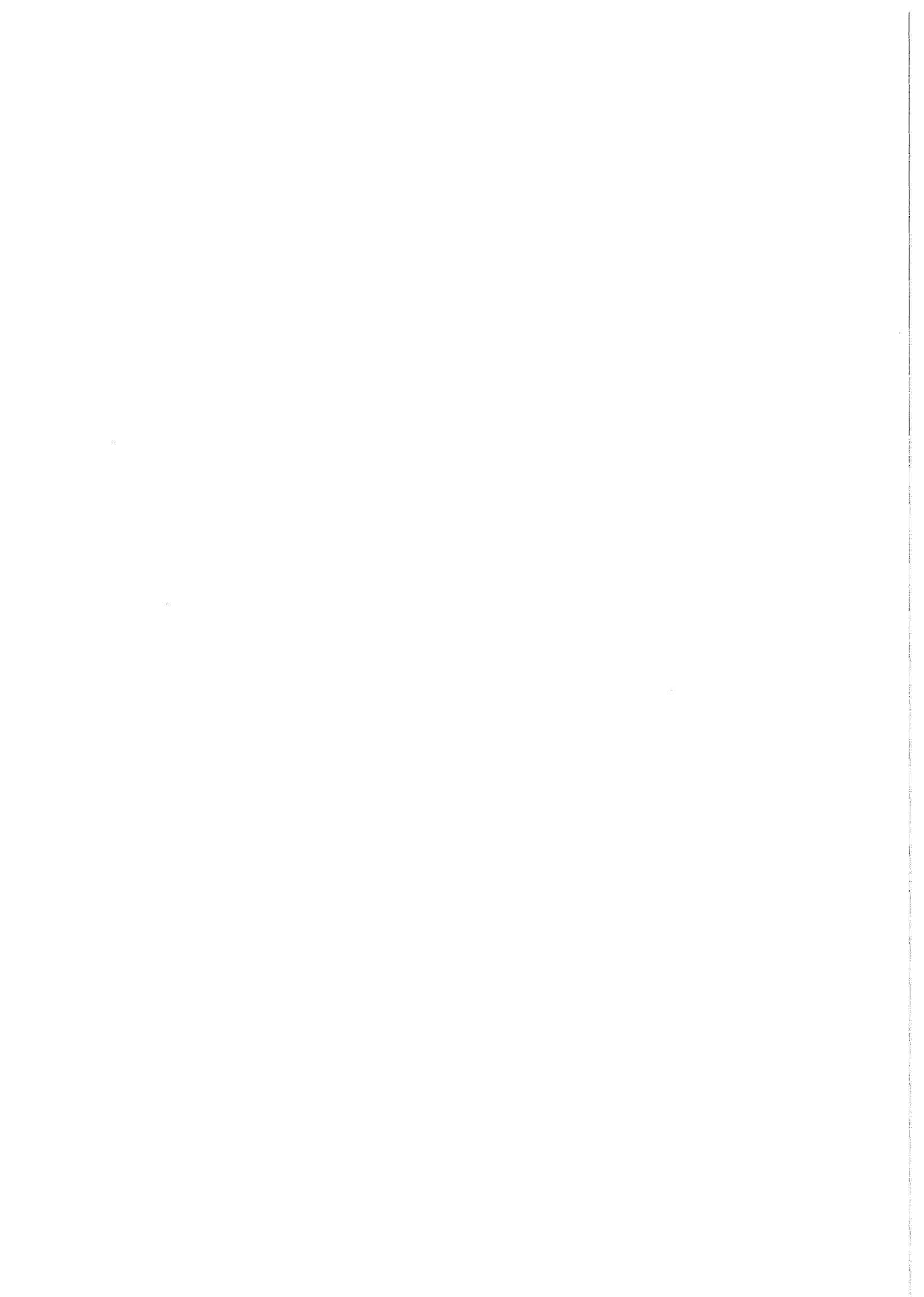


KfK 4513
Februar 1989

**Kernladungsradien und
Kernmomente von
Thorium-Isotopen aus
laserspektroskopischen
Untersuchungen an
gespeicherten Thorium-Ionen in
einer Hochfrequenz-Ionenfalle**

W. Kälber
Institut für Kernphysik

Kernforschungszentrum Karlsruhe



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
Institut für Kernphysik

KfK 4513

Kernladungsradien und Kernmomente von
Thorium-Isotopen aus laserspektroskopischen
Untersuchungen an gespeicherten Thorium-
Ionen in einer Hochfrequenz-Ionenfalle*

W. Kälber

* Von der Fakultät für Physik und Astronomie der
Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg genehmigte Dissertation

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

Es wurde eine Meßanordnung für die Laserspektroskopie an gespeicherten Thorium-Ionen mit einer Paulschen Hochfrequenz-Ionenfalle als zentralem Teil aufgebaut. Als laserspektroskopische Methoden wurden die dopplerverbreiterte Einstufenanregung am Th-II-Übergang $0-17122\text{ cm}^{-1}$ wie auch die dopplerreduzierte Zweistufenanregung an den aufeinanderfolgenden Th-II-Übergängen $0-17122\text{ cm}^{-1}$ und $17122-34544\text{ cm}^{-1}$ studiert. Das Auflösungsvermögen war bei der Einstufenanregung begrenzt durch die Dopplerbreite des verwendeten Übergangs. Die Dopplerbreite betrug typischerweise $1200 - 1600\text{ MHz}$. Das Auflösungsvermögen war ausreichend für die Messung von Isotopieverschiebungen, nicht jedoch für die Bestimmung von Hyperfeinaufspaltungen. Zu diesem Zweck wurde die dopplerreduzierte Zweistufenanregung angewandt. Hierbei ergab sich ein um den Faktor 5 besseres Auflösungsvermögen als bei der Einstufenanregung, das für die Bestimmung von Hyperfeinaufspaltungen genügte. Die mit der Zweistufenanregung erreichte Empfindlichkeit war ausreichend, um das Spektrum eines Isotops mit gerader Nukleonenzahl mit einer Menge von 10 pg Thorium aufzunehmen. Die Empfindlichkeit bei der Einstufenanregung war geringfügig schlechter. Mit der Methode der Einstufenanregung wurden die Isotopieverschiebungen bei den Isotopen ^{227}Th bis ^{230}Th und ^{232}Th am Th-II-Übergang $0-17122\text{ cm}^{-1}$ gemessen. Beim Isotop ^{229}Th wurde darüberhinaus die Hyperfeinaufspaltung des entsprechenden Übergangs der Zweistufenanregung bestimmt und daraus die Hyperfeinstrukturkonstanten A und B der beteiligten Zustände ermittelt. Aus den gemessenen Isotopieverschiebungen konnten die Änderungen der mittleren quadratischen Kernladungsradien zwischen Isotopenpaaren ermittelt werden. Es ergab sich eine kontinuierliche Zunahme des mittleren quadratischen Kernladungsradius mit zunehmender Massenzahl A. Die Zunahme kann mit dem sphärischen Droplet-Modell und Korrekturen für die mit A zunehmende Quadrupoldeformation erklärt werden. Bei den Isotopen ^{228}Th und ^{229}Th wurde ein normaler odd-even-staggering-Effekt beobachtet.

Abstract

Nuclear charge radii and nuclear moments of thorium isotopes by stored ion laser spectroscopy

A set-up for the laser spectroscopy of stored thorium ions was built with a Paul rf-ion trap as central part. Doppler limited single-step excitation of the transition Th-II 0-17122 cm⁻¹ and Doppler reduced two-step excitation of the subsequent transitions 0-17122 cm⁻¹ and 17122-34544 cm⁻¹ have been studied. The resolution of the single-step excitation was limited by the Doppler broadening of the transition used in the experiment. The Doppler width was typically between 1200 and 1600 MHz. The resolution was sufficient to measure isotope shifts but not sufficient to determine hyperfine splittings. Therefore Doppler reduced two-step excitation was applied. The resolution of this method was better by a factor of 5 in comparison to the single-step excitation; hyperfine splittings were well resolved by the two-step excitation. The sensitivity obtained in the two-step excitation was sufficient to record the spectrum of an isotope with an even nucleon number with a sample containing only 10 pg of thorium. The sensitivity of the single-step excitation was slightly lower. Isotope shifts have been measured by the single-step excitation of the transition Th-II 0-17122 cm⁻¹ for the isotopes ²²⁷Th to ²³⁰Th and ²³²Th. In addition, hyperfine splittings for the isotope ²²⁹Th have been determined for the transition used in the two-step excitation. From the analysis the hyperfine interaction constants A and B of the states involved in the transition have been extracted. From the measured isotope shifts the changes of mean square charge radii for isotope pairs were determined. A continuous increase of the mean square charge radius with increasing mass number A was observed. This increase can be explained by the spherical droplet-model and corrections for the quadrupole deformations increasing with A. A normal odd-even-staggering effect was observed for the isotopes ²²⁸Th and ²²⁹Th.

Inhaltsverzeichnis

| | Seite |
|--|-------|
| Zusammenfassung, Abstract | |
| 1. Einleitung | 1 |
| 2. Zur Theorie der Hf-Ionenfalle | 3 |
| 3. Experimente | 8 |
| 3.1 Das Prinzip der Messungen | 8 |
| 3.2 Die Hf-Ionenfalle | 9 |
| 3.2.1 Mechanischer Aufbau | 9 |
| 3.2.2 Spannungsversorgung und elektronischer Ionennachweis | 12 |
| 3.2.3 Elektronischer Ionennachweis bei Anwesenheit eines Speichergases | 15 |
| 3.2.4 Vakuumsystem | 17 |
| 3.3 Erzeugung und Speicherung von Thorium-Ionen | 18 |
| 3.4 Optische Spektroskopie an gespeicherten Thorium-Ionen | 20 |
| 3.4.1 Ein- und Zweistufenanregung | 20 |
| 3.4.2 Vergleich der Linienformen und Linienbreiten zwischen der Ein- und der Zweistufenanregung | 23 |
| 4. Empfindlichkeit | 31 |
| 4.1 Reaktionsrate von Thorium-Ionen und zeitliche Abnahme des Fluoreszenzlichts | 31 |
| 4.2 Signal und Signal/Rausch-Verhältnis als Funktion des Drucks und der Art des Speichergases | 34 |
| 4.3 Detektierte Zahl von Fluoreszenzphotonen pro gespeichertem Ion | 37 |
| 4.4 Wirkungsgrad von Ionisierung und Einfang von Thorium | 39 |
| 4.5 Untergrund-Signale | 40 |
| 4.6 Kleinste nachgewiesene Thoriummenge | 42 |
| 5. In der Hf-Ionenfalle untersuchte Thorium-Isotope | 46 |
| 6. Ergebnisse | 50 |
| Messungen am Isotop ^{227}Th | 66 |
| 7. Kernladungsradien und Kernmomente | 68 |
| 7.1 Isotopieverschiebung | 68 |
| 7.2 Bestimmung von λ und $\delta\langle r^2 \rangle$ für Thorium-Isotope | 71 |
| 7.3 Hyperfeinaufspaltungen | 73 |
| 7.4 Bestimmung von μ_I und Q für ^{229}Th | 73 |
| 7.5 Diskussion | 74 |
| Literaturverzeichnis | 82 |

1. Einleitung

Nuklide in der Ra-Th-Region um die Massenzahl $A \approx 225$ waren in der Vergangenheit Gegenstand zahlreicher kernphysikalischer Untersuchungen /WDL 83, HSG 84, BBD 85, SLA 86/. Das Interesse der Untersuchungen war bei g,g-Kernen gegeben durch das Auftreten von Rotationsbanden mit negativer Parität ($1^-, 3^-, 5^-, \dots$), deren Bandenköpfe 1- ungewöhnlich niedere Energien haben. Die Existenz einer solchen Rotationsbande neben der gewöhnlichen Rotationsbande mit positiver Parität ($0^+, 2^+, 4^+, \dots$) wird von theoretischen Arbeiten als Hinweis auf eine stabile intrinsische Oktupoldeformation der Kerne in dieser Gegend gewertet /Ch 80, LSM 82, Ra 83, LS 84, NOR 84, RBS 86, REB 87/. In Ergänzung zu den kernphysikalischen Arbeiten wurden laserspektroskopische Untersuchungen optischer Übergänge an Radon-, Francium- und Radium-Isotopen durchgeführt /CTT 85, WAK 87, Ot 88, BAN 88/, deren Ergebnisse die Hypothese von der Oktupoldeformation unterstützten /LS 84/. In diesem Zusammenhang erschien es uns interessant, Isotopieverschiebungen und Hyperfeinaufspaltungen eines optischen Übergangs einer Reihe von Thorium-Isotopen mittels Laserspektroskopie zu untersuchen. Diese Untersuchungen geben Aufschluß über wichtige Kernparameter wie Werte für die Änderungen der mittleren quadratischen Kernladungsradien zwischen den Isotopen und für die elektromagnetischen Kernmomente.

In der Vergangenheit sind bereits Messungen der Isotopieverschiebung und der Hyperfeinaufspaltung von Thorium-Isotopen mittels Entladungslampen und Gitterspektrographie bzw. Fourier-Spektrometrie durchgeführt worden. Es wurden die Isotopieverschiebungen zwischen ^{230}Th und ^{232}Th /SN 53, EP 83, EP 84/ und zwischen ^{229}Th und ^{232}Th /VE 60/ sowie die Hyperfeinaufspaltungen von ^{229}Th /Eg 64, GLV 74/ an mehreren optischen Übergängen gemessen. Die vorliegende Arbeit hat das Ziel, die Messungen mit einer hochauflösenden laserspektroskopischen Methode durchzuführen und die Messungen auf weitere instabile Thorium-Isotope auszudehnen.

Für diese Messungen von Thorium-Isotopen ist eine besonders empfindliche laserspektroskopische Methode notwendig. Sie ist zum einen erforderlich wegen der Radioaktivität der zu untersuchenden Isotope. Zum anderen sind einige der Thorium-Isotope nur in geringen Mengen (ng- bis pg-Mengen) verfügbar. Vorangegangene Arbeiten zur Bestimmung der Hyperfeinaufspaltungen und Isotopieverschiebungen von Americium-Isotopen mittels optogalvanischer Spektroskopie in einer Hohlkathodenlampe /LBK 85, LBK 86/ ergaben, daß die mit dieser Methode erreichte Empfindlichkeit (erforderliche Probengrößen: μg -Mengen) für

die vorgesehenen Messungen nicht ausreichend war. Mit der Methode der Laserspektroskopie an einem kollimierten Atomstrahl hätte man die gewünschte Empfindlichkeit vermutlich erzielen können; frühere Untersuchungen von radioaktiven Zinn- /ABH 86/, Blei- /AFG 86/ und Strontium-Isotopen /ABC 87/ lassen dies plausibel erscheinen. Diese Methode hat aber den entscheidenden Nachteil, daß sich die Atome nur für μsec im Wechselwirkungsvolumen mit dem Laserstrahl aufhalten. Konsequenterweise können sie höchstens 100 bis 1000 mal vom Laser angeregt werden (wenn ein Resonanzübergang vorliegt), ehe sie verlorengelangen.

Für die vorgesehenen Messungen bot sich als äußerst empfindliche Meßmethode die Laserspektroskopie an gespeicherten Ionen an. Aufgrund der langen Speicherzeit der Ionen (typischerweise Stunden bis Tage) können bei dieser Methode um Größenordnungen höhere Fluoreszenzlichtausbeuten pro Teilchen erzielt werden als beim Atomstrahl. Folglich ist die Empfindlichkeit dieser Methode äußerst hoch. Es wurde bereits gezeigt, daß Spektroskopie mit nur einem einzelnen Ion möglich ist /TN 80, WI 81/. Diese Methode erschien uns am besten geeignet zu sein für die vorgesehenen Messungen.

Das Prinzip einer Hf-Ionenfalle besteht darin, elektrisch geladene Teilchen durch ein sich periodisch änderndes elektrisches Quadrupolfeld in einem begrenzten Raumgebiet einzuschließen /Fi 59/. In einem anderen Betriebsmodus der Ionenfalle, der sogenannten Penning-Falle, werden Ionen durch ein statisches Quadrupolfeld und ein dazu überlagertes statisches homogenes Magnetfeld gespeichert /Pe 36, De 67/. In beiden Betriebsmoden wird dieselbe elektrische Feldkonfiguration verwendet. Beide Betriebsarten der Ionenfalle können neben der Anwendung zur Speicherung von elektrisch geladenen Teilchen auch als Massenspektrometer verwendet werden /POF 58, Fi 59, WSL 59/. Erst kürzlich wurde über eine Anwendung der Penning-Falle als Massenspektrometer mit einem sehr großen Auflösungsvermögen berichtet /KI 88/.

Für unsere Zwecke erschien die Verwendung einer Hf-Ionenfalle gegenüber einer Penning-Falle zweckmäßiger zu sein aus folgenden Gründen: Bei der Penning-Falle treten, bedingt durch das Magnetfeld, störende Zeemanaufspaltungen von Spektrallinien auf. Dies ist bei der Hf-Ionenfalle nicht der Fall. Außerdem ist das Speichervermögen bei schweren Teilchen ($A > 100$) bei der Hf-Ionenfalle wesentlich größer als bei der Penning-Falle.

2. Zur Theorie der Hf-Ionenfalle

Die Funktionsweise einer Hf-Ionenfalle wird in der Literatur ausführlich behandelt /POF 58, Fi 59, WSL 59, De 67, De 69, WID 83, We 84/; im folgenden wird deshalb lediglich eine kurze Zusammenfassung der wesentlichen Merkmale der Hf-Ionenfalle gegeben.

Eine Hf-Ionenfalle besteht aus drei Elektroden (siehe Abb. 2.1), einem einschaligen Rotationshyperboloid, der sogenannten Ringelektrode und einem dazu konjugierten zweischaligen Rotationshyperboloid, dessen Teile als Endkappen bezeichnet werden.

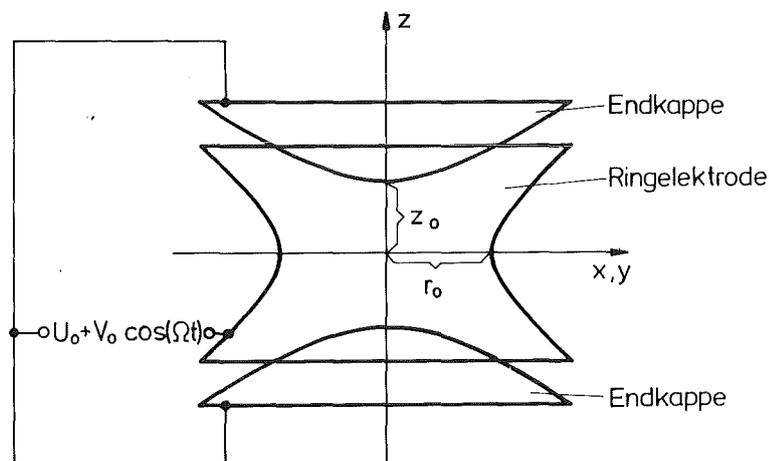


Abb. 2.1: Schematische Darstellung einer Hf-Ionenfalle. Die Anordnung ist rotationssymmetrisch bezüglich der z-Achse.

Die Rotationshyperboloide haben folgende Darstellung:

$$\frac{z^2}{z_0^2} - \frac{r^2}{r_0^2} = \pm 1 \quad (2.1)$$

Dabei ist r_0 der Abstand des Scheitels der Ringelektrode von der z-Achse und z_0 der Abstand der Scheitelpunkte der Endkappen vom Koordinatenursprung. Durch Anlegen einer hochfrequenten Wechselspannung $V_0 \cos(\Omega t)$ und einer Gleichspannung U_0 zwischen der Ringelektrode und den beiden Endkappen wird folgendes Potential im Raum zwischen den Elektroden erzeugt:

$$\phi(x, y, z, t) = \frac{1}{2} \left[U_0 + V_0 \cos(\Omega t) \right] \cdot \left(\frac{x^2 + y^2}{r_0^2} - \frac{z^2}{z_0^2} \right) \quad (2.2)$$

Für dieses Potential muß die Poissongleichung $\Delta\phi = 0$ erfüllt sein. Dies ist nur der Fall, wenn man $r_0 = z_0 \cdot \sqrt{2}$ wählt. Die Bewegungsgleichungen für ein Teilchen der Masse m und der Ladung e in diesem Potential sind Mathiesche Differentialgleichungen, die hier lauten:

$$\frac{d^2}{d\xi^2} u(\xi) + (a_u - 2q_u \cos(2\xi)) \cdot u(\xi) = 0; \quad u = x, y \text{ oder } z \quad (2.3)$$

Dabei wurden folgende Abkürzungen verwendet:

$$\xi = \frac{\Omega}{2} t \quad (2.4)$$

$$a_z = -2a_x = -2a_y = -\frac{8e U_0}{m\Omega^2 r_0^2}$$

$$q_z = 2q_x = 2q_y = \frac{4e V_0}{m\Omega^2 r_0^2}$$

Die Mathieschen Differentialgleichungen haben folgende allgemeine Lösungen /La 51/:

$$u(\xi) = A e^{\mu\xi} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} c_{2n} e^{i2n\xi} + B e^{-\mu\xi} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} c_{2n} e^{-i2n\xi} \quad (2.5)$$

Dabei sind μ und alle c_{2n} Funktionen von a_u und q_u ; A und B dagegen sind nur abhängig von den Anfangsbedingungen. Dies sind Ort, Geschwindigkeit und Phase der Bewegung eines Ions. Es gibt zwei unterschiedliche Arten von Lösungen:

I) "unbeschränkte" Lösungen, wenn der Realteil von μ von Null verschieden ist. Der Abstand der Teilchen vom Mittelpunkt wächst dann mit der Zeit exponentiell an, vorausgesetzt, man wählt keine triviale Lösung bei der der Koeffizient des divergierenden Anteils der Lösung Null ist.

II) "beschränkte" Lösungen, wenn μ rein imaginär ist ($\mu = i\beta$, β ist reell und liegt zwischen 0 und 1). Die Lösung besteht dann aus einer sogenannten "uneigentlichen" Fourierreihe mit dem Frequenzspektrum:

$$\omega_n = \frac{\beta}{2} \Omega + n \Omega; \quad n = 0, \pm 1, \pm 2, \dots \quad (2.6)$$

Dabei ist $\omega_0 = (\beta/2) \Omega$ die Grundfrequenz; sie liegt zwischen 0 und $\Omega/2$.

Es sei noch vermerkt, daß die Grundfrequenzen der Bewegung der Ionen in z-Richtung und in x- bzw. y-Richtung im allgemeinen unterschiedlich sind.

Eine notwendige Bedingung, um ein einzelnes Ion in der Hf-Ionenfalle zu speichern ist, daß die Lösungen der Mathieschen Differentialgleichungen in allen drei Raumrichtungen beschränkt sind. Ob eine Lösung der Mathieschen Differentialgleichung beschränkt ist, hängt über μ von der Wahl der Parameter a und q ab, nicht jedoch von den Anfangsbedingungen. Der Bereich in der a_z, q_z -Ebene, für den die notwendige Bedingung erfüllt ist, der sogenannte Stabilitätsbereich, ist in Abb. 2.2 dargestellt. Die Grenzen des Stabilitätsbereiches sind Linien gleicher Grundfrequenz mit $\beta = 0$ bzw. 1. Hinreichende Bedingung für die Speicherung ist, daß das Ion nicht an die Wand stoßen darf. Es muß sich innerhalb der durch die Elektroden gegebenen Begrenzung bewegen. Ob ein Ion die hinreichende Bedingung erfüllt, ist bei gegebenen Parametern a_z und q_z stark von den Anfangsbedingungen abhängig. Diese Abhängigkeit wurde bereits in der Vergangenheit untersucht /POF 58/. Dabei wurde festgestellt, daß je näher man an die Grenzen des Stabilitätsbereiches mit $\beta_z = 1$ und $\beta_r = 1$ (vgl. Abb. 2.2) geht, desto weniger Anfangsbedingungen werden gefunden, die der hinreichenden Bedingung zur Speicherung genügen. Die Akzeptanz eines Ions nimmt zu besagten Grenzen des Stabilitätsbereichs stark ab.

In der bisherigen Diskussion wurde nur der Fall eines einzelnen gespeicherten Ions betrachtet. Anders ist die Situation, wenn man viele Ionen in der Falle speichern möchte. Hierbei ist zu beachten, daß die gegenseitige Coulomb-abstoßung der Ionen dem effektiven Potential der Ionenfalle entgegenwirkt. Es können nur so viele Ionen gespeichert werden, bis das effektive Potential der Falle durch das Raumladungspotential der Ionen kompensiert wird. Das Fassungsvermögen der Hf-Ionenfalle ist daher begrenzt. Die Tiefe D des effektiven Potentials beträgt /De 67/:

$$D = \frac{e V_0^2}{2m\Omega^2 r_0^2} \quad (2.7)$$

In diesem effektiven Potential beträgt die größtmögliche Ladungsdichte der Ionen:

$$\rho = \frac{6 \epsilon_0 D}{r_0^2} \quad (2.8)$$

Nach obiger Gleichung nimmt die größtmögliche Ionenzahl, wenn man konstantes Volumen der Ionenwolke voraussetzt, quadratisch mit der Wechsel-

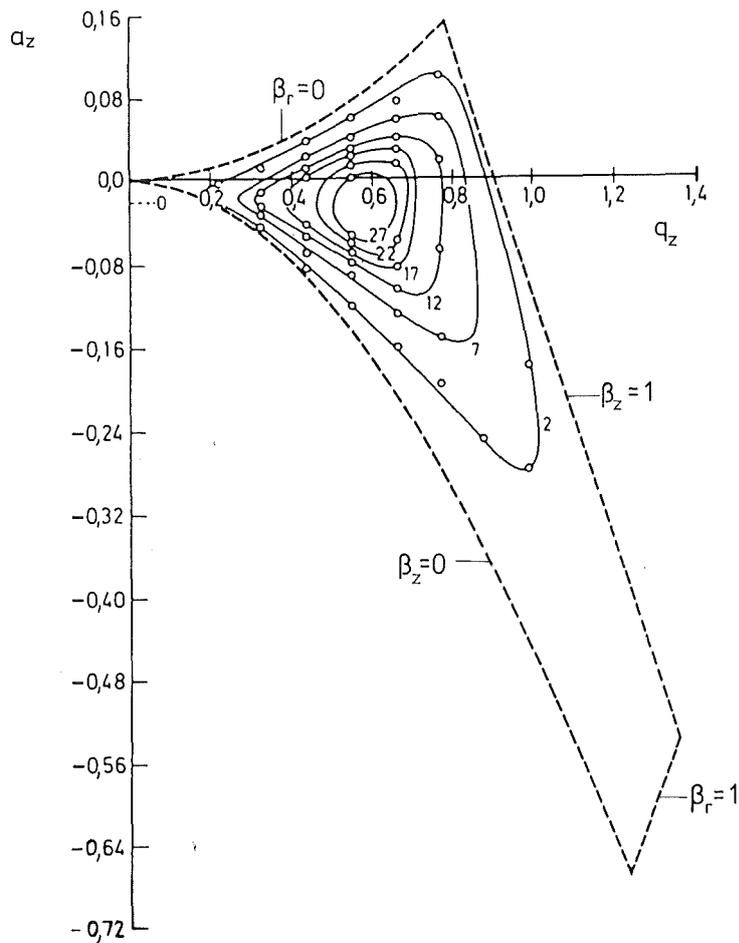


Abb. 2.2: Stabilitätsbereich in der a_z, q_z - Ebene und Linien gleichen Fassungsvermögens /IW 77/.

spannungsamplitude V_0 zu. Experimentell wurde das Fassungsvermögen einer Hf-Ionenfalle am Beispiel von Bariumionen untersucht /IW 77/. In Abb. 2.2 sind die von diesen Autoren ermittelten Linien gleichen Fassungsvermögens in das Stabilitätsdiagramm eingezeichnet. Es wurde ein Punkt größten Fassungsvermögens für $a_z = -0,03$ und $q_z = 0,55$ gefunden. Die Abnahme des Fassungsvermögens mit zunehmendem q_z wird mit der kleiner werdenden Akzeptanz der Ionen begründet.

Ein weiterer Punkt von praktischer Bedeutung ist die Frage nach der Speicherdauer der Ionen in einer Hf-Ionenfalle. Ein wichtiges Kriterium für die Speicherdauer ist die Beschaffenheit des Gases, in dem sich die Ionen aufhalten /De 67/. Besteht dieses Gas vorwiegend aus Teilchen, deren Masse größer oder vergleichbar der Masse eines Ions ist, so finden Stöße zwischen Ionen und Gasteilchen

statt, die bei den Ionen eine starke Änderung der Geschwindigkeiten und der Phasen bezüglich der Hochfrequenz zur Folge haben können. Nach einem solchen Stoß besteht eine gewisse Wahrscheinlichkeit, daß ein Ion aufgrund der stark geänderten Anfangsbedingungen sich nicht mehr in Akzeptanz befindet und im Verlauf seiner geänderten Bahn auf eine der Elektroden trifft. Die Speicherdauer unter diesen Bedingungen ist daher kurz. Besteht dagegen das Gas, in dem sich die Ionen aufhalten nur aus Teilchen, die leicht sind gegen die Ionenmasse, so gibt es bei Stößen nur kleine Änderungen der Anfangsbedingungen. Die Wahrscheinlichkeit, daß ein Ion dabei verloren geht, ist sehr gering. Darüber hinaus wirkt ein leichtes Gas wie ein Medium mit hoher Viskosität; es findet eine Abbremsung der Ionen statt. Dies hat zur Folge, daß die mittlere kinetische Energie und damit die effektive Temperatur der Ionen abnimmt. Dies wirkt sich günstig auf die Speicherdauer der Ionen aus.

Um dem Obengenannten Rechnung zu tragen, ist es notwendig, die Hf-Ionenfalle in einem UHV-Rezipienten zu betreiben. Dieser wird zunächst zur Reinigung auf einen möglichst niedrigen Druck evakuiert. Während des Auspumpens werden die Wände des Rezipienten ausgeheizt und die Hf-Ionenfalle wird dabei mittels einer Elektronenstoßheizung ausgeglüht. Es wird dadurch der Anteil der schweren Restgasmoleküle stark reduziert. Zur Speicherung von Ionen wird dann ein leichtes Speichergas (z.B. Wasserstoff oder Helium) in den Rezipienten eingelassen. Die Speicherdauer kann unter diesen Bedingungen mehrere Stunden bis Tage betragen.

3. Experimente

3.1 Das Prinzip der Messungen

Im folgenden wird das Prinzip der angewandten Meßmethode dargestellt. Zentraler Teil der Meßanordnung (siehe Abb. 3.1) ist eine Hf-Ionenfalle. Ihre Funktionsweise wurde im vorangegangenen Kapitel ausführlich behandelt.

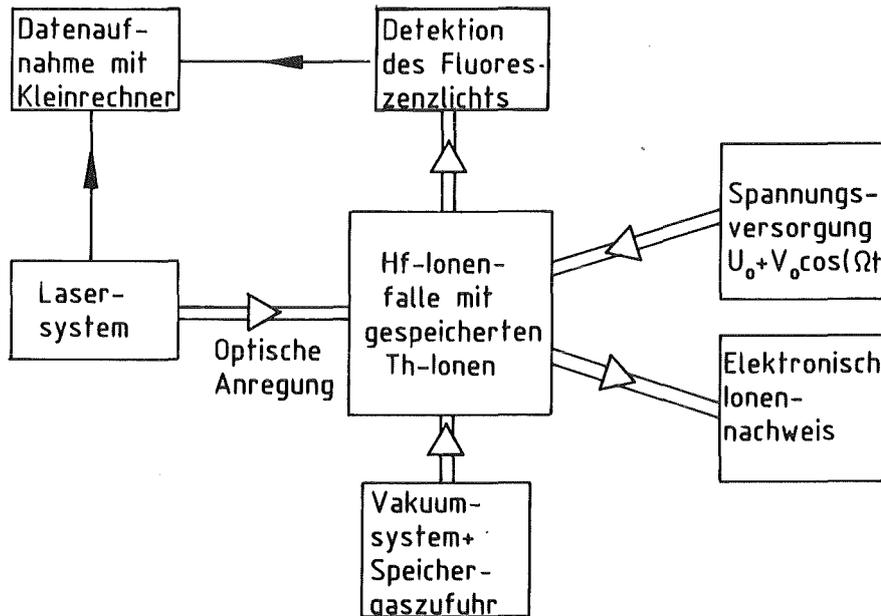


Abb. 3.1: Schematische Darstellung der Meßanordnung für die Laserspek-troskopie an gespeicherten Thorium-Ionen.

Die Thorium-Ionen werden erzeugt, indem Thorium von einem Trägerdraht verdampft und im Volumen der Hf-Ionenfalle durch Elektronenstoß ionisiert wird. Ein massenselektiver elektronischer Ionennachweis [59] dient zur Kontrolle der Speicherung der Ionen. Die gespeicherten Thorium-Ionen werden optisch angeregt durch das Licht eines frequenzveränderlichen Farbstofflasers. Das Fluoreszenzlicht, das die angeregten Ionen emittieren, wird mit einem Photomultiplier detektiert. Das registrierte Fluoreszenzlicht wird als Funktion der Frequenzverstimung des Lasers aufgenommen. Die dabei anfallenden Daten werden mit einem Kleinrechner verarbeitet. Die gewonnenen Spektren werden dann hinsichtlich der Isotopieverschiebung und der Hyperfeinaufspaltung von Thorium-Isotopen ausgewertet.

Für Vorversuche wurde zunächst eine Hf-Ionenfalle mit $r_0 = 2$ cm verwendet*). Die eigentlichen Messungen wurden mit einer Falle mit $r_0 = 1$ cm durchgeführt, die im folgenden näher beschrieben wird.

*)Diese Falle wurde uns freundlicherweise von Herrn Prof. Dr. G. Werth, Univ. Mainz zur Verfügung gestellt. Hierfür bedanken wir uns recht herzlich.

3.2 Die Hf-Ionenfalle

3.2.1 Mechanischer Aufbau

Für die spektroskopischen Untersuchungen von Thorium-Isotopen wurde eine Paulsche Hochfrequenz-Ionenfalle mit einem Radius von $r_0 = 1$ cm verwendet. Die drei Elektroden der Falle (siehe Abb. 3.2) wurden in der mechanischen Hauptwerkstatt des Kernforschungszentrums Karlsruhe hergestellt. Als Material für die Elektroden wurde Edelstahl (Werkstoff 1.4301) verwendet. Die Ringelektrode weist an der engsten Stelle zwei gegenüberliegende Bohrungen mit einem Durchmesser von 3 mm auf. Durch sie wird ein Laserstrahl zentral durch die Falle hindurchgeführt. Eine der beiden Endkappen besitzt in der Nähe des Scheitelpunktes zwei Öffnungen der Größe 2x4 mm. Sie bieten Platz für die Spitzen von Trägerdrähten, von denen die zu untersuchende Substanz verdampft wird. In der anderen Endkappe befinden sich ca. 400 Löcher mit je 1 mm Durchmesser. Sie wurden durch punktuelltes Verdampfen des Edelstahls mittels eines fokussierten Festkörperlaserstrahls hergestellt. Die Transparenz der Elektrode beträgt etwa 50%. Durch die Löcher wird das im Innern der Hf-Ionenfalle erzeugte elektrische Quadrupolfeld nur wenig gestört. Es wurden keine nachteiligen Auswirkungen auf das Speicherverhalten der Falle festgestellt. Die Löcher wurden zu dem Zweck angebracht, das Fluoreszenzlicht der Ionen beobachten zu können.

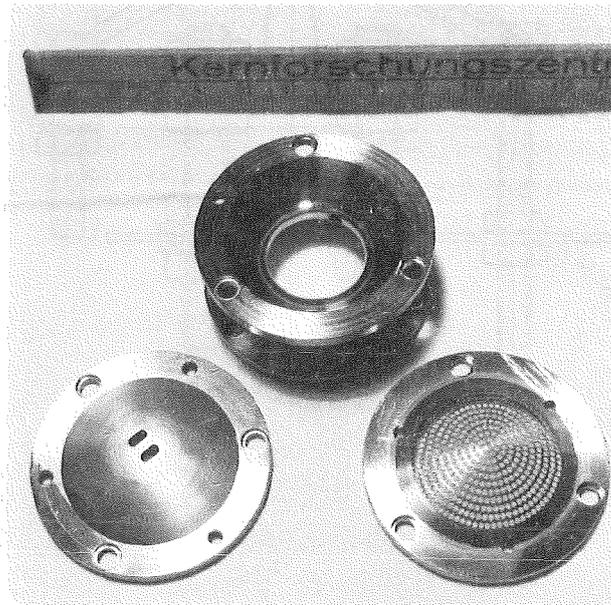
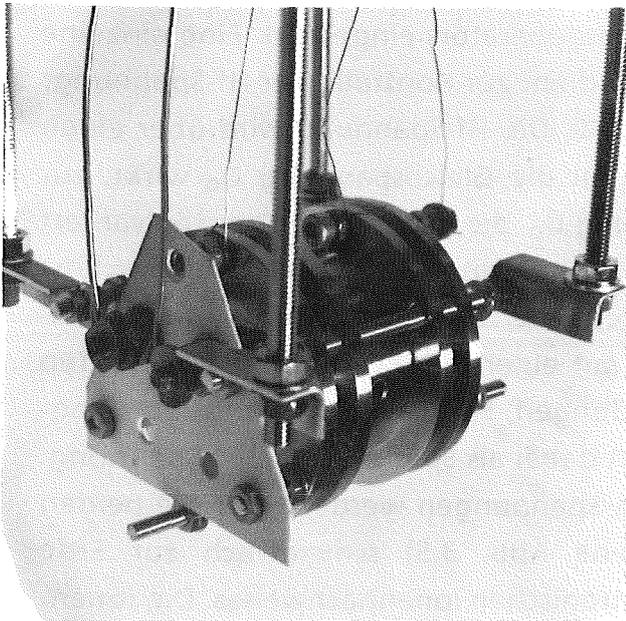


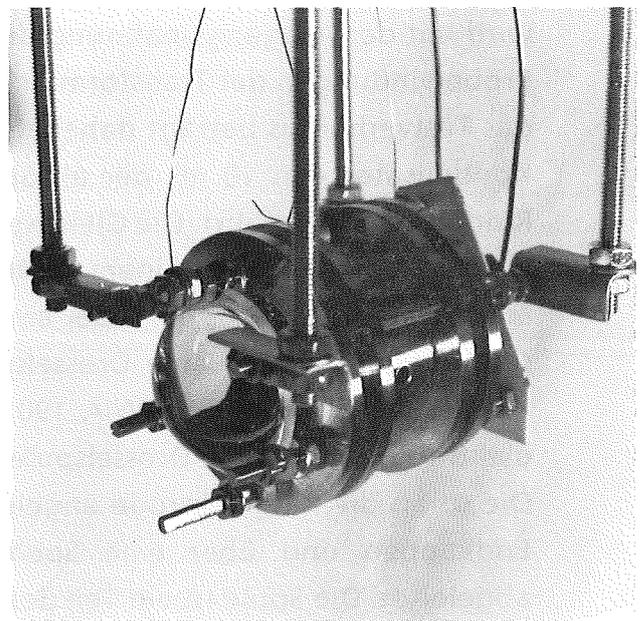
Abb. 3.2: Die drei Elektroden der verwendeten Hf-Ionenfalle mit $r_0 = 1$ cm.

destange gesteckt. Die Quarzrohre verhindern dabei, daß die Gewindestangen mit den Elektroden in Kontakt kommen. Durch zwei gekonterte Muttern an jedem Ende einer Gewindestange werden die Elektroden in Position gehalten. In Abb. 3.3 ist nur eine der drei Gewindestangen zur Halterung dargestellt.

Wie in Abb. 3.3 weiter zu erkennen ist, befindet sich vor der Endkappe mit den 400 Löchern eine Sammellinse (asphärische Kondensorlinse aus Krönglas, Nr. 317707, Fa. Spindler und Hoyer, Göttingen), deren Abstand vom Zentrum der Falle gerade ihrer Brennweite entspricht. Der erfaßte Raumwinkelbereich beträgt 12,5% von 4π . Vor der Endkappe mit den zwei Öffnungen 2x4 mm ist eine Halterung für zwei Trägerdrähte montiert. (In Abb. 3.3 ist nur ein Draht eingezeichnet). Die Halterung je Draht besteht aus zwei Gewindestangen, die zur Isolation mit einer Aluminiumoxidplatte verschraubt sind. Der Trägerdraht ist mit seinen Enden an den Gewindestangen befestigt. Er ist so geformt, daß er eine Spitze ausbildet, welche durch eine Öffnung in der Endkappe etwa 0,5 bis 1 mm tief ins Innere der Falle ragt. Bei diesem Abstand vom Zentrum der Falle ergab sich die beste Effizienz für das Speichern von Ionen. Mit dieser Anordnung können zwei Proben unabhängig voneinander untersucht werden, ohne die Vakuumkammer zwischenzeitlich belüften zu müssen.



a)



b)

Abb. 3.4: Die Hf-Ionenfalle

a) Endkappe mit Trägerdrahthalterung im Vordergrund

b) Endkappe mit Linse im Vordergrund

In Abb. 3.4 sind noch zwei Photographien der Hf-Ionenfalle dargestellt, die einen Eindruck vom Gesamtaufbau der Falle vermitteln sollen.

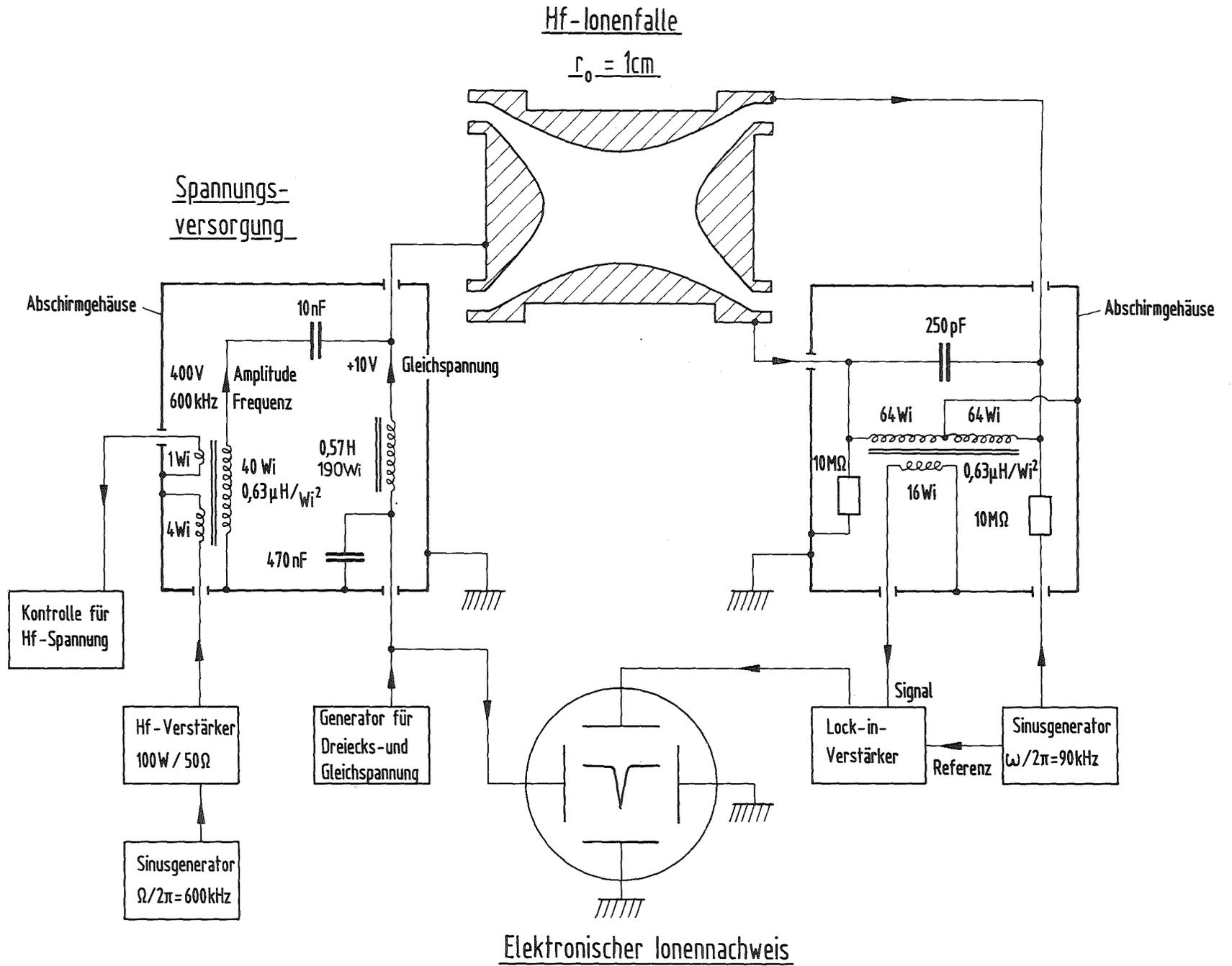
3.2.2 Spannungsversorgung und elektronischer Ionennachweis

Die Hf-Ionenfalle wird mit einer Spannungsversorgung bestehend aus einer Hochfrequenzwechselspannung und einer dazu überlagerten Gleichspannung betrieben. Die Versorgung wurde so konzipiert, daß sie über einen weiten Bereich variabel ist. So kann die Frequenz der Wechselspannung zwischen 250 und 800 kHz, ihre Amplitude zwischen 0 und 1500 V und die Gleichspannung zwischen -60 und +60 V variiert werden. Die Hf-Wechselspannung wird folgendermaßen erzeugt: Das Ausgangssignal eines frequenzvariablen Sinusgenerators wird in einem Breitband-Hf-Verstärker (ENI 3100L*), 100 W an 50 Ω verstärkt (siehe Abb. 3.5). Das Ausgangssignal des Verstärkers wird dann mittels eines Transformators auf die erforderliche Spannung gebracht. Der Spulenkern (Typ P42/29-3B7T, Fa. Valvo, Hamburg) des Transformators besitzt einen A_l -Wert von 630 nH/Wi²; primärseitig sind 4, sekundärseitig 40 Windungen vorhanden. Dies bedeutet eine Spannungstransformation von 10 : 1. Als typischer Wert bei den Experimenten mit Thorium wurde eine Spannungsamplitude von $V_0 = 400$ V bei einer Frequenz von $\Omega = 2\pi \cdot 600$ kHz verwendet. Die Amplitude wird mit der Ausgangsspannung des Sinusgenerators eingestellt. Eine einzelne Probewindung in der Transformatorspule dient zur Kontrolle der Hf-Spannung; das Tastverhältnis beträgt dabei also 1 : 40. Die Hf-Spannung wird über einen Kondensator von 10 nF, der als Sperre für die Gleichspannung U_0 wirkt, zur Ringelektrode geführt. Die Gleichspannung U_0 , die in gewissen Grenzen variiert werden kann, wird mit einem weiteren Funktionsgenerator erzeugt. Typisch ist ein Wert von $U_0 = +10$ V bei einer Frequenz $\Omega = 2\pi \cdot 600$ kHz. Die Gleichspannung wird über eine Drosselspule mit einer Induktivität von 0,57 H (Typ P42/29-3B7V, $A_l = 16$ μ H/Wi², 190 Windungen, Fa. Valvo, Hamburg) zur Ringelektrode geführt. Die Drosselspule wirkt dabei als Sperre für die Hf-Spannung. Die so an die Ringelektrode angelegten Spannungen werden über die beiden Endkappen und über eine Spule (siehe Abb. 3.5) symmetrisch zur Erde abgeleitet. Die Spule ist ein Teil des elektronischen Ionennachweises. Die Ionenfalle selbst stellt zusammen mit den verwendeten Anschlußdrähten für die Hf-Spannung eine Last von 70 pF dar.

Für den elektronischen Ionennachweis (siehe Abb. 3.5) wird ein LC-Parallelschwingkreis verwendet, der einen Kondensator mit einer Kapazität von 250 pF und die vorhin genannte Spule mit einer Induktivität von 10 mH (Typ

*) Der Breitbandverstärker wurde uns leihweise von Herrn Dr. Hochschild, KfK, Institut für Kernphysik zur Verfügung gestellt, wofür wir uns recht herzlich bedanken.

Abb. 3.5: Spannungsversorgung und Beschaltung für den Betrieb der Ionenfalle und für den elektronischen Ionennachweis.



P26/16-3B7, $A_I = 630 \text{ nH/Wi}^2$, 128 Windungen, Fa. Valvo, Hamburg) enthält. Der Schwingkreis hat eine Resonanzfrequenz von $\omega = 2\pi \cdot 90 \text{ kHz}$. Sie wurde angepaßt an die Grundfrequenz der Ionen (siehe Gleichung 2.6 in Kap. 2) bei den zuvor genannten Werten von der Amplitude und Frequenz der Hf-Spannung sowie der Gleichspannung. Der Schwingkreis wird über einen hochohmigen Widerstand ($10 \text{ M}\Omega$) zu einer erzwungenen Schwingung bei seiner Resonanzfrequenz angeregt. Die erforderliche Spannung wird hierbei von einem weiteren Sinusgenerator geliefert. Das erzwungene Wechselspannungssignal des Schwingkreises liegt zwischen den beiden Endkappen an und erzeugt in Richtung der Symmetrieachse (z-Achse) der Ionenfalle ein elektrisches Dipol-Wechselfeld. Wenn die Grundfrequenz ω_0 (Gl. 2.6) der Ionen in z-Richtung mit der Frequenz ω des Schwingkreises übereinstimmt, dann wird die Amplitude der erzwungenen Schwingung gedämpft. Bei diesem Vorgang wird Energie vom Schwingkreis auf die gespeicherten Ionen übertragen. Die Ionen führen dadurch in z-Richtung eine Schwingung bei der Grundfrequenz ω_0 mit vergrößerter Amplitude durch. Bei einer Güte des Schwingkreises von $Q = 200$ wird seine Amplitude bei 10^6 Ionen (das entspricht dem Fassungsvermögen der Ionenfalle; vgl. Kap. 2, Gleichung 2.8) auf ungefähr $1/10$ des ursprünglichen Wertes gedämpft. Das Wechselspannungssignal des Schwingkreises wird an einer Probewicklung der Spule abgegriffen und in einem Lock-in-Verstärker gleichgerichtet. (Das Referenzsignal wird dabei vom Sinusgenerator geliefert). Das gleichgerichtete Signal wird dann mit einem Oszillographen dargestellt. Um die Grundfrequenz ω_0 der Ionen mit der Resonanzfrequenz ω des Schwingkreises zur Übereinstimmung zu bringen, wird die Gleichspannung in einem bestimmten Bereich variiert. Dadurch wird bei vorgegebener Frequenz Ω und Amplitude V_0 der Hf-Spannung festgestellt, bei welcher Gleichspannung U_0 die Resonanz eintritt. Die Variation der Gleichspannung wird mit einer langsam veränderlichen Dreiecksspannung (0,1 bis 1 Hz) realisiert. Um zu verhindern, daß die Ionen bei der Anregung auf eine der Endkappen stoßen, muß die anregende Spannung klein gehalten werden (typisch ist eine Amplitude der erzwungenen elektrischen Schwingung von einigen mV). Als Beispiel für den elektronischen Ionennachweis wird in Abb. 3.6 eine mit einem x-y-Schreiber registrierte Resonanz des Isotops ^{232}Th gezeigt. Die entsprechenden Parameter sind in Tab. 3.1 festgehalten.

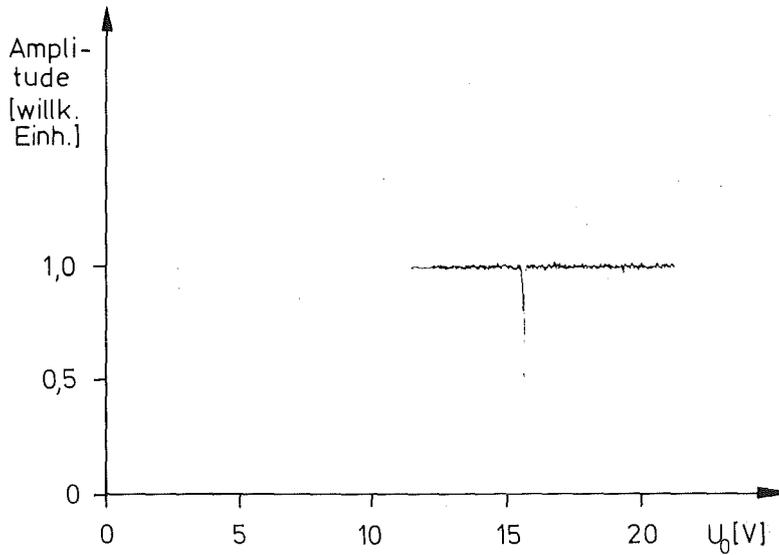


Abb. 3.6: Elektronischer Ionennachweis von ^{232}Th (Parameter siehe Tab. 3.1)

Tab. 3.1: Elektronischer Ionennachweis von ^{232}Th

| | |
|--|---|
| Falle mit: | $r_0 = 1 \text{ cm}$ |
| Hochfrequenz: | $\Omega = 2\pi \cdot 601,5 \text{ kHz}$ |
| Resonanzfrequenz des Schwingkreises / Grundfrequenz der Ionen: | $\omega = 2\pi \cdot 92,0 \text{ kHz}$ |
| Hf-Amplitude: | $V_0 = 450 \text{ V}$ |
| Gleichspannung, bei der Resonanz eintritt: | $U_0 = +15,5 \text{ V}$ |
| Werte für a_z, q_z (nach Gl.2.4): | $a_z = -0,0336$ |
| | $q_z = 0,488$ |

3.2.3 Elektronischer Ionennachweis bei Anwesenheit eines Speichergases

Im folgenden wird der Fall betrachtet, daß zwei (oder mehrere) Ionensorten unterschiedlicher Masse in der Hf-Ionenfalle gespeichert sind. Bei einem Speichergasdruck unterhalb 10^{-9} mbar weist jede Ionensorte ihre individuelle Resonanz auf, die bei der einer Ionensorte entsprechenden Masse liegt. Bei Speichergasdrücken zwischen 10^{-9} und 10^{-6} mbar dagegen findet eine Verschmelzung der individuellen Resonanzen zu einer einzelnen Resonanz statt, die bei der mit der Anzahl bewichteten Masse der gespeicherten Ionen liegt. In Abb. 3.7 wird ein typisches Beispiel dafür gezeigt.

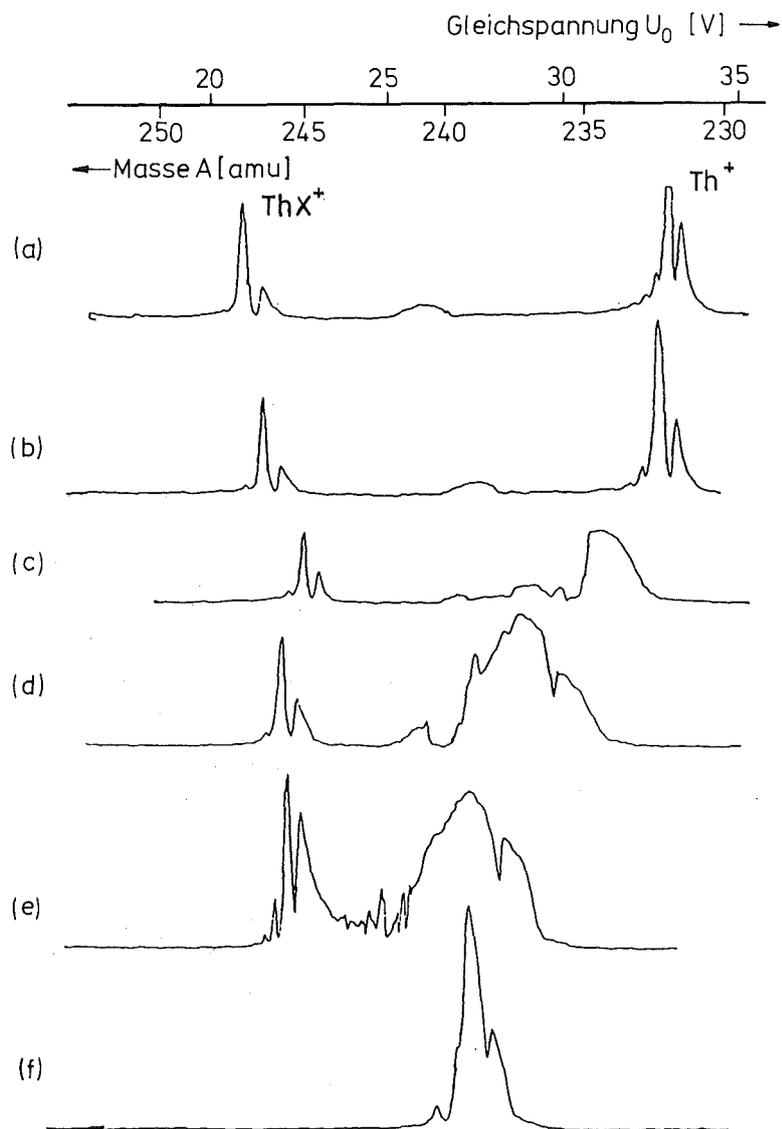


Abb. 3.7: Verschmelzung der elektronischen Resonanzen von Th^{++} - und ThX^{++} -Ionen (X ist vermutlich Sauerstoff oder Wasser) als Funktion des Speichergasdrucks bei folgenden Bedingungen: Falle mit $r_0 = 2$ cm, Hochfrequenz $\Omega = 2\pi \cdot 404,2$ kHz, Frequenz des Schwingkreises $\omega = 2\pi \cdot 58,2$ kHz, Hf-Amplitude $V_0 = 780$ V, Speichergas: Neon, Druck in mbar: (a) $1 \cdot 10^{-9}$ (b) $4 \cdot 10^{-8}$ (c) $8 \cdot 10^{-8}$ (d) $2 \cdot 10^{-7}$ (e) $3 \cdot 10^{-7}$ (f) $4 \cdot 10^{-7}$

Das Profil einer Resonanz ist eine weitere Seltsamkeit des elektronischen Ionennachweises. Es weist manchmal mehrere Peaks auf. Es könnte sich dabei um Schwebungen der erzwungenen Amplitude der Ionen handeln. Diese Schwebungen treten auf, wenn die Grundfrequenz der Ionen in unmittelbarer Nähe aber nicht gleich ist der Resonanzfrequenz des Schwingkreises (vgl. /Fi 59/).

Es liegt womöglich ein kollektives Phänomen vor, das die elektronischen Resonanzen verschiedener Massen oberhalb eines charakteristischen Speichergasdrucks zu einer Resonanz verschmelzen läßt. Eine Erklärung für dieses Phänomen steht jedoch noch aus.

3.2.4 Vakuumsystem

Die Speicherzeit von Ionen in einer Hf-Ionenfalle wird durch Stöße der Ionen mit schweren Restgasmolekülen erheblich verkürzt /De 67/. Um dies zu verhindern, ist es notwendig, die Hf-Ionenfalle in einem UHV-Rezipienten zu betreiben. Es wurde daher ein UHV-Rezipient für die Hf-Ionenfalle aufgebaut. Der Rezipient besteht aus kommerziell erhältlichen Standard-Edelstahlteilen, deren Flanschverbindungen durch Kupferkompressionsdichtungen abgedichtet werden. Er wird mittels einer Turbomolekularpumpe (Typ TPU 170, Fa. Pfeiffer, Wetzlar) und einer Titangetterpumpe (Typ V150-1, Fa. Leybold-Heraeus, Köln) evakuiert. Die Wände des Rezipienten werden in der Auspumpphase durch elektrische Beheizung auf eine Temperatur von 300°C gebracht. Zusätzlich wird die Hf-Ionenfalle mittels einer Elektronenstoßheizung ausgeheizt. Dazu werden aus einer glühenden Tantalwendel emittierte Elektronen mit einer Spannung von 1000 V auf die Elektroden der Falle beschleunigt. Der Elektronenstrom beträgt 100 mA. Die Elektroden werden dadurch auf eine geschätzte Temperatur von 600-800°C (dunkle Rotglut) gebracht. Die Auspumpphase dauert etwa 4 Stunden, wobei die Elektronenstoßheizung erst nach 2 Stunden eingeschaltet wird. Nach Abkühlung der Wände wird ein Enddruck von $2 \cdot 10^{-10}$ mbar erreicht. Mit dem Einbau der Titangetterpumpe und der Elektronenstoßheizung für die Hf-Ionenfalle konnte die Reaktionsrate der Thorium-Ionen mit Molekülen des Restgases (vgl. dazu Kap. 4) erheblich verringert werden.

Um das Einfangen von Ionen zu begünstigen, und um die eingefangenen Ionen abzubremsen (zu "kühlen") /De 67/, wird im Betrieb der Ionenfalle ein leichtes Speichergas in den UHV-Rezipienten eingelassen. Es wird dazu Helium oder alternativ molekularer Wasserstoff verwendet. Die Zufuhr von Heliumgas (Reinheit 6.0) erfolgt über die Vorvakuumseite der Turbomolekularpumpe. Dies bewirkt eine zusätzliche Reinigung des Heliumgases, da das Pumpvermögen der

Turbomolekularpumpe bei Helium erheblich geringer ist als bei Gasen mit größerem Molekulargewicht als Helium. Molekularer Wasserstoff (Reinheit 6.0) wird zur zusätzlichen Reinigung über ein Palladium-Leck in den Rezipienten eingeleitet. Dabei macht man sich zunutze, daß das Palladium für alle Gase mit Ausnahme des Wasserstoffs undurchlässig ist. Bei dem Leck handelt es sich um eine Scheibe aus einer Palladium-Silber-Legierung (77% Pd, 23% Ag; Hersteller: Fa. Degussa, Hanau), die einen Durchmesser von 21 mm hat und 0,2 mm dick ist. Die Scheibe ist zwischen zwei Kupferdichtungen eingeklemmt (siehe Abb. 3.8). Im Betrieb des Palladium-Lecks beträgt der Wasserstoffdruck außenseitig ein bis zwei bar. Der Wasserstoffdruck im Rezipienten wird über die Temperatur des Palladium-Lecks geregelt. Dazu wurde eine regelbare elektrische Beheizung der Pd-Scheibe angebracht.

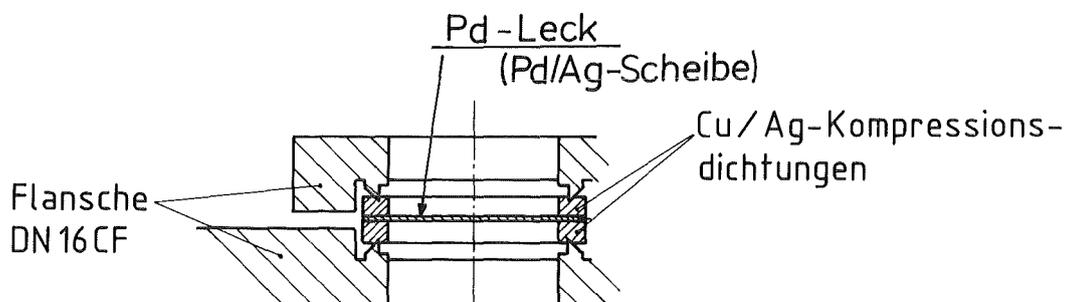


Abb. 3.8: Palladium-Leck zur zusätzlichen Reinigung von molekularem Wasserstoff.

3.3 Erzeugung und Speicherung von Thorium-Ionen

Zur Erzeugung von Thorium-Ionen wird folgendes Standardverfahren angewandt: Das Thorium liegt zunächst als Nitrat in wässriger oder salpetersaurer Lösung vor. Die Lösung mit dem Thoriumnitrat wird auf die Spitze eines Trägerdrahts aufgetragen und dort durch Erwärmen mit einer Infrarotlampe oder alternativ durch elektrischen Stromfluß durch den Draht eingetrocknet. Das Eintrocknen der Nitratlösung findet unter normalen atmosphärischen Bedingungen statt. Am besten als Trägerdraht geeignet hat sich Tantaldraht (Durchmesser 0,3 mm). Hiermit ergab sich die beste Effizienz zur Erzeugung von Thorium-Ionen (vgl. dazu Kap. 4.4).

Nach der Präparation der Trägerdrähte (zwei pro Halterung) werden diese zusammen mit ihrer Halterung in die Ionenfalle eingebaut (siehe dazu Abb. 3.3). Nach Einbau der Falle in den UHV-Rezipienten wird dieser evakuiert. Wenn der Rezipient ausgepumpt worden ist, wird das Speichergas eingelassen (Helium

bzw. Wasserstoff). Zur Erzeugung und Speicherung von Ionen hat sich ein Druck von 10^{-6} mbar als günstig erwiesen. Nach diesen Vorbereitungen wird einer der Trägerdrähte auf eine geschätzte Temperatur von 2000 K erhitzt. Wenn Tantaldraht mit einem Durchmesser von 0,3 mm als Trägerdraht verwendet wird, beträgt die dafür erforderliche Stromstärke 5 A. Die beim Erhitzen des Drahts entstehenden Verdampfungsprodukte werden im Flug von Elektronen beschossen; die Elektronen werden dabei von dem erhitzten Tantaldraht emittiert und gewinnen Energie im Hf-Feld der Ionenfalle. Beim Beschuß der Verdampfungsprodukte mit Elektronen werden Thorium-Ionen erzeugt und in der Falle gespeichert. Vermutlich entstehen beim Verdampfungsprozeß Thoriumatome, die durch Elektronenstoß ionisiert werden. Dieser Vorgang wurde jedoch nicht im Detail untersucht.

Mit einem genügend großen Reservoir von Thorium auf dem Trägerdraht (Thorium-Menge $\geq 1 \mu\text{g}$) wird die Ionenfalle nach etwa 5 Sekunden Glühen des Trägerdrahts bei den oben genannten Bedingungen vollständig mit Thorium-Ionen gefüllt. Wird der Trägerdraht eine kürzere Zeit als 5 Sekunden lang geglüht, so werden im entsprechenden Verhältnis weniger Ionen in der Falle gespeichert. Glüht man den Trägerdraht mehrmals für eine kurze Zeitdauer, so werden die bei jedem Glühvorgang erzeugten Ionen in der Ionenfalle angesammelt. Entscheidend für die Gesamtzahl der gespeicherten Ionen ist lediglich die gesamte Glühdauer des Drahtes (vorausgesetzt, sie ist kleiner als 5 Sekunden).

Bei kleinen Thorium-Mengen (Menge $< 1 \text{ ng}$) wird die größte Zahl von gespeicherten Thorium-Ionen nach etwa 10 Sekunden Glühen des Drahts erreicht; das Maximum der gespeicherten Ionenzahl ist dabei nahezu eine lineare Funktion der auf den Trägerdraht aufgebrachten Thorium-Menge. Wird der Trägerdraht länger als 10 Sekunden geglüht, so nimmt die Anzahl der gespeicherten Thorium-Ionen wieder ab. Dieser Vorgang wurde nicht im Detail untersucht. Es wird jedoch vermutet, daß die Thorium-Ionen durch Zweifach-ionisierung verloren gehen.

3.4 Optische Spektroskopie an gespeicherten Thorium-Ionen

3.4.1 Ein- und Zweistufenanregung

Zur Messung der Isotopieverschiebung und Hyperfeinaufspaltung von Thorium-Isotopen wurden zwei unterschiedliche laserspektroskopische Methoden angewandt. Es handelt sich dabei einmal um die Methode der dopplerbegrenzten Einstufenanregung, zum anderen um die dopplerreduzierte Zweistufenanregung.

Bei der Einstufenanregung wird bei den gespeicherten Thorium-Ionen der Th-II-Übergang $0-17122 \text{ cm}^{-1}$ /ZC 74/ mit Laserlicht der Wellenlänge $583,9 \text{ nm}$ angeregt (siehe Abb. 3.9). Das Laserlicht wird von einem durchstimmbaren Farbstoffringlaser (Single-Mode, Dauerstrich, Typ 699-21, Fa. Coherent) geliefert, der von einem Argon-Ionen-Laser (Typ CR 18, Fa. Coherent) bei 514 nm

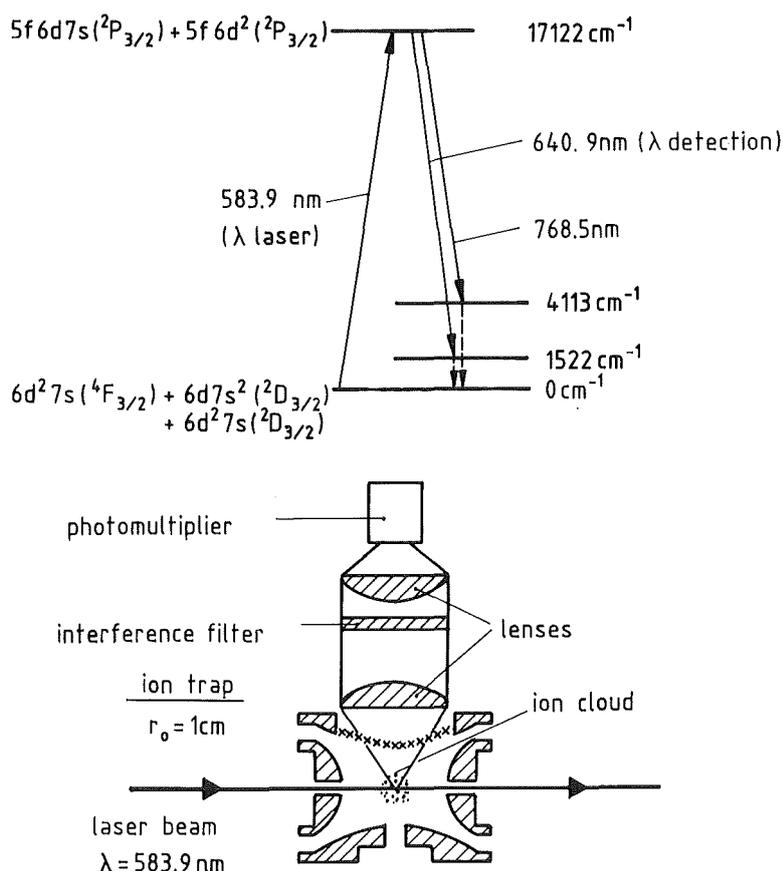


Abb. 3.9: Einstufenanregung von gespeicherten Thorium-Ionen

gepumpt wird. Der Nachweis der Anregung erfolgt durch Registrierung des von den Thorium-Ionen beim Zerfall nach 1522 cm^{-1} emittierten Lichts der Wellenlänge $640,9\text{ nm}$ mit einem Photomultiplier (Typ R943-02, mit GaAs-Photokathode, Fa. Hamamatsu). Es wurde eine von der Anregungswellenlänge verschiedene Nachweiswellenlänge gewählt, um Probleme mit dem gestreuten Laserlicht zu umgehen.

Um mit der Meßanordnung eine möglichst große Empfindlichkeit zu erzielen, ist es notwendig, von den gespeicherten Ionen eine möglichst große Signalrate zu erhalten. Nach einer erfolgten Anregung werden jedoch immer wieder metastabile Zustände (vorwiegend die Zustände 1522 cm^{-1} und 4113 cm^{-1}) besetzt. Um wieder am Anregungsprozeß teilnehmen zu können, müssen die Ionen jedoch in den Grundzustand zurückkehren. Das bedeutet, daß die Anregungsrate und damit die Signalrate der Ionen im wesentlichen durch die Übergangszeiten von den metastabilen Zuständen in den Grundzustand begrenzt ist. Um die Signalrate der Ionen zu erhöhen, ist es notwendig, die Übergangszeiten abzukürzen. Dies geschieht durch Quenchen der metastabilen Zustände mit dem vorhandenen Speichergas (Wasserstoff oder Helium).

Das von den Ionen emittierte Licht wird mittels zweier Sammellinsen auf die Photokathode des Multipliers abgebildet. Eine asphärische Kondensorlinse aus Kronglas mit einer Brennweite von 28 mm (Fa. Spindler und Hoyer, Nr. 317707) befindet sich im Abstand der Brennweite vom Zentrum der Ionenfalle. Die zweite Linse, ebenfalls eine Sammellinse (Brennweite 100 mm) besteht aus Quarz und befindet sich in einem Abstand von 60 mm von der Photokathode des Multipliers.

Zur Streulichtunterdrückung wurde eine optische Filterkombination gewählt, die in Tab. 3.2 beschrieben ist.

Ein Spektrum des angeregten Übergangs wird gewonnen, indem die vom Photomultiplier in gleichen Zeitintervallen registrierte Zahl der Photonen als Funktion der Verstimmung der Laserfrequenz aufgenommen wird. Zur Bestimmung der Laserfrequenz wird ein Wellenlängenmeßgerät /St 84/ verwendet, das aus einem Gitterspektrographen und drei Fabry-Perot-Interferometern mit freien Spektralbereichen von 340 GHz , 20 GHz und $1,5\text{ GHz}$ besteht. Die bei einer Messung anfallenden Daten, das sind die Zählrate des Photomultipliers und die Laserfrequenz, werden mit einem Kleinrechner (Nova 3) verarbeitet und auf Magnetplatte gespeichert.

Tab. 3.2: Filterkombination zur Streulichtunterdrückung bei der Einstufenanregung

| optisches Filter | Transmission bei der Nachweiswellenlänge 640,9 nm | Transmission bei der Laserwellenlänge 583,9 nm |
|--|---|--|
| Interferenzfilter für 642nm (Fa. Anders, Nabburg) Halbwertsbreite 9,7 nm, Blockung 544-624 nm und 660-790 nm | 0,9 | 10 ⁻⁵ |
| Farbglasfilter BG 36, 3mm (Fa. Schott, Mainz) | 1 | 10 ⁻⁹ |
| Farbglasfilter BG 38, 3mm (Fa. Schott, Mainz) zur Blockung 790-1000 nm | 0,28 | 0,8 |
| Gesamttransmission | 0,25 | 10 ⁻¹⁴ |

Bei der Zweistufenanregung (vgl. dazu: /Ri 88/) werden zwei in entgegengesetzter Richtung laufende, einander überlappende Laserstrahlen in die Ionenfalle eingestrahlt. Die Laserfrequenzen sind so abgestimmt, daß sie nacheinander die Übergänge Th-II 0-17122 cm⁻¹ und 17122-34544 cm⁻¹ /ZC 74/ anregen (vgl. Abb. 3.10). Das Laserlicht für den ersten Übergang wird von einem linearen Farbstofflaser (Single-Mode, Dauerstrich, Typ 599-21, Fa. Coherent), das Laserlicht für den zweiten Übergang von dem bereits zuvor genannten Farbstoffringlaser (Coherent 699-21) geliefert. Bei beiden Lasern wird der Farbstoff Rhodamin 6G verwendet. Beide Laser werden gemeinsam von einem Argon-Ionen-Laser bei der Wellenlänge 514 nm gepumpt, wobei dessen Ausgangsleistung von 8 W mit einem Strahlteiler zu 75% auf den Ringlaser und zu 25% auf den linearen Laser verteilt wird.

Der Nachweis der Anregung (vgl. Abb. 3.10) erfolgt durch Detektion des vom angeregten Zustand 34544 cm⁻¹ emittierten Lichts bei den Wellenlängen 332,6 , 358,9 und 367,4 nm mittels eines Photomultipliers (Typ 9635 QB, mit Bialkali-Photokathode, Fa. EMI). Zur Streulichtunterdrückung wird hier ein Farbglasfilter (Typ UG 11, 2 mm Dicke, Fa. Schott, Mainz) verwendet. Bei der Zweistufenanregung wird ein Spektrum erhalten, indem üblicherweise der den ersten Übergang anregende Laser mit konstanter Frequenz betrieben wird und der zweite Laser durchgestimmt wird.

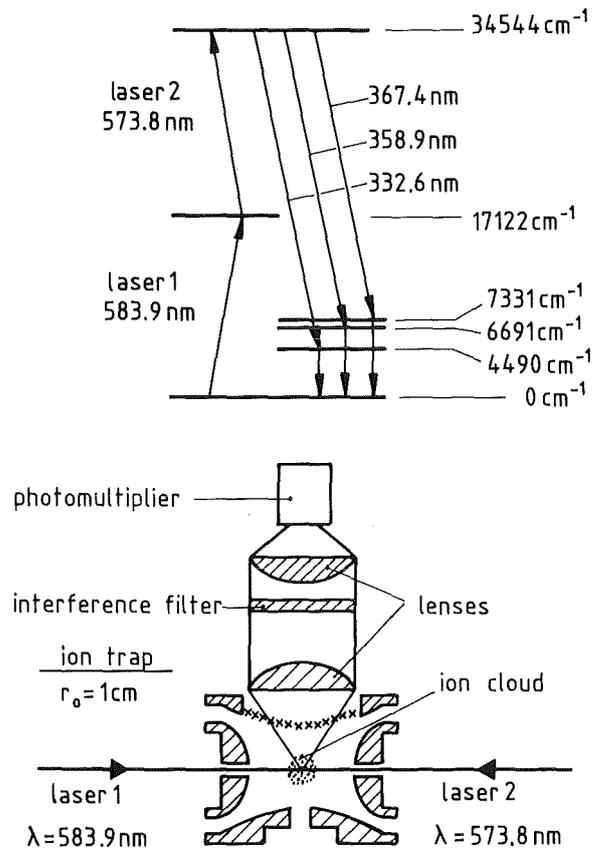


Abb. 3.10: Zweistufenanregung von gespeicherten Thorium-Ionen

3.4.2 Vergleich der Linienformen und Linienbreiten zwischen der Ein- und der Zweistufenanregung

Die mit der Methode der Einstufenanregung erreichbare Auflösung ist für die Messung der Isotopieverschiebung von Thorium-Isotopen ausreichend. Deshalb wurden die Messungen zur Isotopieverschiebung damit durchgeführt. Die Messung von Hyperfeinaufspaltungen konnte jedoch mit dieser Methode nicht befriedigend realisiert werden, da die Aufspaltungen kleiner waren als die Halbwertsbreite des Übergangs. Es wurde deshalb die Methode der Zweistufenanregung angewandt (vgl. dazu Abb. 6.2 und Abb. 6.3; die beiden Bilder zeigen den Unterschied in der Auflösung der Hyperfeinkomponenten am Beispiel des Isotops ^{229}Th).

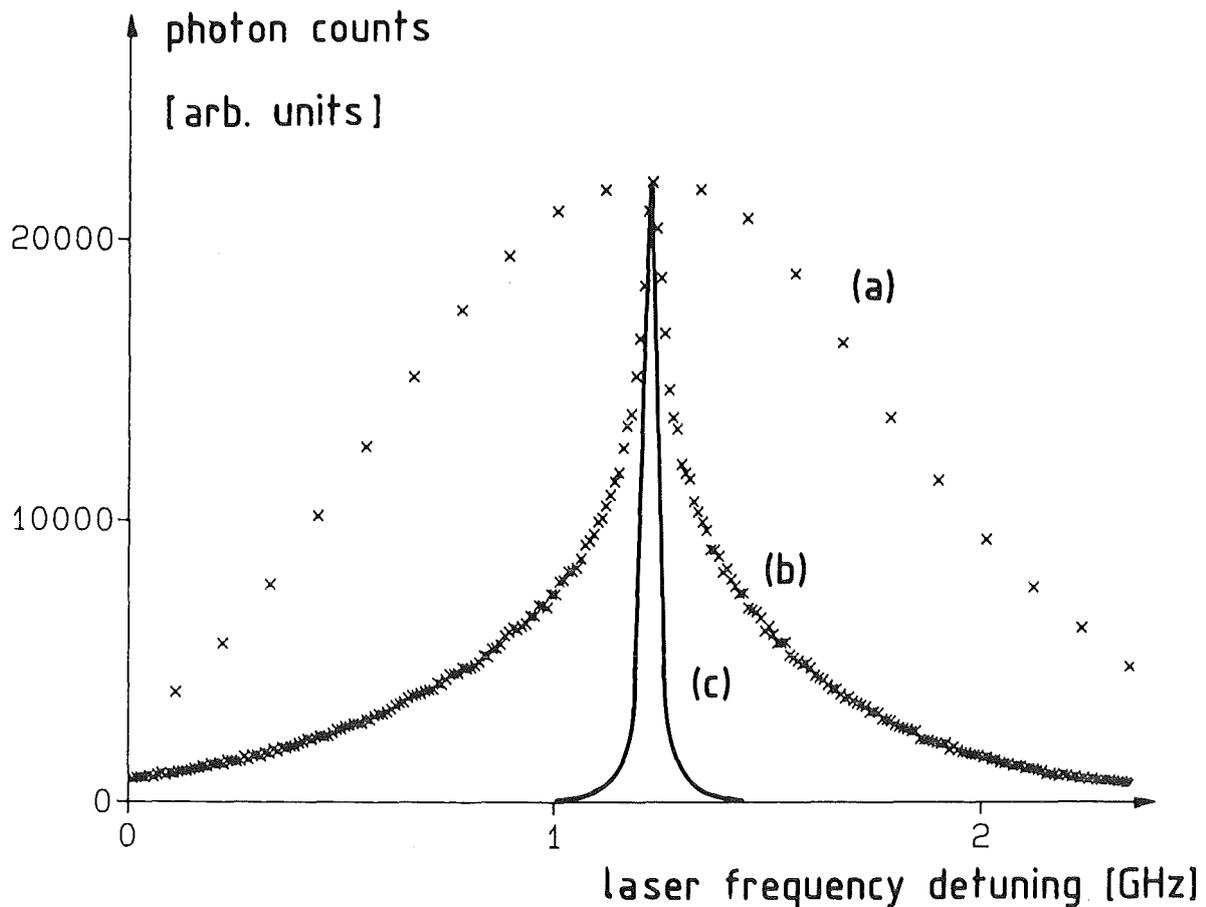


Abb. 3.11: Vergleich Einstufen- mit Zweistufenanregung von ^{232}Th
a) Einstufenanregung, Laserleistung 3 mW, Speichergas H_2 , $1,5 \cdot 10^{-5}$ mbar
b) Zweistufenanregung, 1. Laser mit fester Frequenz, Leistung 1 mW, 2. Laser durchgestimmt, Leistung 2 mW, Speichergas He, $3 \cdot 10^{-3}$ mbar.
Beide Kurven wurden auf gleiche Höhe normiert. Speicherbedingungen: Hf-Amplitude a) 240 V b) 600 V, Hochfrequenz 600 kHz, Gleichspannung + 10 V.
c) Erwartetes natürliches Profil der Zweistufenanregung.

Ein Vergleich des mit beiden Methoden aufgenommenen Spektrums von ^{232}Th wird in Abb. 3.11 gezeigt. Es wird hierbei die wesentlich schmalere Linienbreite bei der Zweistufenanregung deutlich. Das Profil der Einstufenanregung stellt die beim Durchstimmen der Laserfrequenz aufgrund des Dopplereffekts abgetastete Verteilung der Geschwindigkeitskomponenten der Ionen längs der Strahlachse dar. Die Linienform kann durch eine Gaußkurve beschrieben

werden. Es muß jedoch aufgrund der Wirkung des Hf-Feldes auf die Ionen angenommen werden, daß einem einzelnen Ion keine dauernd feste Geschwindigkeitskomponente zugeordnet werden kann; es ist davon auszugehen, daß ein einzelnes Ion im Lauf der Zeit alle möglichen Geschwindigkeitskomponenten annehmen kann. Die zeitgemittelte Geschwindigkeitsverteilung eines einzelnen Ions kann aber dennoch Unterschiede zur Geschwindigkeitsverteilung aller gespeicherten Ionen aufweisen. Insbesondere sind unterschiedliche Breiten der Geschwindigkeitsverteilungen der einzelnen Ionen möglich. Dies bedeutet, daß eine pseudohomogene Verbreiterung des Übergangs vorliegt. In dem Beispiel von Abb. 3.11 (Spektrum a) beträgt die Halbwertsbreite des Übergangs 1000 MHz. Dies entspricht einer effektiven Temperatur der Ionen von 1750 K.

Die Untersuchung der Halbwertsbreiten bei der Einstufenanregung ergab einen linearen Zusammenhang zwischen der effektiven Temperatur T der Ionen und der effektiven Potentialtiefe D (siehe Gl. 2.7 in Kap. 2). Dies entspricht den Ergebnissen anderer Autoren [W 77 und SSW 81]. In Abb. 3.12 ist die gefundene

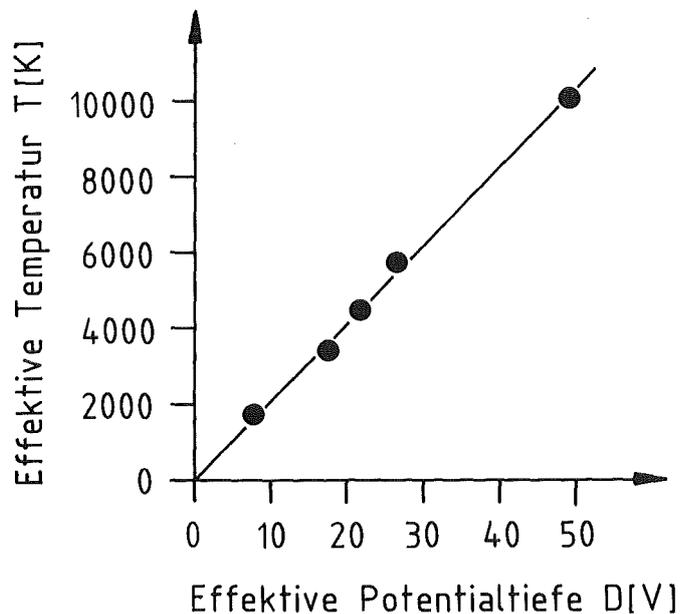


Abb. 3.12: Effektive Temperatur T der Ionen in Abhängigkeit von der effektiven Potentialtiefe D mit dem Speichergas Wasserstoff bei einem Druck von $2 \cdot 10^{-5}$ mbar.

lineare Abhängigkeit der effektiven Temperatur von der effektiven Potentialtiefe dargestellt.

Um eine gute Auflösung bei der Einstufenanregung zu erhalten, ist es zweckmäßig, die Potentialtiefe D so klein wie möglich zu halten. Da aber das Fassungsvermögen der Ionenfalle mit abnehmender Potentialtiefe ebenfalls abnimmt (vgl. Kap. 2), muß ein Kompromiß zwischen Signalrate und Auflösungsvermögen gefunden werden. Dieser ergab sich (bei der Hochfrequenz 600 kHz) bei einer Hf-Amplitude von 240 V. Diese Werte entsprechen einer Potentialtiefe von $D = 8$ V. (In Abb. 3.11, Spektrum a wurde gerade diese Potentialtiefe verwendet.)

Bei der Zweistufenanregung (siehe auch: /Ri 88/) findet eine weitgehende Kompensation des Dopplereffektes statt. Dies läßt sich folgendermaßen verstehen: Wird der erste Laser mit konstanter Frequenz $\omega_{1\ell}$ eingestrahlt, so werden Ionen mit einer bestimmten Geschwindigkeitskomponente v_0 längs der Strahlrichtung selektiv angeregt:

$$\omega_{1\ell} = \omega_1 \left(1 - \frac{v_0}{c} \right) \quad (3.1)$$

Dabei ist ω_1 die Ruhfrequenz des Übergangs $0-17122 \text{ cm}^{-1}$. Mit dem zweiten Laser können dann nur Ionen mit dieser Geschwindigkeitskomponente weiter angeregt werden. Für den zweiten Schritt gilt daher folgende Resonanzbedingung (man beachte den Vorzeichenwechsel des Dopplereffekts; er ist bedingt durch die entgegengesetzte Einstrahlung der beiden Laser):

$$\omega_{2\ell} = \omega_2 \left(1 + \frac{v_0}{c} \right) \quad (3.2)$$

ω_2 ist die Ruhfrequenz des Übergangs $17122-34544 \text{ cm}^{-1}$, $\omega_{2\ell}$ die Frequenz des zweiten Lasers. Da die Laser in entgegengesetzter Richtung eingestrahlt werden, kompensieren sich die Dopplereffekte beider Anregungen gegenseitig bis auf einen Term, der proportional zu der Differenz der Übergangsfrequenzen $\omega_2 - \omega_1$ ist:

$$\omega_{1\ell} + \omega_{2\ell} = \omega_1 + \omega_2 + (\omega_2 - \omega_1) \frac{v_0}{c} \quad (3.3)$$

Da die Differenz $\omega_2 - \omega_1$ in unserem Fall hinreichend klein ist ($\omega_2 - \omega_1 = 0,017 \omega_1$), ist die Summe der beiden Laserfrequenzen im Peak des Spektrums annähernd gleich der Summe der Frequenzen der angeregten Übergänge, unabhängig von der Verstimmung eines Lasers von der entsprechenden Übergangsfrequenz.

Bei der Zweistufenanregung erwartet man zunächst für das Profil eines Übergangs angenähert die natürliche Linienform aus folgendem Grund: Der

erste Laser regt Ionen mit einer bestimmten Geschwindigkeitskomponente v_0 längs der Strahlrichtung bevorzugt an (siehe Gl. 3.1). D.h. im angeregten mittleren Zustand 17122 cm^{-1} haben die Ionen eine Geschwindigkeitsverteilung entsprechend der natürlichen Form (Lorentzprofil) mit dem Zentrum bei $v = v_0$. Wenn der zweite Laser über den zweiten Übergang abgestimmt wird, so können nur die Ionen im angeregten mittleren Zustand mit besagter Geschwindigkeitsverteilung weiter angeregt werden. Als Profil ergibt sich eine Faltung der Lorentzprofile beider Übergänge, also wieder ein Lorentzprofil.

Das beobachtete Profil bei der Zweistufenanregung (vgl. Abb. 3.11) ist dagegen von dem erwarteten wesentlich verschieden. Es treten weite Ausläufer in dem beobachteten Profil auf: Es werden unerwartet viele Ionen mit einer Geschwindigkeitskomponente v weitab von v_0 beobachtet; allerdings ist ihre Zahl stets kleiner als die Zahl der Ionen mit $v = v_0$. Wenn die Geschwindigkeitskomponente v_0 in der Nähe von 0 ist (Verstimmung der Frequenz des ersten Lasers nicht größer als $\Delta\omega/2\pi = 300 \text{ MHz}$ von der Ruhfrequenz des Übergangs), so wird eine stetige Abnahme der Zahl der Ionen beobachtet, je weiter man sich mit v von v_0 entfernt.

Diese Beobachtungen am Profil der Zweistufenanregung können folgendermaßen erklärt werden: Die Ionen haben zunächst unmittelbar nach der ersten Anregung die Geschwindigkeitskomponente v_0 . Wenn die Frequenz des zweiten Lasers von der Resonanz verstimmt ist, so kann zunächst die zweite Anregung nicht erfolgen. Durch Beschleunigung der Ionen durch das Hf-Feld der Ionenfalle werden aber die Geschwindigkeiten der Ionen geändert. Es kann daher dennoch zur zweiten Anregung kommen, wenn die Ionen durch die Beschleunigung zufällig die richtige Geschwindigkeitskomponente für den zweiten Schritt annehmen. Zwischen der ersten und der zweiten Anregung zerfällt jedoch der angeregte mittlere Zustand wieder in den Grundzustand oder in einen metastabilen Zustand. Die Folge davon ist, daß weniger Ionen am zweiten Schritt teilnehmen können und die Signalrate daher abnimmt. Je größer die Verstimmung des zweiten Lasers von der Resonanzfrequenz, desto kleiner ist die beobachtete Signalrate, weil die notwendige Wartezeit bis zur zweiten Anregung mit zunehmender Verstimmung immer länger wird.

Die Halbwertsbreite eines Spektrums der Zweistufenanregung ist demnach von der Lebensdauer des mittleren Zustandes (17122 cm^{-1}) und der Beschleunigung der Ionen im Hf-Feld der Ionenfalle abhängig. In dem Beispiel von Abb. 3.11 (Spektrum b) beträgt die Halbwertsbreite $\Delta\omega_{\text{HWB}}/2\pi = 190 \text{ MHz}$. Sie ist um den Faktor 5 kleiner als die Dopplerbreite bei der Einstufenanregung.

Im folgenden wird eine mehr quantitative Beschreibung der Linienform bei der Zweistufenanregung gegeben. Es wird näherungsweise angenommen, daß der erste Laser mit fester Frequenz die Geschwindigkeitskomponente $v = v_0$ anregt; d.h. zur Zeit $t = 0$ unmittelbar nach einer Anregung liegen alle Ionen im Zustand 17122 cm^{-1} zunächst mit $v = v_0$ vor. Die Signalrate ist proportional zur Wahrscheinlichkeit w , daß sich ein Ion noch in dem angeregten Zustand befindet, wenn zur Zeit t die zweite Anregung stattfindet. Die Wahrscheinlichkeit w ist dabei:

$$w = e^{-t/\tau} \quad (3.4)$$

τ ist die (unbekannte) mittlere Lebensdauer des Zustandes 17122 cm^{-1} . Wenn die Frequenz des zweiten Lasers so eingestellt wird, daß bei der zweiten Anregung Resonanz mit Ionen mit der Geschwindigkeitskomponente v_x eintritt, so ist dazu folgende Frequenzverstimung $\Delta\omega$ des zweiten Lasers notwendig:

$$\Delta\omega = \omega_2 \frac{v_x - v_0}{c} \quad (3.5)$$

(Vgl. mit Gl. 3.2). Entscheidend für die Signalrate ist nun die Zeitdauer t , die das Ion benötigt, um seine Geschwindigkeitskomponente von v_0 nach v_x zu ändern. Dazu ist eine Komponente a der Beschleunigung in Richtung des Laserstrahls notwendig. Zwischen der Geschwindigkeitsänderung $v_x - v_0$, der Beschleunigung a und der Zeitdauer t besteht folgender allgemeingültiger Zusammenhang:

$$v_x - v_0 = \int_0^t a(t') dt' \quad (3.6)$$

Da die zeitliche Änderung der Beschleunigung nicht näher bekannt ist, wird eine Näherungslösung durchgeführt. Geht man davon aus, daß die mittlere Lebensdauer τ viel kleiner ist als die Periodendauer einer Hf-Schwingung $T = 2\pi/\Omega$ ($T = 1,7 \text{ } \mu\text{sec}$ bei $\Omega = 2\pi \cdot 600 \text{ kHz}$), so kann man die vereinfachende Annahme machen, daß die Beschleunigungskomponente a während der Zeitdauer $t \approx \tau$ bis zur zweiten Anregung konstant ist. Demnach gilt:

$$v_x - v_0 = a(0) \cdot t \quad (3.7)$$

Man findet unter Berücksichtigung von Gleichungen 3.4, 3.5 und 3.7 für die Wahrscheinlichkeit $w(a)$:

$$w(a) = \exp \left[- \frac{\Delta\omega \cdot c}{\omega_2 \cdot a \cdot \tau} \right] \quad (3.8)$$

Es wurde damit ein Ausdruck gefunden, der bei gegebener Verstimung $\Delta\omega$ des zweiten Lasers von der Resonanz die Wahrscheinlichkeit $w(a)$ angibt, daß sich ein Ion noch im angeregten Zustand 17122 cm^{-1} befindet, wenn die für die zweite Stufe passende Geschwindigkeitskomponente erreicht wird. Wenn nun die

Häufigkeit h der Beschleunigungskomponenten a bekannt wäre, könnte durch Integration über alle Komponenten a der Beschleunigung das Profil der Zweistufenanregung berechnet werden. Das Profil $F(\Delta\omega)$ demnach hat folgendes Aussehen:

$$F(\Delta\omega) = \int_0^{\infty} h(a) w(a) da; \text{ für } \Delta\omega > 0 \quad (3.9)$$

$$F(\Delta\omega) = \int_{-\infty}^0 h(a) w(a) da; \text{ für } \Delta\omega < 0$$

Die Fallunterscheidung ist notwendig, da nach Gleichungen 3.5 und 3.7 nur für positive Beschleunigungen ($a > 0$) auch positive Frequenzverstimmungen ($\Delta\omega > 0$) in Betracht kommen und umgekehrt.

Unter der Modellannahme einer Gaußschen Beschleunigungsverteilung $h(a)$ (s. Gl. 3.10) wurden Anpassungen von berechneten Profilen an gemessene Spektren durchgeführt.

$$h(a) = N \exp \left[- \frac{(a - a_s)^2}{2a_0^2} \right] \quad (3.10)$$

Ein Beispiel dafür wird in Abb. 3.13 gezeigt. a_0 ist dabei die (unbekannte) mittlere Beschleunigung der Ionen, N eine Normierungskonstante. Der Parameter a_s wurde eingeführt, um die Asymmetrie eines Spektrums beschreiben zu können. Eine Asymmetrie des Spektrums tritt auf, wenn Ionen im ersten Schritt mit der Geschwindigkeitskomponente $v_0 \neq 0$ angeregt werden. Sie ist umso ausgeprägter, je größer v_0 ist. Sie kann damit begründet werden, daß die Ionen bestrebt sind, bevorzugt wahrscheinlichere Geschwindigkeitskomponenten anzunehmen. Die Wahrscheinlichkeitsverteilung der Geschwindigkeitskomponenten ist aus Spektren der Einstufenanregung bekannt: Es handelt sich um eine Normalverteilung mit Zentrum bei $v = 0$. Wenn nun ein Ion im ersten Schritt mit $v_0 > 0$ angeregt wird, dann ist es wahrscheinlicher, daß es durch die Beschleunigung des Hf-Feldes die Geschwindigkeitskomponente $v_0 - v_1$ annimmt als daß es die Komponente $v_0 + v_1$ erreicht ($0 < v_1 < v_0$). Dadurch kommt im Spektrum der Zweistufenanregung eine Asymmetrie zustande. Die Asymmetrie eines Spektrums kann dadurch erfaßt werden, daß die Beschleunigungsverteilung $h(a)$ mit Zentrum bei $a = 0$ um den Parameter a_s bezüglich des Zentrums verschoben wird.

Im Beispiel von Abb. 3.13 ist das Spektrum nahezu symmetrisch; das Verhältnis a_s/a_0 beträgt hier -0,02. Die Anpassung der berechneten Kurve an das gemessene Spektrum ist nicht perfekt, aber vollständig ausreichend, um diejenige Frequenz

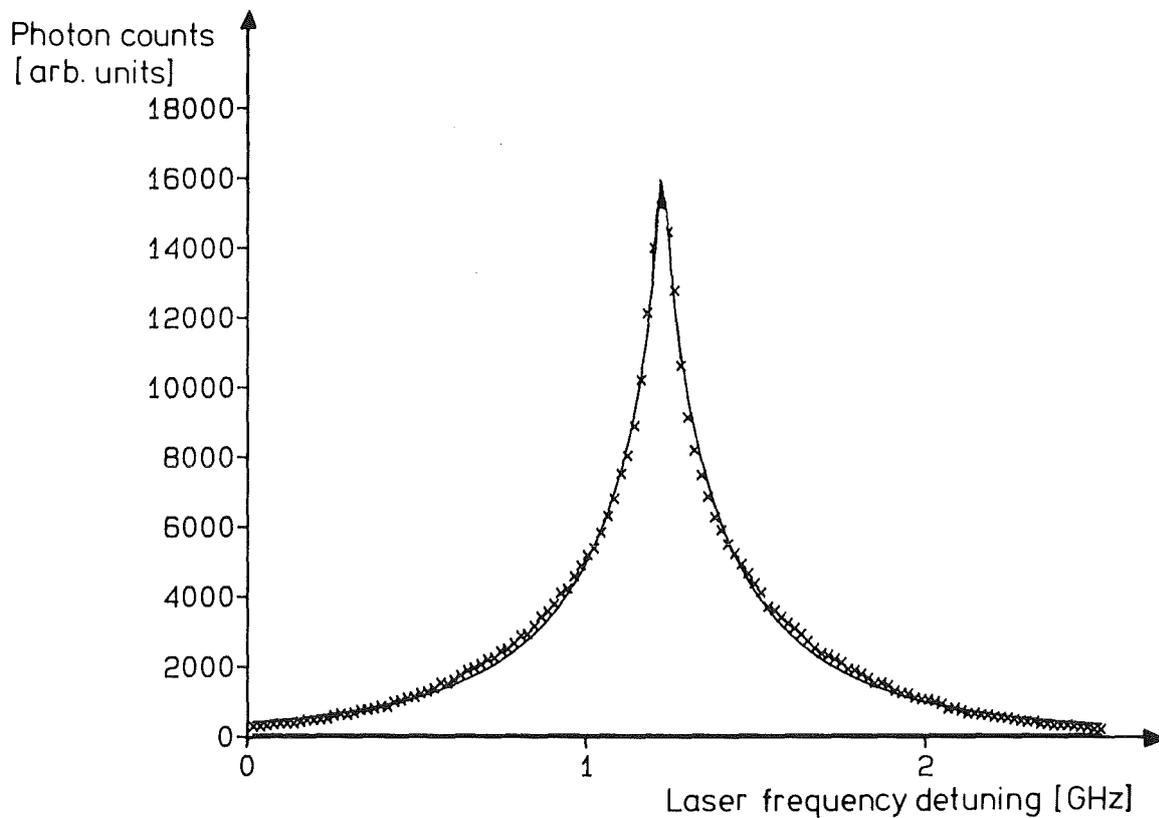


Abb. 3.13: Gemessenes Spektrum der Zweistufenanregung (diskrete Meßpunkte) und dazu angepaßtes Profil, das mit einer Gaußschen Beschleunigungsverteilung berechnet worden ist (durchgezogene Linie).

des zweiten Lasers festzustellen, mit der die Ionen mit der vom ersten Laser selektierten Geschwindigkeitskomponente v_0 in Resonanz sind (Peaklage).

Die Anpassung der Kurve an das gemessene Spektrum legt das Produkt aus mittlerer Beschleunigung a_0 und mittlerer Lebensdauer τ des Zustands 17122 cm^{-1} fest. Es beträgt in diesem Fall $a_0 \cdot \tau = 180 \text{ m/s}$. Aus der Bewegung der Ionen in der Hf-Ionenfalle kann man einen Wert für die mittlere Beschleunigung von $a_0 \approx 3 \cdot 10^9 \text{ m/s}^2$ abschätzen. Damit ergibt sich für die mittlere Lebensdauer des Zustands 17122 cm^{-1} ungefähr ein Wert von $\tau \approx 60 \text{ ns}$.

4. Empfindlichkeit

Es wurden die Abhängigkeit des Signals und des Signal/Rausch-Verhältnisses vom Speichergasdruck bei den Speichergasen Wasserstoff und Helium sowie der Wirkungsgrad der Erzeugung von Thorium-Ionen untersucht. Dabei wurden die optimalen Bedingungen ermittelt, um bei den Messungen der Isotopieverschiebung und der Hyperfeinaufspaltung von Thorium-Isotopen mit möglichst kleinen Mengen auszukommen.

4.1 Reaktionsrate von Thorium-Ionen und zeitliche Abnahme des Fluoreszenzlichts

Ein wichtiger Punkt bei der Ermittlung des Signal/Rausch-Verhältnisses stellt das Zeitverhalten des Fluoreszenzlichts dar. Es wurde stets ein mit der Zeit exponentiell abnehmendes Fluoreszenzlicht der Ionen beobachtet wegen der Abnahme der Zahl der gespeicherten Thorium-Ionen. Mit dem elektronischen Ionennachweis wird simultan dazu das Entstehen und Anwachsen einer weiteren Ionensorte beobachtet, deren Masse um etwa 16 amu größer ist als die des Thoriums. Es wird daher vermutet, daß eine chemische Reaktion der Thorium-Ionen mit Molekülen der ungefähren Masse 16 vorliegt. Es könnte sich demnach um eine Anlagerung von Sauerstoff (O) oder auch von Wasser (H₂O) handeln.

Ein typisches Beispiel für den beobachteten Zusammenhang zwischen der Abnahme der optischen Signalrate und der Zunahme der mittleren Masse der gespeicherten Ionen wird in Abb. 4.1 gezeigt. Bei dem hier vorhandenen Speichergasdruck von $6 \cdot 10^{-6}$ mbar werden die Resonanzen der einzelnen Ionensorten mit unterschiedlichen Massen nicht mehr getrennt beobachtet, sondern sie verschmelzen zu einer einzigen Resonanz, die bei der mit der Anzahl bewichteten mittleren Masse der gespeicherten Ionen liegt (vgl. dazu Kap. 3.2.3). Aus dem Wert der Gleichspannung U_0 , bei dem die elektronische Resonanz beobachtet wird, kann auf die mittlere Masse der gespeicherten Ionen geschlossen werden.

Von entscheidender Bedeutung für das Signal/Rausch-Verhältnis ist bei einer zeitlich exponentiellen Abnahme ($e^{-\lambda t}$ - Abnahme) des Fluoreszenzlichts die Reaktionsrate λ der gespeicherten Thorium-Ionen. Durch Verbesserungen des Vakuumsystems konnte die Reaktionsrate um bis zu zwei Größenordnungen erniedrigt werden. Diese Verbesserungen waren im einzelnen: Ausheizen der Hf-Ionenfalle durch eine Elektronenstoßheizung und Einbau einer Titan-Getterpumpe (vgl. dazu Kap. 3.2.4). Es wurde die Abhängigkeit der Reaktionsrate unter den verbesserten Vakuumbedingungen vom Speichergasdruck

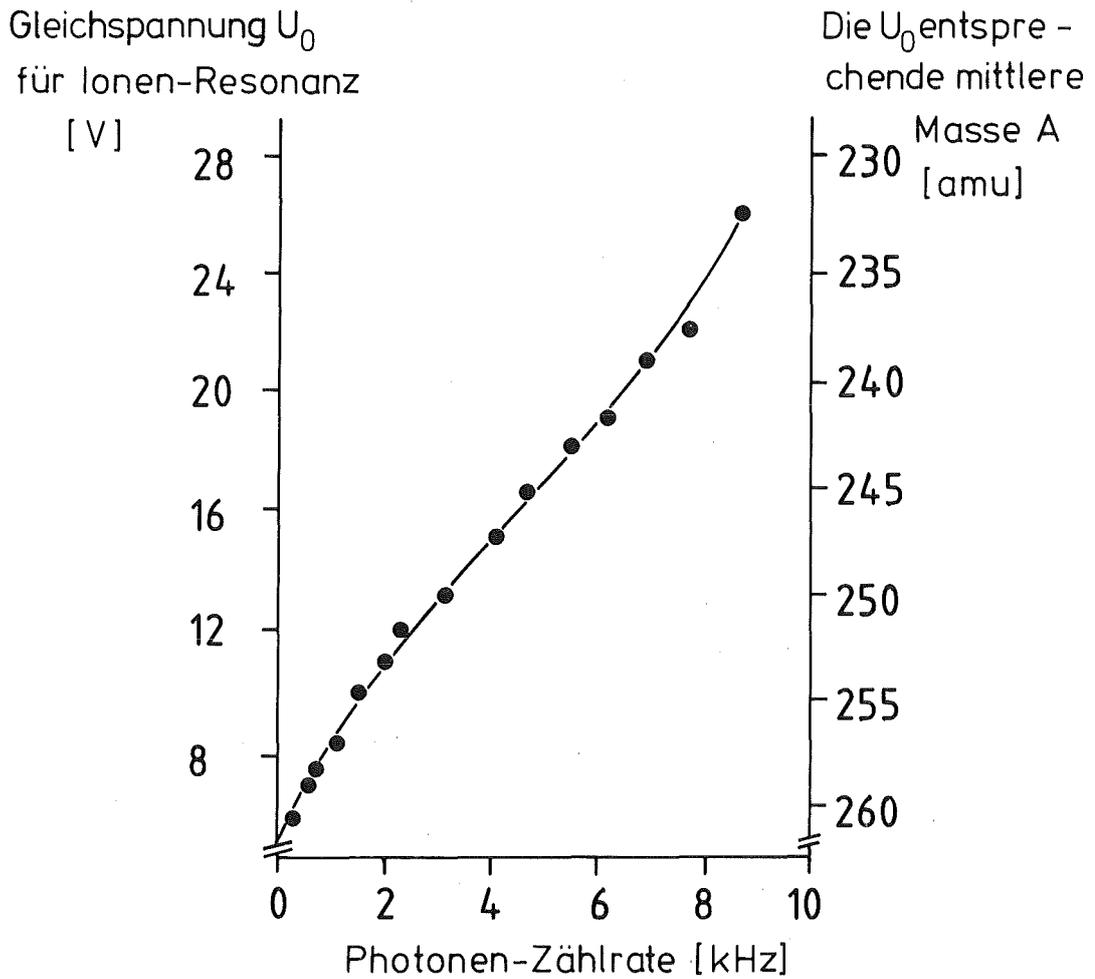


Abb. 4.1: Zusammenhang zwischen Verschiebung der elektronischen Ionenresonanz und Abnahme der optischen Signalrate bei folgenden Parametern: Falle mit $r_0 = 2$ cm, Hochfrequenz $\Omega = 2\pi \cdot 409,3$ kHz, Frequenz des Schwingkreises $\omega_0 = 2\pi \cdot 61,4$ kHz, Hf-Amplitude $V_0 = 805$ V, Speichergas: H_2 , bei einem Druck von $6 \cdot 10^{-6}$ mbar. Auf der rechten Skala erfolgte eine Umrechnung in effektive Masseneinheiten.

untersucht. Die Ergebnisse für die Speichergase Wasserstoff und Helium sind in Abb. 4.2 dargestellt.

Es wurde festgestellt, daß die Reaktionsrate λ bei Wasserstoff wesentlich höher ist als bei Helium bei jeweils gleichen Speichergasdrucken. Außerdem nimmt die Reaktionsrate mit dem Wasserstoffdruck stark zu, während die Rate nahezu unabhängig vom Heliumdruck ist. Dies läßt den Schluß zu, daß die Moleküle, die

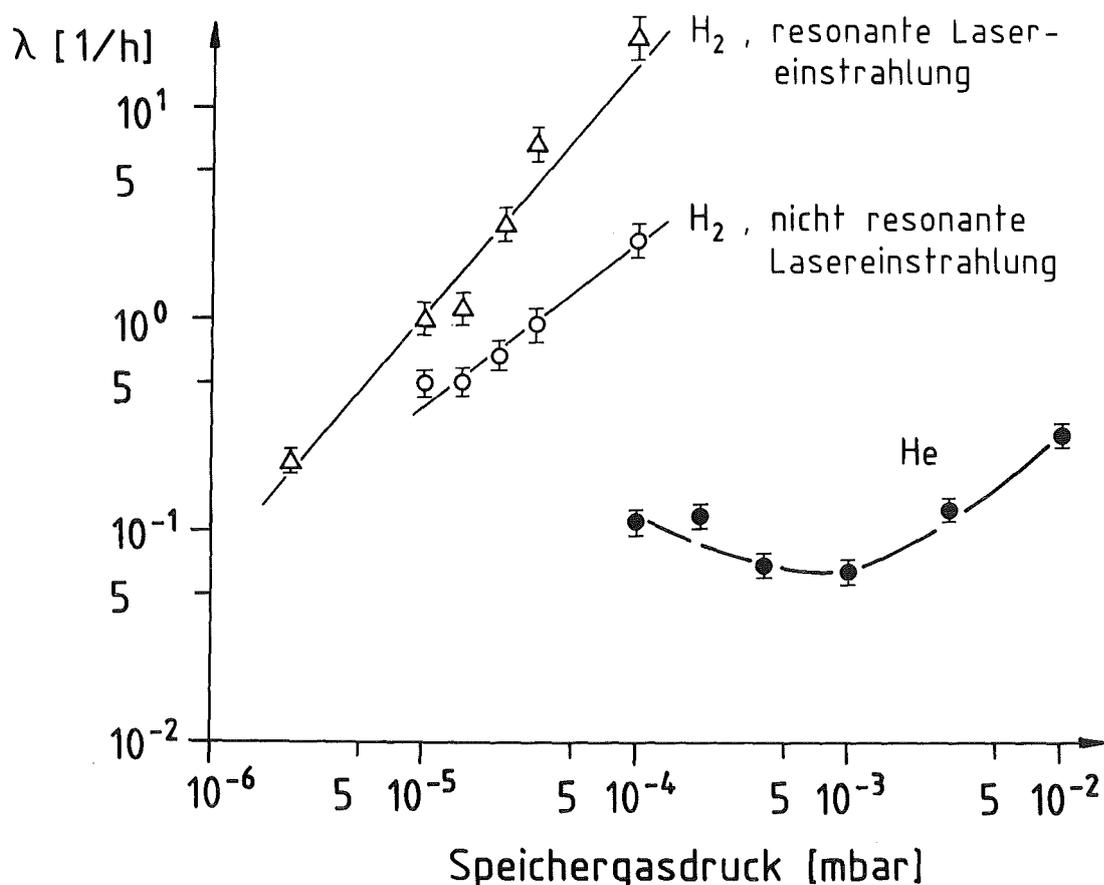


Abb. 4.2: Reaktionsrate λ als Funktion des Speichergasdrucks.

mit dem Thorium reagieren, im Restgas vorhanden sind und in Gegenwart von Wasserstoff im Vakuumsystem gebildet oder freigesetzt werden.

Eine weitere interessante Beobachtung ist, daß die Reaktionsrate größer wird, wenn man die Laserfrequenz auf den Th-II-Übergang $0 - 17122 \text{ cm}^{-1}$ abstimmt. Die Resultate für den Fall, daß die Frequenz des Laserlichts mit der Übergangsfrequenz übereinstimmt und für den Fall, daß die Frequenz des Lasers von der Übergangsfrequenz verstimmt ist, sind ebenfalls in Abb. 4.2 im Vergleich dargestellt, und zwar für das Speichergas Wasserstoff. Bei Helium wurde nur der Fall betrachtet, bei dem die Frequenz des Lasers mit der Übergangsfrequenz übereinstimmte. Die Thorium-Ionen liegen, wenn das Laserlicht resonant eingestrahlt wird, vorwiegend in den metastabilen Zuständen 1522 und 4113 cm^{-1} vor, während sie sich, wenn das Laserlicht nicht resonant ist, vorwiegend im Grundzustand befinden. Aus den vorliegenden Beobachtungen kann gefolgert

werden, daß die vermutete chemische Reaktion der Thorium-Ionen in den metastabilen Zuständen begünstigt ist.

4.2 Signal und Signal/Rausch-Verhältnis als Funktion des Drucks und der Art des Speichergases

Um beurteilen zu können, bei welchem Druck und bei welcher Art des Speichergases das optimale Signal bzw. Signal/Rausch-Verhältnis bei der jeweils erreichbaren Meßzeit erhalten werden kann, muß neben der Reaktionsrate auch die Quenchrage als Funktion des Drucks und der Gasart untersucht werden. Dies wurde bei den Speichergasen Wasserstoff und Helium durchgeführt. Die Resultate werden in Abb. 4.3 gezeigt. Die Bereiche, in denen der Druck variiert

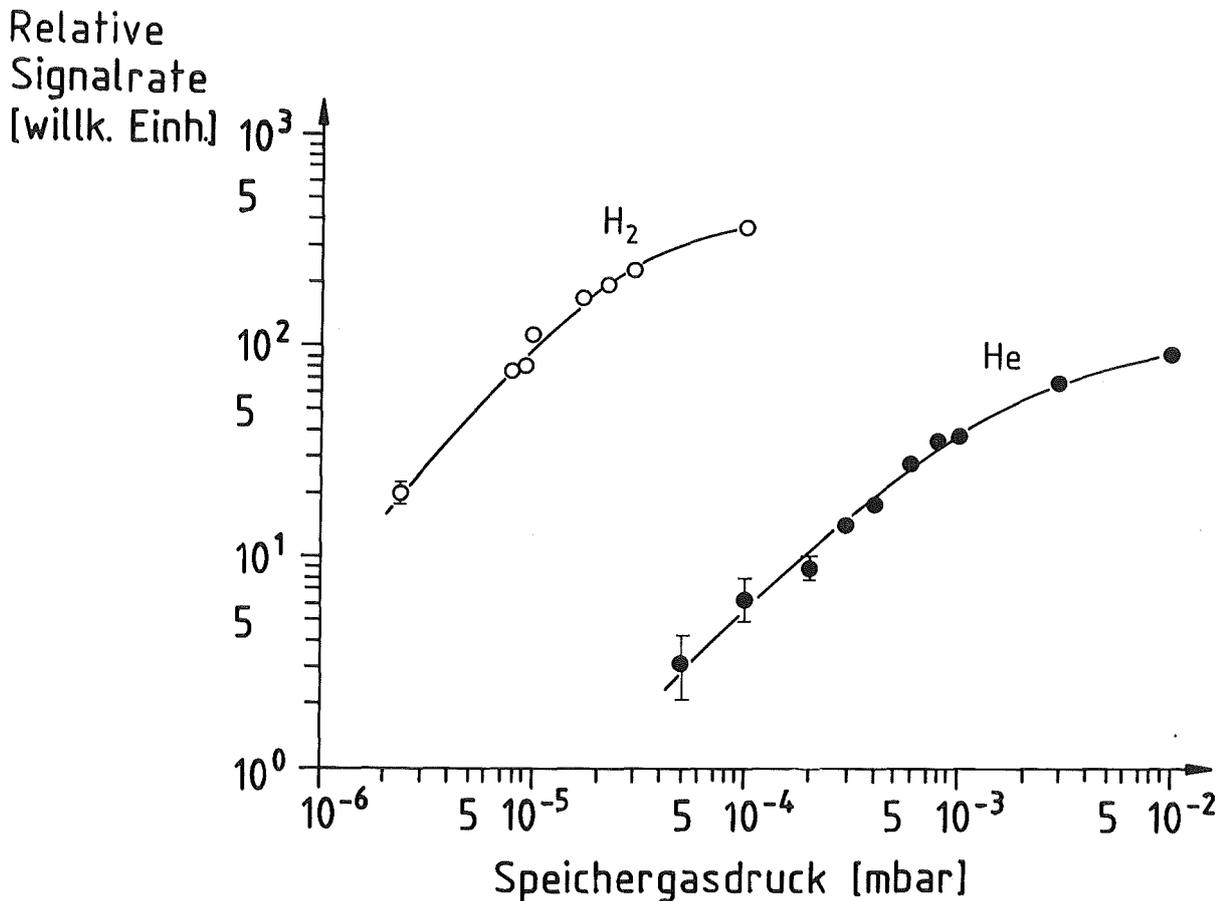


Abb. 4.3: Relative Signalrate bei der Einstufenanregung in Abhängigkeit vom Speichergasdruck; die Laserleistung wurde so eingestellt, daß bei weiterer Erhöhung der Leistung die Signalrate nahezu konstant blieb.

wurde, waren aus folgenden Gründen begrenzt: Als niedrigster Druck wurde derjenige genommen, bei dem das optische Signal gerade noch detektierbar war. Die obere Begrenzung beim Druck ergab sich bei Wasserstoff durch die kurze Beobachtungszeit aufgrund der großen Reaktionsrate. Bei Helium dagegen ergab sich die obere Begrenzung des Drucks durch das Einsetzen einer Helium-Gasentladung bei einem Druck von $3 \cdot 10^{-2}$ mbar.

Wie erwartet nimmt die Quenchrage und damit die Signalarage mit zunehmendem Druck zu, da die Stoßhäufigkeit zwischen Thorium-Ionen und Quenchgasmolekülen bzw. -atomen größer und so die Wartezeit in den metastabilen Zuständen abgekürzt wird. Bei gleichem Druck ist die Quenchrage bei Wasserstoff erheblich größer als bei Helium (vgl. dazu /RBP 83/). Die Quenchrage ist z.B. bei einem Druck von 10^{-4} mbar bei Wasserstoff 70 mal größer als bei Helium. Der Unterschied liegt begründet in der Struktur von Wasserstoff. Wasserstoff liegt als zweiatomiges Molekül vor, das Rotations- und Schwingungsfreiheitsgrade aufweist. So kann die beim Thorium-Ion beim Übergang von einem metastabilen Zustand in den Grundzustand freiwerdende Energie beim Wasserstoffmolekül in Translations-, Rotations- und in Schwingungsenergie umgesetzt werden. Beim Helium kann dagegen die Energie nur in Translationsenergie umgewandelt werden. Dies begünstigt die Quencheigenschaften von Wasserstoff im Vergleich zu Helium.

Ein Maß für das zu erwartende Signal stellt die relative Signalarage multipliziert mit der chemischen Reaktionszeitkonstante τ dar. Die Zeitkonstante τ ist dabei der reziproke Wert der Reaktionsrate λ . Für die Speichergase Wasserstoff und Helium wurde so das zu erwartende Signal als Funktion des Speichergasdrucks ermittelt. Zugrunde liegen dafür die Resultate für die Reaktionsrate (vgl. Abb. 4.2) und die Quenchrage (vgl. Abb. 4.3). Das Ergebnis wird in Abb. 4.4 gezeigt. Das größte Signal ergibt sich für Helium bei einem Druck von $1 \cdot 10^{-3}$ mbar und für Wasserstoff bei einem Druck von $1,7 \cdot 10^{-5}$ mbar. Das mit Helium als Speichergas beim optimalen Druck erreichbare Signal ist um den Faktor 4 größer als mit Wasserstoff beim optimalen Druck. Dies ist auf die wesentlich kleinere Reaktionsrate des Thoriums bei Verwendung von Helium im Vergleich zu Wasserstoff als Speichergas zurückzuführen.

Betrachtet man den Fall kleiner Nutzsignale (d.h. die Signalarage ist klein gegen die Untergrundzählrate), so ist ein Maß für das zu erwartende Signal/Rausch-Verhältnis die relative Signalarage multipliziert mit der Wurzel aus der Reaktionszeitkonstante τ (vgl. dazu Kap. 4.6). Für die Speichergase Wasserstoff und Helium wurde so ebenfalls das zu erwartende Signal/Rausch-Verhältnis als

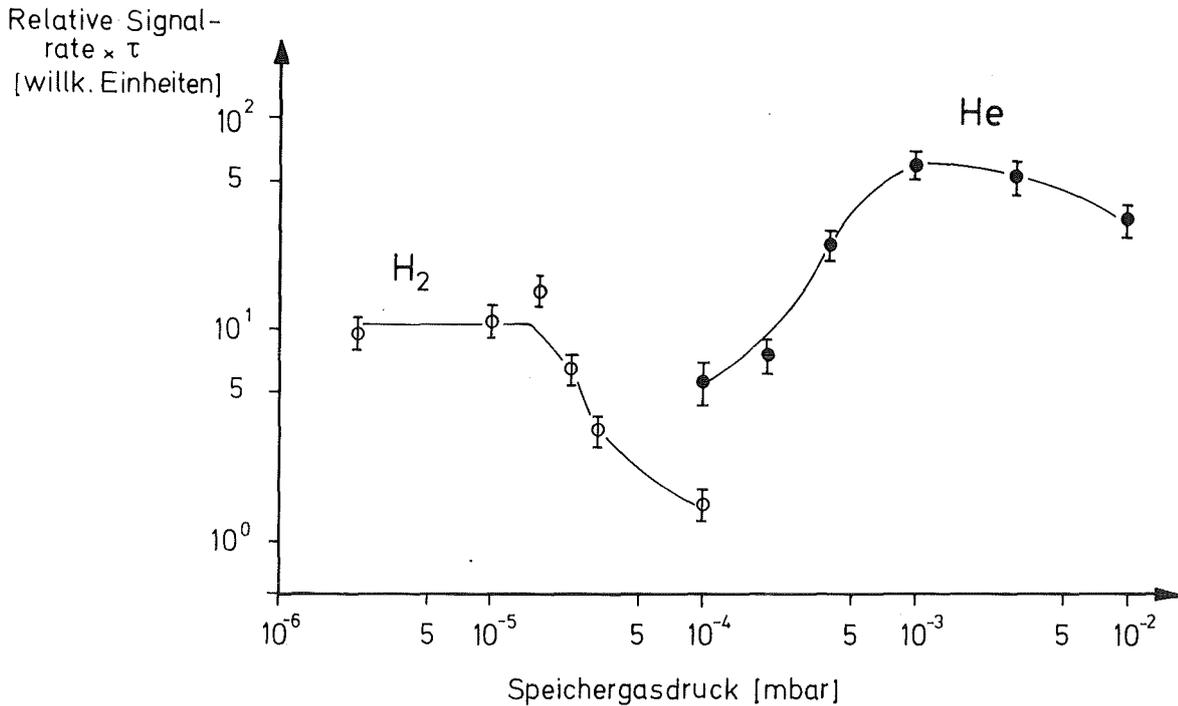


Abb. 4.4: Relative Signalrate multipliziert mit der Reaktionszeitkonstante τ als Funktion des Speichergasdrucks.

Funktion des Speichergasdrucks untersucht. Das Ergebnis wird in Abb. 4.5 gezeigt. Es ergab sich, daß das beste Signal/Rausch-Verhältnis mit Helium als Speichergas (bei einem Druck von $3 \cdot 10^{-3}$ mbar) und das beste Signal/Rausch-Verhältnis mit Wasserstoff (bei einem Druck von $2 \cdot 10^{-5}$ mbar) ungefähr die gleiche Größe haben. Mit Helium als Speichergas läßt sich beim optimalen Druck lediglich ein um etwa 20% besseres Signal/Rausch-Verhältnis erreichen als mit Wasserstoff. Es muß jedoch bei Helium eine um den Faktor 10 längere Meßzeit als bei Wasserstoff in Kauf genommen werden.

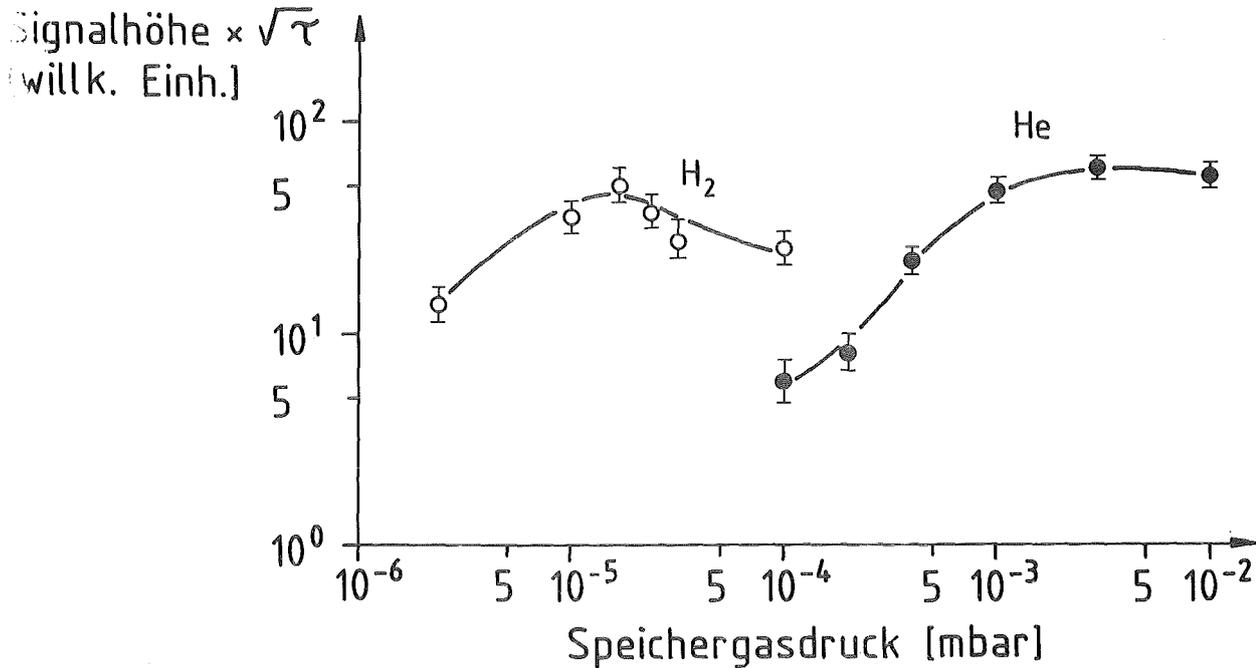


Abb. 4.5: Relative Signalrate multipliziert mit der Wurzel aus der Reaktionszeitkonstante τ als Funktion des Speichergasdrucks.

4.3 Detektierte Zahl von Fluoreszenzphotonen pro gespeichertem Ion

Um zu ermitteln, wieviele Ionen von einer bestimmten Thoriummenge erzeugt und gespeichert werden, muß eine Abschätzung des detektierten Fluoreszenzlichts pro gespeichertem Ion vorgenommen werden. Dazu ist eine Abschätzung des Fassungsvermögens der Hf-Ionenfalle für Thorium-Ionen notwendig. Die Abschätzung wird in Tabelle 4.1 vorgenommen.

Unter den gegebenen Bedingungen beträgt das Fassungsvermögen $5 \cdot 10^5$ Ionen. Damit wird bei der Einstufenanregung eine Signalrate von 4 kHz und bei der Zweistufenanregung eine Signalrate von 20 kHz bei einem Speichergasdruck von $3 \cdot 10^{-3}$ mbar Helium erreicht. Diese Signalraten dividiert durch das Fassungsvermögen der Hf-Ionenfalle ergeben Werte für die detektierte Anzahl von Fluoreszenzphotonen pro Zeiteinheit und pro gespeichertem Ion. Die Werte für die Ein- und die Zweistufenanregung sind in Tab. 4.2 zusammengefaßt.

Tab. 4.1: Abschätzung des Fassungsvermögens der Hf-Ionenfalle für Thorium-Ionen

| | |
|---|---------------------------------------|
| Amplitude der Hf-Spannung: | $V_0 = 400 \text{ V}$ |
| Hochfrequenz: | $\Omega = 2\pi \cdot 600 \text{ kHz}$ |
| Gleichspannung: | $U_0 = +10 \text{ V}$ |
| Effektive Potentialtiefe nach Gl. 2.7: | $D = 21,5 \text{ V}$ |
| Maximale Ionendichte nach Gl. 2.8: | $n = 7,1 \cdot 10^4 \text{ mm}^{-3}$ |
| Effektive Temperatur der Ionen aus der Dopplerbreite (vgl. mit Abb. 3.12): | $T = 4400 \text{ K}$ |
| Effektiver Radius der Ionenwolke nach /KP 79, SSW 81/ $r_{\text{eff}} = r_0 \sqrt{(kT/eD)}$: | $r_{\text{eff}} = 1,3 \text{ mm}$ |
| Effektives Volumen: | $V = 6,5 \text{ mm}^3$ |
| Speichervermögen: | $N = 5 \cdot 10^5$ |

In Tab. 4.2 befindet sich außerdem eine Abschätzung der Nachweiswahrscheinlichkeit für ein Photon. Sie ist bei der Zweistufenanregung größer als bei der Einstufenanregung, und zwar wegen der höheren Quanteneffizienz des Bialkaliphotomultipliers (EMI 9635 QB) gegenüber dem Gallium-Arsenid-Photomultiplier (Hamamatsu R943-02). Dividiert man das nachgewiesene Fluoreszenzlicht durch die Nachweiswahrscheinlichkeit für ein Photon, so erhält man eine Abschätzung für die von einem Thorium-Ion in den gesamten Raumbereich emittierte Zahl der Photonen pro Sekunde. Sie ist innerhalb der Genauigkeit dieser Abschätzung für beide spektroskopischen Methoden gleich. Dies hat folgenden Grund: Bei beiden spektroskopischen Methoden ist die Begrenzung der Signalaraten prinzipiell gegeben durch die Quenchzeiten der bei beiden Methoden besetzten selben metastabilen Zustände (vorwiegend 1522 und 4113 cm^{-1}). Die Gleichheit der bei beiden Methoden festgestellten Zahl der in dem gesamten Raumbereich emittierten Photonen pro Sekunde bedeutet insbesondere, daß bei der Zweistufenanregung nahezu alle Ionen vom angeregten mittleren Zustand 17122 cm^{-1} durch die zweite Anregung in den oberen Zustand 34544 cm^{-1} gelangen.

Tab. 4.2: Detektierte Anzahl von Fluoreszenzphotonen pro Zeiteinheit und pro gespeichertem Ion sowie Nachweiswahrscheinlichkeit für ein Photon für die Ein- und die Zweistufenanregung

| | Einstufen- anregung | Zweistufen- anregung |
|--|------------------------|-------------------------|
| Detektierte Anzahl von Fluoreszenzphotonen pro Zeiteinheit und pro Ion bei den Bedingungen nach Tab. 4.1 und $3 \cdot 10^{-3}$ mbar Helium Speichergasdruck; die Laserleistungen wurden jeweils so hoch gewählt, daß bei weiterer Erhöhung der Leistung keine nennenswerte Erhöhung des Signals eintrat. | $8 \cdot 10^{-3}$ Hz | $4 \cdot 10^{-2}$ Hz |
| Faktoren, die die Nachweiswahrscheinlichkeit für ein Photon bestimmen: | | |
| Nachweis-Raumwinkel: | 12,5% | 12,5% |
| Transparenz der Elektrode: | 50% | 50% |
| Transmission bei acht Grenzflächen Glas/Luft: | 70% | 70% |
| Transmission des optischen Filters: | 13% | 26% |
| Quanteneffizienz des Photomultipliers: | 10% | 26,5% |
| Population des Grundzustandes der Thorium-Ionen bei $T = 4400$ K: | 50% | 50% |
| Nachweiswahrscheinlichkeit für ein Photon: | $0,28 \cdot 10^{-3}$ | $1,5 \cdot 10^{-3}$ |
| In den gesamten Raumbereich emittiertes Licht pro Ion: | 28 Hz | 27 Hz |

4.4 Wirkungsgrad von Ionisierung und Einfang von Thorium

Aus den im vorangegangenen Abschnitt durchgeführten Überlegungen entnimmt man, daß die Signalrate unter festgelegten Bedingungen ein Maß für die Anzahl der gespeicherten Ionen ist. Arbeitet man unter den in den Tabellen 4.1 und 4.2 gegebenen Bedingungen, so lassen sich die in Tabelle 4.2 angegebenen Werte für die detektierte Anzahl von Fluoreszenzphotonen pro Zeiteinheit und Ion als Kalibrierungsfaktoren zur Bestimmung der Anzahl der gespeicherten Ionen verwenden. Mittels dieses Verfahrens war es möglich, Aussagen über den Wirkungsgrad von Ionisierung von Thorium-Atomen und Speicherung von Thorium-Ionen zu treffen. Es wurde dabei das Verhältnis Anzahl der gespeicherten Thorium-Ionen zur Anzahl der in der Ausgangsmenge vorhandenen Thorium-Atome ermittelt.

Tab. 4.3: Wirkungsgrad von Ionisierung und Einfang von Thorium für verschiedene Trägerdrahtmaterialien

| Drahtmaterial | Drahtdurchmesser | Wirkungsgrad | Minimal für die Versuche verwendeten Thorium-Mengen | Entsprechende Anzahl von Thorium-Atomen |
|---------------|------------------|---------------------|---|---|
| Tantal | 0,3 mm | $2,5 \cdot 10^{-8}$ | 10 pg | $3 \cdot 10^{10}$ |
| Niob | 0,25 mm | $1 \cdot 10^{-8}$ | 100 pg | $3 \cdot 10^{11}$ |
| Rhenium | 0,25 mm | $1 \cdot 10^{-9}$ | 10 ng | $3 \cdot 10^{13}$ |
| Wolfram | 0,25 mm | $1 \cdot 10^{-11}$ | 1 μ g | $3 \cdot 10^{15}$ |
| Molybdän | 0,25 mm | $1 \cdot 10^{-11}$ | 1 μ g | $3 \cdot 10^{15}$ |

Bei der Präparation der Trägerdrähte wurde das Standardverfahren angewandt (vgl. dazu Kap. 3.3): Thoriumnitrat in Lösung wurde auf Trägerdrähte aus verschiedenen Materialien aufgetragen und dort durch Erwärmen eingetrocknet. Die Ergebnisse der Untersuchungen sind in Tabelle 4.3 zusammengestellt. Als bestes Material erwies sich Tantaldraht mit einem Wirkungsgrad von $2,5 \cdot 10^{-8}$; d.h. von $4 \cdot 10^7$ Thorium-Atomen auf dem Trägerdraht wird gerade ein Thorium-Ion erzeugt und in der Hf-Ionenfalle gespeichert. Um die Falle zu füllen, sind $2 \cdot 10^{13}$ Atome notwendig. Das entspricht einer Menge von 7 ng Thorium.

4.5 Untergrund-Signale

Eine wichtige Größe zur Ermittlung des Signal/Rausch-Verhältnisses stellt die Untergrundzählrate dar, die verschiedene Ursachen und Anteile hat:

- Dunkelstrom des Photomultipliers; dieser Anteil kann durch Kühlung der Photokathode weitgehend reduziert werden.
- Frequenzverschobenes Laserstreulicht; es handelt sich dabei um ein gegen die ursprüngliche Wellenlänge des Lasers zu größeren Wellenlängen verschobenes, breitbandiges Licht. Das Zustandekommen dieses Streulichts ist nicht näher untersucht worden. Es ist nur bei der Einstufenanregung von Bedeutung, da hier der optische Nachweis ($\lambda = 640,9$ nm) zu längeren Wellenlängen gegenüber der Anregung ($\lambda = 583,9$ nm) verschoben ist. Dabei wird nur derjenige Anteil des Streulichts, der durch das optische Filter durchgelassen wird, vom Photomultiplier registriert. Dieser Anteil ist proportional zur Leistung des Laserlichts. Bei der Zweistufenanregung tritt dieses Laserstreulicht nicht in Erscheinung, da hier der optische Nachweis ($\lambda = 367,4$, $358,9$ und $332,6$ nm) zu

kürzeren Wellenlängen gegenüber der Anregung ($\lambda = 583,9$ und $573,8$ nm) verschoben ist.

- Anteil, der durch das Hf-Feld der Ionenfalle verursacht wird; das Zustandekommen dieses Anteils wurde ebenfalls nicht näher geklärt. Der Anteil nimmt mit zunehmender Hf-Amplitude überproportional zu. Er ist nicht vom Druck des Speichergases abhängig und auch nicht davon, ob Ionen gespeichert sind oder nicht. Es wird vermutet, daß kleinere Spannungsüberschläge für diesen Anteil die Ursache sind. Dieser Anteil spielt nur bei der Zweistufenanregung eine Rolle, da hier ein optisches Filter mit ziemlich großer Bandweite (UG 11, Bandweite $\Delta\lambda = 100$ nm) verwendet wird. Bei der Einstufenanregung ist dieser Anteil nicht erheblich zu sehen, da hier ein schmalbandiges optisches Filter benutzt wird (Interferenzfilter, Halbwertsbreite $\Delta\lambda = 10$ nm).

- Anteil, verursacht durch die α -Aktivität einer Thorium-Probe; dieser Anteil ist nur bei dem Isotop ^{227}Th erheblich in Erscheinung getreten, da hier im Vergleich zu anderen Thorium-Isotopen die bei weitem größte α -Aktivität (etwa $10 \mu\text{Ci}$ pro Probe) eingesetzt wurde (vgl. Kap. 5). Es wurde bei der Zweistufenanregung eine Zählrate pro eingesetzte Aktivität zwischen 15 und $20 \text{ Hz}/\mu\text{Ci}$ beobachtet. Bei der Einstufenanregung war dieser Anteil aufgrund der viel schmaleren Bandbreite des optischen Filters nicht erheblich zu sehen.

β -Aktivität verursacht dagegen erheblich weniger Untergrund-Licht: Bei dem Isotop ^{234}Th , einem β -Strahler, wurde mit zu ^{227}Th -Proben vergleichbaren Aktivitäten bei der Zweistufenanregung kein wesentlicher zusätzlicher Untergrund festgestellt.

Die Erzeugung von sichtbarem bzw. ultraviolettem Licht durch α -Strahlung ist nicht näher untersucht worden. Es wird jedoch vermutet, daß dieses Licht beim Auftreffen von α -Teilchen auf eine Wand entsteht. Dabei werden vermutlich Valenzelektronen von Atomen angeregt; wenn diese wieder in den Grundzustand zurückgehen, werden Fluoreszenzphotonen emittiert.

In Tabelle 4.4 sind alle Anteile des Untergrunds bei der Ein- und der Zweistufenanregung für eine schwach radioaktive Thorium-Probe zusammengestellt. Bei der Zweistufenanregung ist der Untergrund um den Faktor 3 geringer als bei der Einstufenanregung, was im wesentlichen auf das bei der Zweistufenanregung fehlende Laserstreulicht zurückzuführen ist.

Tab. 4.4: Untergrundzählraten bei der Ein- und Zweistufenanregung für schwach radioaktive Thorium-Proben im Vergleich

| | Einstufen- anregung | Zweistufen- anregung |
|--|------------------------|-------------------------|
| Photokathode des Multipliers: | GaAs | Bialkali |
| gekühlt auf eine Temperatur von: | -24 °C | 0 °C |
| Dunkelzählrate des Photomultipliers: | 10 Hz | 15 Hz |
| Anteil, verursacht durch das Hf-Feld bei $V_0 = 400$ V und $\Omega = 2\pi \cdot 600$ kHz: | < 5 Hz | 25 Hz |
| Laserstreulicht/Laserleistung: | 80 Hz/mW | < 0,1 Hz/mW |
| Laserstreulicht bei 1,5 mW | | |
| Laserleistung (Einstufenanregung): | 120 Hz | - |
| Summe aller Anteile: | 130 Hz | 40 Hz |

4.6 Kleinste nachgewiesene Thoriummenge

In den Abschnitten 4.1 bis 4.5 wurden Erkenntnisse über die Reaktions- und die Quenchraten als Funktion des Drucks und der Art des Speichergases, die Fluoreszenzlichtausbeute pro gespeichertem Ion, den Wirkungsgrad der Ionen-erzeugung und die Untergrundzählrate gewonnen. Aus diesen Erkenntnissen lassen sich Aussagen über die Empfindlichkeit der Meßanordnung treffen. Im folgenden soll der Frage nachgegangen werden, welche kleinste Thoriummenge eingesetzt werden muß, um ein Signal/Rausch-Verhältnis von 5 : 1 zu erreichen.

Wie oben beschrieben wurde, nimmt die beobachtete Photonenzählrate exponentiell mit einer Zeitkonstante τ ab. Wenn n_0 die Zählrate zu Beginn der Messung ist, so beträgt die Zählrate zur Zeit t :

$$n(t) = n_0 e^{-t/\tau} \quad (4.1)$$

Durch Aufintegrieren der Zählrate kann zur Zeit t folgendes Zählergebnis als Signal erreicht werden:

$$S = n_0 \cdot \tau (1 - e^{-t/\tau}) \quad (4.2)$$

Für die weitere Betrachtung wird angenommen, daß die Zählrate des Nutzsignals n_0 klein ist gegen die Zählrate des Untergrunds n_U . Das Rauschen ist dann durch die Schwankungen des Untergrunds gegeben. Es wurde festgestellt,

daß die Minimal-Statistik $\Delta N = \sqrt{N}$ für den hier beobachteten Untergrund in guter Näherung gültig ist. Für das Rauschen ΔN setzen wir deshalb:

$$\Delta N = \sqrt{n_u \cdot t} \quad (4.3)$$

Das Signal/Rausch-Verhältnis hat als Funktion der Zeit ein Maximum bei $t = 1,26 \tau$. Es beträgt:

$$\left(\frac{S}{\Delta N} \right)_{\text{Max}} = 0,638 \frac{n_0 \sqrt{\tau}}{\sqrt{n_u}} \quad (4.4)$$

Es ist daher sinnlos, länger als $t = 1,26 \tau$ zu messen. Wird das Zählergebnis auf k Frequenz-Meßpunkte aufgeteilt, so ist das Signal/Rausch-Verhältnis von Gl. 4.4 noch durch \sqrt{k} zu dividieren. Mit Gl. 4.4 läßt sich die Zählrate n_0 berechnen, bei der ein Signal/Rausch-Verhältnis von 5 : 1 erreicht werden kann. Es wird davon ausgegangen, daß unter optimalen Bedingungen gearbeitet wird, also mit Helium als Speichergas bei einem Druck von $3 \cdot 10^{-3}$ mbar. Die Abkling-Zeitkonstante beträgt hier $\tau = 3 \cdot 10^4$ sec. Außerdem wird $k = 10$ als kleinste sinnvolle Anzahl an Frequenz-Meßpunkten für ein Spektrum angenommen. Das Ergebnis ist für die Ein- und die Zweistufenanregung in Tabelle 4.5 festgehalten. Ferner wird dort die für die Zählrate n_0 notwendige Anzahl von gespeicherten Ionen sowie die dafür notwendige Ausgangsmenge von Thorium angegeben. Die Berechnungen gelten für ein gerades Thorium-Isotop, das keine Hyperfeinaufspaltung aufweist.

Tab. 4.5: Empfindlichkeit der Meßanordnung

| | Einstufen- anregung | Zweistufen- anregung |
|---|------------------------|-------------------------|
| Zählrate n_0 für $S/\Delta N = 5:1$ bei $k = 10$ Meßpunkten: | 1,43 Hz | 0,90 Hz |
| Notwendige Anzahl von gespeicherten Ionen: | 180 | 23 |
| Notwendige Ausgangsmenge von Thorium | 2,4 pg | 0,3 pg |

Die Berechnungen gelten für folgende Bedingungen: Falle mit $r_0 = 1$ cm, Hf-Amplitude $V_0 = 400$ V, Hochfrequenz $\Omega = 2\pi \cdot 600$ kHz, Gleichspannung $U_0 = +10$ V, Speichergas: Helium, Druck $3 \cdot 10^{-3}$ mbar, Laserleistungen: Laser 1 (583,9 nm) 1,5 mW, Laser 2 (573,8 nm) 4 mW.

Die Ergebnisse besagen, daß die Zweistufenanregung um einen Faktor 8 empfindlicher ist als die Einstufenanregung. Bei der Zweistufenanregung sollten bereits 0,3 pg Thorium (gerades Isotop) ausreichen, um ein Signal/Rausch-Verhältnis von 5 : 1 zu erreichen.

Um zu überprüfen, ob die theoretisch errechnete Empfindlichkeit zu erreichen ist, wurde eine Testmessung mit einer Menge von 10 pg ^{230}Th mit der Zweistufenanregung durchgeführt. Die Versuchsbedingungen sind in Tabelle 4.6 festgehalten. Ein mit dieser Menge erhaltenes Spektrum wird in Abb. 4.6 gezeigt.

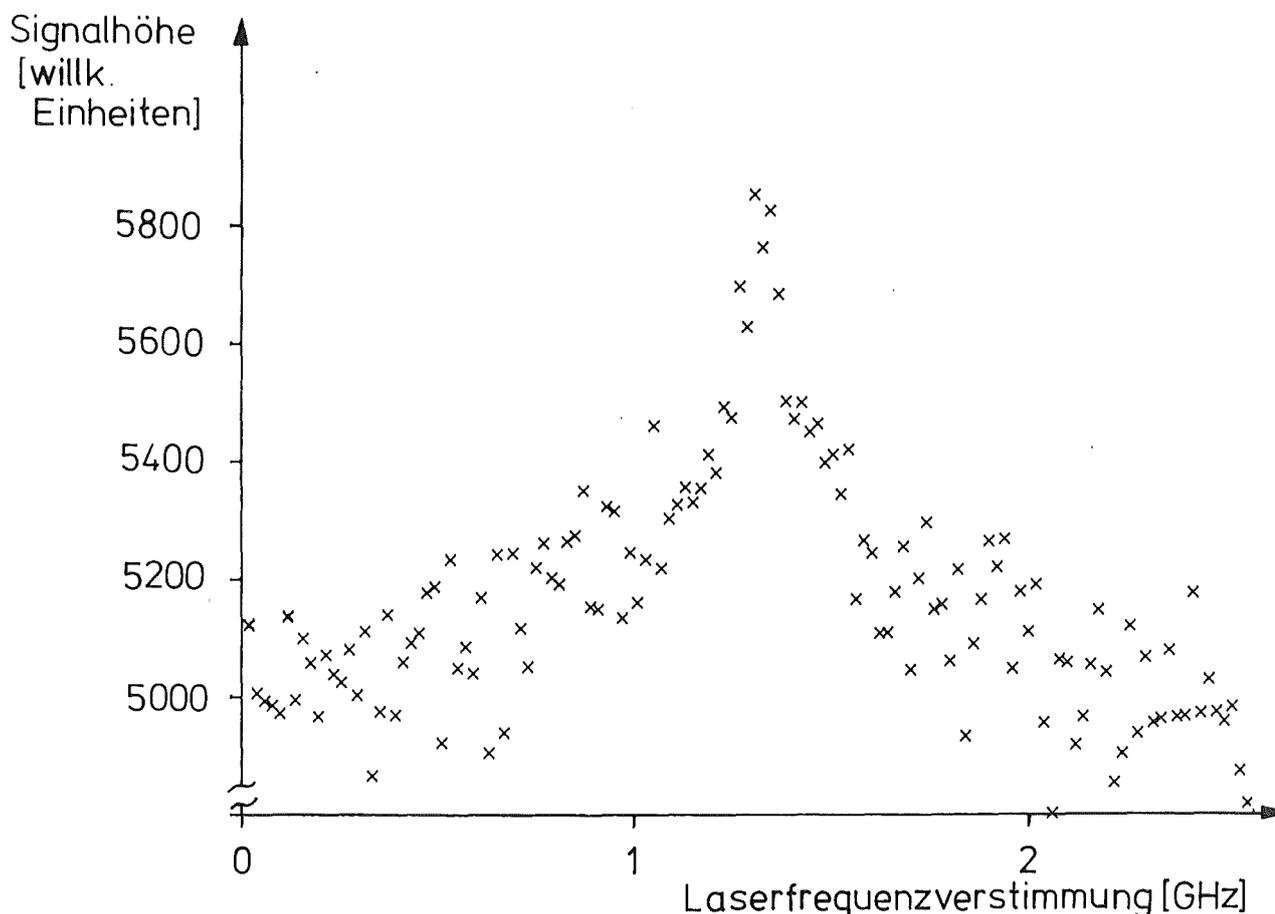


Abb. 4.6: Spektrum einer 10 pg- ^{230}Th -Probe mit der Zweistufenanregung

Tab. 4.6: Versuchsbedingungen zur Messung einer 10 pg ^{230}Th - Probe mit der Zweistufenanregung

| | |
|--------------------------------|---|
| Falle mit: | $r_0 = 1 \text{ cm}$ |
| Hochfrequenz: | $\Omega = 2\pi \cdot 600 \text{ kHz}$ |
| Hf-Amplitude: | $V_0 = 600 \text{ V}$ |
| Gleichspannung: | $U_0 = +10 \text{ V}$ |
| Speichergas Helium, Druck: | $3 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}$ |
| Laserleistungen: | 3 mW Laser1 (583,9 nm) 14 mW Laser2 (573,8 nm) |
| Anzahl der Meßpunkte: | 129 |
| Integrationszeit pro Meßpunkt: | 55 sec |
| Zählrate n_0 : | 15 Hz |
| Untergrundzählrate: | 100 Hz |
| Signal/Rausch-Verhältnis: | 10 : 1 |

Das Ergebnis lautet: Mit einer Menge von 10 pg Thorium (gerades Isotop) läßt sich bei der Zweistufenanregung ein Signal/Rausch-Verhältnis von 10 : 1 nach 55 sec Integrationszeit pro Punkt erreichen. Extrapoliert man das erhaltene Signal/Rausch-Verhältnis auf das maximal erreichbare Signal/Rausch-Verhältnis (bei den Standardparametern $k = 10$ Meßpunkte, Gesamtintegrationszeit $t = 1,26 \tau$, Untergrundzählrate 40 Hz) so ergibt sich ein Wert von $(S/\Delta N)_{\text{max}} = 90 : 1$. Dieser Wert ist gegenüber dem bei der eingesetzten Menge erwarteten um etwa den Faktor 2 zu niedrig. Der Grund dafür ist, daß die Anzahl der gespeicherten Ionen und damit die optische Signalrate um diesen Faktor 2 kleiner ist als erwartet. Dies bedeutet, daß die Ausbeute an gespeicherten Ionen vermutlich stärker als linear mit der eingesetzten Thorium-Menge zu- bzw. abnimmt. Die kleinste Thorium-Menge, mit der noch ein ausreichendes Signal/Rausch-Verhältnis (5 : 1) erreicht werden könnte, liegt demnach wahrscheinlich zwischen 0,5 und 1 pg.

Die hier erreichte Empfindlichkeit ist jedoch ausreichend, um alle vorgesehenen Messungen zur Bestimmung der Isotopieverschiebungen und der Hyperfeinaufspaltungen von Thorium-Isotopen durchführen zu können.

5. In der Hf-Ionenfalle untersuchte Thorium-Isotope

Da die Vorbereitungszeit auf ein Experiment mit der Hf-Ionenfalle ungefähr 6 Stunden beträgt und die Dauer einer Messung zwischen 5 und 10 Stunden liegt, können für Messungen nur Isotope in Betracht kommen, deren Halbwertszeiten größer als die Vorbereitungs- und die Meßdauer sind. In Tabelle 5.1 befindet sich eine Auflistung derjenigen Thorium-Isotope, die dieses Kriterium erfüllen.

Die Isotope konnten größtenteils käuflich erworben werden (^{228}Th , ^{229}Th , ^{230}Th und ^{232}Th). Das natürlich vorkommende ^{232}Th mit einer Halbwertszeit von 14 Mrd. Jahren ist aufgrund seiner niedrigen spezifischen Aktivität ausgezeichnet als Testisotop geeignet. Es steht in großen Mengen als weißes Thoriumnitrat zur Verfügung, das aus dem natürlich vorkommenden Mineral Monazit gewonnen wird. Als Ausgangslösung für Tests und Vorversuche mit der Ionenfalle wurde eine salpetersaure Lösung mit einer Konzentration von $1 \mu\text{g Th}/\mu\text{l}$ hergestellt. Mit einer μl -Pipette (Fa. Eppendorf, Modell 4700) konnten damit definierte Probenmengen im μg -Bereich auf Trägerdrähte gebracht

Tab. 5.1: Übersicht über Thorium-Isotope, die in der Hf-Ionenfalle untersucht werden können.

| A | $T_{1/2}$ | Hauptzerfall | Spez. Akt. [Bq/gr] | Freimenge | Gewinnung |
|-----|------------------------|--------------|---------------------|--------------------|--|
| 234 | 24,1 d | β^- | $8,5 \cdot 10^{14}$ | 0,47 ng | Tochter von ^{238}U ; radiochemische Trennung |
| 232 | $1,41 \cdot 10^{10}$ y | α | $4,0 \cdot 10^3$ | 10 gr | *) primordial |
| 231 | 25,5 h | β^- | $2,0 \cdot 10^{16}$ | 20 pg | Tochter von ^{235}U ; radiochemische Trennung |
| 230 | $7,7 \cdot 10^4$ y | α | $7,5 \cdot 10^8$ | 5 μg | *)Zerfallsreihe ^{238}U |
| 229 | 7340 y | α | $7,9 \cdot 10^9$ | 0,47 μg | *)Zerfallsreihe ^{233}U (im Reaktor produziert) |
| 228 | 1,91 y | α | $3,0 \cdot 10^{13}$ | 0,12 ng | *)Zerfallsreihe ^{232}U (im Reaktor produziert) |
| 227 | 18,7 d | α | $1,1 \cdot 10^{15}$ | 3,6 pg | Tochter von ^{227}Ac ; radiochem. Trennung |

*)Diese Isotope konnten käuflich erworben werden.

werden. Für Empfindlichkeits-Bestimmungen wurden aus der Ausgangslösung durch Verdünnen Lösungen mit geringerer Th-Konzentration hergestellt. Die niedrigste verwendete Konzentration betrug hierbei 10 pg Th/ μ l.

^{228}Th , ^{229}Th und ^{230}Th wurden in salpetersaurer Lösung in Konzentrationen zwischen 0,1 und 10 ng Th/ μ l erworben (Fa. Amersham Buchler, Braunschweig); sie konnten ohne vorhergehende radiochemische Präparationstechniken eingesetzt werden.

Das Isotop ^{227}Th ist das Folgeprodukt des radioaktiven Zerfalls von ^{227}Ac . Aus einer ^{227}Ac -Probe konnte ^{227}Th durch radiochemische Trennung gewonnen werden. Es wurde dazu ein radiochemisches Standard-Trennverfahren angewandt [Na 86]. In der Ausgangslösung befand sich ^{227}Ac , das sich im radioaktiven Gleichgewicht mit den Folgeprodukten befand. Die Probe wurde in 7,5-molare salpetersaure Lösung gebracht. Zur Trennung wurde sie in eine Kolonne mit dem Ionenaustauscher Dowex 1-X 4 gegeben. Im Durchlauf befinden sich vorwiegend alle 1- bis 3-wertigen Ionen wie Ac^{3+} und Ra^{2+} , während alle 4-wertigen (und höherwertigen) Ionen wie Th^{4+} vom Ionenaustauscher zurückgehalten werden. Das zurückgehaltene ^{227}Th wurde mit einer 0,01-molaren salpetersauren Lösung eluiert und anschließend durch Erwärmen mit einer Infrarotlampe auf ein kleines Volumen eingedampft. Es wurde eine Konzentration von 30 pg $^{227}\text{Th}/\mu$ l bei einer Gesamtmenge von 6 ng ^{227}Th erreicht. Für eine Messung wurden Mengen zwischen 0,3 und 0,5 ng ^{227}Th eingesetzt.

Durch Bestimmung der Aktivität der hergestellten Probe mit einem γ -Spektrometer unmittelbar nach dem Trennprozeß konnte festgestellt werden, daß ^{223}Ra , die Tochter von ^{227}Th , vollständig abgetrennt wurde. Eine direkte Bestimmung der ^{227}Ac -Aktivität der Probe mit einem γ -Spektrometer ist dagegen nicht möglich. Eine indirekte Bestimmung dieser Aktivität ergab sich jedoch aus dem Vergleich der Aktivitäten von ^{227}Th unmittelbar nach der Trennung und 280 Tage (= 15 Halbwertszeiten des ^{227}Th) danach. Nach 280 Tagen hätte die Aktivität von ^{227}Th auf $3 \cdot 10^{-5}$ ihres ursprünglichen Werts abnehmen müssen, wenn ^{227}Ac vollständig abgetrennt worden wäre. Sie nahm aber lediglich auf $1/4$ ihres ursprünglichen Werts ab. Folglich muß nach der Trennung in der Probe noch ^{227}Ac vorgelegen haben; dieses ^{227}Ac ist die Quelle für das nach 280 Tagen noch beobachtete ^{227}Th . Da sich nach 280 Tagen das radioaktive Gleichgewicht zwischen ^{227}Ac und ^{227}Th wieder eingestellt hat, kann davon ausgegangen werden, daß die ^{227}Ac -Aktivität gleich der nach 280

Tagen gemessenen ^{227}Th -Aktivität ist. Zum Zeitpunkt unmittelbar nach der Trennung betrug daher das Aktivitätsverhältnis:

$$A(^{227}\text{Ac})/A(^{227}\text{Th}) \approx 1:4$$

Dies bedeutet ein Mengenverhältnis von:

$$M(^{227}\text{Ac})/M(^{227}\text{Th}) \approx 100:1$$

Wegen des hohen Überschusses an ^{227}Ac in der Probe wurde befürchtet, daß sich die Hf-Ionenfalle vorwiegend mit ^{227}Ac -Ionen füllt und das ^{227}Th verdrängt. Es konnte dennoch mit dieser Probe ein optisches Signal von ^{227}Th beobachtet werden.

Es war ferner geplant, ^{234}Th und ^{231}Th durch radiochemische Trennung von den Mutterisotopen ^{238}U bzw. ^{235}U zu gewinnen. Es bestand hierbei das Problem, daß die Mutterisotope jeweils stark im Überschuß vorhanden sind. Im radioaktiven Gleichgewicht betragen die Mengenverhältnisse:

$$M(^{238}\text{U})/M(^{234}\text{Th}) = 7 \cdot 10^{10} \text{ und}$$

$$M(^{235}\text{U})/M(^{231}\text{Th}) = 2 \cdot 10^{11}.$$

Dies bedeutet, daß nur ein extrem selektives Trennverfahren zur Herstellung der Thorium-Proben in Frage kommt. Es wurden zwei unterschiedliche Verfahren zur $^{238}\text{U}/^{234}\text{Th}$ -Trennung ausprobiert.

Zum einen wurde ein Extraktionsverfahren angewandt, das in /Co 79/ ausführlich beschrieben ist. Hierbei wurde 100 gr ^{238}U , das als Uranylнитrat vorlag, in 2 Liter 3-molarer Salpetersäure gelöst. Durch Zugabe von Ammoniumcarbonat wurde die Lösung auf einen pH-Wert von 8,0 bis 8,5 eingestellt. Es wird dann der Komplexbildner Cupferron zugegeben, der Uran an die wäßrige Phase bindet. Als organische Phase diente Chloroform. Nach Ausschütteln sammelt sich Thorium in der organischen Phase an, während Uran in der wäßrigen Phase verbleibt. Nach Trennung der beiden Phasen wird das Thorium von der organischen Phase wieder in eine wäßrige Phase (3-molare Salpetersäure) überführt und auf ein kleines Volumen (200 μl) eingetrocknet.

Beim zweiten ausprobierten Verfahren /Fa 87/ wurde eine Trennung mittels Ionenaustauscher angewandt. Dazu wurde die Ausgangssubstanz Uranylнитrat (100 gr ^{238}U) in 2 Liter 10-molarer Salzsäure gelöst. Diese Lösung wurde in eine Kolonne mit dem Ionenaustauscher Dowex-1 X-10 gegeben. Dort wird UO_2^{2+} adsorbiert, während das Thorium sich im Durchlauf befindet. Das abgetrennte ^{234}Th wird anschließend eingedampft und in salpetersaurer Lösung aufgenommen.

Mit beiden Verfahren konnten aus 100 g ^{238}U jeweils zwischen 200 und 300 pg ^{234}Th gewonnen werden. Bei Messungen wurden Probenmengen zwischen 30 und 300 pg eingesetzt. Die Proben waren jedoch nicht brauchbar, denn es konnte kein optisches Signal von ^{234}Th nachgewiesen werden. Es liegt die Vermutung nahe, daß Rückstände von den verwendeten Reagenzien dafür verantwortlich sind. Die Rückstände waren nach dem Aufbringen der Proben auf einen Trägerdraht und nach dem Eintrocknen deutlich als Belag sichtbar (im mg-Bereich!). Aus der Beobachtung, daß von den eingesetzten 100 gr ^{238}U nach der Trennung höchstens eine Menge von 1 mg übrig bleibt (Größe des Rückstandes auf den Trägerdrähten), kann entnommen werden, daß die Abreicherung von ^{238}U mindestens 5 Größenordnungen beträgt.

Nach dem Scheitern der ^{234}Th -Proben wurde auf eine Herstellung von einer ^{231}Th -Probe verzichtet.

6. Ergebnisse

Die Messungen der Isotopieverschiebungen und der Hyperfeinaufspaltungen an Spektren von gespeicherten Thorium-Ionen in einer Hochfrequenz-Ionenfalle hatten folgende Ergebnisse: Mit der Einstufenanregung wurden die Isotopieverschiebungen am Th-II-Übergang $0-17122 \text{ cm}^{-1}$ zwischen dem Referenzisotop ^{232}Th und den Isotopen ^{227}Th bis ^{230}Th bestimmt. Mit der Zweistufenanregung (erster Schritt $0-17122 \text{ cm}^{-1}$, zweiter Schritt $17122-34544 \text{ cm}^{-1}$) wurden die Hyperfeinaufspaltung bei dem Isotop ^{229}Th , sowie die Isotopieverschiebungen $^{229}\text{Th}-^{232}\text{Th}$ und $^{230}\text{Th}-^{232}\text{Th}$ bestimmt. In der Literatur waren bisher unbekannt die Isotopieverschiebungen $^{227}\text{Th}-^{232}\text{Th}$ und $^{228}\text{Th}-^{232}\text{Th}$.

Eine Auswahl der aufgenommenen Spektren ist in den Abbildungen 6.1 bis 6.5 dargestellt.

Die bei den Messungen verwendeten Thoriummengen lagen zwischen 10 und 0,1 ng pro Isotop. Zur Bestimmung von Isotopieverschiebungen wurden stets Isotopenmischungen verwendet, wobei als Referenzisotop ^{232}Th diente. Damit war gewährleistet, daß die Differenz der Übergangsfrequenzen bei für beide Isotope gleichen Bedingungen ermittelt wurden. Bei der Einstufenanregung wurde mit einer Laserleistung zwischen 0,5 und 2 mW gearbeitet; bei der Zweistufenanregung betrug sie 1-5 mW (erste Stufe) und 2-14 mW (zweite Stufe). Als Speichergas wurde entweder Helium bei einem Druck von $3 \cdot 10^{-3}$ mbar oder Wasserstoff bei einem Druck von $2 \cdot 10^{-5}$ mbar verwendet. Als typischer Wert für die Signalhöhe pro eingesetzte Thoriummenge ergab sich bei der Einstufenanregung 0,6 kHz/ng und bei der Zweistufenanregung 3 kHz/ng. (Diese Werte gelten für ein Isotop ohne Hyperfeinaufspaltung und für das Speichergas Helium ($3 \cdot 10^{-3}$ mbar)).

Die Lage einer Übergangsfrequenz eines Isotops ohne Hyperfeinaufspaltung wurde bei der Einstufenanregung durch Anpassung einer Gaußkurve an das Spektrum ermittelt. Bei der Zweistufenanregung wurde ein Profil mit der Form nach Gl. 3.9 und 3.10 (vgl. Kap. 3.4.2) angepaßt. Die Halbwertsbreiten lagen bei der Einstufenanregung zwischen 1,2 und 1,6 GHz; dies entspricht effektiven Temperaturen der Ionen zwischen 2500 und 4400 K. Bei der Zweistufenanregung betrug die Halbwertsbreite im günstigsten Fall 0,2 GHz.

Zur Bestimmung der A- und B-Faktoren und der Schwerpunktsfrequenz bei dem Isotop ^{229}Th wurde eine Analyse der Hyperfeinaufspaltung der Übergänge vorgenommen. Es wird zunächst das Spektrum der Einstufenanregung betrachtet (siehe Abb. 6.2). Der Kernspin von ^{229}Th beträgt $I = 5/2$ und die Hül-

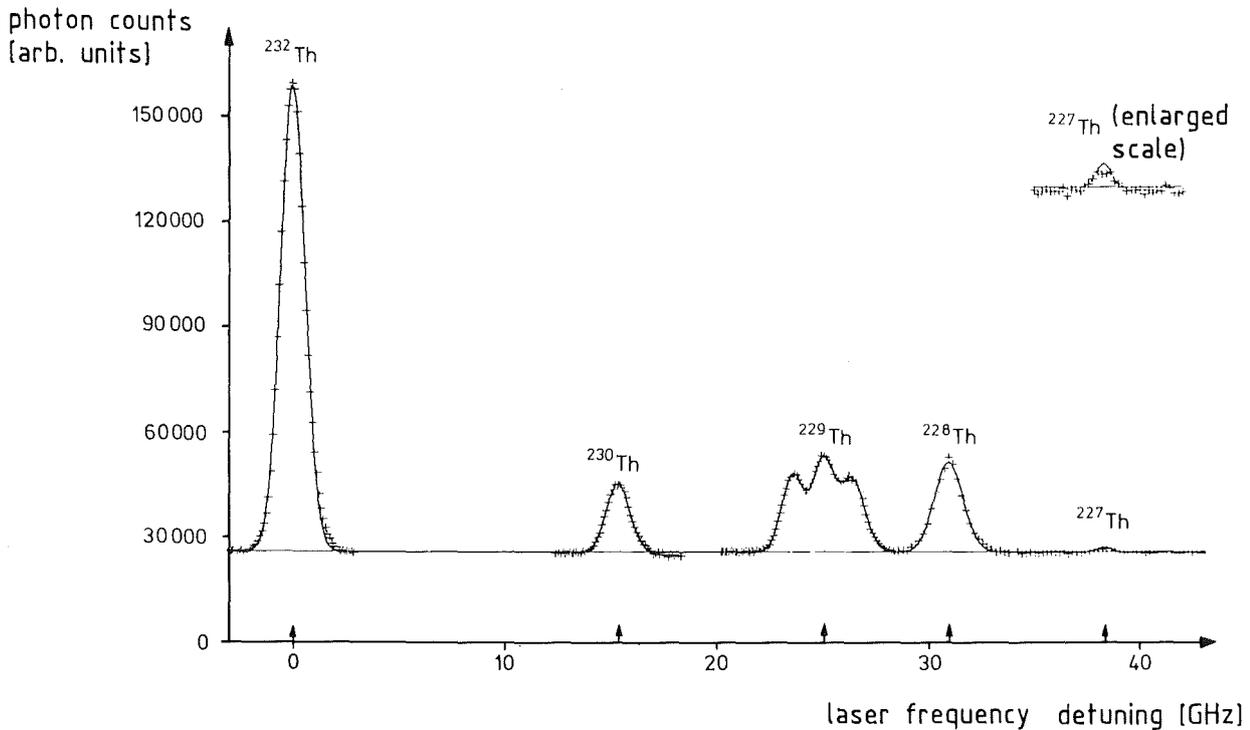


Abb. 6.1: Zusammenstellung der mit der Einstufenanregung am Th-II-Übergang $0-17122\text{ cm}^{-1}$ gemessenen verschiedenen Spektren von ^{227}Th bis ^{230}Th und ^{232}Th . Die Spektren wurden auf gleiche Höhe des Untergrundes normiert. Das Spektrum von ^{227}Th ist zur Verdeutlichung zusätzlich vergrößert dargestellt.

lenspins der beiden betrachteten Zustände (0 cm^{-1} und 17122 cm^{-1}) jeweils $J = 3/2$. Beide Zustände spalten nach der Theorie der Hyperfeinwechselwirkung in jeweils vier Hyperfeinzustände auf mit den Gesamtdrehimpulsen $F = 4, 3, 2$ und 1 . Angeregt werden erlaubte E1-Übergänge zwischen beiden Zuständen mit $\Delta F = 0, \pm 1$. Es gibt insgesamt 10 erlaubte Hyperfeinübergänge, die in Abb. 6.2 mit den Buchstaben a bis j bezeichnet sind. Die einzelnen Hyperfeinübergänge werden bei der Einstufenanregung nicht vollständig aufgelöst. Ihre genauen Lagen sind daher zunächst nicht bekannt. Zu ihrer Ermittlung wurde an das gemessene Spektrum eine Kurve angepaßt, die eine Summe von Gaußkurven mit jeweiligen Schwerpunkten bei den Hyperfeinübergangsfrequenzen darstellt. Freie Parameter bei dieser Anpassung waren die Hyperfeinstrukturkonstanten A

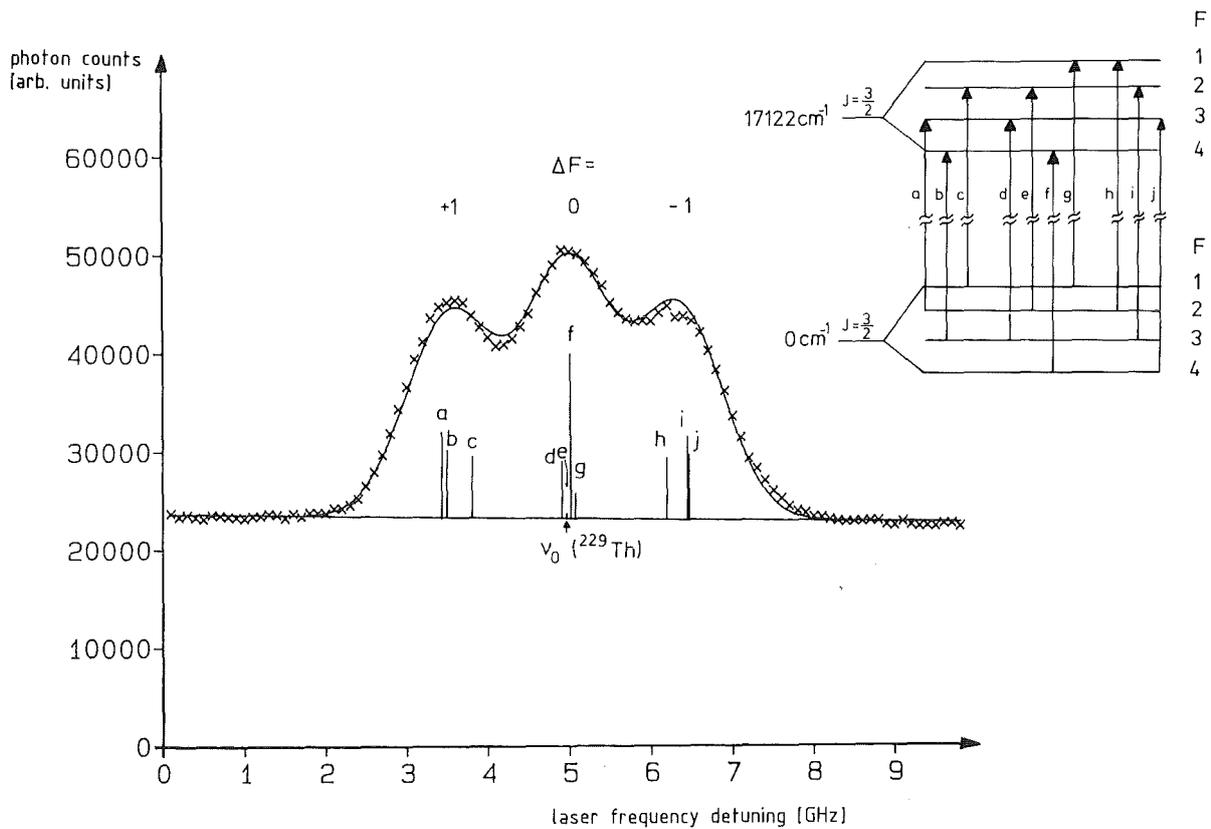


Abb. 6.2: Mit der Einstufenanregung aufgenommenes Spektrum von ^{229}Th . Eingezeichnet ist die Lage der einzelnen Hyperfeinstrukturübergänge und eine an die Datenpunkte angepaßte Kurve (Erklärung im Text).

und B des Zustandes 17122 cm^{-1} , die Schwerpunktsfrequenz von ^{229}Th , die Halbwertsbreite einer Gaußkurve und ein Normierungsfaktor für die Signalhöhe. Um nicht zuviele freie Parameter bei der Anpassung zu haben, wurden die Hyperfeinstrukturkonstanten A und B des Grundzustandes als feste Größen eingesetzt (Werte bekannt aus früheren Messungen /GLV 74/ und aus Ergebnissen der Zweistufenanregung; vgl. dazu Tab. 6.4). Ebenso wurden die relativen Intensitäten der Hyperfeinübergänge festgehalten. Es wurden dafür die natürlichen Intensitäten eingesetzt (Werte aus /Ko 56/), da bei der eingestellten Laserleistung von 2 mW die optische Signalarate nicht in Sättigung war. Als beste Anpassung an die Datenpunkte ergab sich die in Abb. 6.2 zusammen mit dem Spektrum dargestellte Kurve. Damit konnten die A- und B-

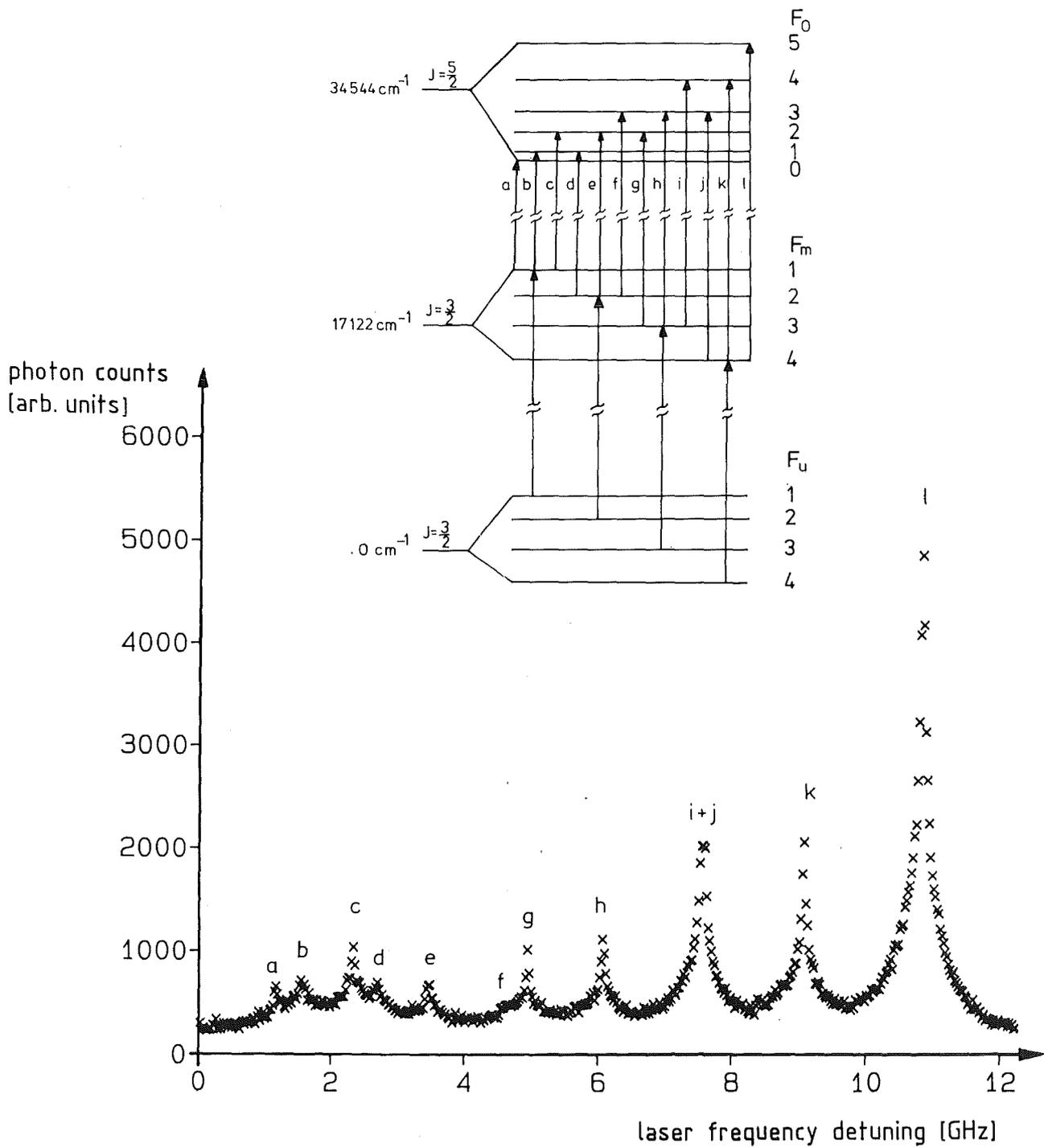


Abb.6.3: Hyperfeinaufspaltung von ^{229}Th ($I = 5/2$) mit der Zweistufenanregung; erster Laser ($0\text{-}17122\text{ cm}^{-1}$ mit fester Frequenz, eingestellt auf die Mitte der mittleren Gruppe mit $\Delta F = 0$ (vgl. Abb 6.2); der zweite Laser ($17122\text{-}34544\text{ cm}^{-1}$) wurde durchgestimmt.

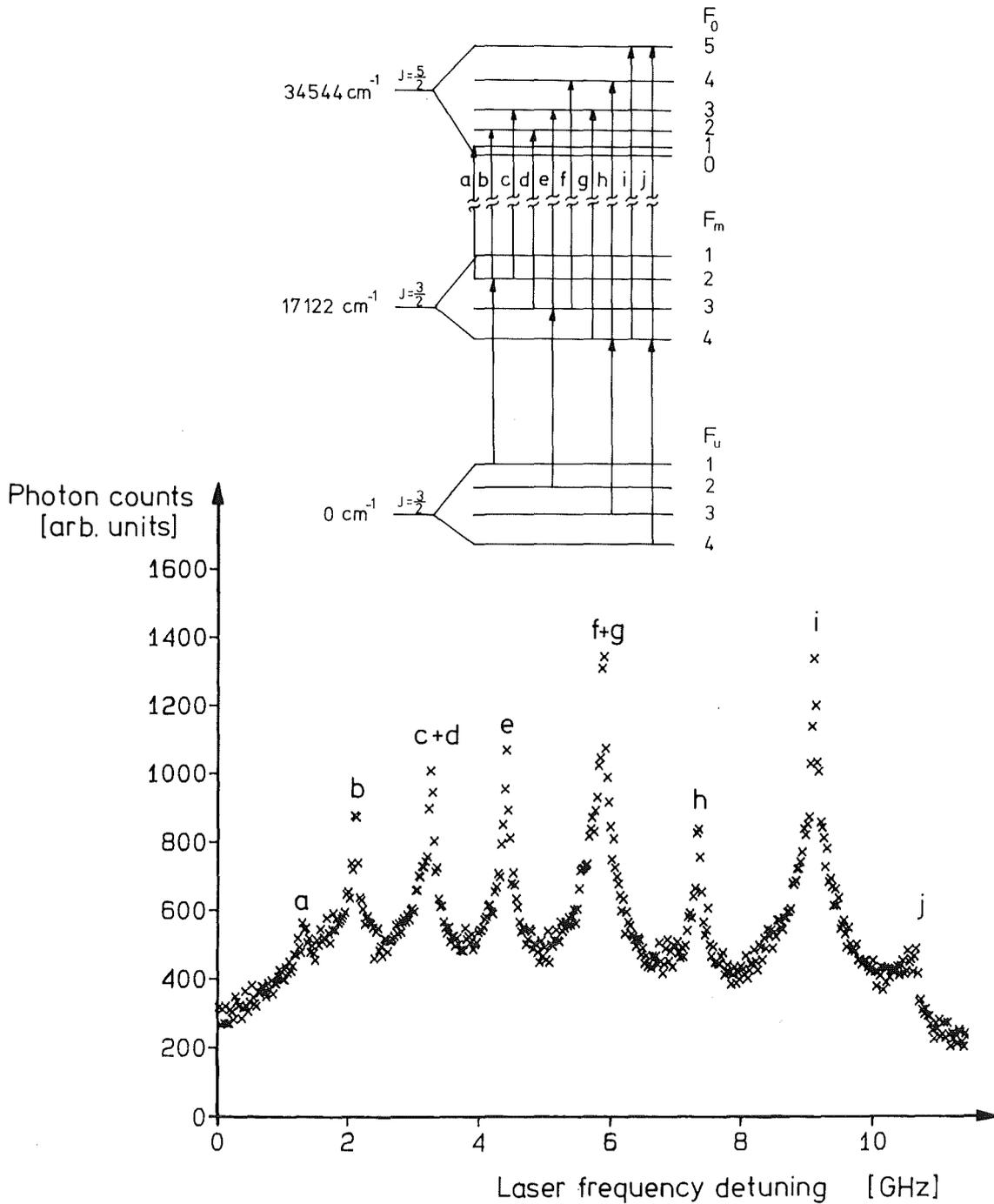


Abb. 6.4: Zweistufenanregung von ^{229}Th ; Im Unterschied zu Abb. 6.3 wurde hier die Frequenz des ersten Lasers fest auf die Mitte der linken Gruppe mit $\Delta F = +1$ (siehe Abb. 6.2) eingestellt.

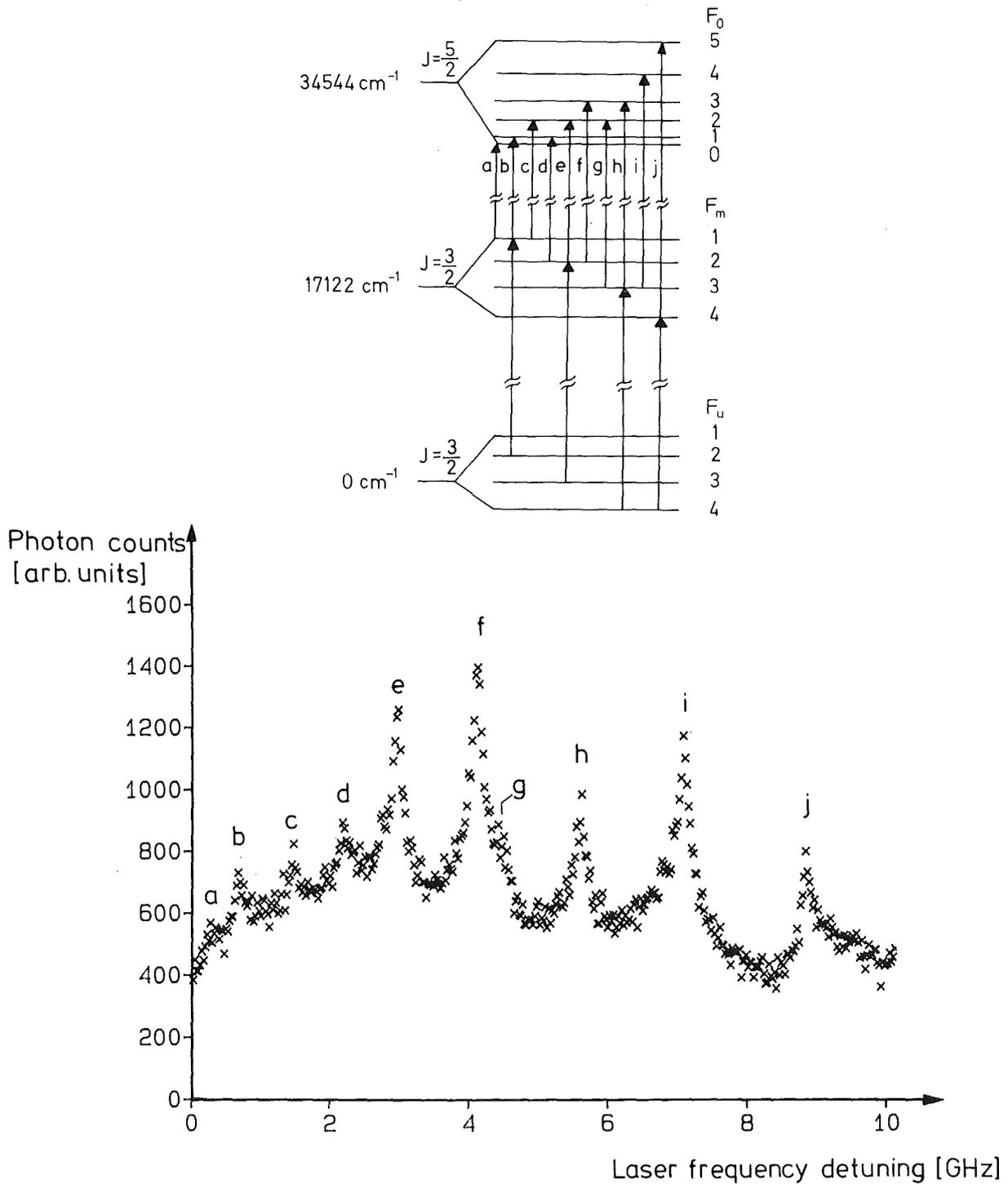


Abb. 6.5: Zweistufenanregung von ^{229}Th ; Im Unterschied zu Abb. 6.3 wurde hier die Frequenz des ersten Lasers fest auf die Mitte der rechten Gruppe mit $\Delta F = -1$ (siehe Abb. 6.2) eingestellt.

Faktoren des Zustandes 17122 cm^{-1} und die Schwerpunktsfrequenz von ^{229}Th bestimmt werden. Die Ergebnisse befinden sich in den Tabellen 6.4 und 6.5. Es ergab sich, daß die A-Faktoren vom Grundzustand und vom angeregten Zustand 17122 cm^{-1} nahezu gleich sind. Da sich außerdem die B-Faktoren der beiden Zustände nur um etwa den Faktor 1,5 unterscheiden, ordnen sich die Hyperfeinübergänge in drei Gruppen an, gekennzeichnet durch $\Delta F = +1, 0$ und -1 .

Bei der Zweistufenanregung von ^{229}Th wurde die Frequenz des ersten Lasers auf eine der drei Gruppen mit $\Delta F = 0, \pm 1$ abgestimmt. Als Beispiel wird die mittlere Gruppe mit $\Delta F = 0$ behandelt (siehe Abb. 6.3). Hierbei werden in der ersten Stufe die 4 Hyperfeinübergänge mit $\Delta F = 0$ vom Grundzustand zum Zustand 17122 cm^{-1} angeregt. Es wurden so alle Hyperfeinzustände des Zustands 17122 cm^{-1} besetzt. Wird der zweite Laser durchgestimmt, so werden Hyperfeinübergänge vom Zustand 17122 cm^{-1} nach 34544 cm^{-1} angeregt. Der Zustand 34544 cm^{-1} hat den Hüllenspin $J = 5/2$; er spaltet in 6 Hyperfeinzustände auf mit den Gesamtdrehimpulsen $F = 5, 4, 3, 2, 1$ und 0 . Von jedem Hyperfeinzustand des mittleren Niveaus sind 3 erlaubte E1-Übergänge zum oberen Niveau möglich. Daher werden insgesamt 12 Hyperfeinübergänge angeregt. Sie sind in Abb. 6.3 mit den Buchstaben a bis l bezeichnet. Sie sind in diesem Spektrum vollständig aufgelöst bis auf zwei Übergänge (i und j), die nahezu gleiche Übergangsfrequenzen haben.

Bei der Zweistufenanregung ist das Spektrum durch die Hyperfeinaufspaltung des Grundzustands und des Zustands 34544 cm^{-1} bestimmt. Die Hyperfeinaufspaltung des mittleren Zustands 17122 cm^{-1} geht dabei nicht ein. Dies läßt sich folgendermaßen einsehen: Im optischen Nachweiskanal wird nur dann Fluoreszenzlicht beobachtet, wenn eine Anregung von einem Hyperfeinzustand des Grundzustandes zu einem Hyperfeinzustand des Niveaus 34544 cm^{-1} erfolgt. (Die Anregung läuft dabei in zwei Schritten über einen Zwischenzustand.) Die Summe der Laserfrequenzen des ersten und des zweiten Schrittes ist ungefähr gleich der Übergangsfrequenz einer Anregung von 0 nach 34544 cm^{-1} , da die beiden Laser in entgegengesetzter Richtung eingestrahlt werden und sich daher die Dopplereffekte der beiden Übergänge nahezu kompensieren. Da die beiden Übergangsfrequenzen etwas unterschiedlich sind, gibt es einen kleinen Korrekturterm (siehe Gl. 3.3, Kap. 3.4.2), der aber vernachlässigbar ist. (Er beträgt z.B. $1,7 \text{ MHz}$, wenn die Verstimmung des ersten Lasers von der Resonanzfrequenz gerade 100 MHz ist). Beim Durchstimmen des zweiten Lasers werden daher die Übergangsfrequenzen von Anregungen vom Grundzustand zum Zustand 34544 cm^{-1} ermittelt.

Zur Bestimmung der A- und B-Faktoren der Zustände 0 und 34544 cm⁻¹ mußten zunächst die korrekten Zuordnungen von Hyperfeinübergängen $F_u - F_m - F_o$ zu den beobachteten Resonanzen des Spektrums (Abb. 6.3) gefunden werden. Es sind 11 Resonanzen in diesem Spektrum beobachtet worden; die gemessenen Frequenzlagen dieser Resonanzen sind in Tab. 6.1 festgehalten. In diesem Fall gibt es 12 Hyperfeinübergänge (ebenfalls in Tab. 6.1 aufgelistet), die den beobachteten Resonanzen zugeordnet werden müssen. Eine der 11 Resonanzen und zwar Resonanz Nr. 3 (vgl. Tab. 6.1) erhält dabei 2 Hyperfeinübergänge zugeordnet. Diese Resonanz unterscheidet sich von den anderen durch ihre größere Halbwertsbreite; es wird daher angenommen, daß sie sich aus zwei nichtaufgelösten Hyperfeinkomponenten zusammensetzt. Insgesamt gibt es also $12! / 2 \approx 2,40 \cdot 10^8$ Möglichkeiten der Zuordnung. Um darunter die einzige Möglichkeit der korrekten Zuordnung der Hyperfeinübergänge zu den beobachteten Resonanzen zu finden, müßten alle diese Möglichkeiten einem χ^2 - Test unterzogen werden. Bei einem solchen χ^2 - Test werden zunächst in jedem Fall der Zuordnung die A- und B-Faktoren der betreffenden Zustände mit der Methode der kleinsten Fehlerquadratsumme an die Lagen der Resonanzen angepaßt. Mit den so ermittelten A- und B-Faktoren werden die Frequenzlagen der Resonanzen zurückgerechnet. Dann wird die Testgröße M ermittelt /Br 81/:

$$M = \sum_i \frac{(E_{\text{ber.}} - E_{\text{gem.}})_i^2}{\sigma_i^2}$$

Dabei ist σ_i der statistische Fehler der gemessenen Frequenzlage. Wenn M größer als ein bestimmtes vorgegebenes χ^2 ist, wird der entsprechende Fall verworfen.

Aus Gründen der Rechenzeit wurde das Prüfen aller Möglichkeiten der Zuordnung in zwei Schritte unterteilt. Im ersten Schritt dieses Verfahrens wurden zunächst 7 der 11 beobachteten Resonanzen willkürlich ausgewählt. (Dies waren: Nr. 1, 2, 4, 5, 7, 8, 9 (vgl. Tab. 6.1)). Es wurden alle Möglichkeiten der Zuordnung der 12 Hyperfeinübergänge zu diesen ausgesuchten 7 Resonanzen geprüft. Es handelt sich dabei um $12! / 5! \approx 3,99 \cdot 10^6$ Möglichkeiten. Die Irrtumswahrscheinlichkeit für eine Möglichkeit wurde mit $\leq 2,5 \cdot 10^{-11}$ für sinnvoll angesehen. Damit ergibt sich bei ca. $3,99 \cdot 10^6$ getesteten Möglichkeiten eine Gesamtirrtumswahrscheinlichkeit von höchstens $1 \cdot 10^{-4}$. Das zugehörige χ^2 beträgt bei 2 Freiheitsgraden 48,9. In diesem ersten Schnitt konnten 429 von ca. $3,99 \cdot 10^6$ Fällen nicht verworfen werden.

Bezogen auf die Gesamtzahl von ca. $2,40 \cdot 10^8$ Fällen der Zuordnung wird im ersten Schritt bei jedem der ca. $3,99 \cdot 10^6$ Tests über 60 Fälle der Zuordnung

Tab. 6.1: Beobachtete Frequenzlagen der 11 Resonanzen des Spektrums der Zweistufenanregung mit $F_m - F_u = 0$ (vgl. Abb. 6.3) und zuzuordnende Hyperfeinübergänge.

| Beobachtete Frequenzlagen [MHz] | Zuzuordnende Hyperfeinübergänge $F_u - F_m - F_o$ |
|------------------------------------|---|
| 1) 10887,8(3,0) | 1) 4 - 4 - 5 |
| 2) 9112,0(4,2) | 2) 4 - 4 - 4 |
| 3) 7603,0(60,0) | 3) 4 - 4 - 3 |
| 4) 6102,9(5,6) | 4) 3 - 3 - 4 |
| 5) 4970,9(8,3) | 5) 3 - 3 - 3 |
| 6) 4637,9(25,0) | 6) 3 - 3 - 2 |
| 7) 3511,3(9,6) | 7) 2 - 2 - 3 |
| 8) 2738,1(12,6) | 8) 2 - 2 - 2 |
| 9) 2367,1(7,7) | 9) 2 - 2 - 1 |
| 10) 1614,5(9,0) | 10) 1 - 1 - 2 |
| 11) 1210,8(13,4) | 11) 1 - 1 - 1 |
| | 12) 1 - 1 - 0 |

Tab. 6.2: Gefundene Zuordnungen von Hyperfeinübergängen zu den gemessenen Frequenzlagen. Es werden die rückgerechneten Frequenzlagen, die Abweichungen zwischen gemessenen und rückgerechneten Frequenzlagen, die Testgröße M, sowie die A- und B-Faktoren der beteiligten Zustände angegeben. Zwei Fälle werden diskutiert: a) Der "richtige" Fall; er kann als einziger von ca. $2,40 \cdot 10^8$ möglichen Fällen der Zuordnung nicht verworfen werden. b) Der nächst kritische Fall; er weist nach Fall a) das nächstgrößere M auf, wurde aber durch den χ^2 -Test verworfen.

Fall a)

| Gemessene Frequenzlagen [MHz] | Gefundene Zuordnung von Hyperfeinübergängen $F_u - F_m - F_o$ | Rückgerechnete Frequenzlagen [MHz] | Abweichungen [MHz] |
|-------------------------------|---|------------------------------------|--------------------|
| 10887,8(3,0) | 4 - 4 - 5 | 10887,9(3,0) | -0,1 |
| 9112,0(4,2) | 4 - 4 - 4 | 9111,3(4,1) | 0,7 |
| 7603,0(60,0) | 4 - 4 - 3 | 7642,1(7,5) | -39,1 |
| 7603,0(60,0) | 3 - 3 - 4 | 7573,0(8,2) | 30,0 |
| 6102,9(5,6) | 3 - 3 - 3 | 6103,8(4,8) | -0,9 |
| 4970,9(8,3) | 3 - 3 - 2 | 4974,0(5,9) | -3,1 |
| 4637,9(25,0) | 2 - 2 - 3 | 4633,6(7,6) | 4,3 |
| 3511,3(9,6) | 2 - 2 - 2 | 3503,8(3,7) | 7,5 |
| 2738,1(12,6) | 2 - 2 - 1 | 2737,3(6,0) | 0,8 |
| 2367,1(7,7) | 1 - 1 - 2 | 2372,9(6,2) | -5,8 |
| 1614,5(9,0) | 1 - 1 - 1 | 1606,4(5,5) | 8,1 |
| 1210,8(13,4) | 1 - 1 - 0 | 1219,2(7,2) | -8,4 |

Testgröße M = 3,3

A(0 cm⁻¹) = -444,9(1,9) MHz

A(34544 cm⁻¹) = 366,0(1,2) MHz

B(0 cm⁻¹) = 301,5(6,0) MHz

B(34544 cm⁻¹) = -88,6(9,3) MHz

Tab. 6.2 Fortsetzung

Fall b)

| Gemessene Frequenzlagen [MHz] | Gefundene Zuordnung von Hyperfeinübergängen $F_u - F_m - F_o$ | Rückgerechnete Frequenzlagen [MHz] | Abweichungen [MHz] |
|----------------------------------|--|---------------------------------------|-----------------------|
| 10887,8(3,0) | 4 - 4 - 5 | 10887,0(3,0) | -0,8 |
| 9112,0(4,2) | 4 - 4 - 4 | 9117,9(4,1) | -5,9 |
| 7603,0(60,0) | 4 - 4 - 3 | 7381,4(7,2) | 221,6 |
| 7603,0(60,0) | 3 - 3 - 4 | 7815,9(6,5) | -212,9 |
| 6102,9(5,6) | 3 - 3 - 3 | 6079,4(4,6) | 23,5 |
| 4970,9(8,3) | 2 - 2 - 3 | 4991,9(6,3) | -21,0 |
| 4637,9(25,0) | 3 - 3 - 2 | 4589,7(6,8) | 48,2 |
| 3511,3(9,6) | 2 - 2 - 2 | 3502,2(3,4) | 9,1 |
| 2738,1(12,6) | 1 - 1 - 2 | 2724,3(7,1) | 13,8 |
| 2367,1(7,7) | 2 - 2 - 1 | 2419,8(5,9) | -52,7 |
| 1614,5(9,0) | 1 - 1 - 1 | 1641,9(5,8) | -27,4 |
| 1210,8(13,4) | 1 - 1 - 0 | 1073,9(6,6) | 136,9 |

Testgröße M = 218,5

A(0 cm⁻¹) = -346,6(1,7) MHz

A(34544 cm⁻¹) = 425,2(1,1) MHz

B(0 cm⁻¹) = 105,8(6,8) MHz

B(34544 cm⁻¹) = -594,8(8,3) MHz

simultan entschieden. Es stellt sich dabei die Frage, ob man berechtigt ist, mit dem Verwerfen eines Falles nach dem oben beschriebenen Verfahren die diesen Fall zuzuordnenden 60 von $2,40 \cdot 10^8$ Fällen ebenfalls zu verwerfen.

Würde man alle $2,40 \cdot 10^8$ Möglichkeiten der Zuordnung testen, so müßte man ein $\chi^2 = 72,7$ vorgeben (Irrtumswahrscheinlichkeit pro Fall: $4,18 \cdot 10^{-13}$, Gesamtirrtumswahrscheinlichkeit $1 \cdot 10^{-4}$, Anzahl der Freiheitsgrade: 7). Die Testgröße M würde dann aber wegen der jeweils hinzukommenden 5 Summanden bei jedem der zugeordneten 60 Fälle größer sein als beim ursprünglich betrachteten Fall. Man würde erwarten, daß dabei die Testgröße M mindestens proportional zur Zunahme der Freiheitsgrade anwächst. Somit läßt sich abschätzen, daß das M bei den verworfenen Fällen mindestens $48,9 \cdot 7/2 = 171,2$ beträgt und somit deutlich über der vorgegebenen Schranke von $\chi^2 = 72,7$ liegt. Unter diesem Gesichtspunkt betrachtet, ist das Verwerfen der Fälle im ersten Schritt des Verfahrens gerechtfertigt.

Im zweiten Schritt des Verfahrens wurden bei jedem der im ersten Schritt übriggebliebenen 429 Fälle alle Möglichkeiten der Zuordnungen der jeweils noch übrigbleibenden 5 Hyperfeinübergänge zu den restlichen 4 beobachteten Resonanzen getestet. Außerdem wurde dann noch eine Doppelzuordnung zweier Hyperfeinübergänge zu der Resonanz Nr. 3 vorgenommen. Insgesamt sind dabei $429 \cdot 60 = 25740$ Möglichkeiten getestet worden. Berücksichtigt man, daß die Gesamtzahl der Fälle der Zuordnung ca. $2,40 \cdot 10^8$ beträgt, so muß man bei jedem der 25740 zu testenden Fälle, wie bereits oben erwähnt, ein $\chi^2 = 72,7$ als Schranke vorgeben. Das Durchführen der χ^2 - Tests ergab, daß gerade 1 Fall der Zuordnung nicht verworfen werden kann. Die Testgröße beträgt hier $M = 3,3$. Dieser Fall ist in Tab. 6.2a aufgelistet. Außerdem befindet sich in Tab. 6.2b zum Vergleich der Fall mit dem nächstgrößeren M , der allerdings vom χ^2 - Test verworfen werden kann.

Bei den anderen Spektren der Zweistufenanregung mit $\Delta F = +1$ (Abb. 6.4) und $\Delta F = -1$ (Abb. 6.5) im ersten Anregungsschritt wurden die Zuordnungen von Hyperfeinübergängen zu den gemessenen Frequenzlagen mittels der jetzt bekannten A- und B-Faktoren der beteiligten Zustände gefunden. Die ermittelten Zuordnungen sowie die Frequenzlagen sind in Tab. 6.3 zusammengestellt.

Die Ergebnisse der Auswertungen der Spektren der Zweistufenanregung von ^{229}Th , die A- und B-Faktoren der beteiligten Zustände 0 und 34544 cm^{-1} sind in Tab. 6.4 aufgeführt. Zudem werden dort die Resultate von A und B für den Zustand 17122 cm^{-1} genannt, die aus der Einstufenanregung von ^{229}Th ermittelt wurden.

Es sind früher bereits Messungen zur Hyperfeinstruktur von ^{229}Th gemacht worden. Dabei sind die A- und B-Faktoren einer Reihe von Zuständen des Th-II, unter anderem auch die des Grundzustands, bestimmt worden /GLV 74/. Die experimentelle Methode war Fourierspektroskopie an einer elektrodenlosen Entladungslampe. Ein Vergleich der Werte befindet sich ebenfalls in Tab. 6.4. Die Werte stimmen mit unseren Ergebnissen innerhalb ihrer Fehlergrenzen überein.

Tab. 6.3: Gemessene und rückgerechnete Frequenzlagen für die Spektren der Zweistufenanregung von ^{229}Th mit $\Delta F = +1$ und $\Delta F = -1$.

Spektrum mit $\Delta F = +1$ (vgl. Abb. 6.4)

| Gemessene Frequenzlagen [MHz] | Gefundene Zuordnung von Hyperfeinübergängen $F_u-F_m-F_o$ | Rückgerechnete Frequenzlagen [MHz] | Abweichungen [MHz] |
|-------------------------------|---|------------------------------------|--------------------|
| 10670(200) | 4 - 4 - 5 | 10771(77) | -101 |
| 9290(5) | 3 - 4 - 5 | 9290(5) | ± 0 |
| 7530(10) | 3 - 4 - 4 | 7529(10) | 1 |
| 6068(60) | 3 - 4 - 3 | 6057(22) | 11 |
| 6068(60) | 2 - 3 - 4 | 6059(21) | 9 |
| 4585(10) | 2 - 3 - 3 | 4587(9) | -2 |
| 3437(60) | 2 - 3 - 2 | 3445(26) | -8 |
| 3437(60) | 1 - 2 - 3 | 3435(30) | 2 |
| 2295(15) | 1 - 2 - 2 | 2294(13) | 1 |
| 1516(30) | 1 - 2 - 1 | 1515(23) | 1 |

$$A(0\text{ cm}^{-1}) = -439(11)\text{ MHz}$$

$$A(34544\text{ cm}^{-1}) = 366(4)\text{ MHz}$$

$$B(0\text{ cm}^{-1}) = 342(51)\text{ MHz}$$

$$B(34544\text{ cm}^{-1}) = -118(36)\text{ MHz}$$

Tab. 6.3 Fortsetzung

Spektrum mit $\Delta F = -1$ (vgl. Abb. 6.5)

| Gemessene Frequenzlagen [MHz] | Gefundene Zuordnung von Hyperfeinübergängen $F_u-F_m-F_o$ | Rückgerechnete Frequenzlagen [MHz] | Abweichungen [MHz] |
|-------------------------------|---|------------------------------------|--------------------|
| 9481(200) | 4 - 4 - 5 | 9489(35) | -8 |
| 7708(5) | 4 - 3 - 4 | 7708(5) | ± 0 |
| 6234(10) | 4 - 3 - 3 | 6234(10) | ± 0 |
| 5106(50) | 4 - 3 - 2 | 5101(14) | 5 |
| 4719(10) | 3 - 2 - 3 | 4719(9) | ± 0 |
| 3587(10) | 3 - 2 - 2 | 3585(7) | 2 |
| 2810(20) | 3 - 2 - 1 | 2816(14) | -6 |
| 2111(20) | 2 - 1 - 2 | 2116(15) | -5 |
| 1350(15) | 2 - 1 - 1 | 1346(15) | 4 |
| 981(100) | 2 - 1 - 0 | 958(18) | 23 |

$$A(0 \text{ cm}^{-1}) = -442(4) \text{ MHz}$$

$$A(34544 \text{ cm}^{-1}) = 367(3) \text{ MHz}$$

$$B(0 \text{ cm}^{-1}) = 318(19) \text{ MHz}$$

$$B(34544 \text{ cm}^{-1}) = -90(35) \text{ MHz}$$

Tab. 6.4: A- und B-Faktoren bei ^{229}Th ; Zustände 0 und 34544 cm^{-1} aus der Analyse der Zweistufenanregung, Zustand 17122 cm^{-1} aus der Analyse der Einstufenanregung. Der angegebene Fehler ist der statistische Fehler (1σ).

| Zustand | A-Faktor [MHz] | B-Faktor [MHz] |
|------------------------|----------------|----------------|
| 0 cm^{-1} | -444,2(1,9) | 303(6) |
| | -450(30) *) | 420(150) *) |
| 17122 cm^{-1} | -442(9) | 430(150) |
| 34544 cm^{-1} | 366,1(1,2) | -90(10) |

*)Werte nach /GLV 74/.

Die Ergebnisse zur Bestimmung der Isotopieverschiebungen mit der Ein- und der Zweistufenanregung sind in Tab. 6.5 zusammengestellt.

Tab. 6.5: Isotopieverschiebungen an den Übergängen 0-17122 cm⁻¹ (aus der Einstufenanregung) und 0-34544 cm⁻¹ (aus der Zweistufenanregung). Der angegebene Fehler ist die Summe aus statistischem Fehler (3σ) und sonstigen systematischen Unsicherheiten.

| Massenzahl A | Isotopieverschiebung 0-17122 cm ⁻¹ ν(A)-ν(232) [MHz] | Isotopieverschiebung 0-34544 cm ⁻¹ ν(A)-ν(232) [MHz] |
|--------------|---|---|
| 232 | 0 | 0 |
| 230 | 15361(32) | 17878(82) |
| | 15530(330) *) | 17810(330) *) |
| 229 | 25009(93) | 29126(95) |
| 228 | 30953(81) | (nicht gemessen) |
| 227 | 38092(214) | (nicht gemessen) |

*)Werte nach /EP 84/; der hier angegebene Fehler ist der statistische Fehler (3σ)

Der angegebene Fehler setzt sich zusammen aus der Summe des statistischen Fehlers (3σ) und den sonstigen systematischen Unsicherheiten. Der statistische Fehler ergibt sich aus dem erreichten Signal/Rausch-Verhältnis und der Genauigkeit der Anpassung einer Modell-Kurve an die Meßpunkte. Die systematischen Unsicherheiten ergeben sich zum einen aus der Genauigkeit, mit der der freie Spektralbereich des 1,5-GHz-Fabry-Perot-Interferometers des Wellenlängenmeßgeräts /St 84/ bekannt ist. Dieser freie Spektralbereich wurde durch Vergleich mit dem freien Spektralbereich eines Referenz-Interferometers ermittelt, der mit einer Hochfrequenzmeßmethode zu 299,0(0,2) MHz bestimmt worden ist. Es ergab sich, daß 100 freie Spektralbereiche des Referenz-Interferometers gerade 19,942(13) freien Spektralbereichen des 1,5-GHz-Interferometers entsprechen. Damit wurde der freie Spektralbereich des 1,5 - GHz-Interferometers zu 1,4993(20) GHz bestimmt. Die Ungenauigkeit in der Bestimmung des freien Spektralbereichs bedeutet, daß bei einer Frequenzabstandsmessung eine relative Unsicherheit von 1,3·10⁻³ vorhanden ist. Eine weitere Unsicherheit ergibt sich, wenn die Übergangsfrequenzen zweier

Isotope nicht zur selben Zeit bestimmt werden. Es können temperaturabhängige Schwankungen des freien Spektralbereichs des 1,5-GHz-Fabry-Perot-Interferometers auftreten. Die Schwankungen werden mit dem Licht eines frequenzstabilisierten HeNe-Lasers (Fa. Coherent, Modell Tropel 200) kontrolliert. Diese Kontrolle kann mit einer Genauigkeit von ± 20 MHz bei einer Frequenzabstandsbestimmung durchgeführt werden.

In der Vergangenheit sind bereits Messungen zur Isotopieverschiebung von Thorium-Isotopen durchgeführt worden. So wurden mittels einer elektrodenlosen Entladungslampe und eines Fourier-transform Spektrometers die Isotopieverschiebungen zwischen ^{230}Th und ^{232}Th an einer Vielzahl von Übergängen (Th-I und Th-II, 5600 bis 36000 cm^{-1}) bestimmt /EP 83, EP 84/. Ein Vergleich der Isotopieverschiebung zwischen ^{230}Th und ^{232}Th bei den Übergängen Th-II 0-17122 cm^{-1} und 0-34544 cm^{-1} mit unseren Daten befindet sich in Tab. 6.5. Es zeigt sich innerhalb der Fehlergrenzen meistens eine befriedigende Übereinstimmung.

Die Isotopieverschiebung zwischen ^{229}Th und ^{232}Th ist von /VE 60/ an einer Reihe von Th-I und Th-II-Übergängen bestimmt worden. Es wurde hier mit einer Bogenentladung gearbeitet; die Spektren sind mit einem Gitterspektrographen aufgenommen worden. Ein direkter Vergleich zu unseren Daten ist nicht möglich, da die entsprechenden Übergänge von /VE 60/ nicht gemessen wurden. Es wird jedoch der Mittelwert des Verhältnisses der Isotopieverschiebungen $\delta_{\nu^{229,230}}/\delta_{\nu^{230,232}}$ angegeben. Die Werte der Isotopieverschiebungen $\delta_{\nu^{230,232}}$ von Th-Übergängen wurden dabei aus /SN 53/ entnommen. Es wird in dieser Betrachtung davon ausgegangen, daß der Kernvolumeneffekt der dominierende Effekt der Isotopieverschiebung ist und der Masseneffekt demgegenüber vernachlässigt werden kann. Demnach entsprechen die Verhältnisse von Isotopieverschiebungen Verhältnissen von Änderungen der mittleren quadratischen Kernladungsradien und sind daher unabhängig vom jeweils betrachteten Übergang. Ein Vergleich mit den Verhältnissen der Isotopieverschiebungen aus unseren Daten sollte daher die gleichen Werte liefern. Dieser Vergleich mit unseren Daten befindet sich in Tab. 6.6. Innerhalb der angegebenen Fehlergrenzen läßt sich keine Übereinstimmung feststellen. Da die 28 Einzelwerte /VE 60/ stark streuen und auch keine Fehler der Einzelwerte genannt werden, wird vermutet, daß die Fehlergrenzen /AHS 87/ zu klein angegeben worden sind.

Tab. 6.6: Verhältnisse der Isotopieverschiebungen $\delta_{\nu^{229,230}}/\delta_{\nu^{230,232}}$ im Vergleich.

| $\frac{\delta_{\nu^{229,230}}}{\delta_{\nu^{230,232}}}$ | Übergänge | Referenz |
|---|---------------------------------|--------------------------------------|
| 0,628(4) | 0-17122 cm ⁻¹ | diese Arbeit |
| 0,629(6) | 0-34544 cm ⁻¹ | diese Arbeit |
| 0,745(25) | Mittelwert aus 28 Übergängen | /VE 60/, Fehler- angabe: /AHS 87/ |

Messungen am Isotop ²²⁷Th

Am Isotop ²²⁷Th konnte bisher ein Spektrum der Einstufenanregung aufgenommen werden, das dazu geeignet war, die Isotopieverschiebung zwischen ²³²Th und ²²⁷Th zu bestimmen. Die Hyperfeinaufspaltung des betreffenden Übergangs konnte mit dieser Meßmethode nicht ermittelt werden. Da die elektromagnetischen Kernmomente des ²²⁷Th bisher nicht bekannt sind und selbst die Frage nach dem Kernspin bei diesem Isotop noch nicht mit letzter Sicherheit geklärt ist /Ma 77, LC 88/, wäre es interessant gewesen, dieses Isotop mit der Zweistufenanregung zu untersuchen, um darüber Aufschluß zu erhalten. Dies war jedoch aus apparativen Gründen bisher nicht möglich.

Es sind bisher folgende Experimente dazu unternommen worden. Es wurde versucht, die ²²⁷Ac-Probe ein zweites Mal radiochemisch aufzuarbeiten, um daraus ²²⁷Th abzutrennen (vgl. dazu Kap. 5). Es stellte sich jedoch heraus, daß sich nach der erstmaligen radiochemischen Bearbeitung des Präparats das Harz des verwendeten Ionenaustauschers zu einem geringen Teil im Präparat gelöst hatte. Dieses Harz befand sich folglich auch in der dann abgetrennten ²²⁷Th-Probe. Es war deutlich nach dem Aufbringen auf den Trägerdraht als Belag sichtbar. Es verhinderte, daß Thoriumionen in der Falle gespeichert werden konnten; es wurde kein optisches Signal nachgewiesen.

In einem weiteren Versuch wurde die beim erstenmal abgetrennte ²²⁷Th-Probe wieder verwendet. Das ²²⁷Th war in der Zwischenzeit wieder im radioaktiven Gleichgewicht mit ²²⁷Ac. Dies bedeutete einen 400-fachen Überschuß an Actinium gegenüber Thorium in der Probe. Für den Versuch wurde eine Menge von 0,4 ng ²²⁷Th verwendet. Auch hier konnte kein optisches Signal von ²²⁷Th nachgewiesen werden. Das Nachweislimit für das optische Signal betrug in

diesem Versuch 10 Hz. Es war hauptsächlich bestimmt durch das Untergrundlicht, verursacht durch die in der Ionenfalle akkumulierte α -Aktivität verschiedener Proben (vgl. dazu Kap. 4.5). Eine zu der ^{227}Th -Probe zugegebene Menge von 0,5 ng ^{232}Th konnte im gleichen Versuch optisch nachgewiesen werden. Das Signal betrug allerdings nur 20 Hz, wohingegen unter Standardbedingungen für diese Menge an Thorium ein Signal von 1500 Hz üblich ist. Mit dem elektronischen Ionennachweis wurde simultan dazu festgestellt, daß die Falle bei diesem Versuch nahezu vollständig mit Ionen mit der ungefähren Masse $A \approx 230$ gefüllt war. Dies läßt den Schluß zu, daß in der Ionenfalle vorwiegend Ac-Ionen gespeichert waren und die Th-Ionen deshalb verdrängt worden sind.

Aufgrund der interessanten kernphysikalischen Fragestellungen (Spin, Kernmomente) sollte man das Experiment nocheinmal in der folgenden Richtung angehen: Es sollte mit einer neuen ^{227}Ac -Probe eine radiochemische Abtrennung von ^{227}Th versucht werden. Dabei sollte möglichst wenig ^{227}Ac in der abgetrennten ^{227}Th -Probe zurückbleiben. Die Verwendung von noch nicht kontaminierten Ionenfallen-Teilen könnte das Problem mit dem Untergrundlicht reduzieren.

7. Kernladungsradien und Kernmomente

7.1 Isotopieverschiebung

Betrachtet man die Übergangsfrequenz zwischen zwei Zuständen der Elektronenhülle bei verschiedenen Isotopen eines Elements, so stellt man fest, daß sie von Isotop zu Isotop verschieden ist, obwohl immer dieselben Hüllenzustände angenommen werden. Der Effekt, der hier auftritt, wird als Isotopieverschiebung bezeichnet. Es gibt zwei Beiträge zur Isotopieverschiebung: den Masseneffekt (ME) und den Kernvolumeneffekt (KVE); die Isotopieverschiebung $\delta\nu_i^{AA'}$ *) zwischen zwei Isotopen mit Massen A und A' ist die Summe aus beiden Anteilen:

$$\delta\nu_i^{AA'} = \delta\nu_{i\text{KVE}}^{AA'} + \delta\nu_{i\text{ME}}^{AA'} \quad (7.1)$$

Der Index i bezieht sich dabei auf den betrachteten Übergang.

Im folgenden soll die Vorzeichenkonvention gelten:

$$\delta\nu^{AA'} = \nu^A - \nu^{A'}$$

Der Masseneffekt wird verursacht durch die Änderung der Kernmasse, wenn Neutronen zugefügt oder entfernt werden. Die gesamte kinetische Energie eines Atoms setzt sich zusammen aus der Summe der kinetischen Energien der Elektronen und der kinetischen Energie des Kerns. Die zusätzliche kinetische Energie des Kerns verursacht eine kleine Änderung der Energien von elektronischen Zuständen und ebenso der Übergangsenergien zwischen elektronischen Zuständen. Werden dem Kern Neutronen zugefügt oder weggenommen, so ändert sich seine Masse und damit auch seine kinetische Energie. Diese Änderung der kinetischen Energie des Kerns hat wiederum eine Änderung der Übergangsenergien zwischen elektronischen Zuständen des Atoms zur Folge. Diesen Effekt bezeichnet man als Masseneffekt. Ersetzt man in dem Ausdruck für die kinetische Energie des Kerns $T_k = \vec{p}_k^2 / (2m_k)$ den Impuls des Kerns \vec{p}_k durch die Summe der Elektronenimpulse $-\sum \vec{p}_i$ (Impulserhaltungssatz), so ergibt sich für die kinetische Energie des Kerns folgender Ausdruck:

$$T_k = \sum_i \frac{\vec{p}_i^2}{2m_k} + \sum_{i>j} \frac{\vec{p}_i \vec{p}_j}{m_k} \quad (7.2)$$

Dieser Ausdruck, behandelt in Störungstheorie 1. Ordnung, ergibt die Änderungen der Übergangsenergien zwischen elektronischen Zuständen. Die Änderung, die sich aus dem 1. Term in Gl. 7.2 ergibt, wird als normaler Masseneffekt (NME), diejenige aus dem 2. Term als spezifischer Masseneffekt (SME) bezeichnet.

*) In diesem Kapitel wird abweichend zu Kap. 3 für Frequenzen der Buchstabe ν anstelle von ω verwendet. Es gilt die Beziehung $\nu = \omega/2\pi$.

Der gesamte Masseneffekt kann folgendermaßen ausgedrückt werden /HS 74/:

$$\delta v_{iME}^{AA'} = M_i \frac{A - A'}{A \cdot A'} \quad (7.3)$$

mit $M_i = M_{iNME} + M_{iSME}$

Für den normalen Masseneffekt kann M_{iNME} berechnet werden:

$$M_{iNME} = v_i \frac{1}{1822,5} \quad (7.4)$$

Dabei ist v_i die Frequenz des betrachteten Übergangs. Der daran anschließende Faktor ist das Verhältnis der Ruhemasse des Elektrons- zur atomaren Masseneinheit. Der spezifische Masseneffekt kann nicht so einfach berechnet werden; oftmals gibt es nur Abschätzungen für ihn (vgl. /HS 74, AHS 87/). Der Anteil des Masseneffekts an der Isotopieverschiebung nimmt von den leichten zu den schweren Elementen des Periodensystems immer weiter ab. Bei dem hier betrachteten Element Thorium ist sein Anteil bereits vernachlässigbar klein.

Der für unsere Belange bedeutendere Anteil an der Isotopieverschiebung ist der Kernvolumeneffekt, da durch ihn Informationen über Kerngrößen gewonnen werden können. Sein Zustandekommen läßt sich folgendermaßen beschreiben: Die Bindungsenergie eines Elektrons, das eine gewisse Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte im Innern des Kerns hat, wird durch die Verteilung der Kernladung schwach beeinflusst. Wenn Neutronen dem Kern zugefügt oder weggenommen werden, ändert sich die Ladungsverteilung des Kerns. Dies ändert die Bindungsenergien der Elektronen und ebenso die Energiedifferenzen elektronischer Übergänge. Am Beispiel eines 7s-7p-Übergangs im Th-II soll dies veranschaulicht werden. In Abb. 7.1 sind links die Termfolgen der betrachteten Zustände zunächst für das Isotop ^{230}Th dargestellt. Beim ^{232}Th sind im Kern zwei Neutronen mehr vorhanden. Seine Ladungsverteilung ist weiter ausgedehnt als beim ^{230}Th . Das 7s-Elektron, das eine relativ große Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte im Kern hat, erfährt aufgrund der Aufweitung der Ladungsverteilung eine Abschwächung seiner Bindungsenergie, wenn man vom ^{230}Th zum ^{232}Th geht. Die Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte des 7p-Elektrons im Kern ist kleiner als die des 7s-Elektrons; daher ergibt sich eine kleinere Abschwächung der Bindungsenergie als beim 7s-Elektron, wenn man vom ^{230}Th zum ^{232}Th geht. Insgesamt ergibt sich, daß die Energiedifferenz des 7s-7p-Übergangs beim ^{230}Th größer ist als beim ^{232}Th .

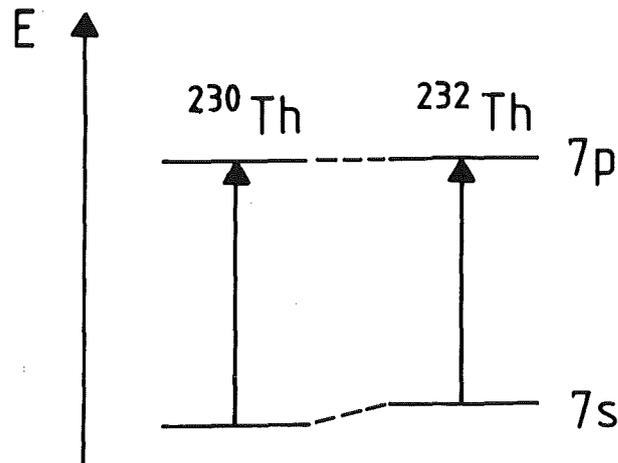


Abb. 7.1: Kernvolumeneffekt bei ^{230}Th und ^{232}Th am Beispiel eines 7s-7p-Übergangs

Der Kernvolumeneffekt wird in zwei Faktoren aufgeteilt /HS 74, TFR 85/:

$$\delta v_{iKVE}^{AA'} = F_i \lambda^{AA'} \quad (7.5)$$

Der Faktor $\lambda^{AA'}$ beschreibt die Änderung der Kernladungsradien zwischen zwei Isotopen mit Massen A und A' . Er läßt sich als eine Reihe von Änderungen der radialen Momente $\delta \langle r^{2n} \rangle$ darstellen:

$$\lambda^{AA'} = \delta \langle r^2 \rangle^{AA'} + \frac{C_2}{C_1} \delta \langle r^4 \rangle^{AA'} + \frac{C_3}{C_1} \delta \langle r^6 \rangle^{AA'} + \dots = K \cdot \delta \langle r^2 \rangle^{AA'} \quad (7.6)$$

$$\text{mit } K = 1 + \frac{C_2}{C_1} \frac{\delta \langle r^4 \rangle^{AA'}}{\delta \langle r^2 \rangle^{AA'}} + \frac{C_3}{C_1} \frac{\delta \langle r^6 \rangle^{AA'}}{\delta \langle r^4 \rangle^{AA'}} + \dots$$

Für die Koeffizienten c_n werden die c_n -Werte aus den Isotopieverschiebungen von Röntgenspektren (K x-rays) eingesetzt (Seltzer-Koeffizienten) /HS 74/. Die Verhältnisse der radialen Momente $\delta \langle r^{2n} \rangle^{AA'} / \delta \langle r^2 \rangle^{AA'}$ sind berechnet worden /TFR 85/; diesen Rechnungen liegt das Droplet-Modell /MS 83/ zugrunde. Es ergibt sich, daß der Faktor K nur wenig von 1 verschieden ist; d.h. der Hauptbeitrag zu $\lambda^{AA'}$ kommt von der Änderung des mittleren quadratischen Kernladungsradius $\delta \langle r^2 \rangle^{AA'}$. Im Falle des Thoriums ist $K = 0,92$ /TFR 85/.

F_i wird als elektronischer Faktor bezeichnet und ist proportional zur Änderung der Elektronendichte am Kernort:

$$F_i = \frac{2\pi}{3} Z e^2 \Delta \left| \Psi(0) \right|_i^2 \quad (7.7)$$

Aus den gemessenen Isotopieverschiebungen können nach Abzug des Masseneffekts die Kernparameter λ bzw. die Änderungen der mittleren quadratischen Kernladungsradien $\delta\langle r^2 \rangle$ ermittelt werden, wenn der elektronische Faktor F_i des entsprechenden Übergangs bekannt ist. Eine weitere Möglichkeit ergibt sich, wenn λ bzw. $\delta\langle r^2 \rangle$ für ein Isotopenpaar mittels einer anderen Meßmethode (z.B.: muonische x-Rays /ESV 74/, elastische Elektronenstreuung /JFF 74/) bestimmt worden ist. Der Wert von λ bzw. $\delta\langle r^2 \rangle$ für ein Isotopenpaar kann dabei zur Kalibrierung für weitere Isotopieverschiebungsdaten verwendet werden.

7.2 Bestimmung von λ und $\delta\langle r^2 \rangle$ für Thorium-Isotope

Der Kernparameter λ für das Isotopenpaar $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ ist aus der Analyse von Messungen zur Isotopieverschiebung ermittelt worden /AHS 87/. Es wurden dazu Werte von Isotopieverschiebungen des betreffenden Isotopenpaars für reine 7s-7p-Übergänge in den Th-II-Konfigurationen 6d²7s-6d²7p und 5f6d7s-5f6d7p verwendet /EP 84/. Der elektronische Faktor F_i für einen 7s-7p-Übergang ist nach einer Methode von /BS 68/ bestimmt worden. Dabei wurde die nichtrelativistische Elektronendichte eines 7s-Elektrons am Kernort nach der Fermi-Goudsmit-Segré-Formel berechnet. Relativistische Korrekturen der Elektronendichte wurden nach /BBP 85, Zi 85/ angebracht. Die Änderung der Elektronendichte am Kernort für einen 7s-7p-Übergang wurde mit Hartree-Fock-Rechnungen /AHS 87/ bestimmt. Der mit dieser Methode ermittelte Wert des Kernparameters lautet: $\lambda^{230,232} = -0,189(26) \text{ fm}^2$. Mit einem Wert für den K-Faktor von $K = 0,92$ /TFR 85/ ergibt sich die Änderung des mittleren quadratischen Kernladungsradius zu: $\delta\langle r^2 \rangle^{230,232} = -0,205(28) \text{ fm}^2$.

Diese Werte von λ und $\delta\langle r^2 \rangle$ werden zur Kalibrierung für unsere Isotopieverschiebungsdaten genommen. Der Masseneffekt wird aus folgendem Grund vernachlässigt: Der normale Masseneffekt beträgt bei dem Übergang Th-II 0-17122 cm⁻¹: $\delta\nu_i^{230,232}_{\text{NME}} = -10,5 \text{ MHz}$. Der spezifische Masseneffekt dieses Übergangs kann mittels Hartree-Fock-Rechnungen abgeschätzt werden. Er beträgt $\delta\nu_i^{230,232}_{\text{SME}} = -200 \text{ MHz}$ mit einer Unsicherheit von 50 MHz /Wi 88/. Zur Abschätzung des spezifischen Masseneffekts wurden die Lösungen der Hartree-Fock-Rechnungen für reine Konfiguration ermittelt. Dabei wurden für den Grundzustand die Konfigurationen 6d²7s, 6d7s² und 6d³ und für den Zustand 17122 cm⁻¹ die Konfiguration 5f6d7s, 5f6d² und 5f7s² in Betracht gezogen /Wi 88/. Damit sind die spezifischen Masseneffekte für Übergänge zwischen reinen

Konfigurationen bekannt. Da jedoch ein Übergang zwischen Zuständen gemischter Konfigurationen gewählt wurde und die Mischung der Konfigurationen für den angeregten Zustand nicht genau bekannt ist /ZC 74/, kann für den spezifischen Masseneffekt nur die obengenannte Abschätzung gegeben werden. Die Abschätzung ist auch nur gültig, wenn die Beimischung der Konfiguration $5f^27p$ zum angeregten Zustand 17122 cm^{-1} vernachlässigbar klein ist.

Der gesamte Masseneffekt des Übergangs beträgt unter den oben gegebenen Voraussetzungen also: $\delta\nu_{i^{230,232}}^{\text{ME}} = -210 (50) \text{ MHz}$. Zum Vergleich sei angeführt: Der Kernvolumeneffekt ist bei diesem Übergang ungefähr $\delta\nu_{i^{230,232}}^{\text{KVE}} = 15000 \text{ MHz}$. Der Kernvolumeneffekt ist hier also in guter Näherung gleich der gemessenen Isotopieverschiebung. Der Masseneffekt kann auch im Hinblick auf die Genauigkeit, mit der λ bzw. $\delta\langle r^2 \rangle$ bekannt sind, vernachlässigt werden.

Die ermittelten Werte für die Kernparameter $\lambda_{A,232}$ und die Änderungen der mittleren quadratischen Kernladungsradien $\delta\langle r^2 \rangle_{A,232}$ sind in Tab. 7.1 zusammengestellt. Die angegebenen Fehler sind bestimmt durch die Ungenauigkeit der Kalibrierungsfaktoren; die experimentellen Fehler bei der Bestimmung der Isotopieverschiebung sind dagegen um ein Vielfaches geringer.

Tab. 7.1: Kernparameter $\lambda_{A,232}$ und Änderungen der mittleren quadratischen Kernladungsradien $\delta\langle r^2 \rangle_{A,232}$ für Thorium-Isotope

| Massenzahl A | Isotopieverschiebung Th-II-Übergang 0-17122 cm^{-1} $\delta\nu_{A,232}$ [MHz] | Kernparameter $\lambda_{A,232}$ [fm ²] | Änderung des mittl. quadr. Kernladungsradius $\delta\langle r^2 \rangle_{A,232}$ [fm ²] |
|-----------------|--|--|---|
| 232 | 0 | 0 | 0 |
| 230 | 15361(32) | -0,189(26)*) | -0,205(28)*) |
| 229 | 25009(93) | -0,308(42) | -0,334(46) |
| 228 | 30953(81) | -0,381(52) | -0,413(56) |
| 227 | 38092(214) | -0,469(64) | -0,508(70) |

*)Werte zur Kalibrierung aus /AHS 87/

7.3 Hyperfeinaufspaltungen

Die Wechselwirkung zwischen Kernmomenten und elektromagnetischen Feldern der Hüllenelektronen wird als Hyperfeinwechselwirkung bezeichnet. Die beiden führenden Terme dieser Wechselwirkung sind: Die Ausrichtung des magnetischen Kerndipolmoments μ_I im Magnetfeld $H(0)$ der Hüllenelektronen und die Orientierung des Kernquadrupolmoments Q im Gradienten des elektrischen Feldes $\phi_{zz}(0)$ der Hüllenelektronen. Es sind nur diskrete Einstellmöglichkeiten der Kernmomente in den Feldern der Hüllenelektronen erlaubt. Diese diskreten Einstellmöglichkeiten ergeben sich aus der Kopplung des Kernspins I und des Hüllenspins J zum Gesamtdrehimpuls F eines Hyperfeinzustandes. F kann dabei nur die Werte $|I-J|, |I-J| + 1, \dots, I+J-1$ und $I+J$ annehmen. Die daraus resultierende Hyperfeinaufspaltung eines Feinstrukturzustandes der Elektronenhülle läßt sich folgendermaßen darstellen /Ko 56, Ku 69/:

$$\Delta E_{\text{HFS}} = A \frac{C}{2} + B \cdot \frac{\frac{3}{4} C (C + 1) - I(I + 1) J (J + 1)}{2 I J (2 I - 1) (2 J - 1)} \quad (7.8)$$

$$\text{mit } C = F(F + 1) - I(I + 1) - J(J + 1)$$

Die Hyperfeinwechselwirkungskonstanten werden A- und B-Faktoren genannt und sind folgendermaßen definiert:

$$A = \frac{\mu_I \cdot H(0)}{I \cdot J} \quad (7.9)$$

$$B = eQ \cdot \phi_{zz}(0)$$

Aus der Analyse der Hyperfeinaufspaltung eines elektronischen Übergangs können unter Benutzung von Gleichung 7.8 die A- und B-Faktoren der beteiligten Zustände bestimmt werden. Sofern das Magnetfeld $H(0)$ bzw. der elektrische Feldgradient $\phi_{zz}(0)$ der Hüllenelektronen für die betreffenden Zustände bekannt sind, können mittels Gleichung 7.9 das Dipolmoment μ_I und das Quadrupolmoment Q des Kerns ermittelt werden.

7.4 Bestimmung von μ_I und Q für ^{229}Th

Spektren des ^{229}Th im Infrarotbereich zwischen 1 und 3 μm sind mittels Fourier-Spektroskopie untersucht worden /GLV 74/. Durch Analyse der experimentell ermittelten Hyperfeinstrukturkonstanten A und B von 20 Zuständen konnten u.a. die Einelektronen-Hyperfeinkonstanten a_{7s} , b_{6d} und b_{5f} ermittelt werden.

Durch Vergleich mit dem magnetischen Moment von ^{239}Pu wurde das magnetische Moment von ^{229}Th berechnet /GLV 74/. Es gilt dabei folgender Zusammenhang:

$$\frac{\mu(^{229}\text{Th})}{\mu(^{239}\text{Pu})} = \frac{a_{7s}(\text{Th})}{a_{7s}(\text{Pu})} \cdot \frac{I(^{229}\text{Th})}{I(^{239}\text{Pu})} \cdot \frac{|\Psi_{7s}(0)|_{\text{Pu}}^2}{|\Psi_{7s}(0)|_{\text{Th}}^2} \quad (7.10)$$

Das magnetische Moment des ^{239}Pu war aus einer Atomstrahl-Resonanzmessung ("direkte" Bestimmung) bekannt: $\mu(^{239}\text{Pu}) = 0,200(4) \mu_K$ /FMN 65/. Es ergab sich damit für das magnetische Dipolmoment des ^{229}Th /GLV 74/:

$$\mu_I(^{229}\text{Th}) = 0,45(4) \mu_K$$

Das Quadrupolmoment von ^{229}Th wurde mittels folgender Beziehung ermittelt /GLV 74/:

$$Q(^{229}\text{Th}) = \frac{b_{n\ell}}{e^2 \langle r^{-3} \rangle_{n\ell}} \quad (7.11)$$

Die Berechnung des Integrals $\langle r^{-3} \rangle_{n\ell}$ ist mit großen Unsicherheiten verbunden, daher ergibt sich ein großer Fehler von 20% bei der Angabe des Quadrupolmoments von ^{229}Th /GLV 74/:

$$Q(^{229}\text{Th}) = 4,3(9) \text{ b}$$

7.5 Diskussion

Das magnetische Moment von ^{229}Th kann im Nilsson-Einteilchenmodell /CAF 77/ berechnet werden. Dort wird dem ungepaarten Neutron von ^{229}Th ($N = 139$) der Einteilchenzustand $5/2 + [633]$ zugeordnet bei einem Quadrupoldeformationsparameter β_2 zwischen 0,15 und 0,22. Berechnungen des magnetischen Moments /CAF 77/ ergeben für $\beta_2 = 0,19$: $\mu_I = +0,43 \mu_K$ und für $\beta_2 = 0,22$: $\mu_I = +0,54 \mu_K$. Es ergibt sich eine gute Übereinstimmung mit dem experimentellen Wert des magnetischen Moments von $\mu_I(^{229}\text{Th}) = +0,45(4) \mu_K$.

Die für die Thorium-Isotope mit $A = 227$ bis 230 und 232 ermittelten Änderungen der mittleren quadratischen Kernladungsradien $\delta \langle r^2 \rangle_{A,232}$ (Werte aus Tab. 7.1) sind in Abb. 7.2 dargestellt. Sie werden dort mit den aus dem Droplet-Modell /MS 69/ erhaltenen Werten verglichen.

Das Droplet-Modell ist eine verfeinerte Version des einfachen Tröpfchenmodells. Beim Tröpfchenmodell wird angenommen, daß sich die Kernmaterie wie eine inkompressible Flüssigkeit verhält. Dies bedingt eine konstante Kernma-

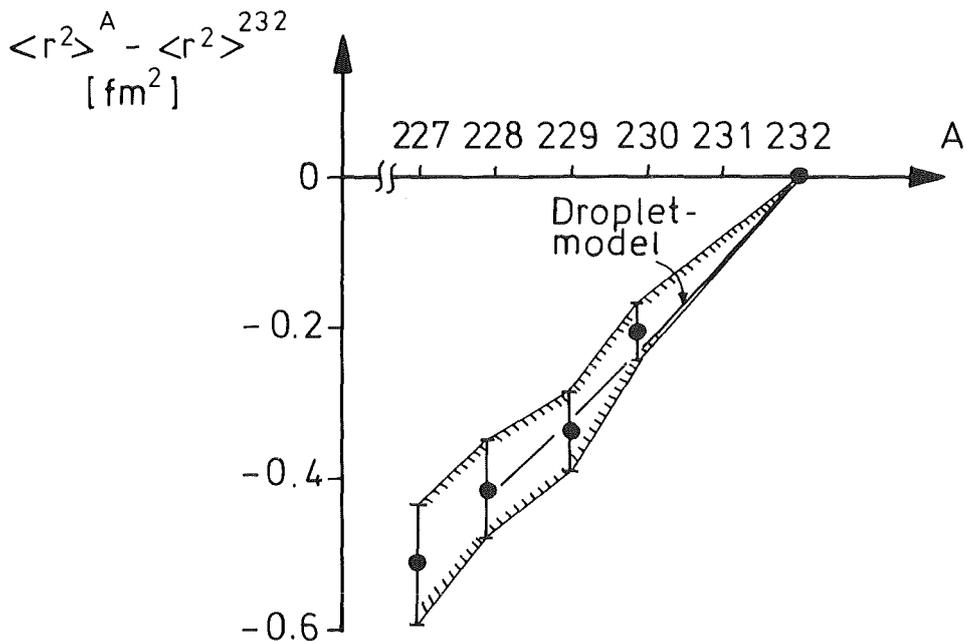


Abb. 7.2: Änderungen der mittleren quadratischen Kernladungsradien von Thorium-Isotopen in Abhängigkeit von der Massenzahl A. Die Größe der Fehlerbandes entsteht hauptsächlich aus der Unsicherheit in der Kalibrierung. Dazu eingezeichnet: Berechnungen von $\delta \langle r^2 \rangle$ nach dem Droplet-Modell; dabei sind die Korrekturen aufgrund der Änderung der Kern-Quadrupoldeformationen berücksichtigt.

teriedichte, die unabhängig von der Massenzahl A ist. Der Kern stellt folglich eine Kugel mit Radius $R = r_0 A^{1/3}$ dar (dabei beträgt $r_0 = 1,20$ fm). Es wird ferner angenommen, daß die Ladung des Kerns homogen über die Kugel verteilt ist.

In Erweiterung und Verfeinerung des Tröpfchenmodells wird beim sphärischen Droplet-Modell /MS 69/ zwischen der Neutronen- und der Protonenverteilung im Kern unterschieden. Die Radien dieser Verteilungen werden festgelegt durch die Minimierung der Gesamtenergie des Systems. Die Radien der Neutronen- und der Protonenverteilung sind nicht unbedingt gleich, und zwar so, daß bei neutronenreichen Kernen die Haut des Kerns überwiegend aus Neutronenmaterie besteht. Das Modell berücksichtigt die Coulombabstoßung der Protonen untereinander, was zu einer Umverteilung der Protonen im Kern führt (sie werden etwas zur Oberfläche des Kerns hin verschoben). Außerdem wird ein diffuser Rand des Kerns zugelassen. Der sich in diesem Modell ergebende mittlere quadratische Kernladungsradius setzt sich aus drei Anteilen zusammen:

$$\langle r^2 \rangle = \langle r^2 \rangle_u + \langle r^2 \rangle_r + \langle r^2 \rangle_d \quad (7.12)$$

Dabei ist $\langle r^2 \rangle_u$ der Anteil der Protonenladungsverteilung, der den Hauptbeitrag zu $\langle r^2 \rangle$ liefert. $\langle r^2 \rangle_r$ ist der Anteil aus der Umverteilung der Protonen aufgrund der Coulombabstoßung und $\langle r^2 \rangle_d$ der Anteil aufgrund des diffusen Kernrandes. Die Beiträge von $\langle r^2 \rangle_r$ und $\langle r^2 \rangle_d$ sind gegenüber dem Beitrag von $\langle r^2 \rangle_u$ klein.

Bis hierher wurde davon ausgegangen, daß der Kern eine kugelsymmetrische Gestalt aufweist. In einer Verallgemeinerung des sphärischen Droplet-Modells werden beim Droplet-Modell /MS 74, MS 83/ Deformationen des Kerns zugelassen. Als Konsequenz aus dem Vorhandensein der Kerndeformationen ergeben sich zusätzliche Beiträge zu den Anteilen $\langle r^2 \rangle_u$ und $\langle r^2 \rangle_r$ des mittleren quadratischen Kernladungsradius (s. Gl. 7.12). Diese zusätzlichen Beiträge werden hier jedoch nur über theoretische Berechnungen der Kerndeformationen erfaßt.

Ein anderer Weg, die Beiträge der Kerndeformationen zum mittleren quadratischen Kernladungsradius zu berücksichtigen, ist die Einführung eines Korrekturterms. Der Vorteil dieser Methode besteht darin, daß der Korrekturterm auf experimentell bestimmbare Größen zurückgeführt werden kann. Die Änderung des mittleren quadratischen Kernladungsradius ergibt sich hierbei zu /GS 68/:

$$\delta \langle r^2 \rangle_{\text{Def.}} = \delta \langle r^2 \rangle_{\text{Sph.}} + \langle r^2 \rangle_{\text{Sph.}} \frac{5}{4\pi} \sum_i \delta \langle \beta_i^2 \rangle \quad (7.13)$$

Dabei ist $\delta \langle \beta_i^2 \rangle$ die Änderung der mittleren quadratischen $2i$ -Pol-Deformation des Kerns. Der Hauptanteil der Korrekturen wird durch den Beitrag der Quadrupoldeformationen (β_2 -Werte) aufgebracht. Einen kleineren, in dieser Massenregion aber im Grunde nicht zu vernachlässigenden Anteil, stellen die Beiträge der Oktupol- (β_3 -Werte) und Hexadekupoldeformationen (β_4 -Werte) dar. Die Diskussion muß sich jedoch hier auf die Beiträge durch die Quadrupoldeformation beschränken, da die Werte für die Deformationen höherer Ordnung nicht bzw. nur ungenau bekannt sind /BGF 73/. Die Ergebnisse der Berechnungen der $\delta \langle r^2 \rangle$ -Werte mit dem Droplet-Modell sind in Tab. 7.2. zusammengestellt. Sie werden dort mit den experimentell ermittelten $\delta \langle r^2 \rangle$ -Werten verglichen. Es werden nur die $\delta \langle r^2 \rangle$ -Werte für die geraden Isotope verglichen, da nur hier die β_2 -Werte hinreichend genau bekannt sind. Die β_2 -Werte sind aus experimentell bestimmten, reduzierten elektrischen Quadrupolübergangsraten (BE_2 -Werten) berechnet worden /RMM 87/. Bei der Berechnung der β_2 -Werte lag die Modellannahme eines deformierten Kerns zugrunde, der

eine homogene Ladungsverteilung aufweist und einen scharf definierten Rand hat.

Der Vergleich der experimentell ermittelten $\delta\langle r^2 \rangle$ -Werte mit den aus dem Droplet-Modell berechneten Werten ergibt eine gute Übereinstimmung. Im Droplet-Modell läßt sich also die Zunahme der mittleren quadratischen Kernladungsradien der Thorium-Isotope mit der Massenzahl A folgendermaßen verstehen: Etwa die Hälfte der Zunahme von $\langle r^2 \rangle$ entsteht durch die Ausdehnung der Ladungsverteilung der Protonen beim Hinzufügen von Neutronen. Die restliche Zunahme von $\langle r^2 \rangle$ wird bewirkt durch die von A = 228 bis A = 232 stetig zunehmende Kerndeformation.

Tab. 7.2: Vergleich der experimentell bestimmten $\delta\langle r^2 \rangle$ -Werte mit Droplet-Modellrechnungen für die geraden Isotope ^{228}Th , ^{230}Th und ^{232}Th . In der zweiten Spalte befinden sich die nach dem sphärischen Droplet-Modell berechneten $\delta\langle r^2 \rangle$ -Werte. In der Spalte 3 sind die Quadrupoldeformationsparameter (β_2 -Werte) aufgelistet (/RMM 87/). In Spalte 4 befindet sich der Beitrag zu $\delta\langle r^2 \rangle$, der aus der Änderung der Quadrupoldeformation entsteht. Die Summe beider Anteile (Spalten 2 und 4) sind in Spalte 5 aufgelistet. Die experimentellen $\delta\langle r^2 \rangle$ -Werte befinden sich in der letzten Spalte. Die im Droplet-Modell berechneten $\delta\langle r^2 \rangle$ -Werte sind mit einer gewissen Unsicherheit behaftet, die von der gleichen Größenordnung ist wie die Fehler der experimentellen Werte. Diese Unsicherheit entsteht aus der Genauigkeit, mit der die β_2 -Werte bestimmt worden sind.

| A | Sphär. Droplet- Modell $\delta\langle r^2 \rangle_{A,232}$ [fm ²] | β_2 | Korrekturen für Quadru- poldeform. [fm ²] | Droplet- Modell $\delta\langle r^2 \rangle_{A,232}$ [fm ²] | Exp. Werte $\delta\langle r^2 \rangle_{A,232}$ [fm ²] |
|-----|---|-----------|--|---|---|
| 232 | 0 | 0,2608 | 0 | 0 | 0 |
| 230 | -0,105 | 0,2441 | -0,109 | -0,214 | -0,205(28) |
| 228 | -0,210 | 0,2302 | -0,194 | -0,404 | -0,413(56) |

Betrachtet man die Zunahme der mittleren quadratischen Kernladungsradien bei den Thorium-Isotopen genauer, so stellt man fest, daß die Zunahme von Isotop zu Isotop nicht konstant ist, sondern daß ein sogenannter odd-even-staggering-Effekt der Kernladungsradien auftritt. Noch deutlicher wird dieser

Effekt, wenn man sich die Abweichung Δ zwischen dem mittleren quadratischen Kernladungsradius eines Isotops und dem Mittelwert von $\langle r^2 \rangle$ der beiden benachbarten Isotope ansieht:

$$\Delta = \langle r^2 \rangle^A - \frac{1}{2} (\langle r^2 \rangle^{A-1} + \langle r^2 \rangle^{A+1}) \quad (7.14)$$

Die Größe Δ ist für die Thorium-Isotope in Abb. 7.3 dargestellt.

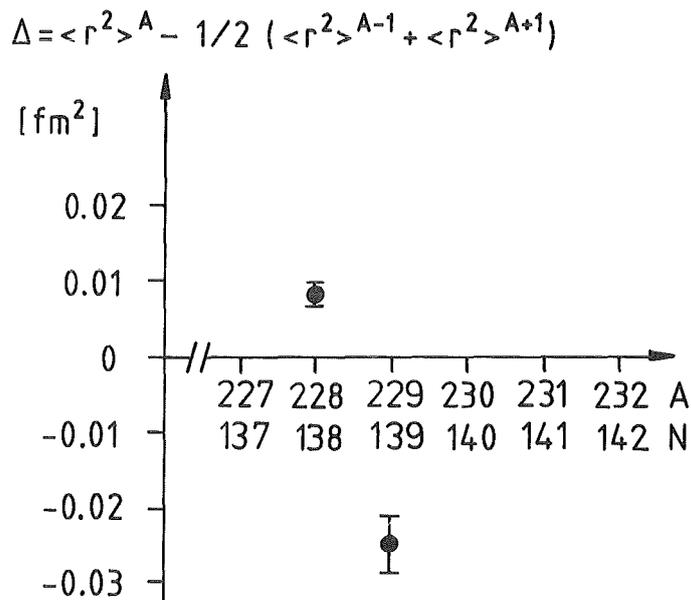


Abb. 7.3: Das odd-even-staggering der Kernladungsradien von Thorium-Isotopen

Es wird beobachtet, daß die Thorium-Isotope mit ungerader Neutronenzahl etwas kleiner sind als der Mittelwert der benachbarten geraden Isotope. Dieses Phänomen wird als normaler odd-even-staggering-Effekt bezeichnet.

Das odd-even-staggering wird bei einer großen Zahl von Nukliden beobachtet und ist ein seit langem bekanntes Problem der Kernphysik. In der Vergangenheit gab es verschiedene Deutungsversuche für dieses Phänomen. So wurde in einigen früheren Arbeiten vermutet, daß die statischen Quadrupoldeformationen bei Isotopen mit ungerader Neutronenzahl schwächer ausgeprägt sind als bei Isotopen mit gerader Neutronenzahl /WHF 53/, bzw. die dynamischen Quadrupoldeformationen (Nullpunktsoszillationen des Kerns) durch die Anwesenheit eines ungepaarten Neutrons "geblockt" werden /So 66, RS 71/. Ein weiterer Ansatz zur Erklärung dieses Phänomens war die Polarisation des

Kernrumpfs durch Valenzneutronen. Diese Polarisation sollte bei einer ungeraden Zahl von Valenzneutronen weniger stark ausgeprägt sein als bei einer geraden Zahl /Za 71, Ta 84/. Eine kürzlich versuchte Deutung dieses Effekts /ZRS 87, RSZ 88/ gibt das experimentell beobachtete odd-even-staggering einer Reihe von Kernen, z.B. Pb, Hg, Sn /ZRS 87/ gut wieder. Die Autoren zeigen, daß mit einer geeigneten zusätzlichen Drei- oder Vierteilchenkraft in der effektiven Wechselwirkung der Nukleonen das normale odd-even-staggering erklärt werden kann. Der entscheidende Ansatz war hierbei, die Tiefe des Protonen-Einteilchenpotentials in Abhängigkeit von der Neutronenpaarungsdichte zu betrachten. Mit diesem Ansatz ergab sich, daß das Potential bei gerader Neutronenzahl flacher ist als bei ungeradem N. Folglich ist der mittlere quadratische Kernladungsradius bei gerader Neutronenzahl etwas größer als der Mittelwert der benachbarten ungeraden Isotope.

Einige interessante Aspekte ergeben sich, wenn man die $\delta\langle r^2 \rangle$ -Werte des Thoriums ($Z = 90$) mit denen benachbarter Elemente vergleicht. Es liegen $\delta\langle r^2 \rangle$ -Werte von Radon ($Z = 86$), Francium ($Z = 87$) und Radium ($Z = 88$) vor /CTT 85, WAK 87, BAN 88/, die mittels on-line-Laserspektroskopie an einem Atomstrahl bestimmt worden sind. Die Ergebnisse (entnommen aus /Ot 88/) werden zusammen mit den $\delta\langle r^2 \rangle$ -Werten von Thorium in Abb. 7.4 gezeigt. Es ist dort die differentielle Änderung der mittleren quadratischen Kernladungsradien $\delta\langle r^2 \rangle_{N,N-1}$ in Abhängigkeit von der Neutronenzahl N aufgetragen. In dieser Darstellung äußert sich der normale odd-even-staggering-Effekt in folgender Weise: Die Zunahme von $\langle r^2 \rangle$ ist größer von ungeradem zu geradem N (offene Symbole in Abb. 7.4) als von geradem zu ungeradem N (ausgefüllte Symbole). Das normale odd-even-staggering wird bei Rn, Fr und Ra unterhalb des Neutronenschalenabschlusses bei $N = 126$ und bei Neutronenzahlen $N \geq 139$ beobachtet. Bei diesen Elementen tritt dagegen zwischen $N = 133$ und 138 ein neues Phänomen auf: Hier ist das odd-even-staggering der Kernladungsradien invertiert. D.h. hier sind die Isotope mit ungerader Neutronenzahl größer als der Mittelwert der benachbarten geraden Isotope. Das invertierte odd-even-staggering bei Kernen in diesem Massenbereich ist ein Hinweis auf die Existenz einer stabilen intrinsischen Oktupoldeformation der Kerne /Ot 88/.

Es gibt in der Literatur einige theoretische Arbeiten, die eine stabile intrinsische Oktupoldeformation der Kerne in der Ra-Th-Gegend um $A \approx 225$ vorhersagen /Ch 80, LSM 82, Ra 83, LS 84, NOR 84, RBS 86, REB 87/. Gestützt wird diese Vorhersage durch folgende experimentelle Befunde:

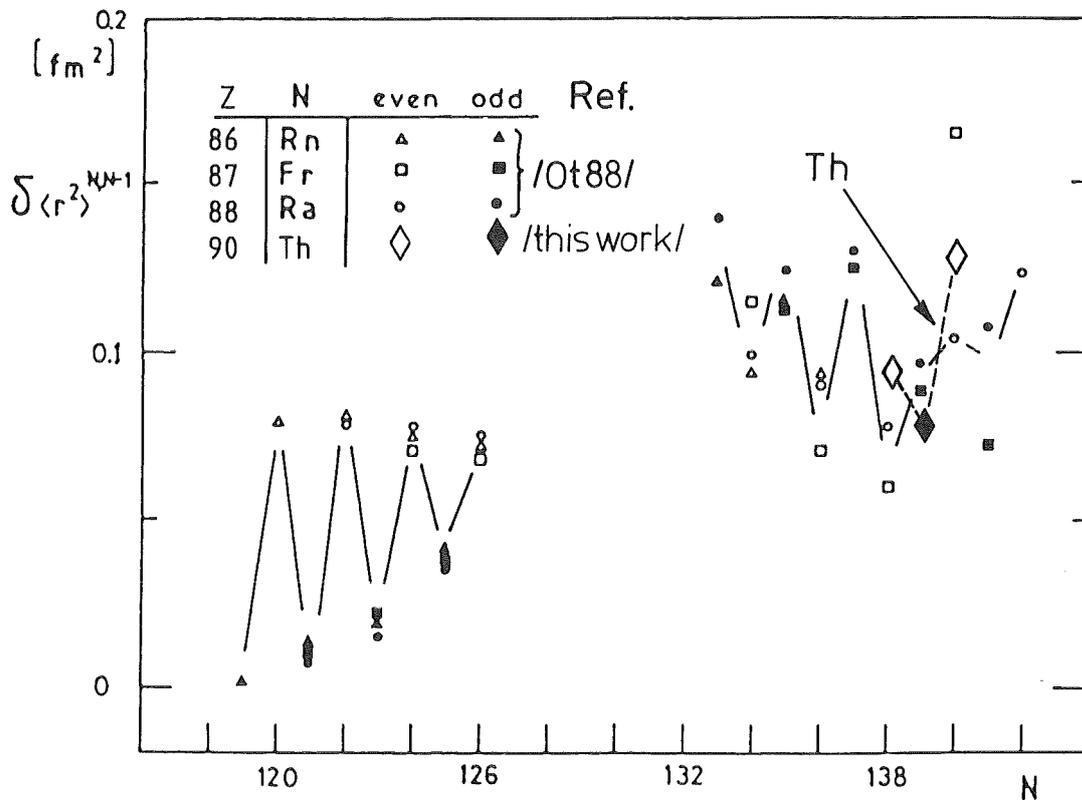


Abb. 7.4: Differentielle Änderungen der mittleren quadratischen Kernladungsradien $\delta\langle r^2 \rangle^{N,N-1}$ in Abhängigkeit von der Neutronenzahl für Radon, Francium, Radium (alle entnommen aus /Ot 88/) und für Thorium entsprechend dieser Arbeit.

-Bei g,g-Kernen in der Ra-Th-Gegend treten neben Rotationsbanden mit positiver Parität Rotationsbanden mit negativer Parität auf, deren 1⁻-Bandenköpfe ungewöhnlich tiefe Energien haben /WDL 83, HSG 84, BBD 85, SLA 86/. Diese ungewöhnlich niedrigen Energien der 1⁻-Zustände werden von theoretischen Arbeiten als Hinweis auf eine Oktupoldeformation gedeutet.

-Die Kernspins der ungeraden Ra-Isotope /AKN 83, WAK 87/ können in der Nilsson-Einteilchenpotential-Beschreibung nur erklärt werden, wenn man von einer stabilen Oktupoldeformation der Kerne ausgeht /LS 84, Ot 88/.

-Beobachtung des invertierten odd-even-staggerings bei Rn-, Fr- und Ra-Isotopen. Nach theoretischen Vorhersagen /LS 84/ sollte die Oktupoldeformation bei Kernen mit ungeradem N stärker sein als bei Kernen mit geradem N. D.h. bei Kernen mit ungeradem N ist der Deformationsparameter β_3 größer als bei

Kernen mit geradem N . Damit ergibt sich ein zusätzliches Staggering der Kernladungsradien (vgl. Gl. 7.14), das im Vergleich zum normalen odd-even-staggering das andere Vorzeichen hat. Dadurch kann der normale odd-even-staggering-Effekt der Kernladungsradien kompensiert oder gar übertroffen werden.

Ein interessanter Unterschied zwischen Thorium einerseits und Radium und Francium andererseits ergibt sich (vgl. Abb. 7.4) bei der Neutronenzahl $N = 138$. Bei Ra und Fr sind die jeweiligen Isotope mit $N = 138$ kleiner als der Mittelwert der benachbarten Isotope mit $N = 137$ und $N = 139$. Dies folgt aus der Zunahme von $\delta \langle r^2 \rangle_{N,N-1}$ von $N = 138$ nach $N = 139$. Das bedeutet, daß das odd-even-staggering hier invertiert ist. Beim Thorium-Isotop mit $N = 138$ stellt man jedoch fest, daß dieses Isotop größer ist als der Mittelwert der benachbarten Isotope; d.h. hier ist das odd-even-staggering normal. Setzt man einmal voraus, daß das odd-even-staggering tatsächlich als Indikator für den Grad der Oktupoldeformation von Kernen dienen kann, dann kann man aus diesem Ergebnis ableiten, daß bei der Neutronenzahl 138 bei Thorium die Oktupoldeformation schwächer ist als bei Radium bzw. Francium. Die Stärke der Oktupoldeformation reicht bei diesem Thorium-Isotop nicht aus, um das normale odd-even-staggering zu invertieren.

Literaturverzeichnis

- /ABC 87/ M. Anselment, K. Bekk, S. Chongkum, S. Göring, A. Hanser, H. Hoeffgen, W. Kälber, G. Meisel, and H. Rebel, *Z. Phys.* **A326** (1987) 493
- /ABH 86/ M. Anselment, K. Bekk, A. Hanser, H. Hoeffgen, G. Meisel, S. Göring, H. Rebel, and G. Schatz, *Phys. Rev.* **C34** (1986) 1052
- /AFG 86/ M. Anselment, W. Faubel, S. Göring, A. Hanser, G. Meisel, H. Rebel, and G. Schatz, *Nucl. Phys.* **A451** (1986) 471
- /AHS 87/ P. Aufmuth, K. Heilig, and A. Steudel, *At. Data Nucl. Data Tabl.* **37** (1987) 455
- /AKN 83/ S.A. Ahmad, W. Klempt, R. Neugart, E.W. Otten, K. Wendt, C. Ekström, and The Isolde Collaboration, *Phys. Lett.* **133B** (1983) 47
- /BAN 88/ W. Borchers, E. Arnold, W. Neu, R. Neugart, G. Ulm, K. Wendt, *Verhandl. DPG (VI)* **23** (1988) 195, G-10.3
- /BBD 85/ W. Bonin, H. Backe, M. Dahlinger, S. Glienke, D. Habs, E. Hanelt, E. Kankeleit, and B. Schwartz, *Z. Phys.* **A322** (1985) 59
- /BBP 85/ S.A. Blundell, P.E.G. Baird, C.W.P. Palmer, D.N. Stacey, G.K. Woodgate, and D. Zimmermann, *Z. Phys.* **A321** (1985) 31
- /BGF 73/ C.E. Bemis, Jr., F.K. McGowan, J.L.C. Ford, Jr., W.T. Milner, P.H. Stelson, and R.L. Robinson, *Phys. Rev.* **C8** (1973) 1466
- /Br 81/ S. Brandt, "Datenanalyse: mit statistischen Methoden und Computerprogrammen", Bibliographisches Institut, Mannheim, Wien, Zürich (1981)
- /BS 68/ J. Blaise und A. Steudel, *Z. Phys.* **209** (1968) 311
- /CAF 77/ R.R. Chasman, I. Ahmad, A.M. Friedman, and J.R. Erskine, *Rev. Mod. Phys.* **49** (1977) 833
- /Ch 80/ R.R. Chasman, *Phys. Lett.* **96B** (1980) 7
- /Co 79/ G.A. Cowan, in *Los Alamos Report* **1721** (1979), S. 160
- /CTT 85/ A. Coc, C. Thibault, F. Touchard, H.T. Duong, P. Juncar, S. Liberman, J. Pinard, J. Lermé, J.L. Vialle, S. Büttgenbach, A.C. Mueller, A. Pesnelle, and The Isolde Collaboration, *Phys. Lett.* **163B** (1985) 66
- /De 67/ H.G. Dehmelt, in *Adv. At. Mol. Phys.* **3**, Academic Press, New York (1967), S. 53

- /De 69/ H.G. Dehmelt, in Adv. At. Mol. Phys. **5**, Academic Press, New York (1969), S. 109
- /Eg 64/ V.N. Egorov, Opt. Spec. **16** (1964) 301
- /EP 83/ R. Engleman, Jr., and B.A. Palmer, J. Opt. Soc. Am. **73** (1983) 694
- /EP 84/ R. Engleman, Jr., and B.A. Palmer, J. Opt. Soc. Am. **B1** (1984) 782
- /ESV 74/ R. Engfer, H. Schneuwly, J.L. Vuilleumier, H.K. Walter and A. Zehnder, At. Data Nucl. Data Tabl. **14** (1974) 509
- /Fa 87/ W. Faubel, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Institut für Radiochemie, private Mitteilung 1987
- /Fi 59/ E. Fischer, Z. Phys. **156** (1959) 1
- /FMN 65/ J. Faust, R. Marrus, and W.A. Nierenberg, Phys. Lett. **16** (1965) 71
- /GLV 74/ S. Gerstenkorn, P. Luc, J. Verges, D.W. Englekemeir, J.E. Gindler et F.S. Tomkins, Journal de Physique **35** (1974) 483
- /GS 68/ A.F. Golovin, and A.R. Striganov, Sov. Phys. Uspekhi **10** (1967) 658
- /HS 74/ K. Heilig, and A. Steudel, At. Data Nucl. Data Tabl. **14** (1974) 613
- /HSG 84/ K. Hardt, P. Schüler, C. Günther, J. Recht, K.P. Blume, and H. Wilzek, Nucl. Phys. **A419** (1984) 34
- /IW 77/ R. Iffländer, and G. Werth, Metrologia **13** (1977) 167
- /JFF 74/ C.W. De Jager, H. De Vries, and C. De Vries, At. Data Nucl. Data Tabl. **14** (1974) 479
- /KI 88/ H.J. Kluge, Phys. Scripta **T22** (1988) 85
- /Ko 56/ H. Kopfermann, "Kernmomente", Akademische Verlagsgesellschaft Frankfurt a.M. (1956)
- /KP 79/ R.D. Knight, and M.H. Prior, J. Appl. Phys. **50** (1979) 3044
- /Ku 69/ H.G. Kuhn, "Atomic Spectra", Longmans (1969)
- /La 51/ N.W. McLachlan, "Theory and Application of Mathieu Functions", Oxford, At The Clarendon Press (1951)
- /LBK 85/ W. Liewehr, K. Bekk, W. Kälber, G. Meisel, and H. Rebel, in KfK-Report **3969** (1985), S. 68
- /LBK 86/ W. Liewehr, K. Bekk, W. Kälber, G. Meisel, H. Rebel, and A. Sameh, in KfK-Report **4159** (1986), S. 61

- /LC 88/ G.A. Leander, and Y.S. Chen, Phys. Rev. **C37** (1988) 2744
- /LS 84/ G.A. Leander, and R.K. Sheline, Nucl. Phys. **A413** (1984) 375
- /LSM 82/ G.A. Leander, R.K. Sheline, P. Möller, P. Olanders, I. Ragnarsson, and A.J. Sierk, Nucl. Phys. **A388** (1982) 452
- /Ma 77/ C. Maples, Nucl. Data Sheets **22** (1977) 275
- /MS 69/ W.D. Myers, and W.J. Swiatecki, Ann. of Phys. **55** (1969) 395
- /MS 74/ W.D. Myers, and W.J. Swiatecki, Ann. of Phys. **84** (1974) 186
- /MS 83/ W.D. Myers, and K.-H. Schmidt, Nucl. Phys. **A410** (1983) 61
- /Na 86/ J.D. Navratil, in: Ion Exchange Technology in the Nuclear Fuel Cycle, IAEA-TECDOC-365 (1986), S. 177
- /NOR 84/ W. Nazarewicz, P. Olanders, I. Ragnarsson, J. Dudek, G.A. Leander, P. Möller, and E. Ruchowska, Nucl. Phys. **A429** (1984) 269
- /Ot 88/ E.W. Otten, in: Treatise on Heavy-Ion Physics 8, Nuclei far from Stability, Plenum Press, New York, 1988 (in Vorbereitung)
- /Pe 36/ F.M. Penning, Physica **3** (1936) 873
- /POF 58/ W. Paul, O. Osberghaus, E. Fischer, Forschungsber. d. Wirtschafts- und Verkehrsministeriums Nordrh.-Westf. Nr. **415** (1958)
- /Ra 83/ I. Ragnarsson, Phys. Lett. **130B** (1983) 353
- /RBP 83/ W. Ruster, J. Bonn, P. Peuser, and N. Trautmann, Appl. Phys. **B30** (1983) 83
- /RBS 86/ P. Rozmej, K. Böning, A. Sobiczewski, "On the Octupole Deformation in the Ra-Th-Region", Proc. XXIV Int. Winter Meeting on Nuclear Physics, Bormio, Italy (1986)
- /REB 87/ L.M. Robledo, J.L. Egido, J.F. Berger, and M. Girod, Phys. Lett. **187B** (1987) 223
- /Ri 88/ J. Rink, Diplomarbeit Universität Karlsruhe 1988 (in Vorbereitung)
- /RMM 87/ S. Raman, C.H. Malarkey, W.T. Milner, C.W. Nestor, Jr., and P.H. Stelson, At. Data Nucl. Data Tabl. **36** (1987) 1
- /RS 71/ B.S. Reehal, and R.A. Sorensen, Nucl. Phys. **A161** (1971) 385
- /RSZ 88/ U. Regge, R. Stapel, and D. Zawischa, Verhandl. DPG (VI) **23** (1988) 28, B-2.6

- /SLA 86/ P. Schüler, Ch. Lauterbach, Y.K. Agarwal, J. De Boer, K.P. Blume, P.A. Butler, K. Euler, Ch. Fleischmann, C. Günther, E. Hauber, H.J. Maier, M. Marten-Tölle, Ch. Schandera, R.S. Simon, R. Tölle, and P. Zeyen, *Phys. Lett.* **174B** (1986) 241
- /SN 53/ G.L. Stukenbroeker, and J.R. McNally, Jr., *J. Opt. Soc. Am.* **43** (1953) 36
- /So 66/ R.A. Sorensen, *Phys. Lett.* **21** (1966) 333
- /SSW 81/ H. Schaaf, U. Schmeling, and G. Werth, *Appl. Phys.* **25** (1981) 249
- /St 84/ A. Steiger, *KfK-Bericht* **3820** (1984)
- /Ta 84/ I. Talmi, *Nucl. Phys. A* **423** (1984) 189
- /TFR 85/ G. Torbohm, B. Fricke, and A. Rosén, *Phys. Rev.* **A31** (1985) 2038
- /TN 80/ P.E. Toschek, W. Neuhauser, *Phys. Bl.* **36** (Nr.7) (1980) 198
- /VE 60/ E.A. VERNYI, and V.N. Egorov, *Opt. Spec.* **9** (1960) 367
- /WAK 87/ K. Wendt, S.A. Ahmad, W. Klempt, R. Neugart, E.W. Otten, and H.H. Stroke, *Z. Phys* **D4** (1987) 227
- /WDL 83/ D. Ward, G.D. Dracoulis, J.R. Leigh, R.J. Charity, D.J. Hinde, and J.O. Newton, *Nucl. Phys.* **A406** (1983) 591
- /We 84/ G. Werth, in *Progr. At. Spectr. Part C*, Eds. H.J. Beyer and H. Kleinpoppen, Plenum Press, New York (1984), S. 151
- /WHF 53/ L. Wilets, D.L. Hill, and K.W. Ford, *Phys. Rev.* **91** (1953) 1488
- /WI 81/ D.J. Wineland, and Wayne M. Itano, *Phys. Lett.* **82A** (1981) 75
- /Wi 88/ M. Wilson, University of London, private Mitteilung 1988
- /WID 83/ D.J. Wineland, Wayne M. Itano, and R.S. Van Dyck, Jr., *Adv. At. Mol. Phys.* **19** (1983) 135
- /WSL 59/ R.F. Wuerker, H. Shelton, R.V. Langmuir, *J. Appl. Phys.* **30** (1959) 342
- /Za 71/ L. Zamick, *Ann. of Phys.* **66** (1971) 784
- /ZC 74/ R. Zalubas, and C.H. Corliss, *J. Res. Nat. Bur. Stand.* **78A** (1974) 163
- /Zi 85/ D. Zimmermann, *Z. Phys.* **A321** (1985) 23
- /ZRS 87/ D. Zawischa, U. Regge, and R. Stapel, *Phys. Lett.* **185B** (1987) 299

Danksagung

Die vorliegende Arbeit entstand im Institut für Kernphysik des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Herrn Prof. Dr. G. Schatz danke ich für sein wohlwollendes Interesse an der Fragestellung dieser Arbeit und dafür, daß er die Durchführung dieser Arbeit ermöglichte. Dem Kernforschungszentrum Karlsruhe gilt mein Dank für die finanzielle Unterstützung durch ein Stipendium.

Die dieser Arbeit zugrunde liegenden Experimente wurden gemeinsam mit den Herren Dr. K. Bekk, Dr. S. Göring, Dr. A. Hanser, Priv. Doz. Dr. G. Meisel, Prof. Dr. H. Rebel, cand. phys. J. Rink, Prof. Dr. G. Schatz und Dr. R.C. Thompson am Institut für Kernphysik des Kernforschungszentrums Karlsruhe durchgeführt, für deren Unterstützung ich hiermit danken möchte.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. H. Rebel für die Anregung zu diesem Thema und für seine vielen wertvollen Hinweise und Erläuterungen, sowie Herrn Priv. Doz. Dr. G. Meisel für die zahlreichen Diskussionen und Anregungen und für die Unterstützungsbereitschaft in allen Fragen dieser Arbeit.

Herrn cand. phys. J. Rink danke ich für die Zusammenarbeit bei dem Aufbau und der Entwicklung der Methode der Zweistufenanregung sowie für die Unterstützung bei den damit durchgeführten Messungen.

Herrn Dr. R.C. Thompson (Blackett Laboratory, Imperial College, London) danke ich dafür, daß er während seines einmonatigen Aufenthalts als Gastwissenschaftler im Institut für Kernphysik wertvolle Hinweise und Anregungen bei den Experimenten mit der Zweistufenanregung sowie bei der Auswertung der dort aufgenommenen Spektren gegeben hat.

Bei Herrn Dr. W. Faubel (Kernforschungszentrum Karlsruhe, Institut für Radiochemie) möchte ich mich für die Herstellung verschiedener Thorium-Isotopenproben bedanken.