belkić, I. Mančev und M. Mudrinić, *Two-electron capture from helium by fast α particles*, *Phys. Rev. A* **49**, 3646 (1994).
- [29] D. Belkić, I. Mančev und V. Mergel, *Four-body model for transfer ionization in fast ion-atom collisions*, *Phys. Rev. A* **55**, 378 (1997).
- [30] D. Belkić, R. Gayet, J. Hanssen, I. Mančev und A. Nuñez, *Dynamic electron correlation in single capture from helium by fast protons*, *Phys. Rev. A* **56**, 3675 (1997).
- [31] I. Mančev, *Electron correlation in single-electron capture from heliumlike atomic systems*, *Phys. Rev. A* **60**, 351 (1999).

- [32] I. Mančev, *Single charge exchange in fast collisions of alpha particles with helium*, J. Phys. B **36**, 93 (2003).
- [33] P. N. Abufager, A. E. Mertínez, R. D. Rivarola und P. D. Fainstein, *CDW-EIS model for single-electron capture in ion-atom collisions involving multielectron targets*, J. Phys. B **37**, 817 (2004).
- [34] D. S. F. Crothers und L. J. Dubé, *Continuum Distorted-Wave Methods in Ion-Atom Collisions*, Adv. At. Mol. Opt. Phys. **30**, 287 (1993).
- [35] L. H. Andersen, P. Hvelplund, H. Knudsen, S. P. Møller, K. Elsener, K.-G. Rensfelt und E. Uggerhøj, *Single and Double Ionization of Helium by Fast Antiproton and Proton Impact*, Phys. Rev. Lett. **57**, 2147 (1986).
- [36] P. D. Fainstein, V. H. Ponce und R. D. Rivarola, *Z_p^3 effects in the ionization of helium by ion impact*, Phys. Rev. A **36**, 3639 (1987).
- [37] P. D. Fainstein, V. H. Ponce und R. D. Rivarola, *Ionisation of helium by antiproton and proton impact*, J. Phys. B **21**, 2989 (1988).
- [38] D. Fischer, R. Moshhammer, A. Dorn, J. R. Crespo López-Urrutia, B. Feuerstein, C. Höhr, C. D. Schröter, S. Hagmann, H. Kollmus, R. Mann, B. Bapat und J. Ullrich, *Projectile-Charge Sign Dependence of Four-Particle Dynamics in Helium Double Ionization*, Phys. Rev. Lett. **90**, 243201 (2003).
- [39] D. Fischer, R. Moshhammer, A. Dorn, J. R. Crespo López-Urrutia, B. Feuerstein, C. Höhr, C. D. Schröter, S. Hagmann, H. Kollmus, R. Mann, B. Bapat und J. Ullrich, *Double ionization of helium by impact of particles with positive and negative charge*, in *Correlation and Polarization in Photonic, Electronic, and Atomic Collisions*, herausgegeben von G. F. Hanne, L. Malegat und H. Schmidt-Böcking, AIP Conference Proceedings 697, Seite 65, American Institute of Physics, Melville, New York, 2003.
- [40] J. F. Reading und A. L. Ford, *The forced impulse method applied to the double ionisation of helium by collisions with high-energy protons, antiprotons and alpha particles*, J. Phys. B **20**, 3747 (1987).
- [41] J. F. Reading und A. L. Ford, *Double Ionization of Helium by Protons and Antiprotons in the Energy Range 0.30 to 40 MeV*, Phys. Rev. Lett. **58**, 543 (1987).
- [42] H. Knudsen und J. F. Reading, *Ionization of atoms by particle and antiparticle impact*, Phys. Rep. **212**, 107 (1992).
- [43] A. L. Ford und J. F. Reading, *Improved forced impulse method calculations of single and double ionization of helium by collisions with high-energy protons and antiprotons*, J. Phys. B **27**, 4215 (1994).
- [44] J. F. Reading, T. Bronk und A. L. Ford, *Electron correlation in the ionization of helium by high-energy protons and antiprotons*, J. Phys. B **29**, 6075 (1996).
- [45] T. Bronk, J. F. Reading und A. L. Ford, *Intermediate-state dynamic correlation in the ionization of helium*, J. Phys. B **31**, 2477 (1998).
- [46] C. Díaz, F. Martín und A. Salin, *The role of dynamic correlation in double ionization of He by high-energy protons and antiprotons*, J. Phys. B **33**, 4373 (2000).
- [47] C. Díaz, F. Martín und A. Salin, *Time-dependent close-coupling calculations of double ionization of helium by protons and antiprotons*, J. Phys. B **35**, 2555 (2002).
- [48] J. F. Reading, T. Bronk, A. L. Ford, L. A. Wehrman und K. A. Hall, *Multi-cut forced impulse method single-ionization cross sections for slow antiprotons on helium*, J. Phys. B **30**, L189 (1997).
- [49] R. Nagano, K. Yabana, T. Tazawa und Y. Abe, *Application of the time-dependent local density approximation to collisions between a highly charged ion and an atom*, J. Phys. B **32**, L65 (1999).
- [50] R. Nagano, K. Yabana, T. Tazawa und Y. Abe, *Time-dependent mean-field description for multiple charge-transfer processes in $Ar^{8+} - Ar$ collisions*, Phys. Rev. A **62**, 062721 (2000).

- [51] X. M. Tong, T. Watanabe, D. Kato und S. Ohtani, *Single ionization of helium by antiprotons: A case study by self-interaction-free time-dependent density-functional theory*, Phys. Rev. A **66**, 032709 (2002).
- [52] M. Keim, A. Achenbach, H. J. Lüdde und T. Kirchner, *Microscopic response effects in collisions of antiprotons with helium atoms and lithium ions*, Phys. Rev. A **67**, 062711 (2003).
- [53] M. Keim, A. Achenbach, H. J. Lüdde und T. Kirchner, *Time-dependent density functional theory calculations for collisions of bare ions with helium*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B (2004), (zur Veröffentlichung angenommen).
- [54] T. Kirchner, *Electron interaction effects in ion-induced rearrangement and ionization dynamics: a theoretical perspective*, in *Many-Particle quantum dynamics in atomic and molecular fragmentation*, herausgegeben von V. P. Shevelko und J. Ullrich, Seite 447, Springer-Verlag, Heidelberg, 2003.
- [55] H. J. Lüdde, T. Kirchner und M. Horbatsch, *Quantum mechanical treatment of ion collisions with many-electron atoms*, in *XXII. International Conference on Photonic, Electronic, and Atomic Collisions. Invited Papers*, herausgegeben von J. Burgdörfer, J. Cohen, S. Datz und C. R. Vane, Seite 708, Rinton Press, Princeton, 2002.
- [56] T. Kirchner, H. J. Lüdde und M. Horbatsch, *A time-dependent quantal approach to electronic transitions in atomic collisions*, in *Recent Research Developments in Physics*, Band 5, Seite 433, Transworld Research Network, Kerala, 2004.
- [57] M. Keim, *Streuung vollständig ionisierter Projektile an lithiumähnlichen Ionen*, Diplomarbeit, Institut für Theoretische Physik, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt, 1999.
- [58] M. Keim, A. Achenbach, T. Kirchner, H. J. Lüdde und R. M. Dreizler, *Einfang und Ionisation in Stößen zwischen Alpha-Teilchen und Lithium-ähnlichen Ionen*, Arbeitsbericht Energiereiche Atomare Stöße **20**, 142 (1999).
- [59] T. Kirchner, M. Keim, A. Achenbach, H. J. Lüdde, O. J. Kroneisen und R. M. Dreizler, *Basis generator method study of collisions between alpha particles and lithium-like ions*, Phys. Scr. **T80**, 270 (1999).
- [60] D. Skiera, R. Trassl, K. Huber, H. Bräuning, E. Salzborn, M. Keim, A. Achenbach, T. Kirchner, H. J. Lüdde und R. M. Dreizler, *Charge-changing processes in collisions between Li-like ions and He²⁺*, Phys. Scr. **T92**, 423 (2001).
- [61] D. Elizaga, L. F. Errea, J. D. Gorfinkiel, C. Illescas, L. Méndez, A. Macías, A. Riera, A. Rojas, O. J. Kroneisen, T. Kirchner, H. J. Lüdde, A. Henne und R. M. Dreizler, *Theoretical analysis of electron capture and electron-loss in Be⁴⁺ + H₂ and H⁺ + H₂ collisions*, J. Phys. B **32**, 857 (1999).
- [62] A. Achenbach, *Beschreibung von Stößen zwischen Ionen und kleinen Molekülen durch molekulare Modellpotentiale*, Diplomarbeit, Institut für Theoretische Physik, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt, 1999.
- [63] O. J. Kroneisen, *Quantentheoretische Beschreibung der Elektronendynamik in semiklassischen Ion-Molekül-Stößen*, Dissertation, Institut für Theoretische Physik, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt, 2001.
- [64] T. Kirchner, *Manipulating ion-atom collisions with coherent electromagnetic radiation*, Phys. Rev. Lett. **89**, 093203 (2002).
- [65] T. Kirchner, *Laser-field induced modifications of electron transfer processes in ion-atom collisions*, Phys. Rev. A **69**, 063412 (2004).
- [66] M. R. C. McDowell und J. P. Coleman, *Introduction to the theory of ion-atom collisions*, North-Holland, New York, 1970.
- [67] B. H. Bransden und M. R. C. McDowell, *Charge Exchange and the Theory of Ion-Atom Collisions*, Clarendon Press, Oxford, 1992.

- [68] J. S. Briggs und J. M. Rost, *Time dependence in quantum mechanics*, Eur. Phys. J. D **10**, 311 (2000).
- [69] H. J. Lüdde und R. M. Dreizler, *Comments on inclusive cross sections*, J. Phys. B **18**, 107 (1985).
- [70] P.-O. Löwdin, *Quantum Theory of Many-Particle Systems. I. Physical Interpretations by Means of Density Matrices, Natural Spin-Orbitals, and Convergence Problems in the Method of Configurational Interaction*, Phys. Rev. **97**, 1474 (1955).
- [71] P. Hohenberg und W. Kohn, *Inhomogeneous Electron Gas*, Phys. Rev. **136**, B864 (1964).
- [72] W. Kohn und L. J. Sham, *Self-Consistent Equations Including Exchange and Correlation Effects*, Phys. Rev. **140**, A1133 (1965).
- [73] R. G. Parr und W. Yang, *Density Functional Theory of Atoms and Molecules*, Oxford University Press, New York, 1989.
- [74] R. M. Dreizler und E. K. U. Gross, *Density Functional Theory*, Springer-Verlag, Heidelberg, 1990.
- [75] R. O. Jones und O. Gunnarsson, *The density functional formalism, its applications and prospects*, Rev. Mod. Phys. **61**, 689 (1989).
- [76] Á. Nagy, *Density Functional. Theory and application to atoms and molecules*, Phys. Rep. **298**, 1 (1998).
- [77] E. Runge und E. K. U. Gross, *Density-Functional Theory for Time-Dependent Systems*, Phys. Rev. Lett. **52**, 997 (1984).
- [78] E. K. U. Gross, J. F. Dobson und M. Petersilka, *Density functional theory for time-dependent phenomena*, in *Topics in Current Chemistry*, herausgegeben von R. F. Nalewajski, Band 181, Seite 81, Springer-Verlag, Heidelberg, 1996.
- [79] K. Burke und E. K. U. Gross, *A Guided Tour of Time-Dependent Density Functional Theory*, in *Density Functionals: Theory and Applications, Proceedings of the Tenth Chris Engelbrecht Summer School in Theoretical Physics Held at Meerensee, near Cape Town, South Africa, 19-29 January 1997*, herausgegeben von D. Joubert, Lecture Notes in Physics 500, Seite 116, Springer-Verlag, Heidelberg, 1998.
- [80] N. T. Maitra, K. Burke, H. Appel, E. K. U. Gross und R. van Leeuwen, *Ten Topical Questions in Time-Dependent Density Functional Theory*, in *Reviews in Modern Quantum Chemistry: A Celebration of the Contributions of R.G. Parr*, herausgegeben von K. D. Sen, Seite 1186, World Scientific, Singapur, 2002.
- [81] M. A. L. Marques und E. K. U. Gross, *Time-Dependent Density Functional Theory*, in *A Primer in Density Functional Theory*, herausgegeben von C. Fiolhais, F. Nogueira und M. A. L. Marques, Lecture Notes in Physics 620, Seite 144, Springer-Verlag, Heidelberg, 2003.
- [82] H. J. Lüdde, *Time-dependent density functional theory in atomic collisions*, in *Many-Particle quantum dynamics in atomic and molecular fragmentation*, herausgegeben von V. P. Shevelko und J. Ullrich, Seite 205, Springer-Verlag, Heidelberg, 2003.
- [83] M. Levy, *Electron densities in search of Hamiltonians*, Phys. Rev. A **26**, 1200 (1982).
- [84] E. H. Lieb, *Density Functionals For Coulomb Systems*, in *Density Functional Methods In Physics*, herausgegeben von R. M. Dreizler und J. da Providência, NATO ASI Series B 123, Seite 31, Plenum Press, New York, 1985.
- [85] R. van Leeuwen, *Key Concepts in Time-Dependent Density-Functional Theory*, Int. J. Mod. Phys. B **15**, 1969 (2001).
- [86] S. H. Vosko, L. Wilk und M. Nusair, *Accurate spin-dependent electron liquid correlation energies for local spin density calculations: a critical analysis*, Can. J. Phys. **58**, 1200 (1980).

- [87] J. P. Perdew und Y. Wang, *Accurate and simple analytic representation of the electron-gas correlation energy*, Phys. Rev. B **45**, 13244 (1992).
- [88] R. Latter, *Atomic Energy Levels for the Thomas-Fermi and Thomas-Fermi-Dirac Potential*, Phys. Rev. **99**, 510 (1955).
- [89] J. P. Perdew, *Orbital functional for exchange and correlation: self-interaction correction to the local density approximation*, Chem. Phys. Lett. **64**, 127 (1997).
- [90] J. P. Perdew und A. Zunger, *Self-interaction correction to density-functional approximations for many-electron systems*, Phys. Rev. B **23**, 5048 (1981).
- [91] J. D. Talmann und W. F. Shadwick, *Optimized effective atomic central potential*, Phys. Rev. A **14**, 36 (1976).
- [92] E. Engel und R. M. Dreizler, *From explicit to implicit density functionals*, J. Comp. Chem. **20**, 31 (1999).
- [93] E. Engel, *Orbital-dependent functionals for the exchange-correlation energy: A third generation of density functional theory*, in *A Primer in Density Functional Theory*, herausgegeben von C. Fiolhais, F. Nogueira und M. A. L. Marques, Lecture Notes in Physics 620, Seite 56, Springer-Verlag, Heidelberg, 2003.
- [94] E. Engel und S. H. Vosko, *Accurate optimized-potential-model solutions for spherical spin-polarized atoms: Evidence for limitations of the exchange-only local spin-density and generalized gradient approximations*, Phys. Rev. A **47**, 2800 (1993).
- [95] J. B. Krieger, Y. Li und G. J. Iafrate, *Derivation and application of an accurate Kohn-Sham potential with integer discontinuity*, Phys. Lett. A **146**, 256 (1990).
- [96] J. B. Krieger, Y. Li und G. J. Iafrate, *Construction and application of an accurate local spin-polarized Kohn-Sham potential with integer discontinuity: Exchange-only theory*, Phys. Rev. A **45**, 101 (1992).
- [97] R. Colle und O. Salvetti, *Approximate Calculation of the Correlation Energy for Closed Shells*, Theoret. Chim. Acta **37**, 329 (1975).
- [98] A. Facco Bonetti, *Implizite Dichtefunktionale: Untersuchung eines störungstheoretischen Zugangs für das Korrelationsenergiefunktional*, Dissertation, Institut für Theoretische Physik, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt, 2000.
- [99] A. Facco Bonetti, E. Engel, R. N. Schmid und R. M. Dreizler, *Investigation of the Correlation Potential from Kohn-Sham Perturbation Theory*, Phys. Rev. Lett. **52**, 2241 (2001).
- [100] J. F. Dobson, M. J. Brünner und E. K. U. Gross, *Time-Dependent Density Functional Theory beyond Linear Response: An Exchange-Correlation Potential with Memory*, Phys. Rev. Lett. **79**, 1905 (1997).
- [101] R. E. Olson und A. Salop, *Charge-transfer and impact-ionization cross sections for fully and partially stripped positive ions colliding with atomic hydrogen*, Phys. Rev. A **16**, 531 (1977).
- [102] C. L. Cocke und R. E. Olson, *Recoil Ions*, Phys. Rep. **205**, 153 (1991).
- [103] M. Horbatsch, *Analysis of charge-state-correlated multiple-capture and -ionization cross sections in fast Ar^{q+} -Ar collisions*, Phys. Rev. A **49**, 4556 (1994).
- [104] C. Illescas und A. Riera, *Classical study of single-electron capture and ionization processes in $A^{q+} + (H, H_2)$ collisions*, Phys. Rev. A **60**, 4546 (1999).
- [105] K. C. Kulander (Editor), *Thematic Issue on Time-Dependent Methods in Quantum Mechanics*, Comput. Phys. Commun. **63** (1991).
- [106] T. Kirchner, H. J. Lüdde, O. J. Kroneisen und R. M. Dreizler, *New trends in the description of ion-atom collisions by time-dependent quantum methods*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **154**, 46 (1999).

- [107] C. J. Joachain, *Quantum Collision Theory*, North-Holland, New York, 1975.
- [108] J. Eichler und W. E. Meyerhof, *Relativistic Atomic Collisions*, Academic Press, San Diego, 1995.
- [109] D. Belkić, R. Gayet und A. Salin, *Electron Capture in High-Energy Ion-Atom Collisions*, Phys. Rep. **56**, 279 (1979).
- [110] J. S. Briggs und J. H. Macek, *The theory of fast ion-atom collisions*, Adv. At. Mol. Opt. Phys. **28**, 1 (1991).
- [111] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling und B. P. Flannery, *Numerical Recipes in Fortran 77 Second Edition*, Cambridge University Press, Cambridge, 1992.
- [112] M. Horbatsch, *Calculation of saddle-point electron distributions in ion-atom collisions*, in *Proceedings of the 14th International Conference on the Application of Accelerators in Research and Industry*, herausgegeben von J. L. Duggan und I. L. Morgan, AIP Conference Proceedings 392, Seite 71, American Institute of Physics, Denton, 1997.
- [113] D. R. Schultz, M. R. Strayer und J. C. Wells, *Lattice, Time-Dependent Schrödinger Equation Solution for Ion-Atom Collisions*, Phys. Rev. Lett. **82**, 3976 (1999).
- [114] D. C. Ionescu und A. Belkacem, *Relativistic Collisions of Highly-Charged Ions*, Phys. Scr. **T80**, 128 (1999).
- [115] M. Chassid und M. Horbatsch, *One-dimensional quantum model for ion-atom collisions: analysis of longitudinal ionized electron momenta*, J. Phys. B **31**, 515 (1998).
- [116] A. Kolakowska, M. S. Pindzola, F. Robicheaux, D. R. Schultz und J. C. Wells, *Excitation and charge transfer in proton-hydrogen collisions*, Phys. Rev. A **58**, 2872 (1998).
- [117] A. Kolakowska, M. S. Pindzola und D. R. Schultz, *Total electron loss, charge transfer, and ionization in proton-hydrogen collisions at 10-100 keV*, Phys. Rev. A **59**, 3588 (1999).
- [118] M. Chassid und M. Horbatsch, *Electron emission characteristics in $p\text{-H}(1s)$ collisions from numerical solutions of the time-dependent Schrödinger equation*, Phys. Rev. A **66**, 012714 (2002).
- [119] L. F. Errea, C. Harel, C. Illescas, H. Jouin, L. Méndez, B. Pons und A. Riera, *Convergent molecular close-coupling calculations for ion-atom collisions from low to intermediate energies*, J. Phys. B **31**, 3199 (1998).
- [120] A. L. Ford, J. F. Reading und K. A. Hall, *Single-centred calculations of excitation and electron removal in intermediate energy proton-hydrogen collisions*, J. Phys. B **26**, 4537 (1993).
- [121] B. Pons, *Ability of monocentric close-coupling expansions to describe ionization in atomic collisions*, Phys. Rev. A **63**, 012704 (2001).
- [122] B. Pons, *Erratum: Ability of monocentric close-coupling expansions to describe ionization in atomic collisions [Phys. Rev. A 63, 012704 (2001)]*, Phys. Rev. A **64**, 019904 (2001).
- [123] K. Sakimoto, *Excitation and ionization in $\bar{p} + H$ collisions calculated by direct numerical solution using Laguerre meshes*, J. Phys. B **33**, 5165 (2000).
- [124] A. Igarashi, S. Nakazaki und A. Ohsaki, *Ionization of atomic hydrogen by antiproton impact*, Phys. Rev. A **61**, 062712 (2000).
- [125] X. M. Tong, D. Kato, T. Watanabe und S. Ohtani, *Time-dependent Schrödinger equation method: Application to charge transfer and excitation in H and H^+ collisions*, Phys. Rev. A **62**, 052701 (2000).
- [126] W. Fritsch und C. D. Lin, *The semiclassical close-coupling description of atomic collisions: recent developments and results*, Phys. Rep. **202**, 1 (1991).
- [127] E. Y. Sidky, C. Illescas und C. D. Lin, *Electrons Ejected with Half the Projectile Velocity and the Saddle Point Mechanism in Ion-Atom Collisions*, Phys. Rev. Lett. **85**, 1634 (2000).

- [128] J. Fu, M. J. Fitzpatrick, J. F. Reading und R. Gayet, *Finite Hilbert basis set calculations of the ejected electron energy spectrum for an ion-atom collision illustrated for proton-hydrogen scattering at 48 and 114 keV*, J. Phys. B **34**, 15 (2001).
- [129] B. M. McLaughlin, T. G. Winter und J. F. McCann, *Balmer- α emission in proton-hydrogen collisions*, J. Phys. B **30**, 1043 (1997).
- [130] C. Harel, H. Jouin, B. Pons, L. F. Errea, L. Méndez, und A. Riera, *Description of ionization in the molecular approach to atomic collisions*, Phys. Rev. A **55**, 287 (1997).
- [131] L. F. Errea, C. Harel, H. Jouin, L. Méndez, B. Pons, A. Riera und I. Sevilá, *Description of ionization in the molecular approach to atomic collisions. II*, Phys. Rev. A **65**, 022711 (2002).
- [132] J. Kuang und C. D. Lin, *On the convergence of the two-centre AO close-coupling method in ion-atom collisions*, J. Phys. B **29**, 1207 (1996).
- [133] J. Kuang und C. D. Lin, *Convergent TCAO close-coupling calculations for electron transfer, excitation and ionization in intermediate keV He^{2+} -H collisions*, J. Phys. B **30**, 101 (1997).
- [134] N. Toshima, *On the stability of excitation and capture cross sections in the two-centre AO close-coupling calculations*, J. Phys. B **30**, L131 (1997).
- [135] P. S. Krstić, C. O. Reinhold und D. R. Schultz, *Interference oscillations in the excitation cross section of slow ion-hydrogen collisions*, J. Phys. B **31**, L155 (1998).
- [136] N. Toshima, *Convergence and completeness of the pseudostate expansion for proton-hydrogen collisions in two-center close-coupling calculations*, Phys. Rev. A **59**, 1981 (1999).
- [137] M. Kimura und C. D. Lin, *Unified treatment of slow atom-atom and ion-atom collisions*, Phys. Rev. A **31**, 590 (1985).
- [138] M. Kimura und C. D. Lin, *Unified treatment of slow atom-atom and ion-atom collisions. II. Applications to $H^+ + H$ and $C^{6+} + H$ collisions*, Phys. Rev. A **32**, 1357 (1985).
- [139] T. G. Winter und N. F. Lane, *'R-matrix' approach to electron transfer in $\alpha - H$ collisions*, Phys. Rev. A **31**, 2698 (1985).
- [140] A. Toepfer, A. Henne, H. J. Lüdde, M. Horbatsch und R. M. Dreizler, *Influence of outer screening on K-shell processes for the system $F^{8+} + Ne$* , Phys. Lett. A **126**, 11 (1987).
- [141] T. G. Winter, *Electron transfer and ionization in collisions between H^+ , He^{2+} , Li^{3+} , Be^{4+} , B^{5+} , C^{6+} , N^{7+} ions and target $C^{5+}(1s)$ ions studied using a Sturmian basis*, Phys. Rev. A **56**, 2903 (1997).
- [142] T. Minami, C. O. Reinhold, D. R. Schultz und M. S. Pindzola, *Coherence parameters for charge transfer in collisions of protons with helium calculated using a hybrid numerical method*, J. Phys. B **37**, 4025 (2004).
- [143] E. A. Solov'ev, *Nonadiabatic transitions in atomic collisions*, Usp. Fiz. Nauk **157**, 437 (1989), [Sov. Phys. Usp. **32**, 228 (1989)].
- [144] M. Pieksma und S. Y. Ovchinnikov, *The velocity distribution of saddle-point electrons*, J. Phys. B **27**, 4573 (1994).
- [145] P. S. Krstić, G. Bent, und D. R. Schultz, *New Method for Treating Slow Multielectron, Multicenter Atomic Collisions*, Phys. Rev. Lett. **77**, 2428 (1996).
- [146] P. S. Krstić, D. R. Schultz und R. K. Janev, *Inelastic processes in slow collisions of antiprotons with hydrogenic ions*, J. Phys. B **29**, 1941 (1996).
- [147] G. Bent, P. S. Krstić und D. R. Schultz, *The multielectron, hidden crossings method for inelastic processes in slow ion/atom-atom collisions*, J. Chem. Phys. **108**, 1459 (1998).
- [148] J. H. Macek und S. Y. Ovchinnikov, *Theory of Rapidly Oscillating Electron Angular Distributions in Slow Ion-Atom Collisions*, Phys. Rev. Lett. **80**, 2298 (1998).

- [149] S. Y. Ovchinnikov, J. H. Macek, Y. S. Gordeev und G. N. Ogurtsov, *Ionization Dynamics in Atomic Collisions*, in *Many-Particle quantum dynamics in atomic and molecular fragmentation*, herausgegeben von V. P. Shevelko und J. Ullrich, Seite 463, Springer-Verlag, Heidelberg, 2003.
- [150] S. Y. Ovchinnikov, G. N. Ogurtsov, J. H. Macek und Y. S. Gordeev, *Dynamics of ionization in atomic collisions*, Phys. Rep. **389**, 119 (2004).
- [151] H. Feshbach, *Unified Theory of Nuclear Reactions*, Ann. Phys. **5**, 357 (1958).
- [152] H. Feshbach, *A Unified Theory of Nuclear Reactions. II*, Ann. Phys. **19**, 287 (1958).
- [153] H. J. Lüdde, A. Henne, T. Kirchner und R. M. Dreizler, *Optimized dynamical representation of the solution of time-dependent quantum problems*, J. Phys. B **29**, 4423 (1996).
- [154] O. J. Kroneisen, H. J. Lüdde, T. Kirchner und R. M. Dreizler, *The basis generator method: optimized dynamical representation of the solution of time-dependent quantum problems*, J. Phys. A **32**, 2141 (1999).
- [155] T. Kirchner, *Quantentheoretische Beschreibung von Vielelektronenprozessen in Ion-Atom-Stößen*, Dissertation, Institut für Theoretische Physik, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt, 1999.
- [156] H. J. Lüdde und R. M. Dreizler, *Method for the calculation of global probabilities for many-electron systems*, J. Phys. B **16**, 3973 (1983).
- [157] McCarroll und A. Salin, *Impact parameter treatment of atomic collisions*, J. Phys. B **1**, 163 (1968).
- [158] T. Kirchner, L. Gulyas, H. J. Lüdde, A. Henne, E. Engel und R. M. Dreizler, *Electronic exchange effects in $p+Ne$ and $p+Ar$ collisions*, Phys. Rev. Lett. **79**, 1658 (1997).
- [159] T. Kirchner, L. Gulyas, H. J. Lüdde, E. Engel und R. M. Dreizler, *Influence of electronic exchange on single and multiple processes in collisions between bare ions and noble gas atoms*, Phys. Rev. A **58**, 2063 (1998).
- [160] T. Kirchner, M. Horbatsch, H. J. Lüdde und R. M. Dreizler, *Time-dependent screening effects in ion-atom collisions with many active electrons*, Phys. Rev. A **62**, 042704 (2000).
- [161] T. Kirchner, M. Horbatsch und H. J. Lüdde, *Time-dependent independent particle model calculation of multiple capture and ionization processes in $p^+ - Ar$, $p^- - Ar$, and $He^{2+} - Ar$ collisions*, Phys. Rev. A **66**, 052719 (2002).
- [162] T. Kirchner, M. Horbatsch, M. Keim und H. J. Lüdde, *State-selective electron capture calculations for $p-Ar$ collisions in an independent many-electron model*, Phys. Rev. A **69**, 012708 (2004).
- [163] M. Keim, T. Kirchner, M. Horbatsch und H. J. Lüdde, *Zustandsselektiver Elektroneneinfang in $p-Ar$ Stößen*, Arbeitsbericht Energiereiche Atomare Stöße **25** (2004).
- [164] T. Kirchner, M. Horbatsch und H. J. Lüdde, *Nonperturbative calculation of charge-changing processes in C^{4+} scattering from neon atoms*, Phys. Rev. A **64**, 012711 (2001).
- [165] T. Kirchner, M. Horbatsch, E. Wagner und H. J. Lüdde, *Modelling of polarization and correlation effects in the ionization of helium by antiprotons*, J. Phys. B **35**, 925 (2002).
- [166] M. Keim, E. Wagner, H. J. Lüdde, T. Kirchner und M. Horbatsch, *Modellierung von Responseeffekten in Stößen zwischen Antiprotonen und Helium*, Arbeitsbericht Energiereiche Atomare Stöße **23**, 64 (2002).
- [167] R. Ahlrichs, O. Dumbrajs, H. Pilkuhn und H. G. Schlaile, *Antiprotonic Helium and Lithium with One or Two Electrons*, Z. Phys. A **306**, 297 (1982).
- [168] M. Kimura und M. Inokuti, *Characteristics of close collisions of an antiproton with atoms*, Phys. Rev. A **38**, 3801 (1988).
- [169] E. Engel, Private Mitteilung.

- [170] M. Keim, A. Achenbach, H. J. Lüdde und T. Kirchner, *Mikroskopische Responseeffekte in Stößen von Antiprotonen mit Helium*, Arbeitsbericht Energiereiche Atomare Stöße **24**, 130 (2003).
- [171] F. Stummel und K. Hainer, *Praktische Mathematik*, B.G. Teubner, Stuttgart, 1982.
- [172] J. D. Faires und R. L. Burden, *Numerische Methoden*, Spektrum Akademischer Verlag, Heidelberg, 1994.
- [173] H. Knudsen, U. Mikkelsen, K. Paludan, K. Kirsebom, S. P. Møller, E. Uggerhøj, J. Selvin, M. Charlton und E. Morenzoni, *Ionization of Atomic Hydrogen by 30-1000 keV Antiprotons*, Phys. Rev. Lett. **74**, 4627 (1995).
- [174] K. Paludan, M. Charlton, K. Kirsebom, H. Knudsen, U. Mikkelsen, E. Morenzoni, S. P. Møller, J. Selvin und E. Uggerhøj, *Ionization in collisions between 30-1000 keV antiprotons and atomic hydrogen*, Can. J. Phys. **74**, 490 (1996).
- [175] L. H. Andersen, P. Hvelplund, H. Knudsen, S. P. Møller, A. H. Sørensen, K. Elsener, K.-G. Rensfelt und E. Uggerhøj, *Multiple ionization of He, Ne, and Ar by fast protons and antiprotons*, Phys. Rev. A **36**, 3612 (1987).
- [176] L. H. Andersen, P. Hvelplund, H. Knudsen, S. P. Møller, J. Pedersen, S. Tang-Petersen, E. Uggerhøj, K. Elsener und E. Morenzoni, *Further studies of double ionization of He, Ne, and Ar by fast and slow antiprotons*, Phys. Rev. A **40**, 7366 (1989).
- [177] L. H. Andersen, P. Hvelplund, H. Knudsen, S. P. Møller, J. O. P. Pedersen, S. Tang-Petersen, E. Uggerhøj, K. Elsener und E. Morenzoni, *Single ionization of helium by 40-3000-keV antiprotons*, Phys. Rev. A **41**, 6536 (1990).
- [178] P. Hvelplund, H. Knudsen, U. Mikkelsen, E. Morenzoni, S. P. Møller, E. Uggerhøj und T. Worm, *Ionization of helium and molecular hydrogen by slow antiprotons*, J. Phys. B **27**, 925 (1994).
- [179] K. Paludan, H. Bluhme, H. Knudsen, U. Mikkelsen, S. P. Møller, E. Uggerhøj und E. Morenzoni, *Single, double and triple ionization of Ne, Ar, Kr and Xe by 30-1000 keV \bar{p} impact*, J. Phys. B **30**, 3951 (1997).
- [180] K. Paludan, G. Laricchia, P. Ashley, V. Kara, J. Moxom, H. Bluhme, H. Knudsen, U. Mikkelsen, S. P. Møller, E. Uggerhøj und E. Morenzoni, *Ionization of rare gases by particle - antiparticle impact*, J. Phys. B **30**, L581 (1997).
- [181] H. Knudsen, *Antiparticle-atom collisions*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **42**, 536 (1989).
- [182] H. Knudsen, *Ionization of atoms and molecules by antiproton impact*, Hyperfine Interactions **109**, 133 (1997).
- [183] T. G. Lee, H. C. Tseng und C. D. Lin, *Evaluation of antiproton-impact ionization of He atoms below 40 keV*, Phys. Rev. A **61**, 062713 (2000).
- [184] A. Igarashi, A. Ohsaki und S. Nakazaki, *Single ionization of helium by antiproton impact*, Phys. Rev. A **62**, 052722 (2000).
- [185] D. R. Schultz und P. S. Krstić, *Ionization of helium by antiprotons: Fully correlated, four-dimensional lattice approach*, Phys. Rev. A **67**, 022712 (2003).
- [186] E. Wagner, *Dynamik in Stößen mit zwei aktiven Elektronen*, Diplomarbeit, Institut für Theoretische Physik, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt, 2000.
- [187] M. E. Rudd, R. D. DuBois, L. H. Toburen, C. A. Ratcliffe und T. V. Goffe, *Cross sections for ionization of gases by 5-4000-keV/ protons and for electron capture by 5-150-keV protons*, Phys. Rev. A **28**, 3244 (1983).
- [188] M. E. Rudd, Y.-K. Kim, D. H. Madison und J. W. Gallagher, *Electron production in proton collisions: total cross sections*, Rev. Mod. Phys. **57**, 965 (1985).

- [189] M. E. Rudd, T. V. Goffe und A. Itoh, *Ionization cross sections for 10-300-keV/u and electron capture cross sections for 5-150-keV/u $^3\text{He}^{2+}$ ions in gases*, Phys. Rev. A **32**, 2128 (1985).
- [190] R. D. DuBois, *Ionization and charge transfer in He^{2+} -rare-gas collisions*, Phys. Rev. A **33**, 1595 (1986).
- [191] R. D. DuBois, *Ionization and charge transfer in He^{2+} -rare-gas collisions. II*, Phys. Rev. A **36**, 2585 (1987).
- [192] H. A. Slim, E. L. Heck, B. H. Bransden und D. R. Flower, *Charge transfer and excitation in proton-helium collisions*, J. Phys. B **24**, 1683 (1991).
- [193] H. A. Slim, E. L. Heck, B. H. Bransden und D. R. Flower, *Ionization and charge transfer in proton-helium collisions*, J. Phys. B **24**, L421 (1991).
- [194] T. G. Winter, *Electron transfer and ionization in proton-helium collisions studied using a Sturmian basis*, Phys. Rev. A **44**, 4353 (1991).
- [195] M. Kimura und C. D. Lin, *Charge transfer and excitation processes in $p - \text{He}$ collisions studied using a unified atomic-orbital-molecular-orbital matching method*, Phys. Rev. A **34**, 176 (1986).
- [196] K. Schaudt, N. Kwong und J. Garcia, *Fully converged time-dependent Hartree-Fock results for $\text{He}^{2+} - \text{He}$: Correlation in inclusive charge transfer*, Phys. Rev. A **43**, 2294 (1991).
- [197] K. Gramlich, N. Grün und W. Scheid, *Coupled-channel calculations with Gauss-type orbitals for charge transfer and ionisation in collisions of the $(\text{He} - \text{He})^{2+}$ system*, J. Phys. B **22**, 2567 (1989).
- [198] M. Kimura, *Single- and double-capture in $\text{He}^{2+} + \text{He}$ collisions and single-electron capture in $\text{He}^+ + \text{He}^+$ collisions*, J. Phys. B **21**, L19 (1988).
- [199] A. Jain, C. D. Lin und W. Fritsch, *State-selective double-electron capture in $\text{He}^{2+} + \text{He}$ collisions at intermediate impact energies*, Phys. Rev. A **39**, 1741 (1989).
- [200] R. Shingal und C. D. Lin, *Calculations of two-electron transition cross sections between fully stripped ions and helium atoms*, J. Phys. B **24**, 251 (1991).
- [201] C. Harel und A. Salin, *Application of OEDM orbitals to many-electron systems: $\text{He}^{2+} - \text{He}$ collisions*, J. Phys. B **13**, 785 (1980).
- [202] M. B. Shah und H. B. Gilbody, *Single and double ionisation of helium by H^+ , He^{2+} and Li^{3+} ions*, J. Phys. B **18**, 899 (1985).
- [203] M. B. Shah, P. McCallion und H. B. Gilbody, *Electron capture and ionisation in collisions of slow H^+ and He^{2+} ions with helium*, J. Phys. B **22**, 3037 (1989).
- [204] Z. Chen und A. Z. Msezane, *Calculation of the cross sections for positron- and proton-impact ionization of helium*, Phys. Rev. A **49**, 1752 (1994).
- [205] T. G. Winter, *Sturmian treatment of excitation and ionization in high-energy proton-helium collisions*, Phys. Rev. A **43**, 4727 (1991).
- [206] J. Anton, K. Schulze, D. Geschke, W. Sepp und B. Fricke, *A unified time-dependent description of ion-atom collisions*, Phys. Lett. A **268**, 85 (2000).
- [207] P. S. Krstić, D. Schultz und G. Bent, *Ionization of He by slow protons*, J. Phys. B **31**, 183 (1998).
- [208] H. Knudsen, L. H. Andersen, P. Hvelplund, G. Astner, H. Cederquist, H. Danared, L. Liljeby und K.-G. Rensfelt, *An experimental investigation of double ionisation of helium in collisions with fast, fully stripped ions*, J. Phys. B **17**, 3545 (1984).
- [209] M. B. Shah und H. B. Gilbody, *Formation of $\text{He}^+(2S)$ metastable ions in passage of 10-60 keV $^3\text{He}^{2+}$ ions through gases*, J. Phys. B **7**, 256 (1974).
- [210] B. Hamre, J. P. Hansen und L. Kocbach, *Cross sections for capture, excitation and ionization in proton-oxygen collisions*, J. Phys. B **32**, L127 (1999).

- [211] T. Kirchner, H. J. Lüdde, M. Horbatsch und R. M. Dreizler, *Quantum mechanical description of ionization, capture and excitation in proton collisions with atomic oxygen*, Phys. Rev. A **61**, 052710 (2000).
- [212] O. Voitke, P. A. Závodszky, S. M. Ferguson, J. H. Houck und J. A. Tanis, *Target ionization and projectile charge changing in 0.5-8-MeV/q $Li^{q+} + He$ ($q=1,2,3$) collisions*, Phys. Rev. A **57**, 2692 (1998).
- [213] I. Wirkner-Bott, W. Seim, A. Müller und E. Salzborn, *Electron capture by Li^{3+} and Li^{2+} ions in H_2 and He* , J. Phys. B **14**, 3987 (1981).
- [214] A. L. Ford, J. F. Reading und R. L. Becker, *Coupled-channel calculations of ionisation and charge transfer in $p + Li^{+,2+}$ and transfer in $Li^{2+,3+} + H(1s)$ collisions*, J. Phys. B **15**, 3257 (1982).
- [215] Y. R. Kuang, *Electron capture in collisions between protons and the ions He^+ and $Li^{+,2+}$ calculated using a new united-atom model*, J. Phys. B **24**, 1645 (1991).
- [216] E. C. Sewell, G. C. Angel, K. F. Dunn und H. B. Gilbody, *Ionisation and charge transfer in fast $H^+ - Li^+$ collisions*, J. Phys. B **13**, 2269 (1980).
- [217] C. A. Ullrich, U. J. Gossmann und E. K. U. Gross, *Time-Dependent Optimized Effective Potential*, Phys. Rev. Lett. **74**, 872 (1995).
- [218] C. J. Umrigar und X. Gonze, *Accurate exchange-correlation potentials and total-energy components for the helium isoelectronic series*, Phys. Rev. A **50**, 3827 (1995).
- [219] E. Engel, *2-Particle density: Correlated motion of electrons*, Online im Internet verfügbar, URL: http://www.th.physik.uni-frankfurt.de/~engel/2pd_helium.html (Stand 31.03.2004).
- [220] J. P. Perdew, *Unified Theory of Exchange and Correlation beyond the Local Density Approximation*, in *Electronic Structure of Solids '91, Proceedings of the 75. WE-Heraeus-Seminar and 21st Annual International Symposium on Electronic Structure of Solids held in Gaussig (Germany), March 11-15, 1991*, herausgegeben von P. Ziesche und H. Eschrig, Physical Research 17, Seite 11, Akademie Verlag, Berlin, 1991.
- [221] J. P. Perdew, K. Burke und Y. Wang, *Generalized gradient approximation for the exchange-correlation hole of a many-electron system*, Phys. Rev. B **54**, 16533 (1996).
- [222] J. P. Perdew, K. Burke und Y. Wang, *Erratum: Generalized gradient approximation for the exchange-correlation hole of a many-electron system [Phys. Rev. B 54, 16533 (1996)]*, Phys. Rev. B **57**, 14999 (1998).
- [223] M. Abramowitz und I. A. Stegun, *Pocketbook of Mathematical Functions*, Verlag Harri Deutsch, Thun, Frankfurt, 1984.

Danksagung

Es ist mir eine große Freude, mich an dieser Stelle herzlich bei allen zu bedanken, die zum Gelingen dieser Doktorarbeit beigetragen haben. Ohne die Hilfe jedes Einzelnen wäre es mir nicht möglich gewesen, diese Arbeit zu vollenden.

Ich bedanke mich bei Herrn Prof. Dr. Reiner Dreizler für die Aufnahme in seine Arbeitsgruppe und die Möglichkeit, mit viel Freiraum meine Forschungsarbeit auszuführen. Die lockere und unkomplizierte Atmosphäre in unserer Gruppe hat viel zu meiner Motivation beigetragen. In unvergesslicher Erinnerung werden mir unsere heiteren Gruppenseminare bei ihm und seiner Frau Margaret in Südfrankreich bleiben. Ein ganz persönlicher Dank gebührt beiden für ihre Ratschläge über ihre zweite Heimat Australien.

Herrn Prof. Dr. Hans Jürgen Lüdde, meinem unmittelbaren Betreuer, gilt mein ganz besonderer Dank. Ohne seine unermüdliche Hilfsbereitschaft während meiner gesamten Studienzeit wäre diese Arbeit niemals in dieser Form fertiggestellt worden. Seine Geduld, immer wieder ganz offen und unvoreingenommen über vermeintlich einfache physikalische Zusammenhänge zu diskutieren, ist einzigartig und hat mir stets geholfen und mich motiviert, meine Arbeit trotz wiederkehrender Rückschläge fortzusetzen.

Herzlich bedanke ich mich auch bei Prof. Dr. Tom Kirchner (Clausthal) für die freundschaftliche und lockere Zusammenarbeit, die schon während seiner Promotionszeit in unserer Arbeitsgruppe begonnen und sich bis heute intensiv fortgesetzt hat. Im Rahmen eines DFG-Projektes hat er mir die Fortsetzung meiner Arbeit an der Johann Wolfgang Goethe-Universität in Frankfurt am Main durch die Anstellung als wissenschaftlicher Mitarbeiter an der Technischen Universität Clausthal ermöglicht. Für die Genehmigung dieses Projektes bedanke ich mich bei der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG).

Herr Privatdozent Dr. Eberhard Engel hat mir eine Vielzahl an Ergebnissen seiner atomaren Strukturrechnungen zur Verfügung gestellt, wofür ich ihm großen Dank schulde. Dies war mir eine unschätzbare Hilfe, weiß ich doch aus Diskussionen von diversen Konferenzteilnahmen, wie viel Mühe es andere Physiker kostet, sich diese Daten zu beschaffen.

Bei Herrn Diplom-Physiker Alexander Achenbach und Herrn Diplom-Physiker Ullrich Lechner aus unserer Arbeitsgruppe möchte ich mich für Ihre Zusammenarbeit und Hilfsbereitschaft bezüglich physikalischer und unphysikalischer Themen bedanken. Wir haben uns als Diplomanden in der Arbeitsgruppe von Prof. Reiner Dreizler kennengelernt und sind sehr schnell gute Freunde geworden. Die humorvolle und entspannte Atmosphäre in unseren Büros in der Gräfstrasse wird mir immer in heiterer Erinnerung bleiben. Ohne die ausdauernde und immerwährende Hilfsbereitschaft von Alex bei einer Vielzahl von Computer-Problemen hätte ich diese Arbeit nicht fertigstellen können.

Natürlich darf ich auch einen lieben Dank an Frau Edda Vogel nicht vergessen, die sich immer mit viel Mühe um alle Formalitäten gekümmert hat.

Sämtliche numerischen Ergebnisse dieser Arbeit wurden mit Hilfe der Rechner des Hochschulrechenzentrums (HRZ) der Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt am Main und des Frankfurt Center for Scientific Computing (CSC) gewonnen. Für deren Bereitstellung bedanke ich mich sehr.

Bei einer Vielzahl von Tagungsbesuchen hat mich die Hermann-Willkom-Stiftung mit Reisekostenzuschüssen unterstützt. Auch dafür bedanke ich mich herzlich.

Von ganzem Herzen möchte ich mich bei meiner Familie und meiner Freundin Britta für ihren ausdauernden Beistand während meines gesamten Studiums bedanken. Ihr seid mir immer mit Rat und Tat zur Seite gestanden und habt mir mit eurer Liebe die Kraft gegeben, immer weiterzumachen und diese Arbeit fertigzustellen.

Lebenslauf

Matthias Uwe Reinhold Fred Keim

geboren am 31. März 1975 in Hanau

- 1981 - 1985 Grundschule in Erlensee-Rückingen
- 1985 - 1991 Gymnasialer Zweig der Kopernikusschule Freigericht
- 1991 - 1994 Gymnasiale Oberstufe der Kopernikusschule Freigericht
Abschluß: Abitur im Juli 1994
- 09/1994 - 12/1994 Zivildienst im Altenzentrum Rodenbach
- 04/1995 - 02/2000 Physik-Studium mit Nebenfach Astronomie an der Johann
Wolfgang Goethe-Universität in Frankfurt am Main
- 11/1996 Vordiplom
- 11/1998 - 10/1999 Diplomarbeit am Institut für Theoretische Physik der Johann
Wolfgang Goethe-Universität in Frankfurt am Main mit dem
Thema „*Streuung vollständig ionisierter Projektile an
lithiumähnlichen Ionen*“
- 02/2000 Diplom in Physik
- seit 04/2000 Promotionsstudium am Institut für Theoretische Physik der
Johann Wolfgang Goethe-Universität in Frankfurt am Main
- 04/1998 - 08/1998 Studentische Hilfskraft am
- 10/1998 - 02/1999 Institut für Theoretische Physik
- 04/1999 - 08/1999 der Johann Wolfgang
- 10/1999 - 02/2000 Goethe-Universität in Frankfurt am Main
- 05/2000 - 09/2003 Wissenschaftlicher Angestellter am Institut für Theoretische
Physik der Johann Wolfgang Goethe-Universität in Frankfurt
am Main
- seit 10/2003 Wissenschaftlicher Angestellter am Institut für Theoretische
Physik der Technischen Universität Clausthal

Meine akademischen Lehrer waren:

W. Aßmus, K. Bethge, H. Bokemeyer, H.D. Brauer, R.M. Dreizler, T. Elze, E. Engel,
W.H. Kegel, H. Klein, R. Kulze, H.J. Lüdde, B. Lüthi, J. Maruhn, K.H. Müller, F. Rauch