

KfK 4993
Februar 1992

**Dopplerreduzierende
laserspektroskopische
Methoden an gespeicherten
Ionen zur Bestimmung der
Isotopieverschiebung von
Hafnium**

J. Rink
Institut für Kernphysik

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
Institut für Kernphysik

KfK 4993

DOPPLERREDUZIERENDE LASERSPEKTROSKOPISCHE METHODEN
AN GESPEICHERTEN IONEN
ZUR BESTIMMUNG DER ISOTOPIEVERSCHIEBUNG VON HAFNIUM

Jürgen Rink

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

Im Rahmen der Bestimmung von Kerngrößen an gespeicherten Hafniumionen mit der Methode der Laserspektroskopie wurde die Isotopieverschiebung der Isotope mit gerader Massenzahl von ^{172}Hf bis ^{180}Hf gemessen. Der Wert für das Isotop ^{172}Hf und damit die Änderung des mittleren quadratischen Kernladungsradius war vorher noch unbekannt.

Die Hafniumionen waren in einer Paulschen Ionenfalle gespeichert, die Speicherdauer betrug mehr als vier Stunden. Der große Vorteil der Ionenfalle liegt in der geringen erforderlichen Probengröße, bei Hafnium genügt eine Ausgangsmenge von 10 pg, um ein Isotop in einer sonst leeren Falle nachweisen zu können.

Die Linienbreite der Spektren ist dopplerverbreitert durch die Geschwindigkeit der Ionen aufgrund des speichernden Wechselfeldes. Die damit erreichte Auflösung reicht nicht aus, um bei Hafniumionen die Isotopieverschiebung oder Hyperfeinstruktur-Aufspaltung zu messen. Es wurden deshalb neue Methoden entwickelt, mit denen die Linienbreite reduziert werden kann, indem die Ionen nur in bestimmten Phasen zum speichernden Wechselfeld mit Licht angeregt wurden. Die Breite der Spektren geht dann um einen Faktor drei zurück, die Signalrate nimmt dabei höchstens um die Hälfte ab.

Auch die Dopplerverbreiterung von Zwei-Stufen-Spektren, die durch die Geschwindigkeitsänderung der Ionen durch das angelegte Feld verursacht wird, konnte mit der Methode der gepulsten Anregung bis hin zur natürlichen Linienbreite reduziert werden. Die Signalrate blieb dabei fast gleich.

Darüber hinaus wurde gezeigt, daß mit diesen neuen laserspektroskopischen Methoden bislang schwer zugängliche Untersuchungen der Ionenbewegung in der Ionenfalle vorgenommen werden können.

Abstract

Methods reducing doppler broadening in laserspectroscopy of stored ions and the isotope shifts of hafnium

In context to determine nuclear parameters of stored hafnium ions with laser-spectroscopic methods the isotope shifts of the isotopes with even mass numbers from ^{172}Hf to ^{180}Hf has been measured. The value for the isotope ^{172}Hf and with it the change of the mean square charge radius has been unknown so far.

Hafnium ions were stored in a Paul trap for more than four hours. The advantage in using an ion trap is the small necessary sample size. In the case of hafnium an amount of 10 pg is sufficient.

Because of the ion velocity the linewidth of a spectrum is dopplerbroadened. This is mainly due to the applied storage voltage. The spectral resolution is not enough to measure isotope shift and hyperfine structure of hafnium ions. Therefore new methods have been developed to reduce the linewidth by excitation of the ions with light only in definite phases of the applied alternating voltage. The width of the spectra is then reduced to a factor three. The signal strength decreases not more than 50%.

Also the dopplerwidth of two-step-spectra, caused by velocity changing due to the applied field, has been reduced with the method of pulsed excitation. In this case the natural linewidth has been observed. The signal strength decreases not significantly.

In addition it has been shown that it is possible with these new spectroscopic methods to investigate the ion motion in an rf ion trap.

Inhaltsverzeichnis

| | |
|---|-----------|
| 1. Einleitung | 1 |
| 2. Experimenteller und methodischer Überblick | 3 |
| 3. Die Ionenfalle | 7 |
| 3.1 Theoretische Beschreibung der Ionenfalle | 7 |
| 3.2 Aufbau der Ionenfalle | 12 |
| 3.3 Erzeugung der Hafniumionen und Präparation der Hafniumisotope | 16 |
| 3.4 Speicherzeiten in einer Ionenfalle | 18 |
| 3.4.1 Speicherdauer verschiedener Ionensorten | 18 |
| 3.4.2 Speicherdauer der Hafniumionen | 20 |
| 3.4.3 Hafniummoleküle in der Ionenfalle | 22 |
| 4. Laserspektroskopie | 27 |
| 4.1 Laseraufbau und Lasersteuerung | 27 |
| 4.1.1 Die Lasersysteme für die Experimente an Hafniumionen | 27 |
| 4.1.2 Die Lasersysteme für die Thorium-Experimente | 30 |
| 4.1.3 Frequenzstabilisierung und Durchstimmung | 31 |
| 4.1.4 Frequenzmessung | 31 |
| 4.2 Lichtübertragung und Lichtmodulation | 32 |
| 4.3 Termschemata und Nachweiskanäle für die Spektroskopie | 33 |
| 4.3.1 Spektroskopie an Hafniumionen | 33 |
| 4.3.2 Spektroskopie an Thoriumionen | 36 |
| 4.3.3 Vergleich der Zwei-Stufen-Anregung an Hafnium- und Thoriumionen | 37 |
| 4.4 Nachweis-Empfindlichkeit und spektrale Auflösung | 39 |
| 5. Spektroskopische Methoden an gespeicherten Ionen | 43 |
| 5.1 Vorüberlegungen | 43 |
| 5.2 Dopplerrduzierte Ein-Stufen-Anregung | 44 |
| 5.2.1 Einführung | 44 |
| 5.2.2 Experimenteller Aufbau | 46 |
| 5.2.3 Gepulste Anregung von gespeicherten Ionen | 46 |
| 5.2.4 Untersuchungen zur Ionenbewegung mit gepulster Anregung | 49 |
| 5.3 Dopplerfreie Zwei-Stufen-Anregung | 56 |
| 5.3.1 Zwei-Stufen-Anregung an gespeicherten Ionen | 56 |

| | | |
|-----------|---|-----------|
| 5.3.2 | Dopplerfreies Zwei-Stufen-Spektrum | 60 |
| 5.3.3 | Untersuchungen der Ionenbewegung mit der Zwei-Stufen-Anregung | 64 |
| 5.4 | Überblick über die spektroskopischen Methoden | 70 |
| 5.5 | Zusammenfassung der Untersuchungen zur Ionenbewegung | 71 |
| 6. | Kernladungsradien von Hafniumisotopen | 73 |
| 6.1 | Zur Theorie der Isotopieverschiebung | 73 |
| 6.2 | Messungen und Auswertung | 76 |
| 6.3 | Ausblick auf die Messungen am $I = 16^+$ -Isomer ^{178m}Hf | 80 |
| 7. | Literaturverzeichnis | 83 |

1. Einleitung

Die optische Spektroskopie, insbesondere die Laserspektroskopie, ist eine außerordentlich nützliche, in vieler Hinsicht einzigartige Methode für systematische Untersuchungen der Kernstruktur [De88,Re88]. Sie liefert Informationen über Größe und Gestalt der Ladungsverteilung der Atomkerne, da die beobachteten Isotopieverschiebungen von optischen Übergängen die Änderung des mittleren quadratischen Kernladungsradius widerspiegeln. Aus der bei Kernen mit von Null verschiedenem Kernspin gemessenen Hyperfeinstruktur-Aufspaltung der elektronischen Terme erhält man zusätzlich die Größe der elektromagnetischen Momente des Kerns [Ot88,KR89,KB91]. Die in dieser Weise vorliegenden Daten bilden eine wichtige Grundlage zur Begründung von Kernmodellen. Einer der großen Vorteile der Laserspektroskopie im Vergleich zu anderen Methoden, mit denen sich unter Umständen Kernstrukturdaten direkter bestimmen lassen, ist die große Nachweisempfindlichkeit. Insbesondere bei Probenmengen im Bereich von Mikrogramm und weit darunter ist dies die einzige Methode, um Kernladungsradien zu erhalten.

Im Falle von langlebigen Nukliden läßt sich eine extreme Empfindlichkeit mit der Laserspektroskopie an Ionen in einer Paulschen Falle erreichen. Für spektroskopische Experimente genügen 10^2 bis 10^4 Ionen, falls diese für Stunden gespeichert werden können. Die erforderliche Probengröße wird dann vor allem durch die Effektivität beim Füllen der Ionenfalle bestimmt. Allerdings erscheint bei dieser Methode die durch die Ionenbewegung bedingte starke Verbreiterung der beobachteten Spektrallinien zunächst als großer Nachteil. Die Geschwindigkeitsverteilung der Ionen aufgrund des speichernden Wechselfeldes führt durch den Dopplereffekt zu einer Linienbreite, die mindestens die Größenordnung der Isotopieverschiebung und der Hyperfeinstruktur-Aufspaltung erreicht.

In dieser Arbeit werden Verfahren vorgestellt, mit denen die Dopplerverbreiterung ohne großen Verlust an Nachweisempfindlichkeit reduziert werden kann. In dieser Hinsicht ist eine neue, allgemein anwendbare Methode die gepulste Anregung der Ionen mit Licht im Takt der an der Ionenfalle anliegenden Wechselspannung. Im Gegensatz zu einem Gas, bei dem die Teilchen zu jedem Zeitpunkt die gleiche Geschwindigkeitsverteilung haben, ist bei Ionen in einer Paulschen Ionenfalle die Geschwindigkeitsverteilung zum Teil mit der Oszillation der anliegenden Spannung korreliert. Bei Anregung der Ionen nur in den Maxima der

Wechselspannung nimmt die Breite der Spektrallinie um einen Faktor drei ab, der Signalverlust beträgt dabei höchstens 50%. Dies wird im folgenden mit Experimenten an Thorium- und Hafniumionen demonstriert.

Das Verfahren der gepulsten Anregung wird auch an Zwei-Stufen-Anregungen gezeigt. Die erste Anregung erfolgt bei fester Frequenz und präpariert so Ionen einer bestimmten Geschwindigkeit in den mittleren Zustand, an denen mit der zweiten Anregung ein Spektrum gemessen wird. Während der Aufenthaltsdauer im mittleren Zustand können die Ionen, hervorgerufen durch das äußere Feld, ihre Geschwindigkeit ändern. Dies führt zu einer Verbreiterung des Spektrums. Mit einer Anregung der Ionen nur im Nulldurchgang der Wechselspannung wird die Auflösung nur noch durch die natürlichen Linienbreiten der beteiligten Übergänge begrenzt. Die gepulste Anregung ermöglicht auch eine genauere Untersuchung der Bewegung der Ionenwolke in der Falle. Vergleiche mit der theoretischen Beschreibung der Dynamik eines Ions erlauben so Einblicke in das kollektive Verhalten vieler Ionen.

Die entwickelten spektroskopischen Methoden dienen einem experimentellen Vorhaben, das auf die Bestimmung der Isomerieverschiebung des Hafnium-Isomers $^{178m_2}\text{Hf}$ abzielt. Die Grundzustandseigenschaften der stabilen Hafniumkerne sind bereits bekannt [AH87]. Das gegenwärtige Interesse an Hafnium hängt mit der Existenz besonders langlebiger Hochspin-Isomere zusammen. Das Isomer $^{178m_2}\text{Hf}$, zum Beispiel, hat eine Lebensdauer von 31 Jahren und einen Spin $I = 16^+$ ($K = 16$) [HR73]. Untersuchungen der Kernniveaus von ^{178}Hf zeigen, daß dieses Isomer aus einem Vier-Quasi-Teilchen-Zustand aus zwei Protonen und zwei Neutronen aufgebaut wird [BG76]. Genauere Untersuchungen dieses Isomers können dazu beitragen, Einblicke in das Zusammenspiel von kollektivem Verhalten der Kernnukleonen und den Quasi-Teilchen-Freiheitsgraden zu erhalten. In diesem Zusammenhang ist die Bestimmung der Isomerieverschiebung des Isomers zum ^{178}Hf – Grundzustand und des spektroskopischen Quadrupolmomentes von besonderem Interesse. Zur Zeit werden Anstrengungen unternommen, hinreichend große Proben dieses Isomers an intensiven Beschleunigern herzustellen [Og91]. Solche Proben sollen es ermöglichen, mit den beschriebenen dopplerreducierenden Methoden die Isomerieverschiebung und die Hyperfeinstruktur zu bestimmen. Über die dabei auftretenden Probleme und erste Schritte zur Messung wird berichtet. In diesem Zusammenhang ist im Rahmen der vorliegenden Arbeit die bislang unbekannte Isotopieverschiebung des Isotops ^{172}Hf ($T_{1/2} = 1,87 \text{ a}$) bestimmt worden.

2. Experimenteller und methodischer Überblick

Für die Laserspektroskopischen Untersuchungen an Hafniumionen in einer Paulschen Ionenfalle wurde der in Abbildung 1 gezeigte experimentelle Aufbau verwendet.

Ein Argon-Ionen-Laser pumpt zwei Farbstoff-Ringlaser mit Licht der Wellenlänge 514 nm. Mit Hilfe von geeigneten Kristallen erzeugen beide Ringlaser frequenzverdoppeltes Licht im UV-Bereich, das die gespeicherten Hafnium-Ionen zu Resonanzfluoreszenz anregt. Je nach experimenteller Methode sind dafür bis zu zwei Laser notwendig. Die Auflösung der Spektren zum einen und die Sensitivität des Nachweises zum anderen sind die wichtigsten Kriterien, die die Wahl der Methode bestimmen. Ein Nachweis-System aus optischen Filtern, Photomultiplier und Zähl Elektronik mißt die Stärke des Fluoreszenzlichts der Ionen. Die Signalarate in Abhängigkeit von der Laserfrequenz ergibt dann ein Spektrum. Die Veränderung und die Kontrolle der Laserfrequenz ist computergesteuert. Die Frequenzänderung bestimmt ein Wellenlängen-Meßgerät, das aus einem Monochromator und drei Fabry-Perot-Interferometern besteht.

Experimente wurden nicht nur an Hafniumionen, sondern auch an Thoriumionen durchgeführt. Die besonderen Eigenschaften der ausgewählten und durch Laserlicht angeregten Zustände des Thoriumions erlauben hier bei geeigneter spektroskopischer Methode einen Einblick zum Beispiel in Orts- und Geschwindigkeitsamplituden des gespeicherten Ionen-Ensembles. Der hierfür verwendete experimentelle Aufbau weicht etwas von dem für die Hafnium-Experimente ab und ist in Abbildung 2 dargestellt. Statt eines zweiten Ringlasers kommt ein linearer Farbstofflaser zum Einsatz. Da das benötigte Licht für die Anregung der Thorium-Ionen im roten Spektralbereich liegt, erfolgt die Lichtführung von den Lasern zur Ionenfalle über Einzelmode-Glasfasern.

Ein wichtiges Element des optischen Aufbaus ist ein elektrooptischer Modulator im Strahlengang einer der beiden Laser. Es ist damit insbesondere möglich, gepulstes Licht variabler Länge zu erzeugen, wobei die Pulsfrequenz der 600-kHz-Wechselspannung der Ionenfalle entspricht. Das Licht für die Anregung der Ionen kann so in bestimmten Phasen zu dem elektrischen Feld in der Ionenfalle eingestrahlt werden.

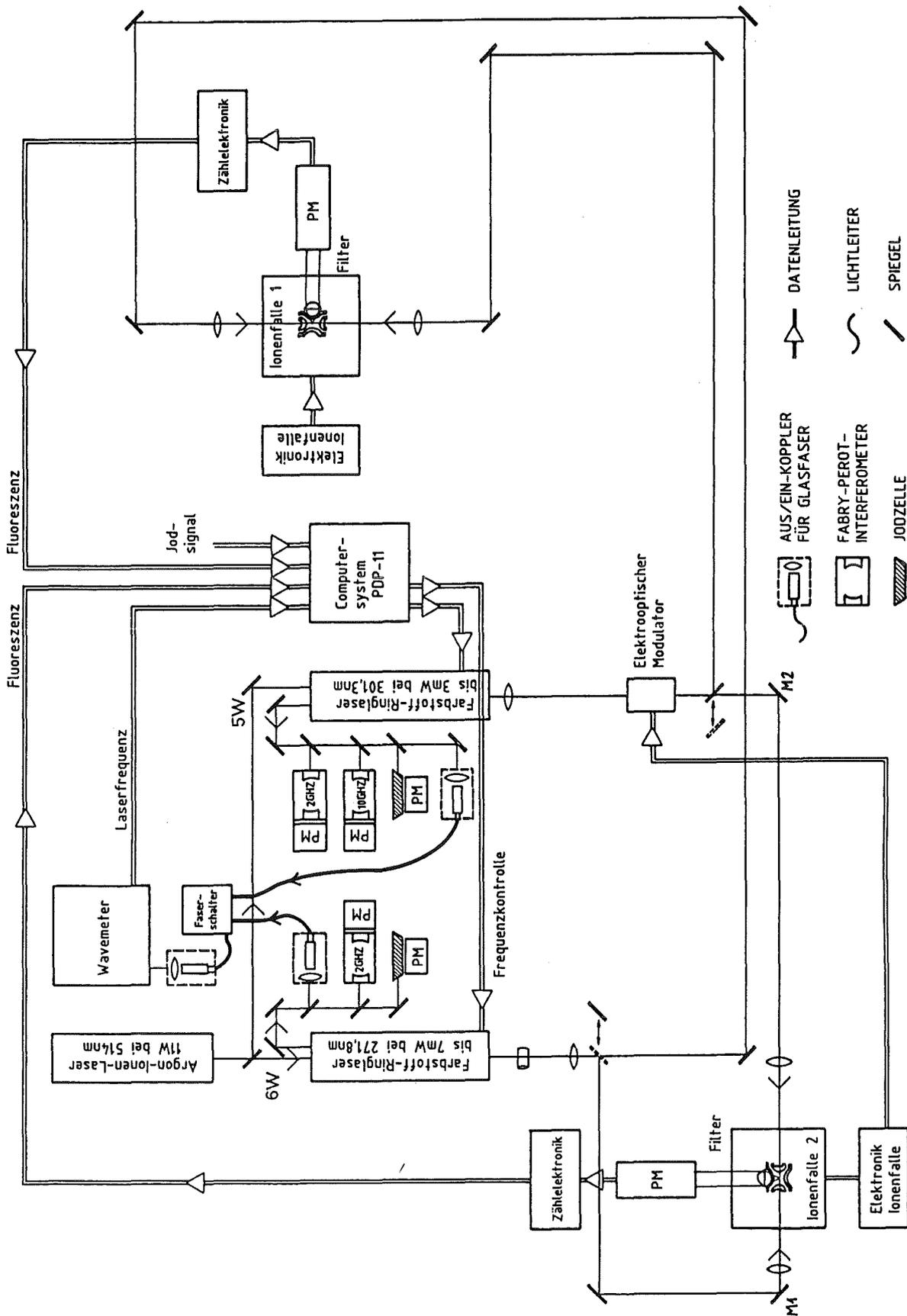


Abbildung 1. Aufbau für die Hafnium-Experimente, um jeweils an einem der beiden zur Verfügung stehenden Ionenfallensysteme laserspektroskopische Messungen durchzuführen.

Die Ionenfalle selbst befindet sich in einem ausheizbaren Ultrahochvakuum-Rezipienten. Für die Experimente stehen zwei Ionenfallensysteme zur Verfügung. Ein Rezipient ist an eine Handschuhbox angebaut, damit auch die laserspektroskopische Untersuchung von radioaktiven Isotopen möglich ist. Die benötigten Probenmengen betragen dafür einige Pikogramm bis wenige Nanogramm.

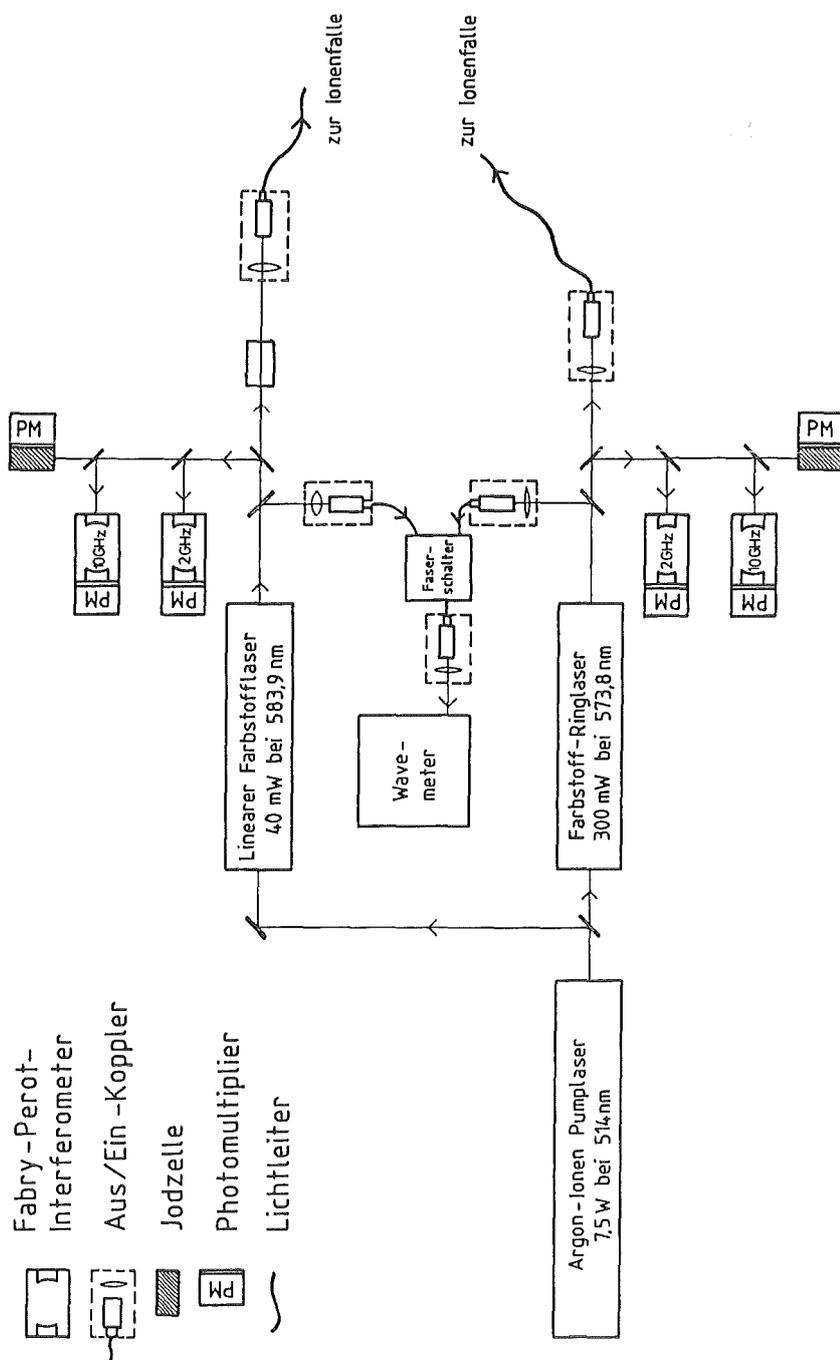
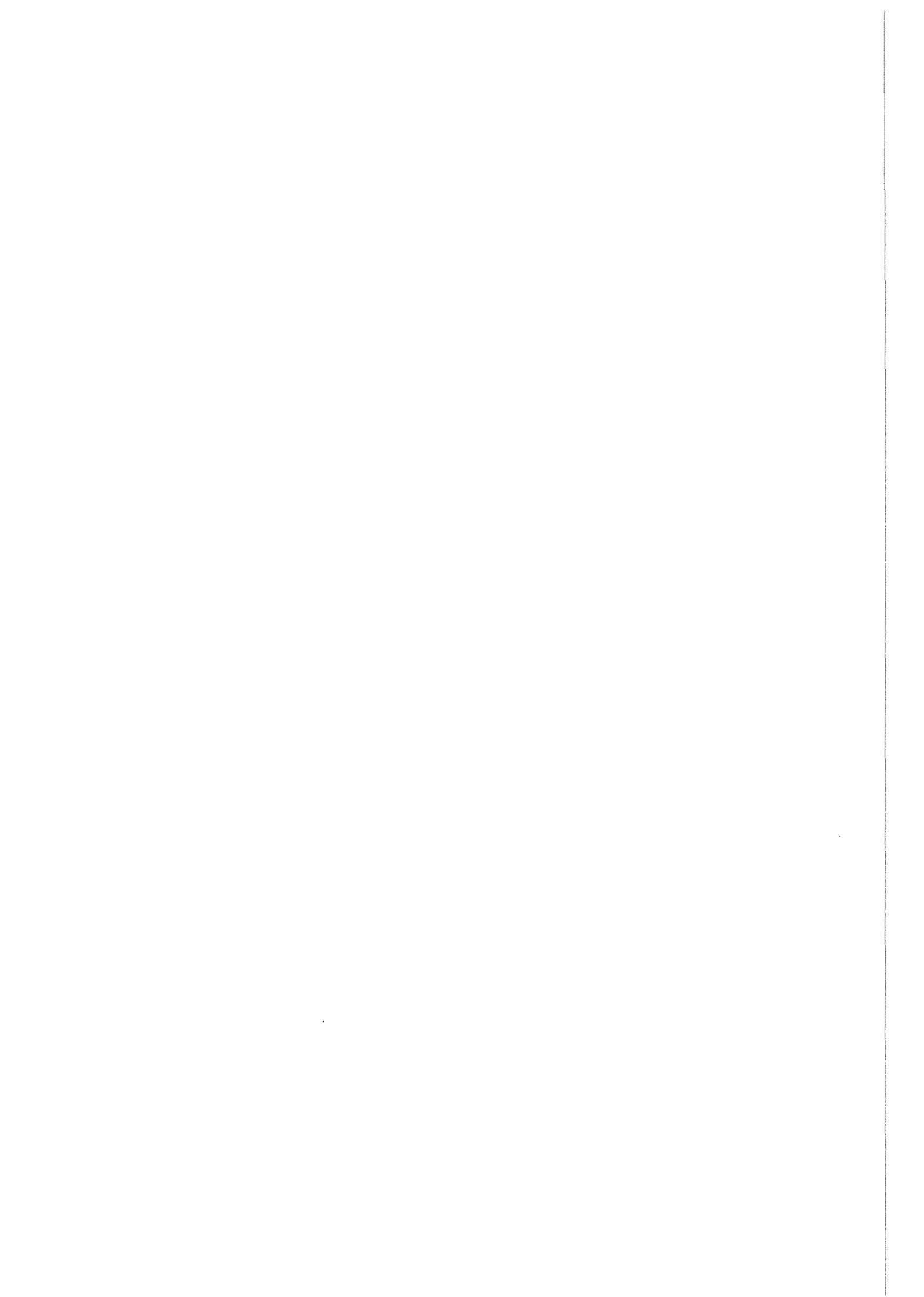


Abbildung 2. Experimenteller Aufbau für laserspektroskopische Messungen an Thoriumionen.



wobei sich $\phi(t)$ aus der angelegten Spannung $U(t)$ und der Geometrie der Elektroden wie folgt ergibt (r_0 ist der Radius der Ringelektrode, die Falle ist rotationssymmetrisch zur x_3 - Achse):

$$\phi(t) = \frac{U(t)}{r_0^2} (x_1^2 + x_2^2 - 2x_3^2).$$

Die Fourierdarstellung der periodischen Spannung mit der Grund-Kreisfrequenz Ω ,

$$U(t) = \frac{\alpha_0}{2} + \sum_{m=1}^{\infty} \alpha_m \cos m\Omega t,$$

eingesetzt in die Bewegungsgleichung, ergibt die Hillschen Differentialgleichungen, die hier in ihrer kanonischen Form angegeben werden [Da76]:

$$\frac{d^2 x_j}{d\xi^2} + \left[\theta_{0,j} + \left(\sum_{m=1}^{\infty} 2\theta_{m,j} \cos 2m\xi \right) \right] x_j = 0$$

$$\xi = \frac{\Omega t}{2}$$

$$\theta_{m,1} = -\frac{4}{m\Omega^2 r_0^2} \alpha_m$$

$$\theta_{m,1} = \theta_{m,2} = -\frac{\theta_{m,3}}{2}$$

Dies ist die Bewegungsgleichung für ein Ion in der Ionenfalle, an der irgendeine periodische Spannung plus eines Gleichspannungsanteils $\theta_{0,j}$ anliegt. Wir betreiben die Paulsche Falle mit

$$U(t) = U_0 + V_0 \cos \Omega t$$

und die Hillschen Differentialgleichungen gehen für $\theta_{m \geq 2, j} = 0$, $\theta_{0,j} = a_j$ und $\theta_{1,j} = -q_j$ über in die Mathieuschen Differentialgleichungen :

$$\frac{d^2 x_j(\xi)}{d\xi^2} + [a_j - 2q_j \cos 2\xi] x_j(\xi) = 0$$

$$a_z = -\frac{8eU_0}{m\Omega^2 r_0^2}, \quad a_x = a_y = -\frac{a_z}{2}$$

$$q_z = +\frac{4eV_0}{m\Omega^2 r_0^2}, \quad q_x = q_y = +\frac{q_z}{2}$$

Zwei linear unabhängige Lösungen dieser Differentialgleichungen sind

$$x_j(\xi) = e^{i\beta_j \xi} \sum_{n=-\infty}^{\infty} c_{n,j} e^{2in\xi} \quad \text{und} \quad x_j(\xi) = e^{-i\beta_j \xi} \sum_{n=-\infty}^{\infty} c_{n,j} e^{-2in\xi}$$

Diese Lösung, in die Mathieschen Differentialgleichungen eingesetzt, ergibt folgende Beziehung:

$$\sum_{n=-\infty}^{\infty} \{c_{n,j}(i\beta + 2in)^2 + [a_j - 2q_j \cos 2\xi] c_{n,j} e^{2in\xi}\} = 0$$

Daraus läßt sich eine Rekursionsformel für die Koeffizienten c_n/c_{n-1} herleiten:

$$\frac{c_n}{c_{n-1}} = \frac{-k_n}{l_n - \frac{k_n k_{n+1}}{l_{n+1} + \frac{k_{n+1} k_{n+2}}{l_{n+2} + \dots}}}, \quad k_n = \frac{q}{(\beta + n)^2}, \quad l_n = 1 - \frac{a}{(\beta + n)^2}$$

Damit können nun die Verhältnisse c_n/c_0 in der gewünschten Genauigkeit berechnet werden. Die Fallenparameter entsprechen denen aus Kap. 3.2 für die Speicherung von Thoriumionen. Für die x- oder y-Richtung in der Falle lauten sie dann

$$\begin{aligned} c_1/c_0 &= -0,048 \\ c_{-1}/c_0 &= -0,072 \\ |c_{|2n| \geq 4}/c_0| &< 10^{-2}. \end{aligned}$$

Die Werte für die Speicherung von Hafniumionen weichen davon nur unwesentlich ab.

Ionen können nur gespeichert werden, wenn die Lösungen der Bewegungsgleichungen beschränkt sind. Dies ist der Fall, wenn β reell ist, d.h. $\text{Im}[\beta]=0$. Die zwei linear unabhängigen Lösungen haben dann folgende Gestalt:

$$x_j(t) = A_j \sum_{n=-\infty}^{\infty} c_{n,j} \cos(2n + \beta_j) \frac{\Omega t}{2} + B_j \sum_{n=-\infty}^{\infty} c_{n,j} \sin(2n + \beta_j) \frac{\Omega t}{2}$$

Die Konstanten A und B hängen dabei nur von den Anfangsbedingungen ab. In die Koeffizienten c_n gehen die Ionenfallenparameter ein.

Um eine Vorstellung von der Bewegung eines einzelnen Ions zu bekommen, genügt es, in der Bewegungsgleichung $x(\xi = \Omega t/2)$ die ersten drei Koeffizienten c_0 , c_1 und c_{-1} zu berücksichtigen. Die weiteren Koeffizienten $c_{|n| \geq 2}$ sind, wie oben gezeigt, wesentlich kleiner und werden vernachlässigt. Die Lösungen der Bewegungsgleichung lauten dann in x- oder in y-Richtung, also in Richtung des Laserstrahls

$$x(t) = A c_0 \left[\cos \frac{\beta \Omega}{2} t + \frac{c_{-1} - c_1}{c_0} \sin \frac{\beta \Omega}{2} t \sin \Omega t + \frac{c_1 + c_{-1}}{c_0} \cos \frac{\beta \Omega}{2} t \cos \Omega t \right] + B c_0 \left[\sin \frac{\beta \Omega}{2} t + \frac{c_1 - c_{-1}}{c_0} \cos \frac{\beta \Omega}{2} t \sin \Omega t + \frac{c_1 + c_{-1}}{c_0} \sin \frac{\beta \Omega}{2} t \cos \Omega t \right]$$

Für die Speicherung von Thoriumionen gilt $c_1/c_0 = -0,048$, $c_{-1}/c_0 = -0,072$ und $\beta_x = 0,2$. Der Betrag von $(c_1 - c_{-1}/c_0)$ ist daher klein gegen den Betrag von $(c_{-1} + c_1)/c_0$ und wird deshalb vernachlässigt. Daraus ergibt sich (Abb.4)

$$\frac{x(t)}{c_0} \simeq A \cos \frac{\beta \Omega}{2} t + B \sin \frac{\beta \Omega}{2} t + \left[A \frac{c_1 + c_{-1}}{c_0} \cos \frac{\beta \Omega}{2} t + B \frac{c_1 + c_{-1}}{c_0} \sin \frac{\beta \Omega}{2} t \right] \cos \Omega t$$

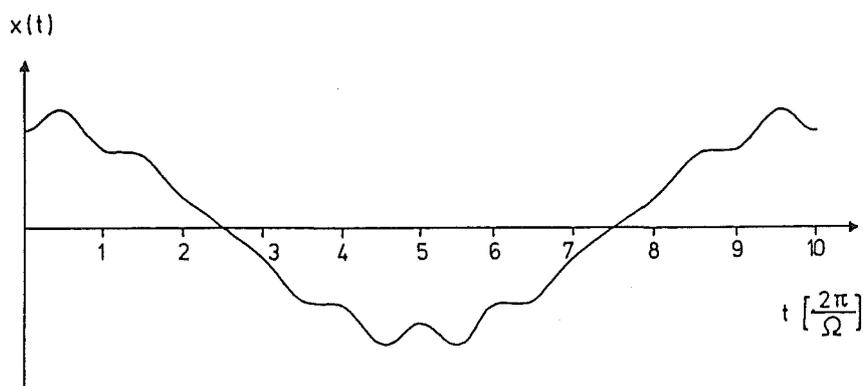


Abbildung 4. Bewegung eines Ions in der Ionenfalle in x-Richtung. Die Fallenparameter entsprechen denen für die Speicherung von Thoriumionen ($a_x = 0,01$, $q_x = 0,23$, $\beta_x = 0,2$).

Die Struktur der Lösung wird in einer Umformung von $x(t)$ besser sichtbar:

$$\frac{x(t)}{c_0} \simeq C \cdot \sin\left(\frac{\beta \Omega}{2} t + \varepsilon\right) + C \frac{c_1 + c_{-1}}{c_0} \cdot \sin\left(\frac{\beta \Omega}{2} t + \varepsilon\right) \cdot \cos \Omega t$$

mit $\varepsilon = \arctan \frac{B}{A}$ und $C = A \cdot \sqrt{1 + \frac{B^2}{A^2}}$

Üblicherweise wird der langsame Bewegungsanteil mit der Amplitude C Makrobewegung genannt. Ihre Frequenz beträgt $\beta \Omega / 2$ und ist damit langsamer als die Frequenz der anliegenden Wechselspannung. Die Bewegung mit der Frequenz Ω des Wechselfeldes wird Mikrobewegung genannt. Ihre Amplitude $C(c_1 + c_{-1})/c_0$ ist

kleiner als die der Makrobewegung. Verschiedene Anfangsbedingungen wirken sich nur in ε und C aus, dadurch ändert sich die Phase der Makrobewegung zur Mikrobewegung. Dies ist auch bei vielen Ionen in der Falle gültig. Jedes Ion hat eine Maximalamplitude C und eine bestimmte Phase ε der Makrobewegung zur Mikrobewegung, insgesamt liegt daher eine ε -Verteilung vor. Vorausgesetzt wurde dabei, daß sich die Bewegung eines Ions nicht auf die übrigen Ionen auswirkt.

Die große Breite der Spektren, die mit den üblichen laserspektroskopischen Methoden gemessen werden, hängt aufgrund des Dopplereffekts unmittelbar mit der Geschwindigkeit der Ionen zusammen. Die Geschwindigkeitsabhängigkeit eines Ions mit der Zeit erhält man durch Ableiten der Lösung der Bewegungsgleichung. Wie schon bei $x(t)$ bestimmen vor allem die ersten drei Koeffizienten den Geschwindigkeitsverlauf (Beiträge mit kleiner Amplitude werden wieder vernachlässigt):

$$\frac{\dot{x}(t)}{c_0} \approx C \frac{\beta\Omega}{2} \cdot \cos\left(\frac{\beta\Omega}{2} t + \varepsilon\right) - \frac{c_1 + c_{-1}}{c_0} C\Omega \cdot \sin\left(\frac{\beta\Omega}{2} t + \varepsilon\right) \cdot \sin \Omega t$$

Dies ist in Abbildung 5 dargestellt.

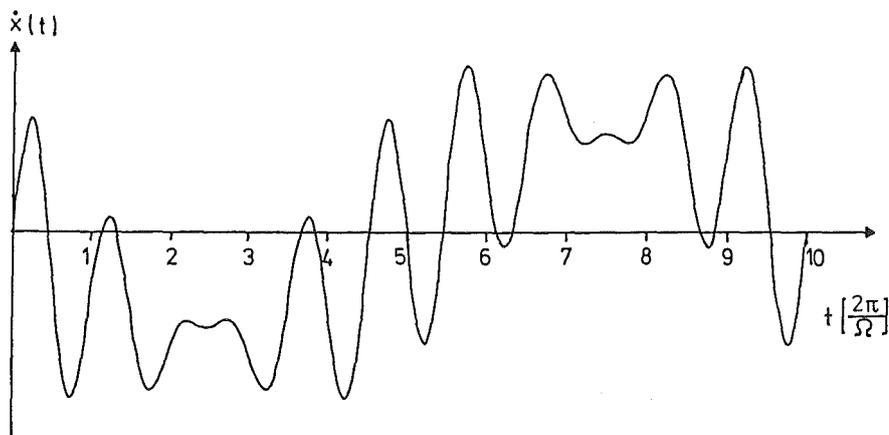


Abbildung 5. Geschwindigkeit eines Ions in x -Richtung ($a_x = 0,01$, $q_x = 0,23$, $\beta_x = 0,2$). Die schnellen Geschwindigkeitsamplituden werden durch die Mikrobewegungs-Anteile verursacht, die Makrobewegung bewirkt eine Modulation der Geschwindigkeiten.

Um die Linienform der Zwei-Stufen-Spektren von Thoriumionen zu verstehen (siehe Kap. 5.3), ist auch die Beschleunigung eines Ions von Interesse. Diese wird überwiegend durch die Mikrobewegung verursacht. Das zeigt die Lösung der Mathieu-Differentialgleichung für die Beschleunigung eines Ions in einer Raumrichtung, die sich durch Ableiten des Geschwindigkeitsverlaufes für ein Ion ergibt

(es werden wieder nur die Koeffizienten c_0 , c_1 und c_{-1} und die Anteile mit den größten Amplituden berücksichtigt):

$$\frac{\ddot{x}(t)}{c_0} \approx -\frac{c_1 + c_{-1}}{c_0} C \Omega^2 \cdot \sin\left(\frac{\beta \Omega}{2} t + \varepsilon\right) \cdot \cos \Omega t$$

Die Makrobewegung macht sich in der Beschleunigung nur noch als Amplitudenmodulation bemerkbar (Abb. 6).

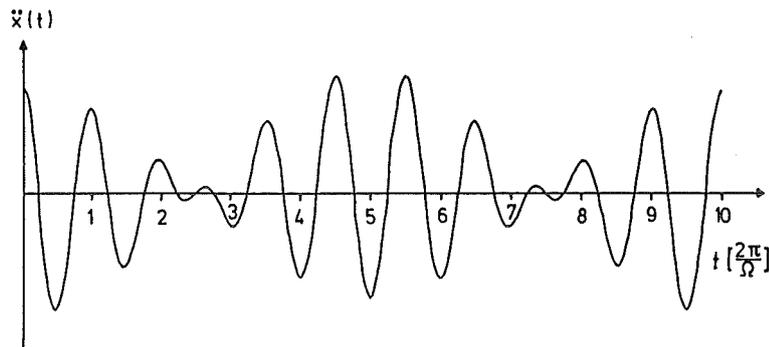


Abbildung 6. Beschleunigung eines Ions in einer Raumrichtung ($a_x = 0,01$, $q_x = 0,23$, $\beta_x = 0,2$). Die Beschleunigung folgt der Mikrobewegung, die Makrobewegung ist als Schwebung zu erkennen.

3.2 Aufbau der Ionenfalle

Die Elektroden der Ionenfalle sind aus Edelstahl (Legierung 1.4301) gefräst und durch Quarzglas-Rohrstücke voneinander elektrisch isoliert (Abb. 7). Durch zwei Löcher in einer Endkappe ragen zwei Drahtschleifen in die Ionenfalle, auf denen die Hafnium- oder Thoriumproben eingetrocknet wurden. Die Dicke der Drähte beträgt üblicherweise 0,25 mm oder 0,3 mm. Die andere Endkappe hat eine Siebstruktur, damit werden 55% des Fluoreszenzlichts durchgelassen. Eine asphärische Kronglaslinse oder eine bikonvexe Quarzlinse bündeln das Fluoreszenzlicht in den Photomultiplier. Zwei Löcher in der Ringelektrode lassen das Licht für die Anregung der Ionen durch.

Die elektronische Versorgung einschließlich eines elektronischen Nachweiskreises ist in Abbildung 8 dargestellt. Für diesen Nachweis der Ionen liegt zusätzlich zum Speicherfeld eine Wechselspannung mit der Kreisfrequenz $\omega = \beta \Omega / 2$ an, der

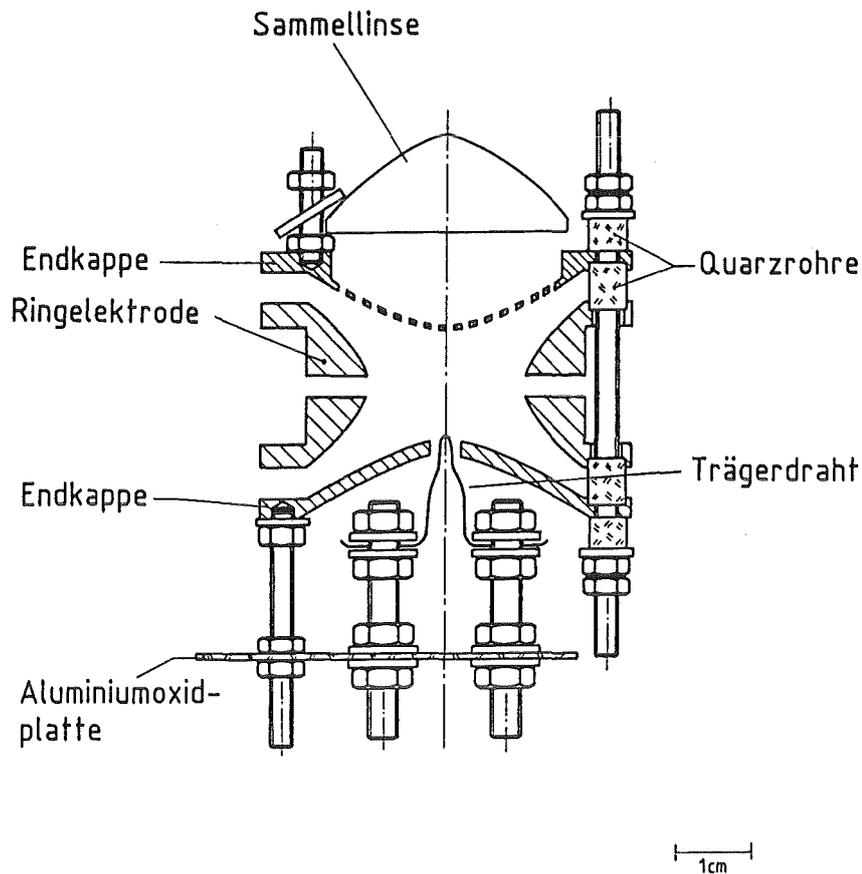


Abbildung 7. Aufbau der Ionenfalle für laserspektroskopische Untersuchungen an gespeicherten Ionen.

Frequenz der Makrobewegung, zwischen den Endkappen an. Dadurch werden die Ionen zu erzwungenen Schwingungen angeregt und entziehen dem Schwingkreis Energie. Die Abnahme der Schwingkreisspannung gegen die Änderung des Gleichspannungsanteils U_0 wird gemessen. Durch die Änderung von U_0 ändert sich auch der Parameter β . Damit wird bei einer konstanten Schwingkreis-Frequenz die Makro-Kreisfrequenz ω durchgestimmt. Aus der Lage der Resonanz bezüglich U_0 ergibt sich bei Kenntnis von ω , Ω und V_0 ein mittleres e/m -Verhältnis der gespeicherten Ionensorten [Ka89].

Stöße und chemische Reaktionen der gespeicherten Ionen mit umgebenden Gasmolekülen machen die Nutzungs- und Speicherdauer zu kurz, um bei laserspektroskopischen Messungen mit Nanogramm-Proben auszukommen. Unter Umständen ist eine Messung überhaupt nicht möglich. Zur Reinigung der Ionenfalle von Restgas befindet sich diese deshalb in einem ausheizbaren UHV-Rezipienten (Abb. 9). Der erzielte Enddruck nach dem Ausheizen liegt bei unter $3 \cdot 10^{-10}$ mbar. Da bei Drücken in dieser Größenordnung das Restgas ausschließlich aus Ausgasungsprodukten der Wände besteht und die Ausgasungsrate nach

dem Ausheizen geringer ist, erscheint es sinnvoll, die Ionenfalle selbst zusätzlich zu erhitzen.

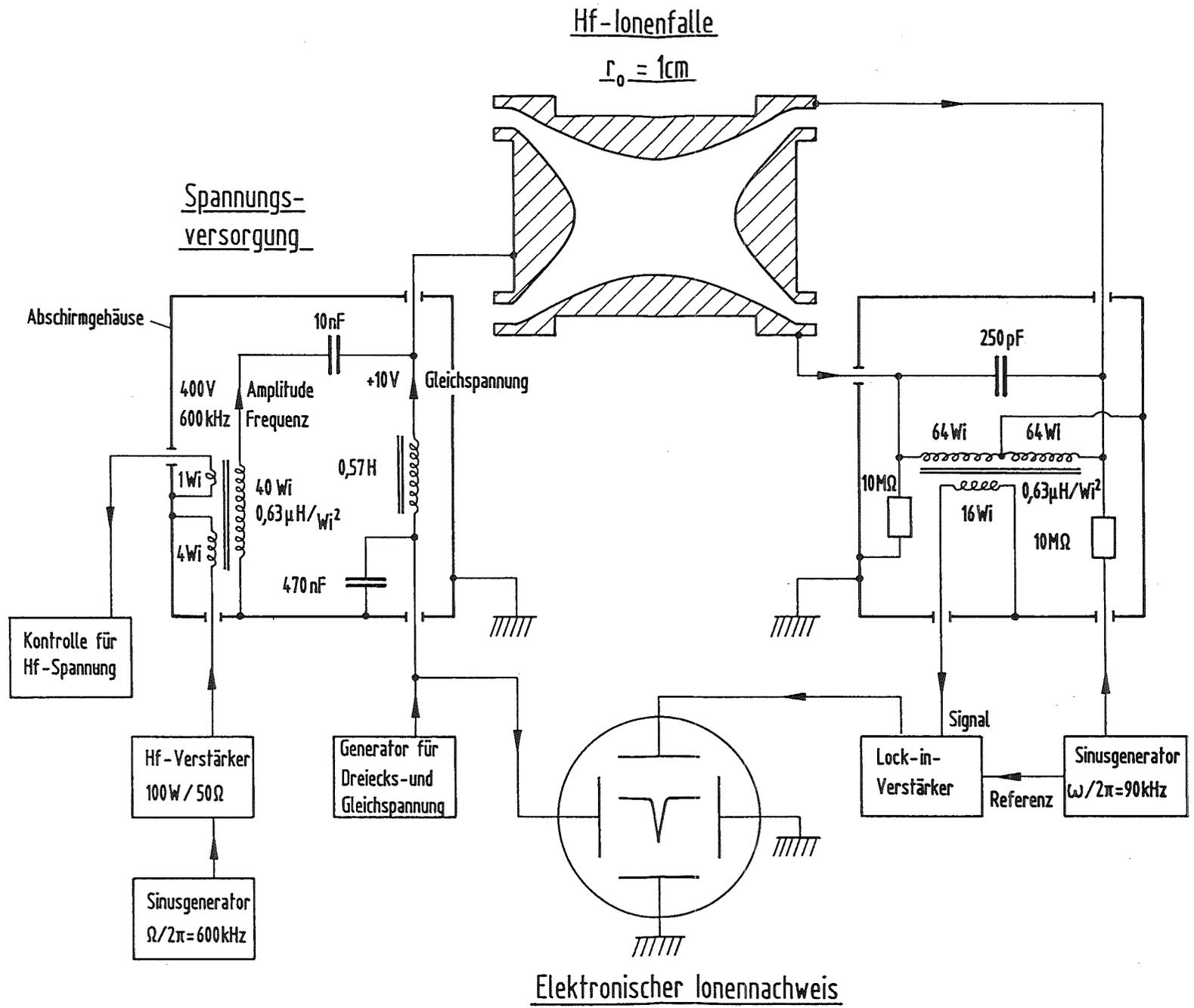


Abbildung 8. Spannungsversorgung und Beschaltung der Ionenfalle einschließlich des elektronischen Ionennachweises.

Dafür umgeben vier Tantalwendeln die Falle. Sie liefern Glühelektronen, die bei einer Beschleunigungsspannung von 1 kV zwischen Falle und Glühdraht diese durch einen Elektronenstrom von 75 mA auf Dunkelrotglut erhitzen. Die geschätzte Temperatur der Ionenfalle liegt dabei im Bereich von 600 °C bis 900 °C. Zur zusätzlichen Reinigung des Rezipienten von Restgas befindet sich im unteren Teil des Rezipienten eine Kühlfalle mit flüssigem Stickstoff und eine Titanverdampferpumpe.

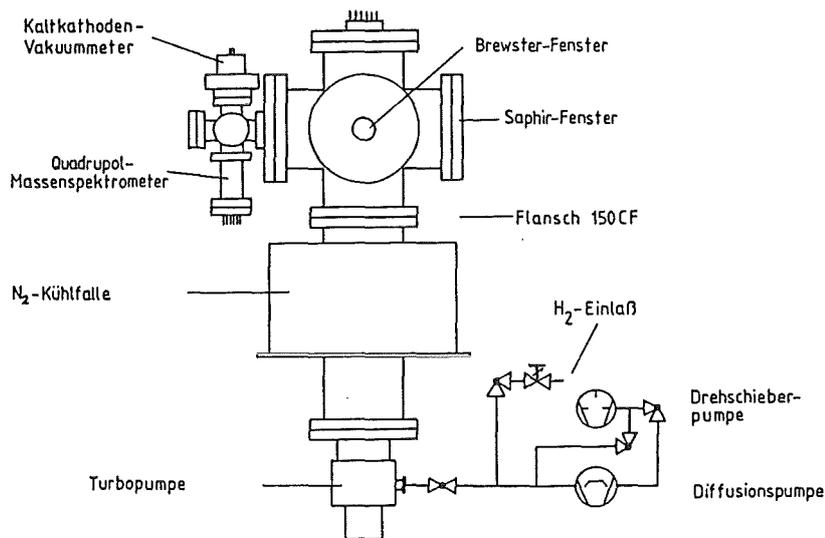


Abbildung 9. Ultrahochvakuum-Apparatur für die Ionenfalle und Vorpumpensystem mit H₂ –Einlaß.

Eine Turbomolekularpumpe mit vorgeschalteter Diffusions- und Drehschieberpumpe evakuiert das System. Während des Betriebes der Ionenfalle befindet sich im Rezipienten ein Gas, meistens Wasserstoff oder Helium (siehe Kap. 3.4). Der Einlaß dieser Gase erfolgt über das Vorvakuum.

Um Hafniumionen zu speichern, wird die Ionenfalle mit folgenden Parametern betrieben (in Klammern die abweichenden Werte für Thoriumionen):

$$\begin{aligned}
 r_o &= 1 \text{ cm} \\
 z_o &= 0,7 \text{ cm} \\
 V_o &= 380 \text{ V (400 V)} \\
 U_o &= 3 \text{ V (10 V)} \\
 \Omega/2\pi &= 600 \text{ kHz} \\
 p_{\text{H}_2} &= 1 \cdot 10^{-4} \text{ mbar (} p_{\text{He}} = 5 \cdot 10^{-3} \text{ mbar)}
 \end{aligned}$$

3.3 Erzeugung der Hafniumionen und Präparation der Hafniumisotope

Das Hafnium liegt zunächst als Hafniumchlorid (HfCl_4) vor. In konzentrierter Salzsäure wird das Hafniumpräparat gelöst, je nach Anwendung in Konzentrationen von 1 g bis 1 μg Hf pro Liter. Die Lösung wird dann in μl -Mengen auf die Spitze einer der beiden Drahtschlaufen gebracht. Durch elektrischen Stromfluß bei etwa 2 A wird die Lösung in 10 s bis 30 s eingetrocknet. Bei fast allen Experimenten bestand der Draht aus Tantal mit einem Durchmesser von 0,25 mm. Die Tantaldrähte wurden vor der Probenauftragung im Rezipienten bei einem Druck von 10^{-6} mbar knapp unterhalb der Schmelztemperatur von ca. 3000 °C vorgeglüht. Nach Einbau der Drähte in die Ionenfalle beginnt das Evakuieren und Ausheizen des Rezipienten.

Zur Erzeugung der Ionen in der Falle wird der Tantal-Draht ein bis drei Sekunden mit einem Strom von 5 A geglüht, wobei zwischen Draht und Ionenfallen-Elektrode zusätzlich ein Potential von 10 V anliegt, um die Elektronen zu beschleunigen. Der Elektronenstrom beträgt dabei 3 mA bis 6 mA. Die Glühelektronen ionisieren teilweise die Verdampfungsprodukte, so daß unter anderem Hafniumionen entstehen, die dann in der Ionenfalle gespeichert werden. Im Rezipienten befindet sich während des Glühens Wasserstoffgas mit einem Druck von $1 \cdot 10^{-4}$ mbar.

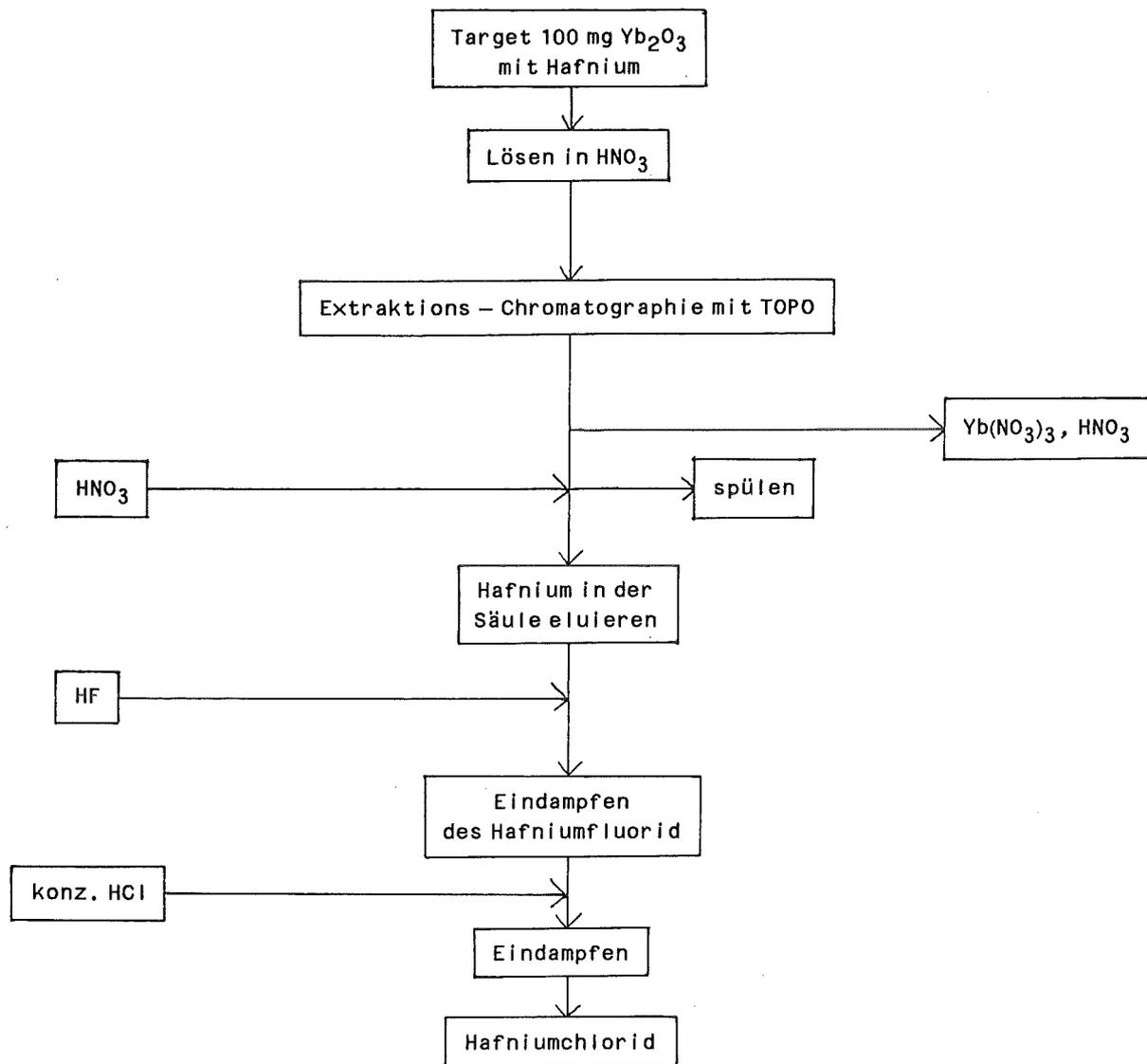
Außer Tantal wurden auch andere Drahtmaterialien untersucht. Sie unterscheiden sich vor allem in der Füll-Effizienz. Auf den jeweiligen Draht wurden 3 ng eines Hafniumisotops gegeben und die Stärke der Fluoreszenz nach dem Füllen wurde gemessen. Bei dieser Menge befindet sich nach einmaligem Glühen kaum noch Hafnium auf dem Draht. Als Referenz dient der zweite Draht, der aus Tantal besteht. Auf ihm befindet sich in μg -Mengen ein anderes Hafniumisotop. Damit läßt sich durch Glühen dieses Drahtes die Fluoreszenzstärke von Hafniumionen bei voller Falle bestimmen. Aus dem Verhältnis der beiden Fluoreszenzstärken und der Kenntnis der maximalen Ionenzahl in der Falle, die $5 \cdot 10^5$ [Ka89] beträgt, ergibt sich dann die Füll-Effizienz der jeweiligen Drahtsorte (Tab. 1). Die beste Effizienz wird mit Tantal- und Wolframdrähten erreicht. Mit beiden Drähten genügen etwa 3 ng Hafnium auf dem Draht, um durch einmaliges Glühen die Falle maximal zu füllen. Die Effizienz beträgt dann $5 \cdot 10^{-8}$.

Die verschiedenen stabilen Hafniumisotope lagen ursprünglich als Hafniumoxid oder als Metall vor. Sie wurden in Salzsäure gelöst und damit in Hafniumchlorid überführt.

| Drahtmaterial | Heizstrom | absolute Fülleffizienz | relative Fülleffizienz im Vergleich zu Tantal |
|---------------|-----------|------------------------|---|
| Tantal | 5 A | $5 \cdot 10^{-8}$ | 1 |
| Wolfram | 6,5 A | $5 \cdot 10^{-8}$ | 1 |
| Molybdän | 5 A | $1,5 \cdot 10^{-8}$ | 0,26 |
| Rhenium | 6 A | $2 \cdot 10^{-9}$ | 0,04 |

Tabelle 1. Erzeugung von Hafniumionen durch Glühen verschiedener Trägerdrähte, die Drahtdurchmesser betragen 0,25 mm. Der Elektronenstrom zwischen Draht und Endkappe lag zwischen 3 mA bis 6 mA.

Die Herstellung des Isotops ^{172}Hf erfolgte am Karlsruher Zyklotron mit der Reaktion $^{171}\text{Yb}(\alpha, 3n)^{172}\text{Hf}$. Eine 0,3 mm dicke, gepreßte Ytterbiumoxid-Tablette wurde mit α -Teilchen der Energie 37 MeV bestrahlt. Die chemische Abtrennung der Hafniumatome vom Ytterbium-Target verlangt eine Trennmethode, bei der der Trennfaktor eine Größenordnung von 10^{10} erreichen muß, da sich nach der Bestrahlung in 30 mg Ytterbiumoxid nur einige Nanogramm Hafnium befinden. Dafür bietet sich die extraktions-chromatographische Methode mit Trioctylphosphinoxid (TOPO) mit salpetersaurer Lösung an [Go90]. An einer Säule, die TOPO auf einem pulverförmigen Teflon-Träger oberflächlich adsorbiert enthält, wird aus einer $\text{Yb}^{3+}/\text{Hf}^{4+}/\text{HNO}_3$ -Lösung das Hafnium praktisch quantitativ sorbiert, während Ytterbium die Säule weitgehend passiert. Der Trennfaktor beträgt 10^4 , durch mehrmaliges Spülen mit HNO_3 wird er auf 10^{10} erhöht. Anschließend erfolgt die Hafnium-Elution mit Flußsäure. Die Aufarbeitung erfolgt nach folgendem Schema:



Um das abgetrennte Hafnium auf den Tantaldraht zu bringen, wird die eingedampfte Probe mit einer kleinen Menge an Salzsäure gelöst (meist einige μl) und einen gewünschten Teil der Lösung auf der Spitze des Drahtes eingetrocknet.

3.4 Speicherzeiten in einer Ionenfalle

3.4.1 Speicherdauer verschiedener Ionensorten

Um einen der Hauptvorteile der Ionenfalle nutzen zu können, nämlich die Möglichkeit dieselben Ionen immer wieder optisch anzuregen, sollte die Speicherdauer im Bereich von einigen Stunden liegen. Mehrere Parameter beeinflussen die Beobachtbarkeitsdauer.

Zunächst muß der Arbeitspunkt der Ionenfalle im Bereich der maximalen Anzahl speicherbarer Ionen liegen [IW77]. Dies ist dann der Fall, wenn die Falle mit den Parametern $q_x \approx 0,27$ und $a_x \approx 0,02$ betrieben wird. Des weiteren hängt die Speicherdauer von dem Speicher- und Quenchgas ab. Je nach Gasart kann der Druck, bei dem die Speicherdauer maximal ist, zwischen 10^{-5} und 10^{-2} mbar betragen. Die Anzahl der Restgasmoleküle und der Moleküle, die eventuell bei Anwesenheit des Speichergases entstehen, ändert sich dabei je nach Druck und Gasart. Insbesondere bei Verwendung von Wasserstoff kann sich die Speicherdauer durch die Bildung von Molekülen drastisch verkürzen. Auch die Art der Ionenerzeugung beeinflusst die Speicherdauer, wenn, wie in diesem Fall, ein Draht innerhalb der Ionenfalle geglüht wird und dadurch der Partialdruck im Inneren der Falle für Minuten um Zehnerpotenzen größer ist als vor dem Glühen.

Die Speicherdauern verschiedener Ionensorten in einer Ionenfalle in einem ausgeheizten Ultrahochvakuum-Rezipienten, der nur von einer Turbomolekularpumpe ausgepumpt wurde, schwanken um mehrere Zehnerpotenzen (Tab. 2).

| Ionensorte | Ionenerzeugung | Speicherdauer | Speichergasdruck |
|------------|-----------------------------|---------------|----------------------------------|
| Rhenium | Glühen des Rheniumdrahtes | >2 h | $p_{H_2} = 4 \cdot 10^{-6}$ mbar |
| Barium | Glühen einer Tantalfolie | ~1 h | $p_{H_2} = 4 \cdot 10^{-6}$ mbar |
| Thorium | Glühen eines Tantaldrahtes | 10 min | $p_{He} = 5 \cdot 10^{-3}$ mbar |
| Thorium | Glühen eines Tantaldrahtes | 1 min | $p_{H_2} = 5 \cdot 10^{-5}$ mbar |
| Lanthan | Glühen eines Wolframdrahtes | 1 min | $p_{H_2} = 5 \cdot 10^{-5}$ mbar |
| Hafnium | Glühen eines Tantaldrahtes | 1 min | $p_{H_2} = 1 \cdot 10^{-4}$ mbar |

Tabelle 2. Speicherzeiten verschiedener Ionen in der Ionenfalle.

Es gibt auch Berichte von anderen Arbeitsgruppen, denen es aufgrund der zu geringen Speicherdauer überhaupt nicht möglich war, Ionen optisch nachzuweisen. Bei Uran und Plutonium war zum Beispiel kein Fluoreszenzlicht zu sehen [Ru86]. Bei fast allen Ionensorten zeigte es sich, daß nicht etwa die Aufenthaltsdauer der Ionen in der Ionenfalle die Nutzungsdauer limitiert, sondern die chemischen Reaktionen zu Molekülen oder Molekülionen. Optisch sind sie dann nicht mehr nachweisbar, obwohl sie durchaus noch in der Falle gespeichert werden können. Da diese Probleme sowohl bei Thorium als auch bei Hafnium auftraten, wurde als weitere Detektionsmöglichkeit außer der laserinduzierten Fluoreszenz der elektronische Nachweis der Ionen in der Ionenfalle benutzt (siehe 2.2). Bei Speichergasdrücken in der Größenordnung von 10^{-5} mbar liefert der elektronische Nachweis ein mittleres e/m -Verhältnis der gespeicherten Ionensorten [Ka89]. Eine chemische Reaktion von Ionen mit Atomen oder Molekülen zu Molekülionen, die weiter gespeichert werden, läßt sich als stetige Änderung des e/m -Wertes feststellen. Um die Restgaszusammensetzung bestimmen zu können, befindet sich außerdem im Rezipienten ein Quadrupol-Massenspektrometer, dessen Sensitivität bei 10^{-14} mbar liegt.

3.4.2 Speicherdauer der Hafniumionen

Bei verschiedenen Speichergasen (H_2 , He, N_2) beträgt die Speicherdauer der Hafniumionen ohne zusätzliche Reinigung nur Sekunden bis wenige Minuten. Da die Zählrate des Fluoreszenzlichts bei Wasserstoff wegen der hohen Quenchrates bei Hafniumionen am größten ist, wurde die Lebensdauer der Ionen mit diesem Speichergas ausführlicher untersucht.

Der optimale Gasdruck für Wasserstoff liegt bei $1 \cdot 10^{-4}$ mbar. Bei kleineren Drücken nimmt das Fluoreszenzlicht aufgrund der geringeren Quenchrates schnell ab. Ist der Druck zu hoch, dann werden im Rezipienten Massen beobachtet, die die Speicherdauer drastisch senken, vermutlich indem sie mit den Hafniumionen reagieren. Dies zeigen die mit einem Quadrupol-Massenspektrometer aufgenommenen Massenspektren in Abbildung 10. Unter Zugabe von Wasserstoff bilden sich Kohlenwasserstoffe, möglicherweise durch Stöße der Wasserstoffmoleküle mit den Wänden [Mi92].

Um den Einfluß von Verunreinigungen zu untersuchen, wurde zum Beispiel Kohlendioxid (CO_2) zusätzlich zum Wasserstoff über ein UHV-Ventil in den Rezipien-

ten eingelassen. Die Speicherdauer sank bei einem CO_2 - Partialdruck von $5 \cdot 10^{-8}$ mbar um den Faktor 4 und bei Zugabe von $5 \cdot 10^{-7}$ mbar um den Faktor 10.

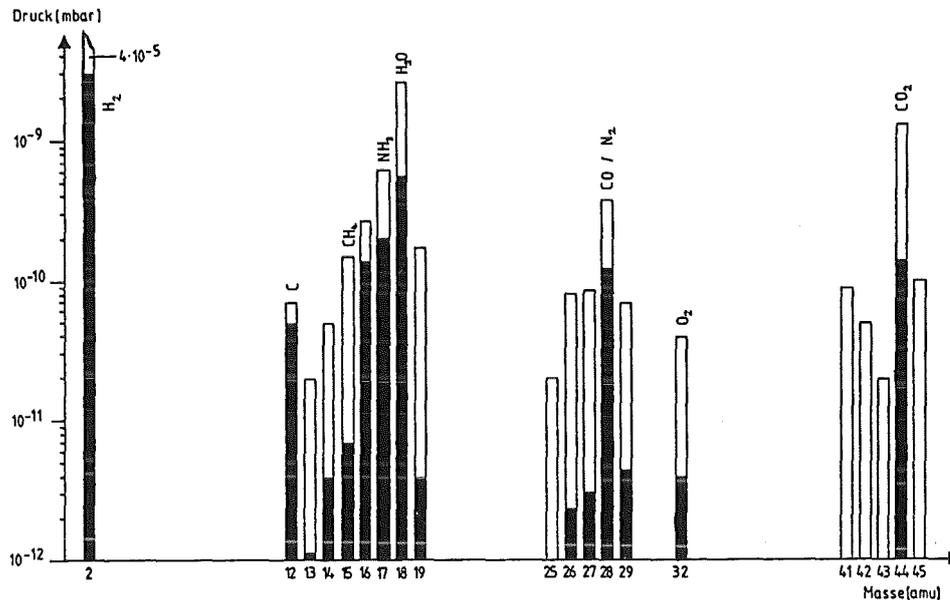


Abbildung 10. Massenspektren des Restgases im Vergleich:

a) Ausgeheizter Rezipient, mit einer Stickstoff-Kühlfalle zusätzlich gepumpt (schwarze Balken).

b) Wasserstoffgas mit ($p = 4 \cdot 10^{-4}$ mbar) wird eingelassen (weiße Balken).

Mit einem Kühlbaffle für flüssigen Stickstoff gelang es, einige der reagierenden Moleküle auszufrieren, so daß die Speicherdauer um einen Faktor 5 gesteigert werden konnte. Dabei stellte sich heraus, daß das Totaldruckmeßgerät im Rezipienten die Speicherdauer um mehr als eine Größenordnung verkürzt. Das Meßgerät, bei dem eine Kaltentladung bei 1 kV gezündet wird und der Elektronenstrom ein Maß für den Druck ist (Typ IKR der Fa. Balzers), liefert Kohlenwasserstoffe. Insbesondere läßt sich Acetylen mit dem Massenspektrometer nachweisen.

Die durch Fluoreszenz gemessenen Beobachtungsdauern unter den verschiedenen Bedingungen sind in Tabelle 3 dargestellt.

Mit Hilfe des elektronischen Nachweises zeigt sich, daß eine kurze Lebensdauer immer verbunden ist mit einer Änderung des mittleren e/m -Wertes der gespeicherten Ionen. Die Hafniumionen reagieren vermutlich zum Teil zu Molekülionen,

die weiterhin in der Falle gespeichert werden können [Mi92]. Vorteilhaft auf die Speicherdauer wirkt sich aus, wenn der Rezipient vor dem Öffnen mit Argon belüftet wird. Während und nach dem Ausheizen ist dann die Ausgasungsrate der Wände geringer als bei Belüftung mit Luft. Wichtig ist außerdem, daß die Ausheiztemperatur des Rezipienten möglichst überall 300 °C erreicht.

| Speicherbedingungen | Speichergas | Halbwertszeit der Fluoreszenz |
|---|---|-------------------------------|
| Kaltentladung an | $p_{\text{H}_2} = 1 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$ | 10^{-2} h |
| Kaltentladung an, Stickstoff im Kühlbaffle | $p_{\text{H}_2} = 1 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$ | $4 \cdot 10^{-1} \text{ h}$ |
| Kaltentladung aus, Stickstoff im Kühlbaffle | $p_{\text{H}_2} = 1 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$ | $> 4 \text{ h}$ |

Tabelle 3. Dauer der Beobachtbarkeit der Hafniumionen unter verschiedenen Bedingungen.

Abschließend läßt sich für das Speichern von Hafniumionen feststellen, daß die Ionen in einer Edelstahlfalle, die bei 600 bis 900 °C ausgeglüht wurde in einem bei 300 °C ausgeheizten Rezipienten eine optische Nutzungsdauer von mehr als 4 Stunden erreichen. Dabei wurde Wasserstoff über das Vorvakuum eingelassen und das Kühlbaffle mit flüssigem Stickstoff gefüllt.

3.4.3 Hafniummoleküle in der Ionenfalle

Die Speicherdauer der Hafniumionen ist vor allem begrenzt durch Reaktionen zu Molekülen und zu Molekülionen. Dabe ist es möglich, einige der Molekülionen weiterhin in der Falle zu speichern. Dies hat unterschiedliche Einflüsse auf die Spektroskopie an Hafniumionen.

Abbildung 11 zeigt die Signalrate von Hafniumionen nach Anregung mit Licht der Wellenlänge 301,3 nm (siehe Kap. 4.3.1). Die Frequenz des UV-Lichts regt die Ionen resonant an. Strahlt nun ein weiterer UV-Strahl bei etwa 275 nm ein, dann erhöht sich die Zählrate innerhalb von 4 Sekunden um bis zu 50%. Die Wellen-

länge des zweiten Laserstrahls kann dabei ohne einer Änderung dieses Effektes um mehrere Nanometer verändert werden. Die Leistung beträgt 2 bis 4 mW. Wird die Einstrahlung unterbrochen, fällt die Zählrate innerhalb von 18 Sekunden wieder auf den ursprünglichen Wert zurück.

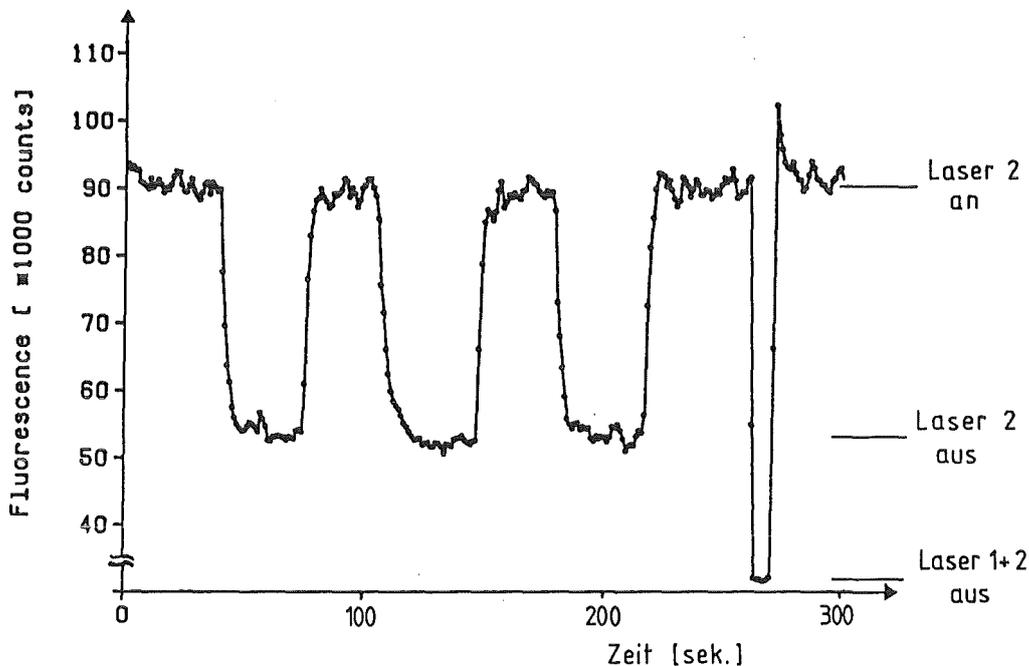


Abbildung 11. Fluoreszenz bei resonanter Einstrahlung mit fester Frequenz von Laser 1. Bei zusätzlicher, nichtresonanter Einstrahlung von Laser 2 (272 nm, 2 mW) erhöht sich das Signal in 4 sek. um 50%, bei Ausschalten geht die Fluoreszenz auf ihren ursprünglichen Wert in 18 sek. zurück.

Eine mögliche Interpretation dieses Effektes ist, daß bei Einstrahlung des zweiten Lichtstrahls die schon gebildeten Molekülionen photodissoziieren. Es sind dann mehr Hafniumionen in der Ionenfalle und das Fluoreszenzlicht wird stärker. Bei einer Unterbrechung des Strahls bilden sich die Moleküle wieder.

Dies zeigt auch der elektronische Nachweis (Abb. 12), indem die Änderung des mittleren e/m -Wertes der gespeicherten Ionen mit und ohne zweitem UV-Strahl beobachtet wird. Die relativ schnelle Änderung zu großen Massen hängt hier mit einer sehr kurzen Nutzungsdauer von 35 Sekunden zusammen, da der Rezipient nicht lange genug ausgeheizt wurde. Zu erkennen ist jedoch, daß mit Einstrahlung des zweiten Strahls die Ionen langsamer reagieren. Die Bildung von Molekülionen wird dadurch entweder behindert oder wieder rückgängig gemacht.

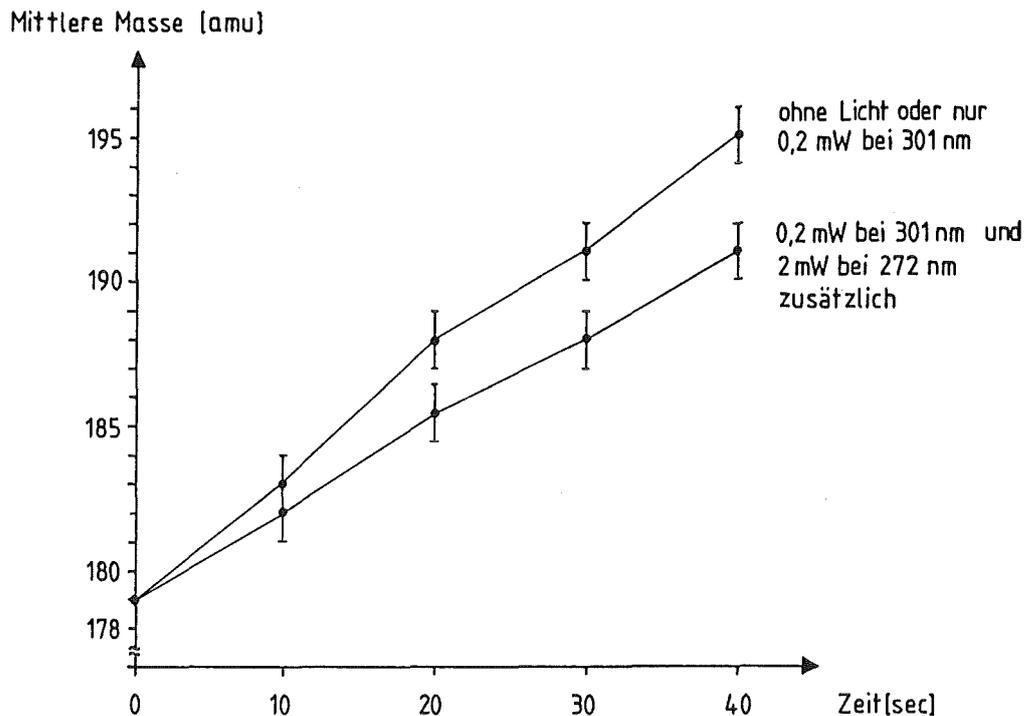


Abbildung 12. Mit dem elektronischen Nachweis bestimmte mittlere Masse des gespeicherten Ionenensembles. Durch Reaktionen der Hafniumionen zu Molekülionen nimmt die mittlere Masse zu. Bei Einstrahlung von Licht mit 272 nm verlangsamt sich die Reaktionsgeschwindigkeit. Das Fluoreszenzsignal nimmt bei dieser Messung in 35 Sekunden um die Hälfte ab.

Spektrallinien von Molekülionen sind auch in den Ein-Stufen-Spektren nachweisbar (Abb. 13). Bei einer Probe mit ^{178}Hf wurden über einen Bereich von 200 GHz Spektrallinien beobachtet. Die Signalhöhe dieser Linien beträgt 1/1000 der Hafnium-Signalhöhe. Die Linienbreite der vermuteten Moleküllinien ist um 10% bis 20% kleiner als die der Hafniumlinie. Da die Linienbreite über den Dopplereffekt direkt mit der Geschwindigkeitsverteilung der Ionen zusammenhängt, zeigt die Breite dieser Spektren, daß die Ionen, die bei dieser Frequenz Fluoreszenzlicht abgeben, schwerer sind als die Hafniumionen. Bei einer Verschmälerung um 10% bis 20% entspricht das einer Masse von 210 bis 290 amu im Vergleich zu den Hafniumionen mit der Masse 178 amu. Diese große Masse ist ein weiterer Hinweis darauf, daß hier Molekülionen zusammen mit den Hafniumionen in der Falle gespeichert werden. Eine nähere Identifizierung der Moleküle wurde nicht vorgenommen.

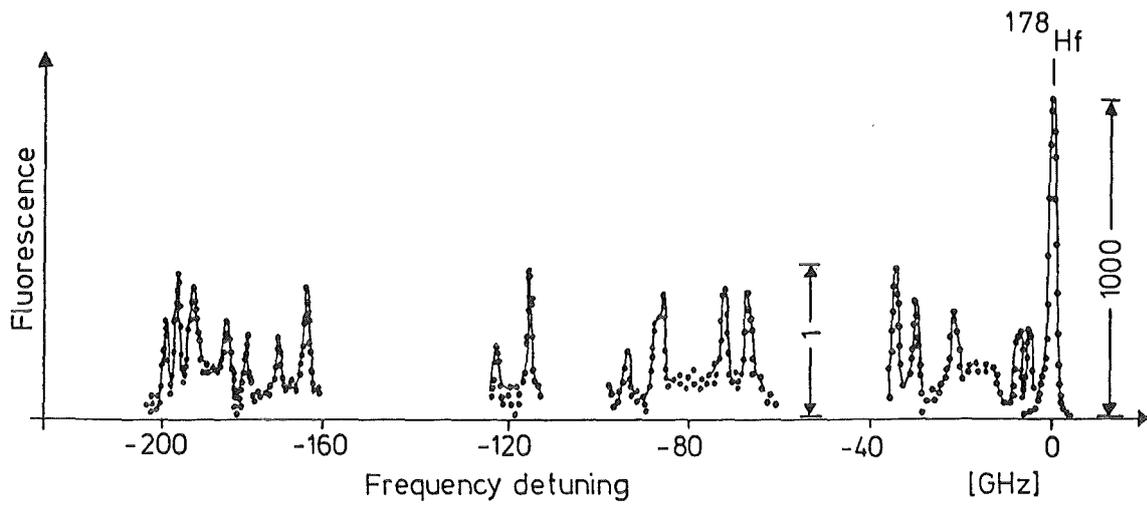
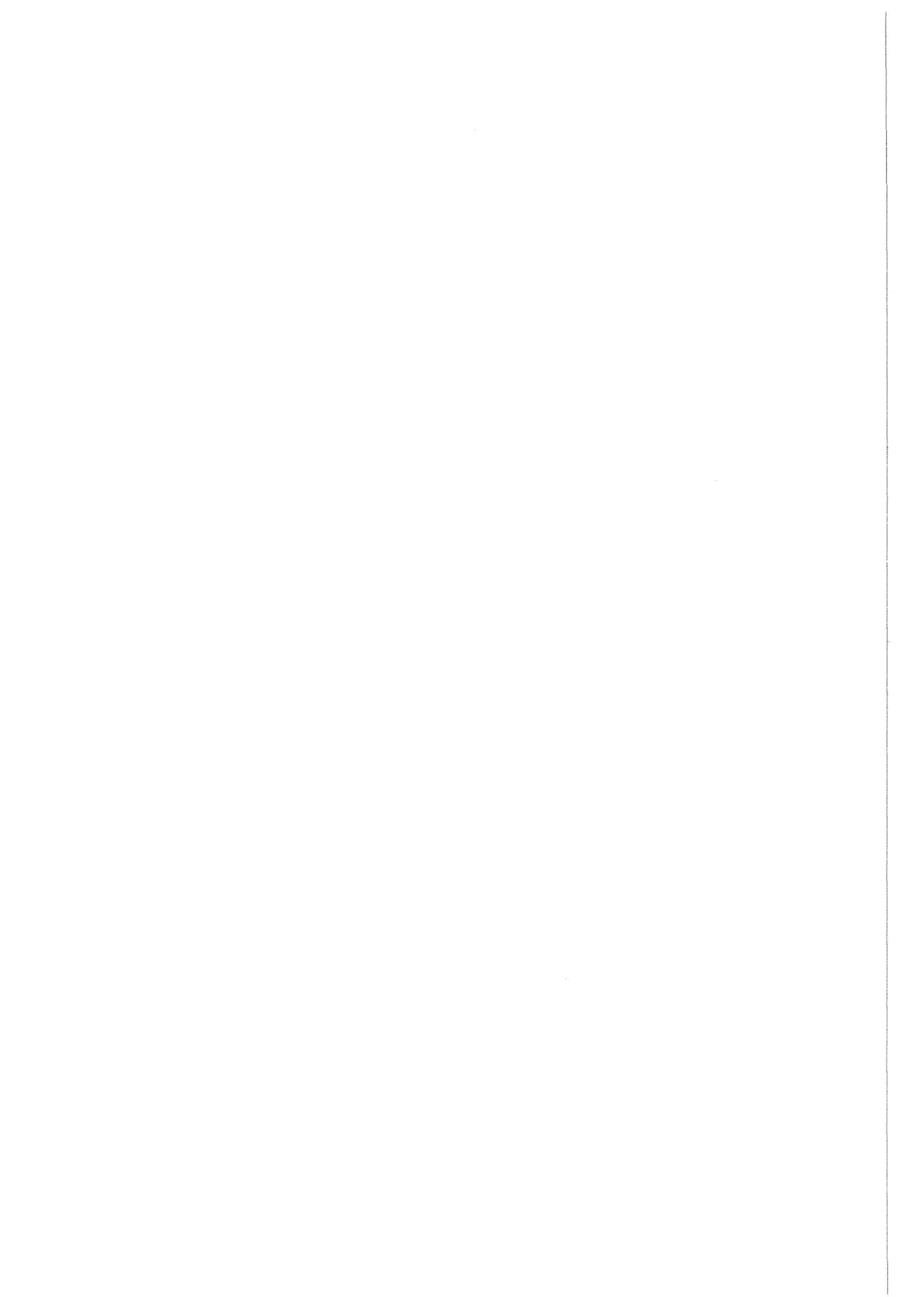


Abbildung 13. Moleküllinien von Ionen, die gleichzeitig mit ^{178}Hf -Ionen in der Ionenfalle gespeichert sind. Das Hafnium-Signal ist um einen Faktor 1000 größer als das der Molekülionen.



4. Laserspektroskopie

4.1 Laseraufbau und Lasersteuerung

4.1.1 Die Lasersysteme für die Experimente an Hafniumionen

Der energetisch niedrigste elektronische Übergang des Hafniumions, der andere Parität als der Grundzustand besitzt, liegt bei 356,2 nm. Es ist schon bei dieser Wellenlänge nicht möglich, Farbstofflaser kontinuierlich zu betreiben. Deshalb muß Laserlicht der doppelten Wellenlänge erzeugt und in geeigneten Einkristallen zu UV-Licht frequenzverdoppelt werden. Die Konversion in frequenzverdoppeltes Licht beträgt je nach Kristall maximal 10^{-3} bis 10^{-4} der Primärleistung und ist damit in den meisten Fällen zu klein, um mit ausgekoppeltem Laserlicht die benötigte Leistung zu erreichen. Die Erzeugung des UV-Lichts geschieht deshalb im Inneren des Laserresonators. Um dessen Verluste klein zu halten, wurde ein neues Single-Mode-Konzept für einen Farbstofflaser verwendet [Ko91], ausgehend vom Resonator eines kommerziellen CR699-Coherent-Lasers (Abb. 14).

Zwei unbeschichtete Etalons mit den freien Spektralbereichen $\text{FSR} = 50$ GHz (Dicke $d = 2$ mm) und $\text{FSR} = 200$ GHz ($d = 0,5$ mm) sind zusammen mit einem Lyotfilter die einzigen frequenzselektierenden Elemente im Resonator. Der Gesamtverlust des Resonators ohne einen frequenzverdoppelnden Kristall beträgt damit etwa 1%. Durch diese frequenzselektierenden Elemente schwingen nur noch wenige Resonatormoden an, jedoch nie gleichzeitig, sondern immer nacheinander. Ist ein solcher Modensprung passiert, dann unterbricht ein Relais mechanisch den Resonatorstrahl so oft, bis der ursprüngliche Mode wieder eingestellt ist.

Für die Zwei-Stufen-Anregung an Hafniumionen sind zwei dieser Laser notwendig. Abbildung 14 a zeigt den Ringlaser für die erste Anregungsstufe. Er wird mit dem Farbstoff Rhodamin 6G betrieben. Ein 5 mm langer Lithiumjodat-Kristall (LiIO_3) mit einer $\lambda/4$ -Entspiegelung befindet sich im oberen Resonatorarm. Der Kristall ist so geschnitten, daß die Ein- und Austrittsflächen bei einer Frequenzverdopplung von 600-nm-Licht senkrecht zum Laserstrahl stehen. Damit kann Licht im Bereich um 300 nm erzeugt werden. Durch einen dichroitischen Spiegel, der nur für das frequenzverdoppelte Licht durchlässig ist, wird das UV-Licht aus

dem Resonator ausgekoppelt. Die UV-Leistung beträgt zwischen 1 und 4 mW, abhängig von Pumpleistung (max. 5 W) und Kristallposition.

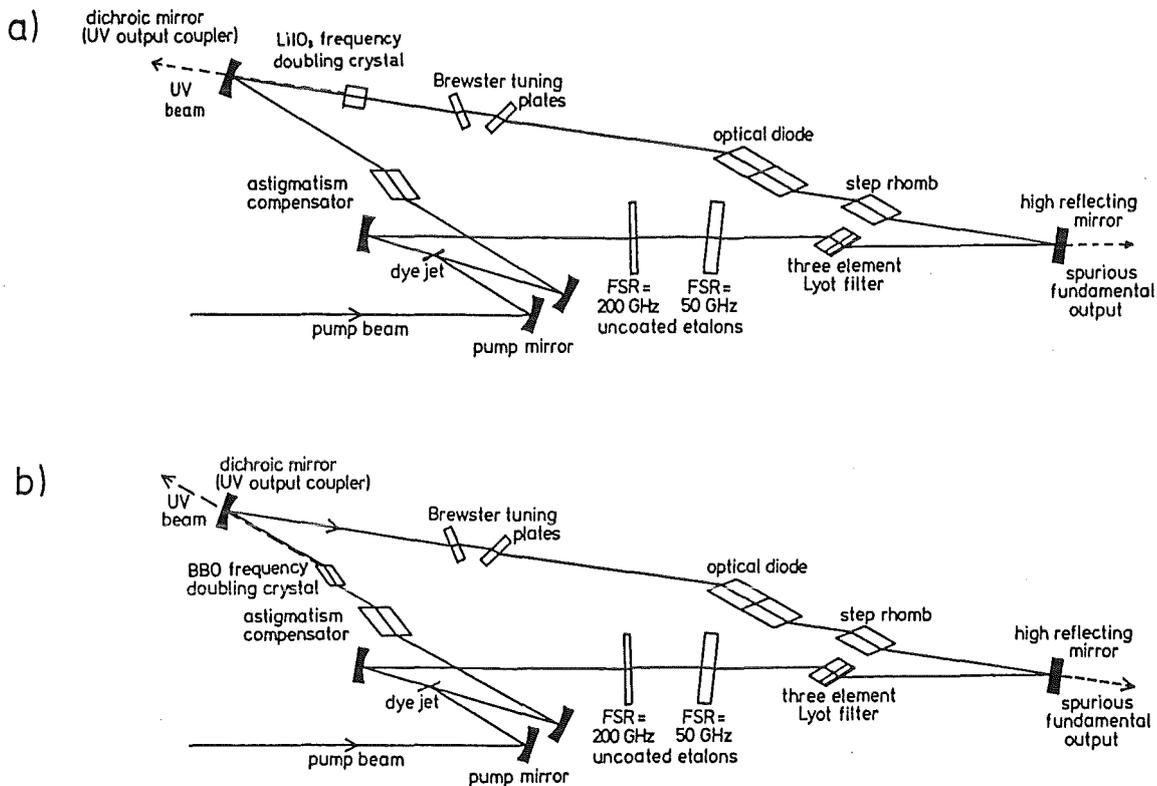


Abbildung 14. Aufbau der Farbstoff-Ringlaser

a) für 603 nm und Frequenzverdopplung mit LiIO₃ zu 301 nm.

b) für 542 nm und Frequenzverdopplung mit BBO zu 271 nm.

Die mit einem Kristall erreichbare Lichtleistung durch Frequenzverdopplung hängt unter anderem empfindlich von der Intensität und damit von den Fokussierungsbedingungen des Primärlichtes im Kristall ab [BK68]. Ein Maximum wird erreicht, wenn die Rayleigh-Länge des Laserstrahls etwa die Hälfte der Kristalllänge beträgt und der Fokus in der Mitte des Kristalls liegt. Unter diesen Gesichtspunkten stünde im Resonator eine zunächst scheinbar geeignetere Stelle für den LiIO₃ – Kristall zur Verfügung, nämlich der Fokus zwischen den Spiegeln mit $R = 100$ mm und $R = 150$ mm. Die UV-Leistung beträgt dann tatsächlich 10 mW bis 20 mW, jedoch nur kurzzeitig, denn innerhalb von 30 bis 60 Sekunden fällt sie auf die Hälfte ab. Erst bei einer Leistung von weniger als 4 mW ist über einen Zeitraum von einer Stunde keine Abnahme mehr zu beobachten. Ebenso nimmt die Laserleistung im Resonator ab, der Kristall hat also höhere Verluste. Dieser Effekt tritt jedoch nur auf, wenn UV-Licht erzeugt wird. Ist der Kristall gekippt, so daß

die Phasenanpassung nicht mehr stimmt, ändert sich die Laserleistung nicht. Da also zuviel UV-Licht dem Kristall schadet, wurde eine Stelle im unfokussierten, oberen Arm des Resonators für den Kristall benutzt. Ein weiterer Grund, der für diese Position spricht, hängt mit Etalon-Effekten des Kristalls zusammen. Befindet sich der Kristall im Resonatorfokus, ist auch bei einer Verkippung um mehr als 10° kein Einmoden-Betrieb mehr möglich. Im unfokussierten Arm dagegen genügt eine Verkippung um 2° .

Der Ringlaser für die zweite Stufe der Anregung der Hafniumionen ist in Abbildung 14 b dargestellt. Für den gewählten Übergang muß Licht der Wellenlänge 271,8 nm erzeugt werden, es wird also Laserlicht mit 543,6 nm benötigt. Da beide Anregungen gleichzeitig erfolgen und die Wellenlänge des Pumplasers wegen der ersten Anregung bei 514 nm liegt, kommt für 543,6 nm nur der Farbstoff Rhodamin 110 in Frage. Da die Arbeits- und die Pumpwellenlänge nur 30 nm voneinander entfernt sind, ist die Absorption bei 543 nm noch verhältnismäßig hoch. Die Transmission dieses Farbstoffs bei der optimalen Konzentration (0,4 g/l) für diese Wellenlänge ist in Abbildung 15 a dargestellt. Die geringe Effizienz hängt mit der relativ kleinen Transmission bei der Arbeitswellenlänge zusammen, denn durch Verdünnung des Farbstoffs wird zwar die Transmission verbessert, die Absorption des Pumpstrahls verringert sich jedoch ebenfalls. Eine wesentliche Verbesserung der Farbstoffeffizienz liefert die Zugabe von gesättigter wässriger Natronlauge (NaOH). Die Absorption für 543 nm nimmt dann ab. Die Transmissionskurven mit 1,5 ml NaOH in einem Liter Farbstofflösung bei einer Konzentration von 0,4 g/l zeigt Abbildung 15 b [Sc92].

Um Laserlicht der Wellenlänge 543,8 nm zu verdoppeln, eignet sich ein Barium- β -Borat-Kristall (BBO). Die optimale Konversion beträgt $90 \mu\text{W}/\text{W}^2$ und ist damit eine Größenordnung geringer als bei LiIO_3 . Im Gegensatz zu LiIO_3 kann jedoch der BBO-Kristall in den Fokus zwischen den Resonatorspiegeln mit $R = 100$ mm und $R = 150$ mm eingesetzt werden. Zum einen wird der Kristall im Brewsterwinkel verwendet, Etaloneffekte treten deshalb nicht auf, zum anderen wurde keine Verschlechterung des Kristalls durch UV-Licht festgestellt. Die Größe des Fokus im Resonator beträgt $27 \mu\text{m}$ und der Kristall ist 5 mm lang. Unter diesen Bedingungen reduziert sich die Konversion auf $35 \mu\text{W}/\text{W}^2$ [Ko91] und die verfügbare Leistung beträgt bei einer Pumpleistung von 6 W maximal 11 mW.

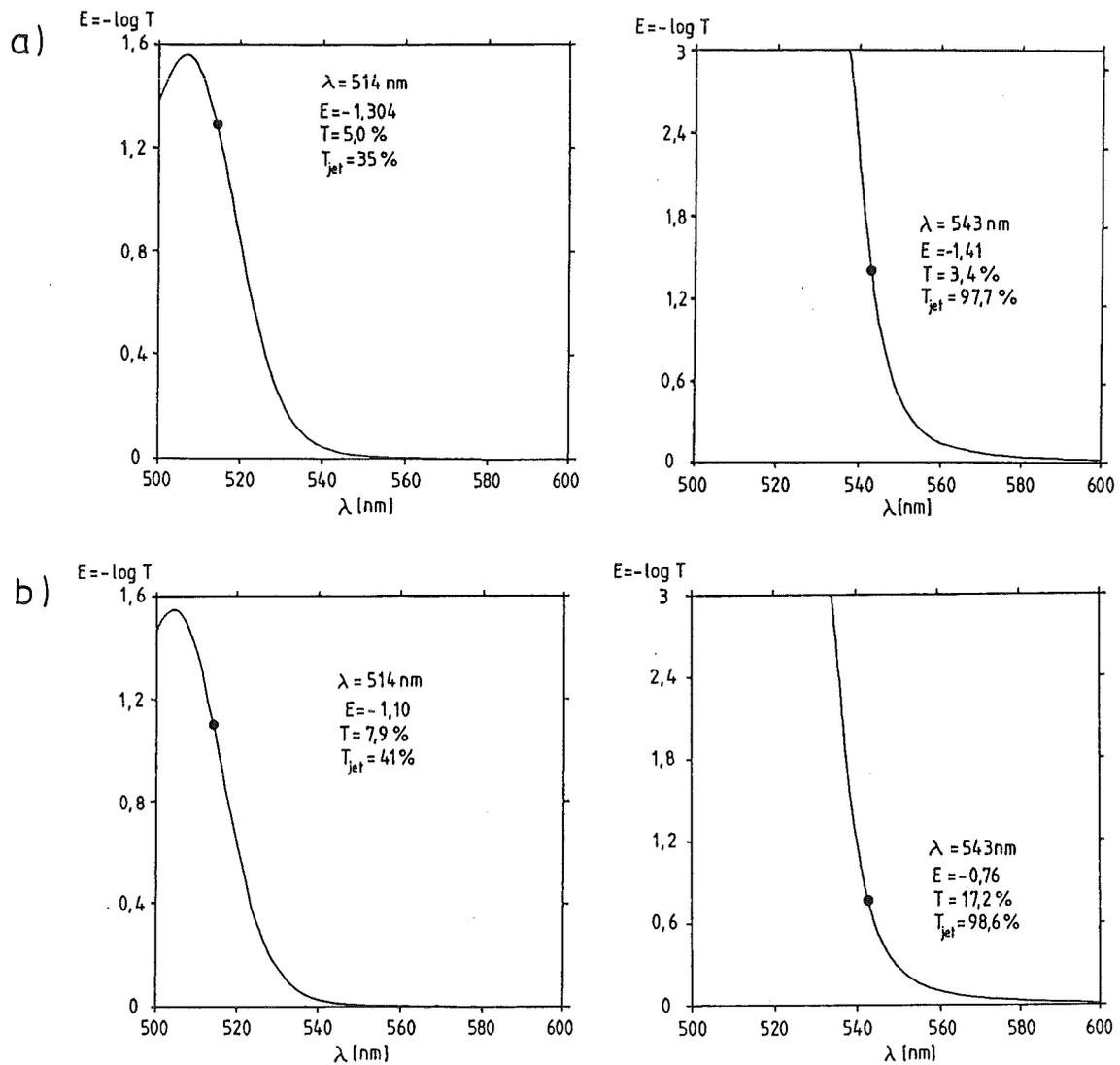


Abbildung 15. Transmissionskurven des Farbstoffs Rhodamin 110, optimiert für 543 nm bei 514 nm-Pumplicht.

a) Lösung 0,4 g/l in Ethylenglykol.

b) Zugabe von 1,5 ml NaOH in 1 l Lösung.

4.1.2 Die Lasersysteme für die Thorium-Experimente

Die beiden Laser für die Experimente an Thoriumionen sind nahezu unverändert gebliebene kommerzielle Geräte (Coherent CR599 und CR 699). Die Wellenlängen, die für die Zwei-Stufen-Anregung gebraucht werden, betragen 583,9 nm und 573,8 nm. Die Erzeugung von Licht mit diesen Wellenlängen ist mit dem unproblematischen Farbstoff Rhodamin 6G möglich, der durch 514-nm-Pumplicht angeregt wird. Die Ausgangsleistungen betragen mehrere hundert Milliwatt. Die Sätti-

gungsleistungen für Thoriomionen liegen bei den untersuchten Anregungen unter 15 mW [Ri88], es steht also ausreichend Laserlicht zur Verfügung.

4.1.3 Frequenzstabilisierung und Durchstimmung

Die Frequenzstabilisierung der Laser erfolgt durch Regelung auf eine Flanke eines konfokalen Referenzinterferometers mit freiem Spektralbereich $FSR = 1$ GHz. Ein Regelsignal steuert die beiden Brewsterplatten, die beiden Etalons und einen Piezokristall, an dem einer der Resonatorspiegel befestigt ist. Bei dem gewählten Etalonsystem sind noch Frequenzsprünge in verschiedene Resonatormoden ($\Delta\nu = 750$ MHz) möglich. Ein Sprung von vier Resonatormoden zum Beispiel liegt wieder innerhalb eines Transmissionspeaks des Referenzinterferometers. Der Laser würde dann auf einer falschen Frequenz geregelt. Diese Abweichung wird jedoch mit dem Wellenlängenmeßgerät bestimmt, und ein Relais unterbricht den Resonatorstrahl so oft, bis der richtige Frequenzwert wieder eingestellt ist.

Die kontrollierte Frequenzänderung der Laser geschieht durch Drehen einer Brewsterplatte im Referenzinterferometer. Die Laserfrequenz wird durch die Elemente im Resonator auf diesen neuen Flankenwert geregelt.

4.1.4 Frequenzmessung

Mit einem Monochromator und der Identifizierung von bekannten Jodlinien [GL78, GL79] wird die absolute Frequenzeinstellung der Laser vorgenommen.

Für die Messung von Frequenzänderungen zur Bestimmung zum Beispiel von Linienabständen steht ein Wellenlängenmeßgerät zur Verfügung. Der Monochromator und die drei Fabry-Perot-Interferometer ($FSR_1 = 340$ GHz, $FSR_2 = 20$ GHz, $FSR_3 = 1,5$ GHz) erlauben eine eindeutige Frequenzbestimmung [St84, Sc90].

Die Abweichung einer mit diesem Wavemeter gemessenen Frequenzänderung zu dem wahren Wert kann, bedingt durch das dritte Interferometer, bis zu 15 MHz betragen. Die Genauigkeit der Frequenzachse kann allerdings gesteigert werden, indem innerhalb von Frequenzintervallen (z.B. 250 MHz) durch lineare Regression die gemessenen Frequenzpunkte angepaßt werden. Die angepaßte Kurve inner-

halb eines Intervalls ist dann die neue Frequenzachse. Der Fehler eines Frequenzmesspunktes beträgt dann nur noch 2 bis 4 MHz, je nach Zahl der Punkte im Frequenzintervall [Ko91].

4.2 Lichtübertragung und Lichtmodulation

Um bei Zwei-Stufen-Anregungen möglichst viel Fluoreszenzlicht zu bekommen, ist eine auf beide Strahlen abgestimmte Fokussierung und eine optimale Überlagerung notwendig. Bei Verwendung von Einzelmoden-Glasfasern für die Thorium-Experimente ist das einfach, da das aus der Faser kommende TEM_{00} – Licht mit einem Mikroskop-Objektiv auf die Ionenwolke fokussiert werden kann. Die beiden Strahlen überdecken einander dann optimal, wenn Laserlicht aus der Faser vor dem Rezipienten, in dem sich die Ionenfalle befindet, in die Faser hinter dem Rezipienten eingekoppelt wird. Da dann aber Laserlicht des jeweils anderen Lasers in das Referenzinterferometer gelangt und der Laser nicht mehr geregelt werden kann, befinden sich optische Dioden zwischen Laserausgang und Fasereingang.

Der Lichttransport der UV-Strahlen für die Hafnium-Experimente muß über Spiegel erfolgen, da es keine Einzelmoden-Fasern für UV-Licht gibt. Der UV-Strahl für die erste Anregung der Hafniumionen hat eine sehr kleine Divergenz, da der $LiIO_3$ – Kristall im unfokussierten Arm des Laserresonators steht (Abb. 14). Zwei Bikonvexlinsen genügen, so daß am Ort der Ionenwolke der Strahldurchmesser etwa 0,1 mm beträgt.

Der mit dem BBO-Kristall erzeugte Strahl ist dagegen zum einen sehr divergent, da der Kristall im Resonatorfokus sitzt, zum anderen ist er astigmatisch. Das liegt an den verschiedenen Fokusgrößen im Resonator ($w_{\text{vert.}} = 30 \mu\text{m}$ und $w_{\text{horiz.}} = 210 \mu\text{m}$). Um einen einigermaßen sphärischen Strahl zu erzeugen, ist eine Kombination aus zylindrischen und sphärischen Linsen notwendig. Die Strahlführung beider UV-Strahlen erfolgt über Spiegel mit speziellen dielektrischen Beschichtungen. Überlagert werden die beiden Strahlen, indem deren Reflexe auf den Spiegeln M1 und M2 (Abb. 1) überdeckt werden.

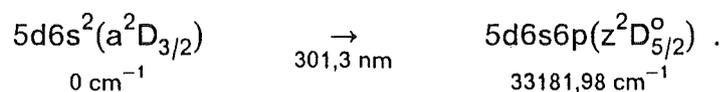
Um jeweils den Strahl für die erste Anregung der Hafnium- oder Thoriumionen gepulst in einer bestimmten Phase zum Wechselfeld der Ionenfalle einstrahlen zu

können (siehe Kap. 5), befindet sich ein elektrooptischer Modulator (Modell LM0202-UV, Fa. Gsänger) im Strahlengang. Die 600-kHz-Wechselspannung der Ionenfalle triggert einen Pulsgenerator, der TTL-Pulse für den externen Eingang der Spannungsversorgung des Modulators liefert. Damit sind Lichtpulse ab 50 ns Dauer im 600-kHz-Takt möglich. Am Pulsgenerator können verschiedene Verzögerungen und damit verschiedene Phasenlagen eingestellt werden. Das Hell/Dunkel-Tastverhältnis beträgt 400:1.

4.3 Termschemata und Nachweiskanäle für die Spektroskopie

4.3.1 Spektroskopie an Hafniumionen

Die Auswahl des Übergangs, der mit Licht angeregt werden soll, hängt von der Übergangswahrscheinlichkeit, der benötigten Wellenlänge und dem Fluoreszenznachweis der Besetzung des angeregten Zustands ab. Nach diesen Kriterien wurde für die Ein-Stufen-Anregung der folgende Übergang ausgewählt (Abb. 16):



Der Nachweis des angeregten Übergangs bei 353 nm ist der Zerfall zum Zustand $5d^26s(a^4F_{5/2})$. Alle anderen Zerfälle liefern weniger Photonen. Dies wurde bestimmt, indem verschiedene Kantenfilter im Strahlengang des Fluoreszenzlichts nur einige der möglichen Nachweiswellenlängen durchlassen (Tab. 4). Um das breitbandige Streulicht zu unterdrücken, läßt ein schmales Interferenzfilter (volle Halbwertsbreite 8 nm) nur das Fluoreszenzlicht bei 353 nm durch. Der gewählte Übergang ist bei einer UV-Leistung von 0,3 mW bereits gesättigt (Abb. 17). Die maximale Zählrate hängt dann im wesentlichen nur noch davon ab, wie schnell die Hafniumionen von den metastabilen Zuständen den Grundzustand erreichen können, um für eine weitere Anregung zur Verfügung zu stehen. Durch Stöße der Ionen mit dem Wasserstoff, der sich im Rezipienten befindet, gelangen die Ionen wesentlich schneller in den Grundzustand. Der Wasserstoffdruck beträgt dabei $1 \cdot 10^{-4}$ mbar.

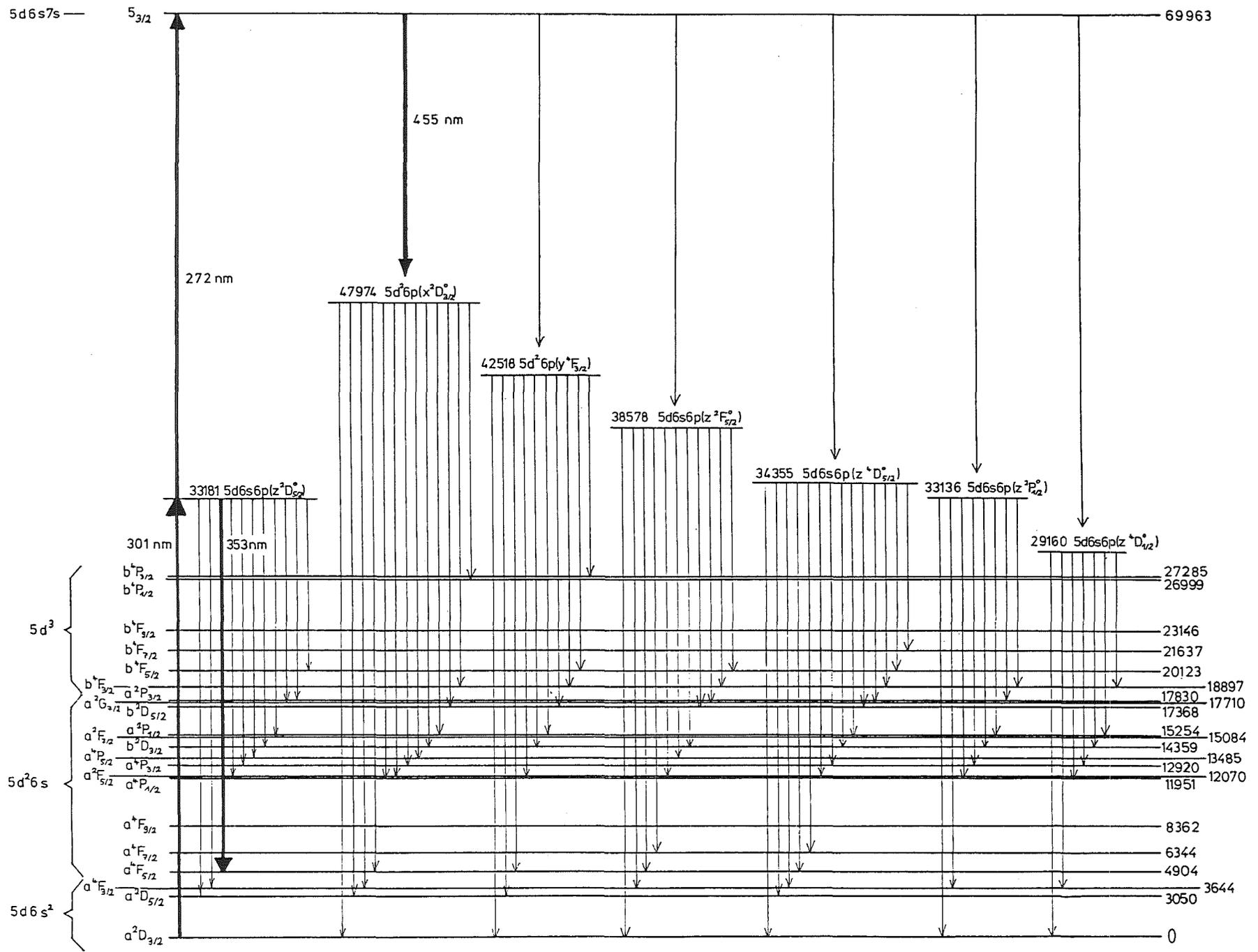


Abbildung 16. Ausschnitt aus dem Termschema für HfII (Aus [CM58,MC75,MS34,Mo70]). Die Anregungs- und Nachweiskante sind hervorgehoben (Niveau-Lagen in cm^{-1})

| Nachweiswellenlängen | Zählrate bei voller Falle ($5 \cdot 10^5$ Ionen) |
|--|---|
| 353 nm | 1000 kHz |
| 332 nm, 338 nm, 473 nm, 493 nm, 507 nm, 531 nm, 552 nm, 646 nm, 651 nm, 766 nm | $\Sigma = 50 \text{ kHz} - 100 \text{ kHz}$ |

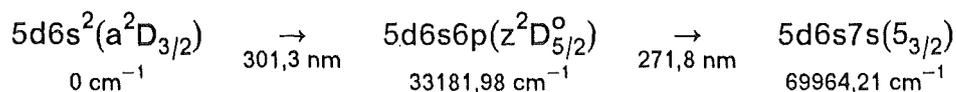
Tabelle 4. Fluoreszenzstärke der verschiedenen Nachweiswellenlängen nach Anregung der Hafniumionen mit 301,3 nm.

Aus der Nachweiswahrscheinlichkeit und der maximalen Zahl der gespeicherten Ionen läßt sich die Photonenrate pro Ion und die mittlere Zykluszeit bis zur nächste Anregung abschätzen (Tab. 5).

| | |
|--|---------------------------|
| Nachweiswahrscheinlichkeit (Raumwinkel 12,5%, Transmission Endkappe 55%, Transmission Interferenzfilter 50%, Quanteneffizienz Photomultiplier 23%, Transmission Glasflächen 75%) | $5 \cdot 10^{-3}$ |
| Gemessene Zählrate bei $5 \cdot 10^5$ Ionen | $8 \cdot 10^5 \text{ Hz}$ |
| Emittierte Photonenzahl pro Ion bei 353 nm | 320 Hz |
| Mittlere Zykluszeit für die Anregung eines Ions | 3 ms |

Tabelle 5. Empfindlichkeit des Nachweises bei 353 nm für die Ein-Stufen-Anregung

Für die Zwei-Stufen-Anregung wird der oben beschriebene Übergang als erste Stufe benutzt. Vom $5d6s6p(z^2D_{5/2}^o)$ – Niveau werden die Hafniumionen in das $5d6s7s(5_{3/2})$ – Niveau mit Licht der Wellenlänge 271,8 nm weiter angeregt (Abb. 16). Das Zwei-Stufen-Schema sieht dann folgendermaßen aus:



Der Nachweis des oberen Zustands erfolgt bei 455 nm. Die Sättigung für die zweite Stufe wird dabei nicht erreicht. Für eine UV-Leistung von

$P(272 \text{ nm}) = 2 \text{ mW}$ ist die Emittierte Photonenzahl pro Ion in Tabelle 6 angegeben.

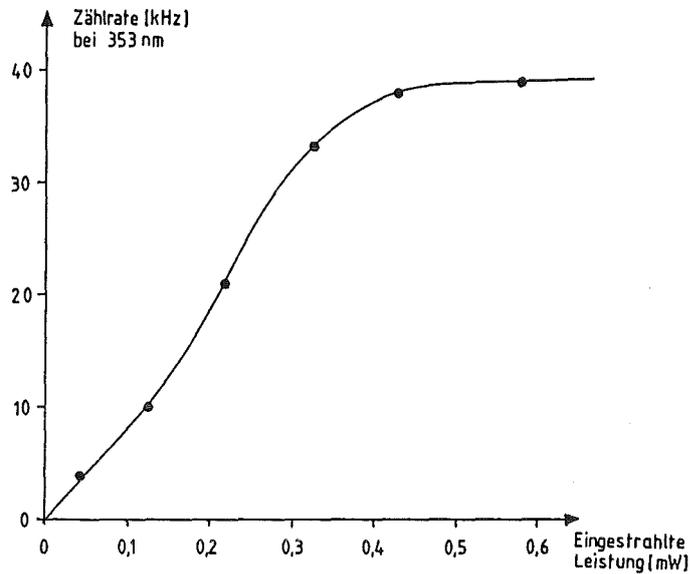


Abbildung 17. Fluoreszenzrate in Abhängigkeit von der Lichtleistung bei Einstrahlung von 301,3 nm. Die Nachweiswellenlänge beträgt 353 nm.

| | |
|---|---------------------------|
| Nachweiswahrscheinlichkeit | $4 \cdot 10^{-3}$ |
| Gemessene Zählrate bei $5 \cdot 10^5$ Ionen | $7 \cdot 10^3 \text{ Hz}$ |
| Emittierte Photonenzahl pro Ion bei 455 nm | 4 Hz |

Tabelle 6. Empfindlichkeit des Nachweises bei 455 nm für die Zwei-Stufen-Anregung.

4.3.2 Spektroskopie an Thoriumionen

Die Übergänge für die Ein- und Zwei-Stufen-Anregung an Thoriumionen sind in Abbildung 18 dargestellt. Die Ionen werden vom $6d^27s(^4F_{3/2})$ – Grundzustand durch Laserlicht der Wellenlänge 583,9 nm in das $5f6d7s(^2P_{3/2})$ – Niveau angeregt. Der Nachweis erfolgt bei 640,9 nm. Durch Stöße mit Heliumgas bei einem Druck von $5 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}$ gelangen die Ionen in den Grundzustand, aus dem sie wieder angeregt werden können.

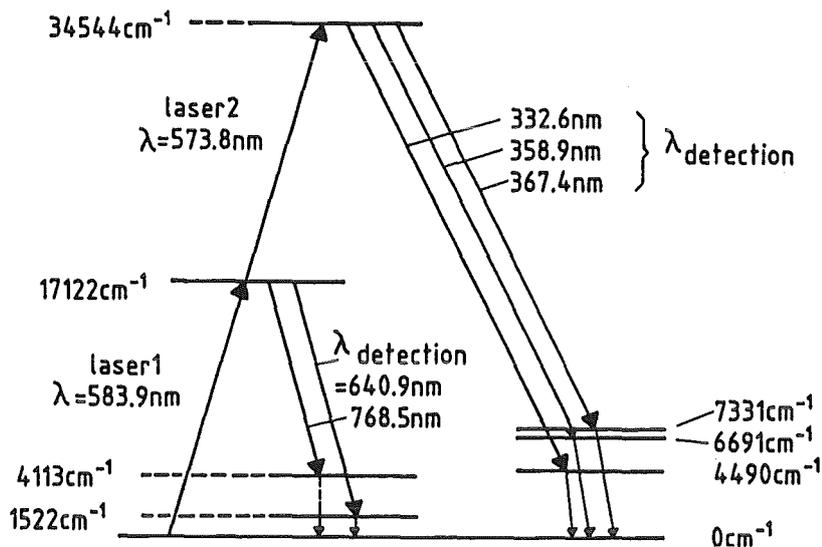


Abbildung 18. Ausschnitt aus dem Termschema von Thoriumionen.

Für das Zwei-Stufen-Spektrum werden die Ionen vom $5f6d7s(^2P_{3/2})$ – Zustand mit 573,8 nm in das Niveau bei 34544 cm^{-1} angeregt. Das detektierte Fluoreszenzlicht setzt sich aus den Wellenlängen 332,6 nm, 358,4 nm und 367,4 nm zusammen.

Im Gegensatz zu den Hafniumionen, bei denen Wasserstoff als Speicher- und Quenchgas verwendet werden kann, befindet sich bei Experimenten an Thoriumionen Heliumgas im Rezipienten, obwohl mit H_2 eine höhere Quenchrates und damit eine höhere Signalrate erreicht werden kann. Der Nachteil liegt in der kürzeren Beobachtbarkeits-Dauer der Thoriumionen, die mit H_2 unter einer Stunde liegt und bei Helium mehrere Stunden beträgt [Ka89].

4.3.3 Vergleich der Zwei-Stufen-Anregung an Hafnium- und Thoriumionen

Die näherungsweise Bestimmung des Ionen-Anteils, der den oberen Zustand erreicht, erfolgt durch Beobachtung der Abnahme des Fluoreszenzlichts vom mittleren Zustand. Die Frequenz des Lichts für die erste Anregung wird dabei konstant gehalten, die Frequenz des Lichts für die zweite Anregung wird durchgestimmt. Es wird die Stärke des Fluoreszenzlichts gemessen, welches vom ersten angeregten Zustand ausgeht. Ist die Frequenz der zweiten Anregung resonant mit dem Übergang, so nimmt die Zahl der Fluoreszenzphotonen ab, da einige der Ionen weiter angeregt werden (Abb. 19). Die Halbwertsbreite dieses Einbruchs entspricht der des Zwei-Stufen-Spektrums. Unter der Annahme, daß die mittleren

Zykluszeiten der Ein- und Zwei-Stufen-Anregung gleich sind, ergibt die relative Tiefe der Abnahme der Fluoreszenz unmittelbar den Anteil der Ionen, die in den oberen Zustand gelangen.

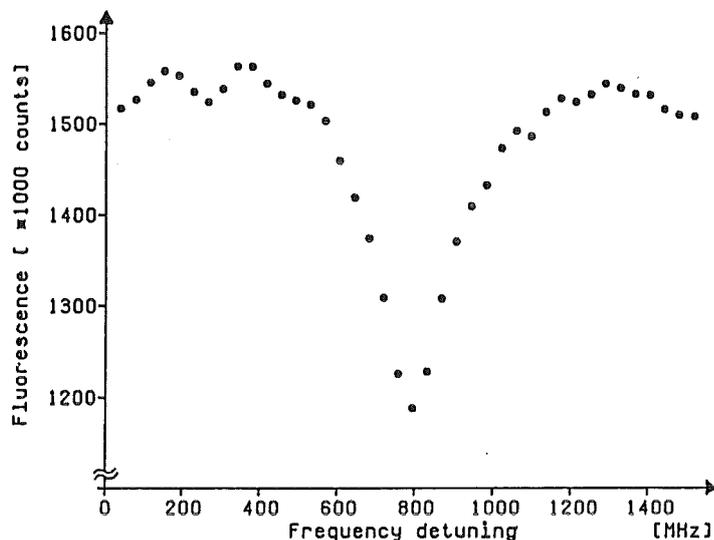


Abbildung 19. Fluoreszenzrate von der ersten Stufe der Zwei-Stufen-Anregung, während die Frequenz des zweiten Lasers durchgestimmt wird. Die Ionen werden weiter angeregt, deshalb nimmt die Signalrate der ersten Stufe ab.

Sind dagegen die Zykluszeiten unterschiedlich, so hängt es von deren Verhältnis ab, wie groß die Abnahme des Fluoreszenzlichts ist, und unter Umständen läßt sich aus der Tiefe dieser Abnahme der Anteil der Ionen im oberen Zustand überhaupt nicht bestimmen. Das zeigt im Gegensatz zur Anregung der Hafniumionen die Zwei-Stufen-Anregung an Thoriumionen. Mit den gewählten Übergängen (Abb. 18) beobachtet man keine Abnahme trotz zweiter Resonanz. Der Grund für dieses zunächst überraschende Ergebnis ist vermutlich eine wesentlich kürzere Zwei-Stufen-Zykluszeit im Vergleich zur Ein-Stufen-Zykluszeit. Die Zykluszeit der Ein-Stufen-Anregung wird durch die Aufenthaltsdauer der Thoriumionen in den metastabilen Zuständen bestimmt. Sie hängt von der Quenchrage der Ionen aufgrund der Stöße mit dem Heliumgas ab. Beim Zwei-Stufen-Zyklus dagegen gelangen die Thoriumionen nach der zweiten Anregung in Zustände, die andere Parität als der Grundzustand haben [ZC74] und deshalb nicht metastabil sind. Sie können den Grundzustand schneller erreichen und damit ist die Zykluszeit kürzer.

Da nur ein Teil der Thoriumionen vom mittleren in den oberen Zustand angeregt werden kann, gelangt jedes Ion nach einigen schnellen Zwei-Stufen-Zyklen vom

mittleren Zustand in einen metastabilen Zustand und ergibt ein Ein-Stufen-Signal. Die Verweildauer in diesen metastabilen Zuständen ist dabei wie gesagt groß gegenüber der Zykluszeit der Zwei-Stufen-Anregung. Es werden also bei einer Zwei-Stufen-Anregung nicht weniger Fluoreszenzphotonen vom mittleren Zustand gemessen, sondern es finden einige Zwei-Stufen-Zyklen statt, die aber die Ein-Stufen-Zyklusdauer nur unwesentlich verlängern.

Bei Hafnium dagegen ist eine Abnahme der Fluoreszenzphotonen zu beobachten, deshalb kann der Zwei-Stufen-Zyklus zeitlich nicht wesentlich kürzer sein als der Ein-Stufen-Zyklus, wohl aber länger. Aus der gemessenen Photonenzahl vom oberen Zustand und der Größe der Abnahme der Fluoreszenz vom mittleren Zustand läßt sich daher nur folgern, daß unter den aktuellen experimentellen Bedingungen mehr als 6% der Ionen in den oberen Zustand angeregt werden.

4.4 Nachweis-Empfindlichkeit und spektrale Auflösung

Die Effizienz bei der Erzeugung und anschließenden Speicherung der Ionen beträgt nur $5 \cdot 10^{-8}$ (siehe Kap. 3.3). Werden die Hafniumionen mit der Ein-Stufen-Anregung nachgewiesen, genügen 80 Ionen in der Falle; dies ergibt sich aus der Ein-Stufen-Anregung mit gepulstem Licht: Die Zählrate bei voller Falle beträgt 800 kHz, wobei die Zahl der Ionen $5 \cdot 10^5$ [Ka89] ist. Um in einer Sekunde ein 2σ -Signal bezüglich des Untergrundes, der 1 kHz beträgt, zu messen, sind demnach 80 Ionen in der Falle ausreichend. Dies entspricht einer ursprünglich auf dem Tantaldraht vorhandenen Hafniummenge von nur 0,4 pg. Vorausgesetzt wurde dabei, daß die an 1 ng-Proben gemessene Transferrate bei diesen kleinen Mengen dieselbe ist. Probenmengen unter 10 pg konnten bisher aber noch nicht gemessen werden, da Hafniumverunreinigungen im Bereich von 10 pg auftreten. Der Grund für diese Verunreinigungen ist vermutlich im Tantaldraht enthaltenes Hafnium, welches durch die aufgetragene Salzsäure gelöst wird und sich beim anschließenden Glühen wie die aufgetragene Hafniumprobe verhält.

Die Auflösung der Ein-Stufen-Spektren ist aufgrund der großen Dopplerverbreiterung der Resonanzlinie, verursacht durch die schnelle Ionenbewegung, gering. Werden die Ionen immer nur dann angeregt werden, wenn die an der Falle anliegende Wechselspannung ihr Maximum erreicht, reduziert sich die Breite um einen Faktor drei (siehe Kap. 5.2). In Abbildung 20 ist dies anhand einer Probe mit

natürlichem Hafnium-Isotopengemisch dargestellt. Die volle Halbwertsbreite reduziert sich von 4800 MHz auf 1600 MHz.

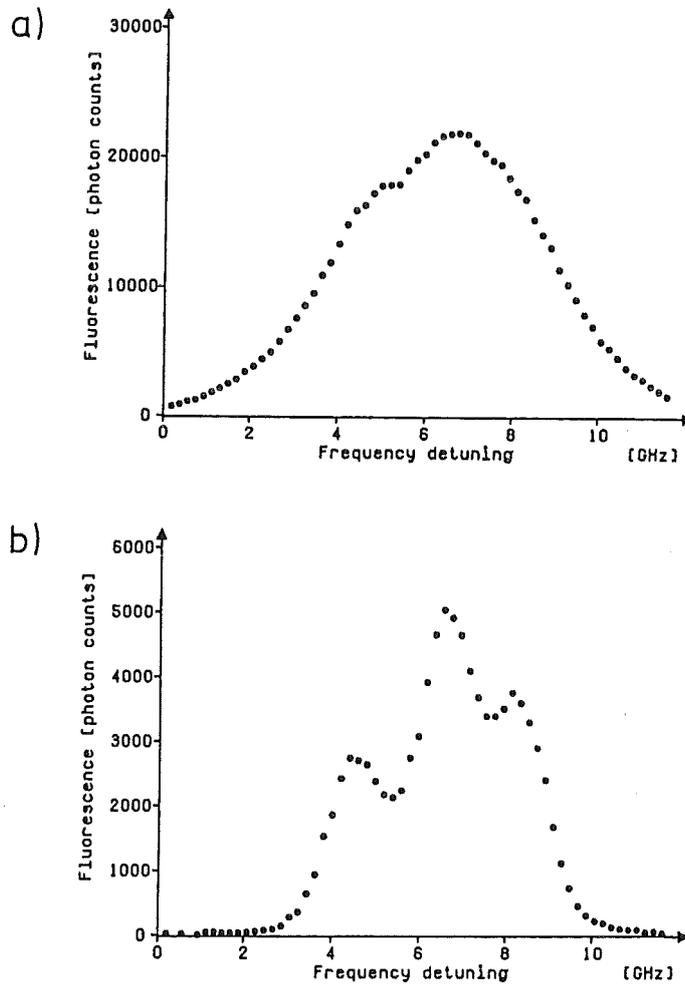


Abbildung 20. Ein-Stufen-Anregung an Hafniumionen.

a) Spektrum des natürlichen Hafnium-Isotopengemischs bei kontinuierlicher Einstrahlung.

b) Spektrum an derselben Ionenwolke mit gepulstem Laserlicht, das nur in den Maxima der Fallenspannung eingestrahlt wird.

Die Nachweis-Empfindlichkeit bei der Zwei-Stufen-Anregung ist bei Hafnium deutlich geringer als bei der Ein-Stufen-Anregung. Zum einen werden nicht alle Ionen, die sich nach der ersten Anregung im mittleren Zustand befinden, in den oberen Zustand angeregt, zum anderen existieren viele mögliche Zerfall-Übergänge vom oberen angeregten Zustand (vgl. Abb. 16), es wird aber nur einer davon nachgewiesen. Deshalb sind ca. 7000 Ionen in der Falle notwendig, um in ei-

ner Sekunde ein 2σ -Signal bezüglich des Untergrundes von 1 kHz messen zu können. Auf dem Draht wäre dafür eine Menge von 50 pg notwendig.

Die Auflösung der Zwei-Stufen-Spektren ist durch die natürliche Linienbreite des mittleren und des oberen Zustandes begrenzt. Da der erste angeregte Zustand der Hafniumionen eine Lebensdauer von unter 35 ns hat, findet keine nennenswerte Beschleunigungsverbreiterung durch Geschwindigkeitsänderung in diesem Zustand statt, wie sie dagegen bei Thoriumionen beobachtet wird. Die Lebensdauer des mittleren Zustandes wurde abgeschätzt, indem zu verschiedenen Zeiten nach der gepulsten Anregung die Abnahme der Zählrate bestimmt wurde. Der Wert von 35 ns entspricht dabei der zeitlichen Auflösung von Photomultiplier und Nachweis-Elektronik, die Lebensdauer kann daher durchaus kürzer sein.

Das Zwei-Stufen-Spektrum in Abbildung 21 zeigt das Isotop ^{176}Hf . Die Linienbreite beträgt 190 MHz. Da die Lebensdauer des mittleren Zustands nur abgeschätzt werden konnte, ist der Beitrag des zweiten Übergangs an dieser Linienbreite unbekannt.

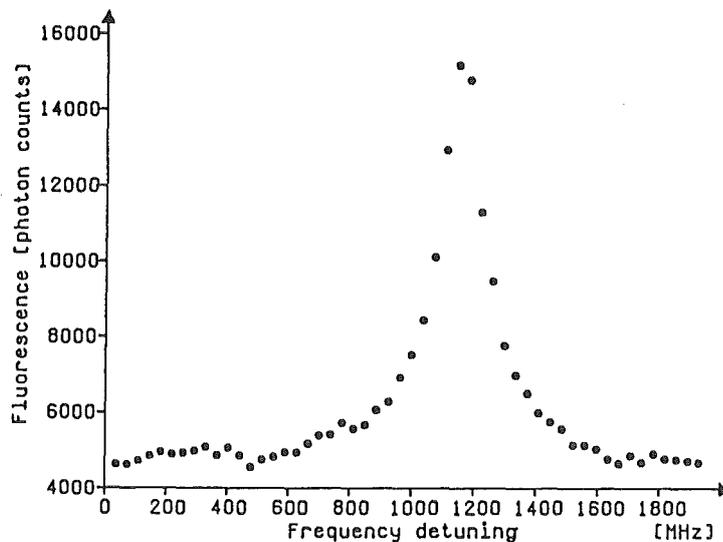
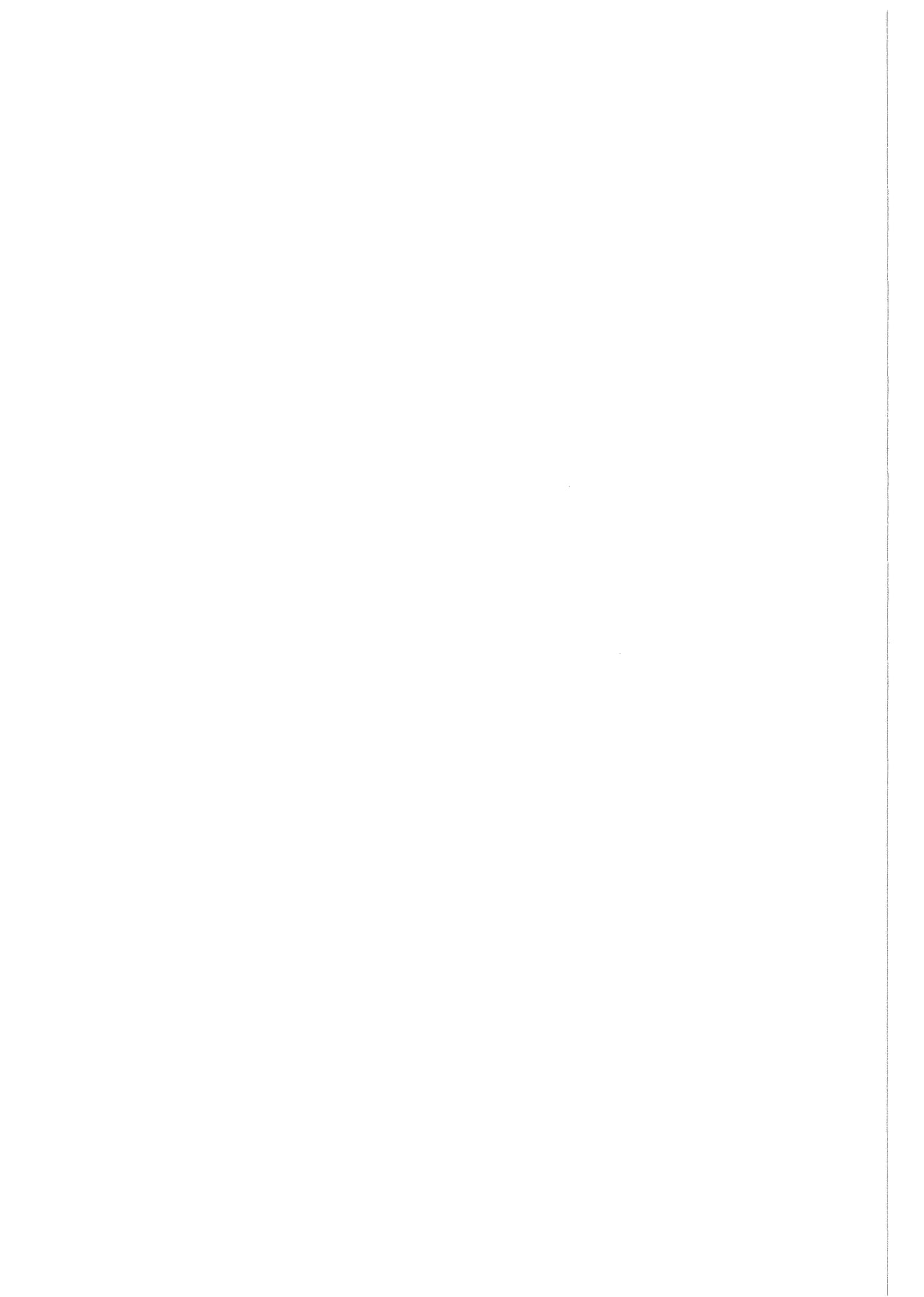


Abbildung 21. Zwei-Stufen-Spektrum des Hafniumisotops ^{176}Hf . Die Halbwertsbreite beträgt 190 MHz.



5. Spektroskopische Methoden an gespeicherten Ionen

5.1 Vorüberlegungen

Um die Laserspektroskopie an gespeicherten Ionen in einer Hochfrequenz-Ionenfalle sinnvoll einsetzen zu können, sind die in Kap. 3 beschriebenen Aspekte wie die Effizienz beim Füllen der Ionenfalle und eine lange Speicherdauer nur ein Teil der Voraussetzungen dafür. Ebenfalls wichtig ist die Auflösung der Spektren. In diesem Punkt scheint die Paulsche Ionenfalle zunächst ungeeignet für die hochauflösende Spektroskopie zu sein. Dies gilt insbesondere, wenn Isotopieverschiebungen und Hyperfeinstruktur-Aufspaltungen bestimmt werden sollen, da die gemessenen Linienbreiten in der gleichen Größenordnung liegen. Ein Spektrum, das mit üblicher Resonanzfluoreszenz-Spektroskopie gemessen wurde, ist in Abbildung 22 dargestellt.

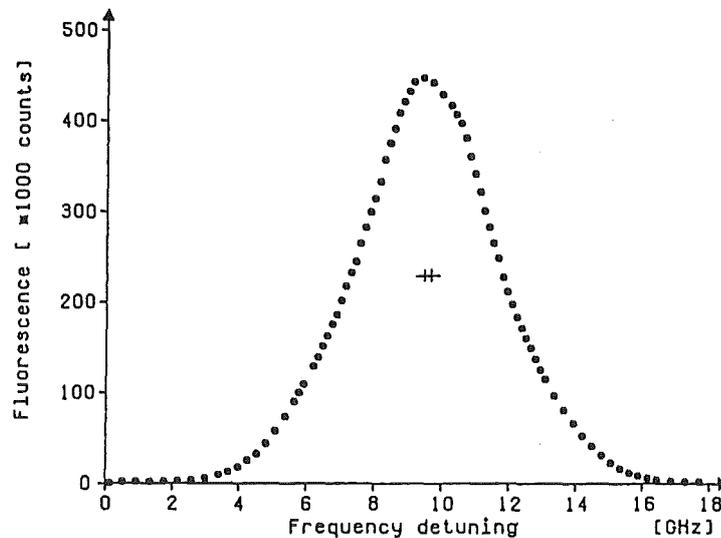


Abbildung 22. Dopplerverbreitertes Spektrum von Hafniumionen in einer Paulschen Falle (der eingezeichnete Balken hat die Größe der natürlichen Linienbreite des Übergangs).

Charakteristisch für Spektren von gespeicherten Ionen ist dabei die große Dopplerverbreiterung, hervorgerufen durch das speichernde Wechselfeld, das an der Falle anliegt. Bei typischen Werten, zum Beispiel einer Frequenz von 600 kHz und einer Amplitude von 400 V, ist das Spektrum sogar viermal so breit wie ein ver-

gleichbares dopplerverbreitertes Spektrum eines Hafniumgases bei Raumtemperatur. Die natürlichen Linienbreiten der angeregten elektronischen Zustände liegen ein bis zwei Größenordnungen unter der Dopplerbreite. Es sind deshalb spektroskopische Methoden notwendig, mit denen die Dopplerbreite der Spektren reduziert werden kann.

Es existieren bereits die unterschiedlichsten Spektroskopiearten, um an einem Ensemble von Teilchen mit einer Geschwindigkeitsverteilung eine Auflösung im Bereich der natürlichen Linienbreite zu erhalten [De88,LC77,Sh76]. Als Beispiele seien hier die Sättigungsspektroskopie, die Polarisationspektroskopie und die Spektroskopie an Mehr-Niveau-Systemen genannt. Diesen Methoden ist gemeinsam, daß die verbesserte Auflösung mit einer zum Teil sehr viel geringeren Sensitivität erkauft wird. Damit scheidet die üblichen Methoden, um dopplerreduzierte Spektren zu erhalten, aus.

Auch die Methode, durch Laserkühlung [Er87,St88] dopplerfreie Spektren zu messen, ist nur in Sonderfällen anwendbar, denn es können nicht beliebige Atom- oder Ionensorten benutzt werden. Um zum Beispiel ein Ensemble bei Raumtemperatur mit einem Laser zu kühlen, ist eine Zykluszeit eines Atoms von der Größenordnung der natürlichen Lebensdauer notwendig, also im Bereich von Nanosekunden. Da die meisten Übergänge mehrere Zerfallskanäle haben, wobei vor allem metastabile Zustände populiert werden, liegt die typische Lebensdauer im Bereich von Sekunden. Dies ist jedoch nicht ausreichend, um die für Laserkühlung erforderliche Anregungsrate zu erhalten. Laserkühlung wird deshalb nur an wenigen Atom- und Ionensorten möglich, wie zum Beispiel an Magnesium, Beryllium, Barium und Quecksilber [BP85,BP89,DB89,NH78], wobei zum Teil mehrere Laser notwendig sind.

5.2 Dopplerreduzierte Ein-Stufen-Anregung

5.2.1 Einführung

Die Ursache der großen Dopplerbreite der Spektren liegt in dem speichernden Wechselfeld. Dieses Feld macht sich in der Geschwindigkeitsverteilung der Ionen bemerkbar. Aus der Lösung der Mathieu-Differentialgleichung (siehe Kap. 3) bekommt man eine Vorstellung von der Bewegung der Ionen (vgl. Abb. 4). Es sind

grob zwei Bewegungsanteile zu unterscheiden. Der schnelle Bewegungsanteil mit kleiner Amplitude folgt der Oszillation des Wechselfeldes, während der langsamere Bewegungsanteil mit großer Amplitude eine Frequenz von ungefähr 90 kHz besitzt.

Die Geschwindigkeitsamplituden (vgl. Abb. 5) werden ebenfalls durch einen schnellen Anteil, der der Oszillation des speichernden Feldes folgt, und dem Makrobewegungs-Anteil verursacht. Die Verteilung der Geschwindigkeitsamplituden variiert dabei mit der Oszillation der anliegenden Spannung. Hat die Wechselspannung ihr Maximum erreicht, ist die Verteilung der Geschwindigkeiten schmaler als im Nulldurchgang. Für die Laserspektroskopie bedeutet dies, daß die Spektren eine geringere Dopplerbreite aufweisen, wenn die Ionen ausschließlich im Maximum der Wechselspannung mit Licht angeregt werden. Dies wird im folgenden mit Experimenten an Hafnium- und Thoriumionen gezeigt.

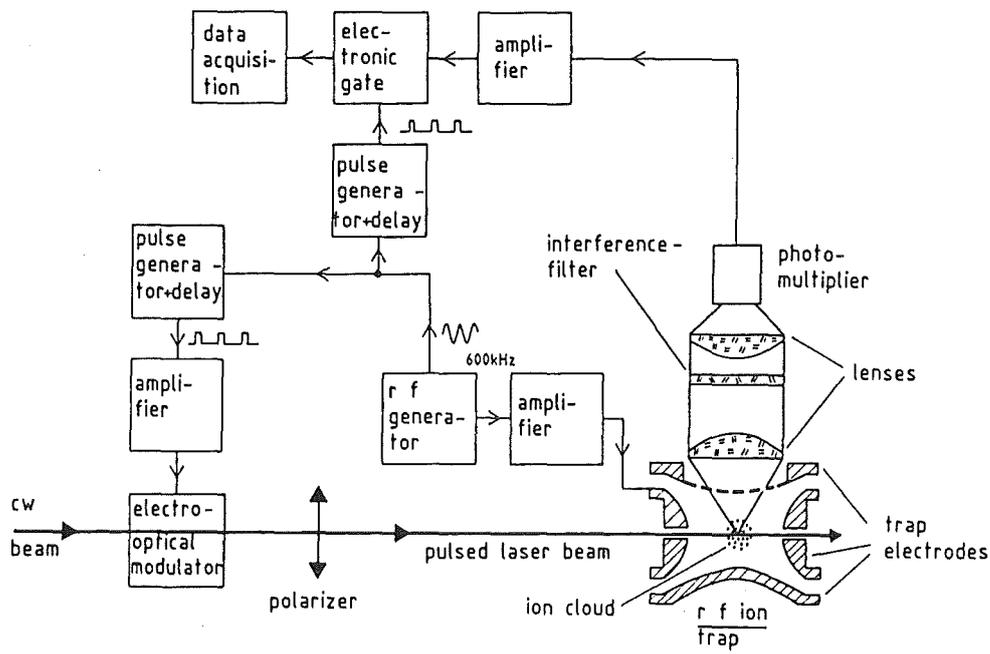


Abbildung 23. Experimenteller Aufbau, um Ionen zeitselektiv in bestimmten Phasen zu dem speichernden Wechselfeld mit Licht anzuregen.

5.2.2 Experimenteller Aufbau

Um den Laserstrahl oder, wie bei den Hafniumionen, den UV-Strahl mit der Frequenz $\Omega/2\pi$ der Wechselspannung aus- und einschalten zu können, befindet sich ein elektrooptischer Modulator zusammen mit zwei Wollaston-Prismen als Polarisator und Analysator im Strahlengang (Abb. 23). Das Signal für den Pulsgenerator, der den Modulator versorgt, wird über eine Probewicklung der Spule abgegriffen, die die Amplitude der Wechselspannung liefert (Abb. 8). Die Transmissions-Verluste durch das Modulatorsystem belaufen sich auf etwa 20 bis 25 %. Die minimale Breite der Pulse beträgt 50 nsec.

Da die Fluoreszenzstärke des durch einen Laserpuls angeregten Zustandes mit der Zeit abnimmt, ist es sinnvoll, auch die Zähl Elektronik zu unterbrechen (Abb. 23). Ohne starken Signalverlust nimmt der Untergrund beträchtlich ab, wenn die Lebensdauer des angeregten Zustandes deutlich kleiner als die Zeit zwischen zwei Laserpulsen ist. Bei einer Fallenfrequenz von 600 kHz beträgt diese Zeit ca. 1700 ns bei einem Puls pro Periode. Sie ist damit länger als die natürlichen Lebensdauern der bei den Thoriumionen und Hafniumionen angeregten Niveaus. Ein elektronisches Gatter, das ebenfalls mit der Frequenz $\Omega/2\pi$ gesteuert wird, unterbricht dafür das Photomultipliersignal. Die minimale Breite des Zählgatter-Intervalls beträgt 150 ns.

5.2.3 Gepulste Anregung von gespeicherten Ionen

Die Methode der gepulsten optischen Anregung mit der Oszillation der Fallenspannung ist bei Hafniumionen in Abbildung 24 an dem Isotop ^{178}Hf gezeigt. Die Anregung erfolgt im Bereich des Maximums der Wechselspannung mit 60 ns breiten Lichtpulsen. Pro Periode finden zwei Anregungen statt. Die Halbwertsbreite geht im Vergleich zum ungepulsten Spektrum von 4800 MHz auf 1600 MHz zurück, die Breite reduziert sich also um einen Faktor drei. In Abbildung 25 ist das auch an gespeicherten Thoriumionen gezeigt, jedoch wird in diesem Spektrum nur einmal pro Periode angeregt. Auch hier nimmt die Halbwertsbreite ungefähr um einen Faktor drei von 2200 MHz auf 700 MHz ab.

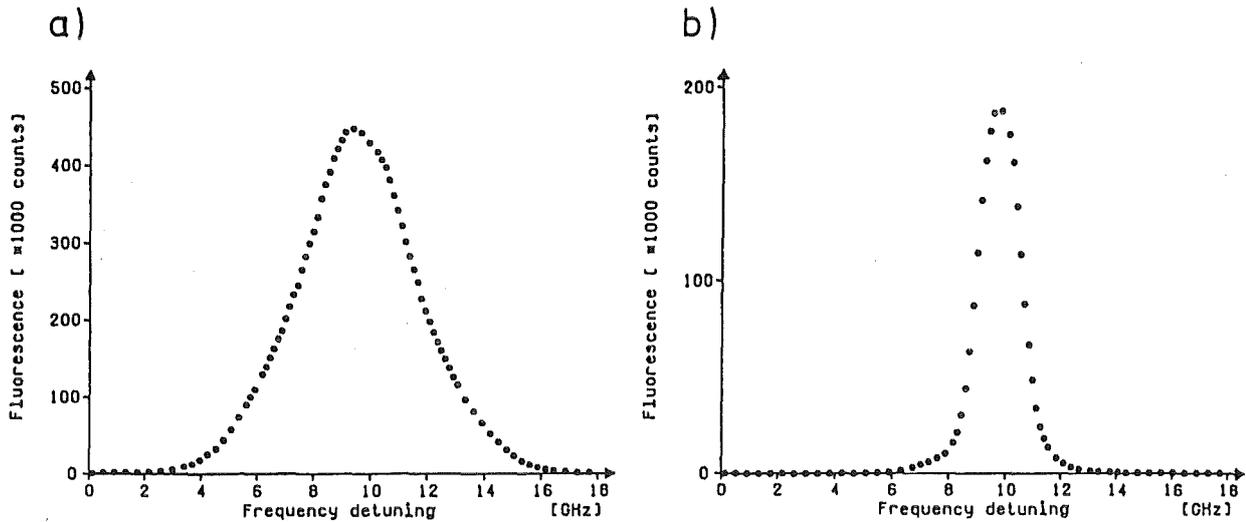


Abbildung 24. Vergleich des dopplerverbreiterten Spektrums von Hafniumionen mit dem dopplereduzierten Spektrum durch gepulste Anregung (60 ns Pulslänge) im Maximum der Fallenspannung $U(t)$.

a) Die Halbwertsbreite des vollen Dopplerspektrums beträgt 4800 MHz.

b) Die Halbwertsbreite des Spektrums mit gepulster Anregung ist 1600 MHz, die Signalhöhe erreicht die Hälfte des Spektrums mit voller Dopplerbreite.

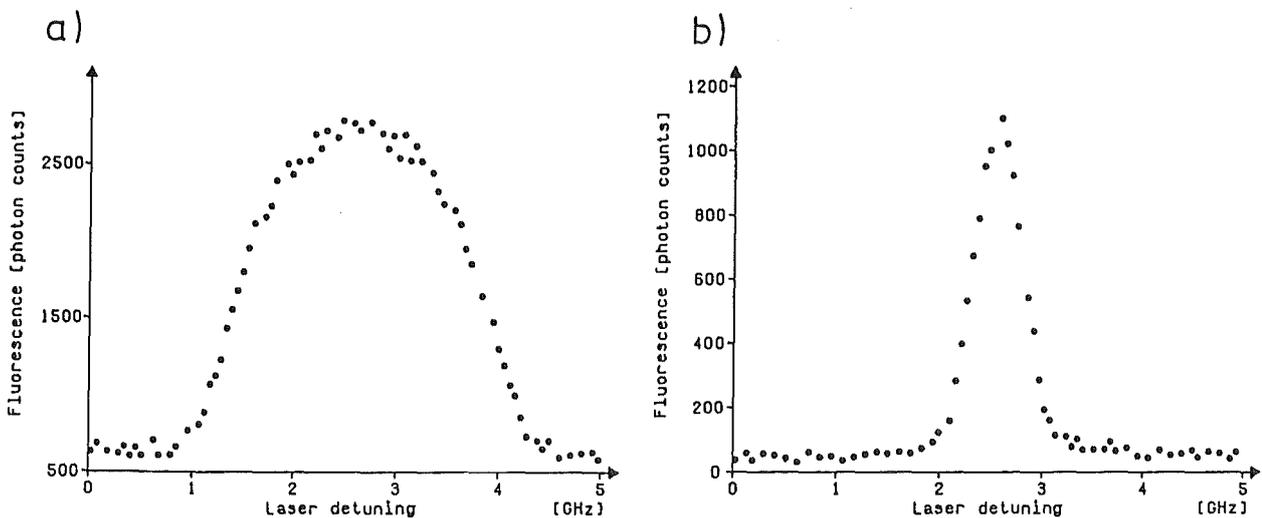


Abbildung 25. Gepulste Anregung an Thoriumionen.

a) Spektrum mit voller Dopplerbreite mit 2200 MHz Halbwertsbreite.

b) Gepulste Anregung, die Halbwertsbreite beträgt noch 700 MHz und die Signalhöhe erreicht 80% des Spektrums mit kontinuierlicher Anregung.

Die unterschiedlichen Breiten der Hafnium- und Thoriumspektren hängen vor allem mit den unterschiedlichen Anregungswellenlängen zusammen: Die Hafniumionen werden mit Licht bei 301,3 nm angeregt, die Thoriumionen mit 583,9 nm. Die Wellenlängen unterscheiden sich ungefähr um einen Faktor zwei und damit auch die Dopplerbreiten.

Die typischen Halbwertsbreiten und ein Vergleich der Signalthöhen der gepulsten und der ungepulsten Spektren sind in Tabelle 7 zusammengestellt.

| Isotop | Methode | Halbwertsbreite | Signalthöhe |
|-------------------|------------|-----------------|-------------|
| ¹⁷⁶ Hf | un gepulst | 4800 MHz | 100% |
| | ge pulst | 1400 MHz | 50% |
| ²³² Th | un gepulst | 2200 MHz | 100% |
| | ge pulst | 700 MHz | 80% |

Tabelle 7. Vergleich der gepulsten mit der ungepulsten Anregung.

Die Halbwertsbreiten können dabei je nach Arbeitspunkt der Ionenfalle um bis zu 30 % schwanken. Die Verschmälerung bei gepulster Anregung um einen Faktor drei ist unter den gewählten Parametern davon jedoch unabhängig. Die Signalthöhe nimmt dabei höchstens auf die Hälfte ab, obwohl das Verhältnis von Pulslänge zu Pulspause etwa im Falle des Hafniums 1:14 beträgt. Bei Thorium wird nur einmal pro Periode angeregt, damit ist das Verhältnis sogar 1:28, während das Signal nicht nennenswert abnimmt. Im gleichen Taktverhältnis geht damit natürlich auch das mitdetektierte Streulicht des Lichtstrahls zurück.

Der Grund für diese im Verhältnis zu den Lichtpausen kaum abnehmende Signalarate hängt mit dem Verhältnis von Zyklus- und Pulsdauer zusammen. Damit ein Ion bei kontinuierlicher Anregung wieder bei einer bestimmten Geschwindigkeit v_1 (d.h. einer bestimmten Frequenz) angeregt werden kann, muß es erstens wieder im Grundzustand sein und zweitens wieder die Geschwindigkeit v_1 einnehmen. Bei gepulster Anregung muß die Geschwindigkeit v_1 genau während eines Lichtpulses angenommen werden. Dadurch wird die Wartezeit für eine weitere Anregung des Ions im Vergleich zur kontinuierlichen Anregung länger. Die Zy-

kluszeit, nach der ein Ion wieder angeregt wird, beträgt Millisekunden. Wenn, wie hier, die Signalrate bei gepulster Anregung nicht abnimmt, dann ist die Wartezeit eines Ions bis zum nächsten Lichtpuls klein gegen die Zykluszeit. Der Unterschied der geringeren Abnahme der Signalrate bei Thoriumionen im Vergleich zu den Hafniumionen hängt vermutlich damit zusammen, daß die Zykluszeit für Thoriumionen 35 ms beträgt [Ka89], während sie für Hafniumionen 3 ms beträgt (siehe 4.3).

Ein weiterer Punkt, der dabei eine Rolle spielt, ist die geänderte Geschwindigkeitsverteilung der Ionen während der Pulszeit im Maximum der Fallenspannung im Vergleich zur Geschwindigkeitsverteilung bei nichtgepulster Anregung. Da die Geschwindigkeit $v=0$ während des Lichtpulses wahrscheinlicher ist als bei dauernder Einstrahlung, wirkt dieser Effekt der Abnahme des Fluoreszenzlichts durch die Pulspausen entgegen.

Es ist also möglich, nahezu ohne Signalverlust an einem Ionenensemble mit einer schmalen Geschwindigkeitsverteilung Spektren zu messen, indem die Ionen nur im Maximum der Fallenspannung angeregt werden [MKR91]. Die Linienform des gepulsten Spektrums läßt sich mit einer Gaußkurve sehr gut anpassen, die Linienform des ungepulsten Spektrums dagegen nicht (vgl. Abb. 25).

Eine Anwendung dieses Verfahrens im Bereich der Messung von Isotopieverschiebungen von Spektrallinien wurde an Hafniumionen demonstriert (vgl. Abb. 20). Die Isotopieverschiebung (siehe Kap. 6.2) von zwei geraden Isotopen (zum Beispiel ^{178}Hf und ^{176}Hf) beträgt circa 2 GHz. Bei einer vollen Dopplerbreite von 4,8 GHz sind die zwei Isotope, vor allem wenn sie in unterschiedlichen Mengenverhältnissen vorliegen, nicht aufzulösen. Die gepulste Anregung der Ionen, die zu einer Halbwertsbreite von 1,6 GHz führt, macht dies jedoch möglich. Auch im Hinblick auf die Messung von Hyperfeinkomponenten des Hafniumisomers $^{178\text{m}_2}\text{Hf}$ ist dieses Verfahren wichtig. Wegen des zehnfachen magnetischen Moments des Isomers im Vergleich zu dem des ^{177}Hf und ^{179}Hf erstreckt sich die Hyperfeinstruktur vermutlich über 8 GHz (siehe Kap. 6.3).

5.2.4 Untersuchungen zur Ionenbewegung mit gepulster Anregung

Das Verfahren der im Takt mit der Fallenfrequenz $\Omega/2\pi$ gepulsten Ein-Stufen-Anregung an gespeicherten Ionen gibt die Möglichkeit, die Geschwindigkeitsverteilung

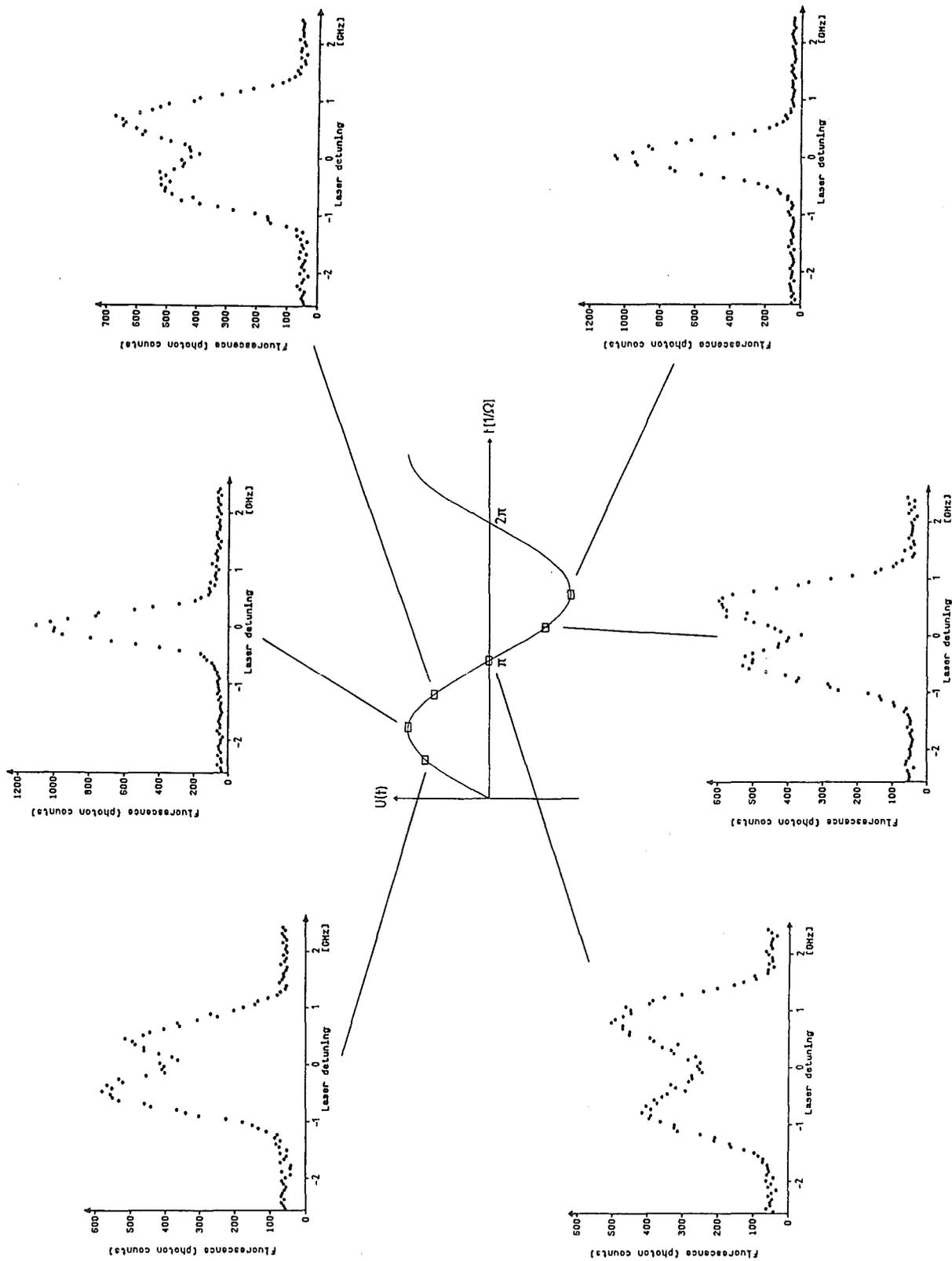


Abbildung 26. Spektren von Thoriumionen, bei denen ein 50 ns breiter Lichtpuls die Ionen zu verschiedenen Phasen bezüglich des Wechselfeldes anregt. Die unterschiedliche Höhe der beiden Maxima ist auf Abbildungsfehler des Fluoreszenzlicht-Strahlengangs zurückzuführen.

lung einer Ionenwolke in Abhängigkeit von der Zeit zu verfolgen. Dazu wird die Phase der Lichtpulse bezüglich der Wechselfrequenz verändert und jeweils bei der eingestellten Phase ein Ein-Stufen-Spektrum gemessen (Abb. 26). An den Spektren ist auffallend, daß sie aus zwei Maxima bestehen, die mit der Phase ihren Abstand ändern. Die Abstände über der Zeit aufgetragen folgen dabei einer harmonischen Schwingung mit der Kreisfrequenz Ω (Abb. 27).

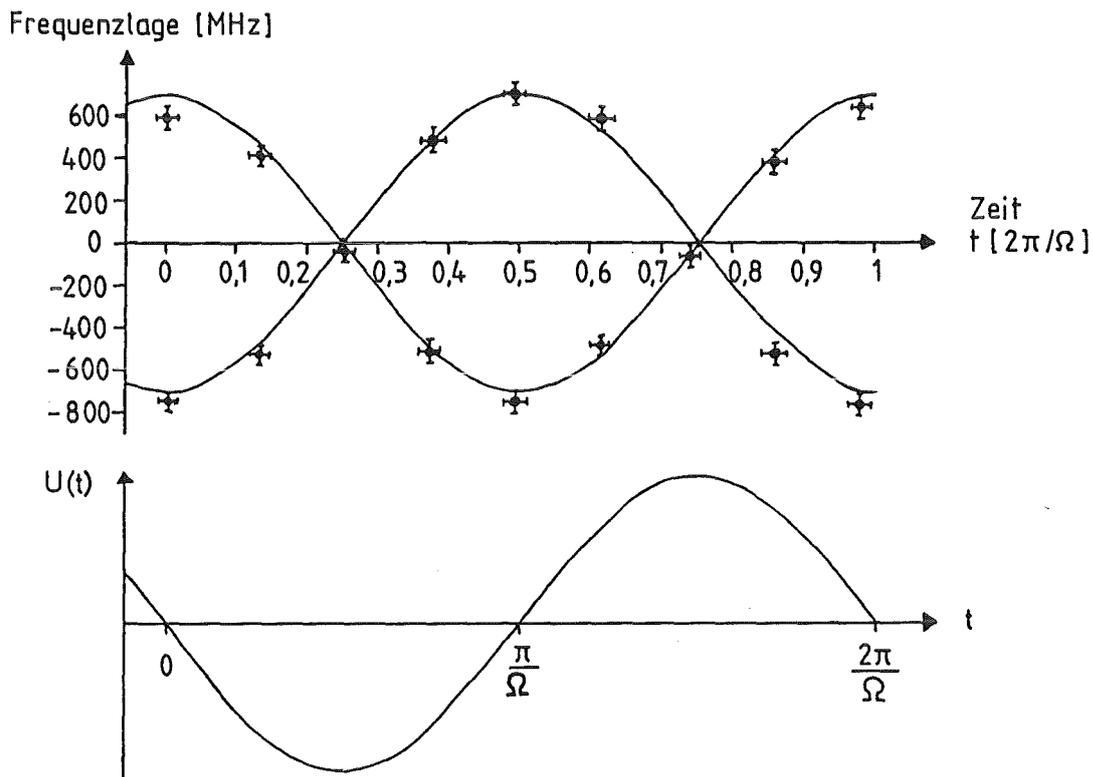


Abbildung 27. Die Frequenzlagen der beiden Maxima (bezogen auf die Lage des ungepulsten Spektrums) bei gepulster Anregung der Thoriumionen (aus den Spektren in Abbildung 26) in Abhängigkeit von der Phase stellen eine harmonische Schwingung dar (durchgezogene Kurve). Zum Vergleich ist die an der Falle anliegende Wechselfspannung mit dargestellt.

Um diese Höckerstruktur zu verstehen, wurde die Fluoreszenz bei verschiedenen Phasen des Laserpulses grob orts aufgelöst gemessen. Dafür steht im Strahlengang des Fluoreszenzlichts ein verschiebbarer Schirm. Deckt er die Hälfte der Fluoreszenz so ab, daß nur Photonen in den Photomultiplier gelangen, die in Richtung des Laserstrahls vor der Fallenmitte erzeugt werden, dann ist nur noch

einer der beiden Höcker zu erkennen (Abb. 28). Bei Abdecken der anderen Hälfte der Ionenwolke verschwindet das eine Maximum und das andere erscheint.

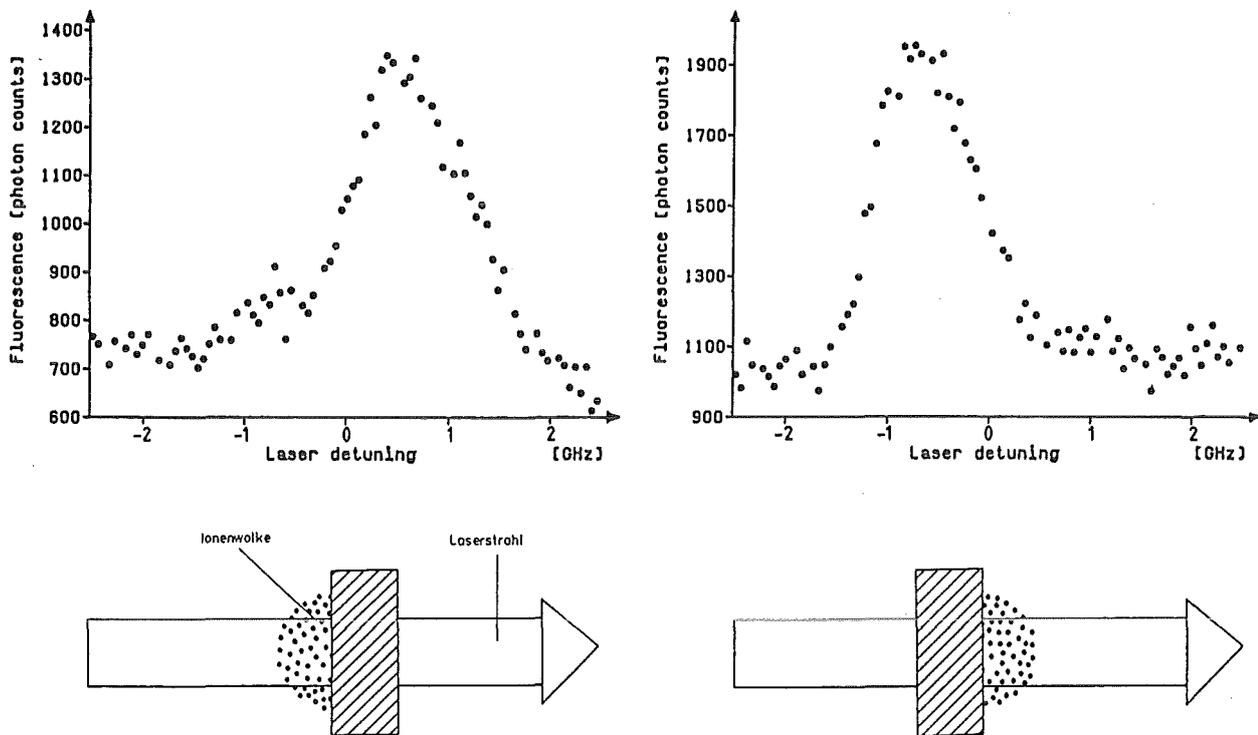


Abbildung 28. Die Phase des Lichtpulses ist so gewählt, daß die Ionen im Null-durchgang von negativer zu positiver Spannung angeregt werden. Durch Abdecken einer Hälfte des Fluoreszenzlichts ist nur noch eines der beiden Maxima zu beobachten. Die beiden Höcker der Spektren werden also an unterschiedlichen Orten der Ionenfalle erzeugt, nämlich in Richtung des Laserstrahls vor und nach der Fallenmitte.

Das Fluoreszenzlicht der Ionen, das die beiden Höcker bildet, wird also an unterschiedlichen Orten der Ionenwolke erzeugt. Beim Durchstimmen der Phase des Lichtpulses, wenn nur eine Hälfte der Fluoreszenz beobachtet wird, verändert sich die Lage des Peaks (Abb. 29 und 30).

Die Frequenzlage bezüglich der Phase folgt dabei einer harmonischen Schwingung. Eine veränderte Peaklage bedeutet für die gemessene Geschwindigkeitsverteilung, daß sich der Wert der wahrscheinlichsten Geschwindigkeit ändert. Je nach Phase bewegen sich deshalb diejenigen Ionen, die sich zum Beispiel in der Hälfte vor der Fallenmitte befinden, in Richtung des Laserstrahls. Dies ist eine Bewegung in Richtung Ringelektroden-Wand. Eine Halbperiode später ändert die Geschwindigkeitsverteilung ihr Vorzeichen, die Ionenhälfte bewegt sich daher auf

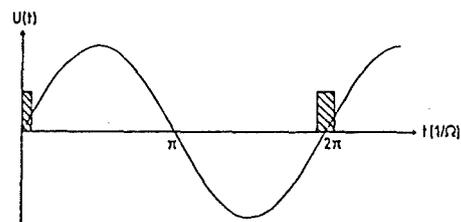
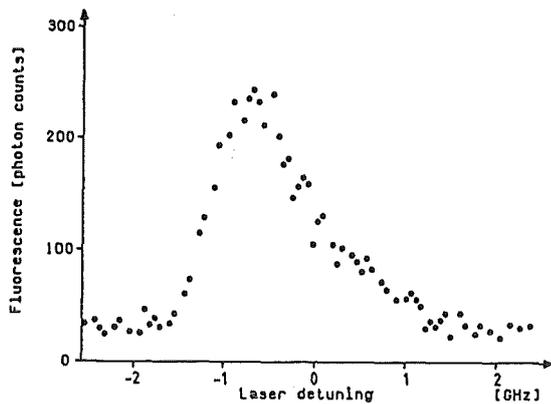
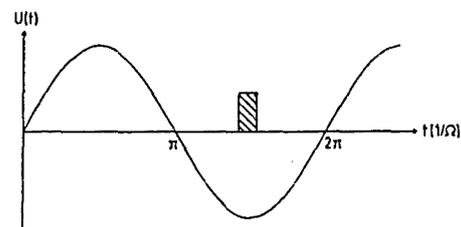
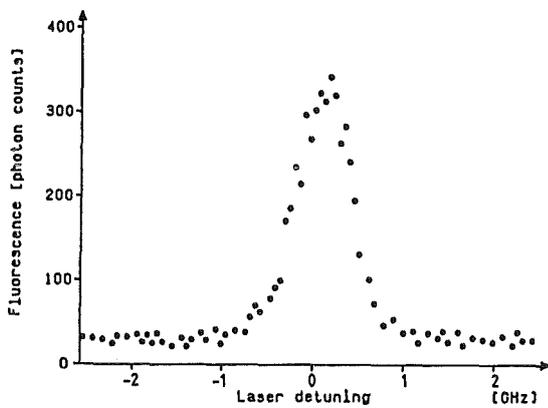
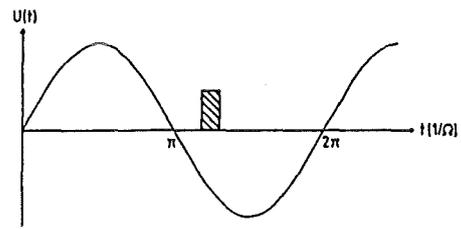
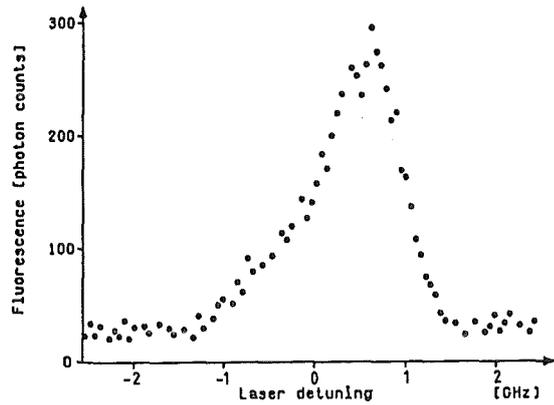


Abbildung 29. Eine Hälfte des Fluoreszenzlichts ist abgedeckt (In Richtung des Laserstrahls die erste Hälfte). Die beobachtete Ionenwolkenhälfte oszilliert mit der Frequenz $\Omega/2\pi$ des speichernden Feldes. Das zeigen die verschiedenen Frequenz- (und damit Geschwindigkeits-) Lagen der Spektren bei unterschiedlichen Phasen der Lichtpulse.

die Fallenmitte zu. Da die Richtung des Laserstrahls bezüglich der Rotationsachse (z-Achse) der Ionenfalle nicht ausgezeichnet ist, gilt diese kollektive Änderung der Geschwindigkeitsverteilung für die gesamte r- oder x-y-Ebene. Die gesamte Ionenwolke bewegt sich in der x-y-Ebene zur Fallenmitte hin beim Nulldurchgang von positiver zu negativer Spannung und bewegt sich von ihr weg im Bereich von negativer zu positiver Spannung.

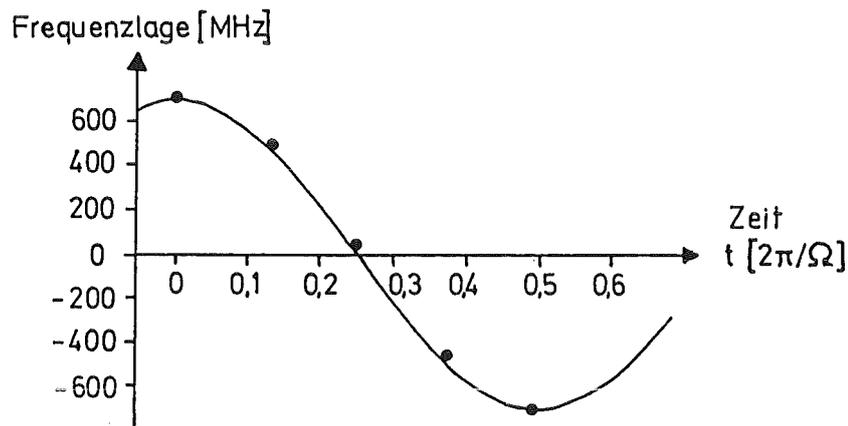


Abbildung 30. Frequenzlage des Maximums in Abhängigkeit von der Phase des Lichtpulses, wenn in Richtung des Laserstrahls nur die hintere Hälfte des Fluoreszenzlichts gemessen wird. Die Meßpunkte werden mit einer harmonischen Schwingung der Kreisfrequenz Ω angepaßt.

Das gleiche Ergebnis läßt sich aus der Lösung der Bewegungsgleichung für ein Ion in der Falle gewinnen (vgl. Kap. 3.1 und 5.5): Bei einer Wechselspannung von $U(t) = V_0 \cos \Omega t$ verläuft der schnelle Geschwindigkeitsanteil für Ionen, die sich in Richtung des Laserstrahls hinter der Fallenmitte aufhalten, wie $\dot{x}(t) \sim + \sin \Omega t$. Beim Nulldurchgang nach der negativen Halbperiode der Spannung ist der Geschwindigkeitsanteil negativ, und das Ion bewegt sich bezüglich der x-Achse in Richtung Fallenmittelpunkt. Dem entspricht in Abbildung 29 das untere Spektrum.

In Richtung der z-Achse sollte ein um die Phase π der Kreisfrequenz Ω verschobenes Verhalten vorliegen, da immer dann, wenn die Ringelektrode auf positivem Potential liegt, die Endkappen negatives Potential haben und umgekehrt. Wenn also der Bewegungsanteil der Ionen, der mit Ω verläuft, in der x-y-Richtung in Mitte der Falle zeigt, bewegen sich gleichzeitig die Ionen, ausgehend von der Fallenmitte, in Richtung der Endkappen.

Dies gilt wohlgermerkt nur für den schnellen Bewegungsanteil der Ionen, der mit der Frequenz $\Omega/2\pi$ verläuft. Nur dieser Bewegungsanteil wird hier untersucht. Alle anderen Anteile, insbesondere die Makrobewegung, die letztendlich die Größe der Ionenwolke bestimmt, sind nach wie vor vorhanden und verursachen die Rest-Dopplerbreite. Die Experimente sagen daher nichts darüber aus, wo sich ein Ion nach zehn, hundert oder tausend Periodendauern der Wechselspannung aufhält. Jedoch läßt sich hier feststellen, daß die Geschwindigkeitsverteilung des Ionenensembles einen Anteil hat, der kollektiv mit der Kreisfrequenz Ω schwingt.

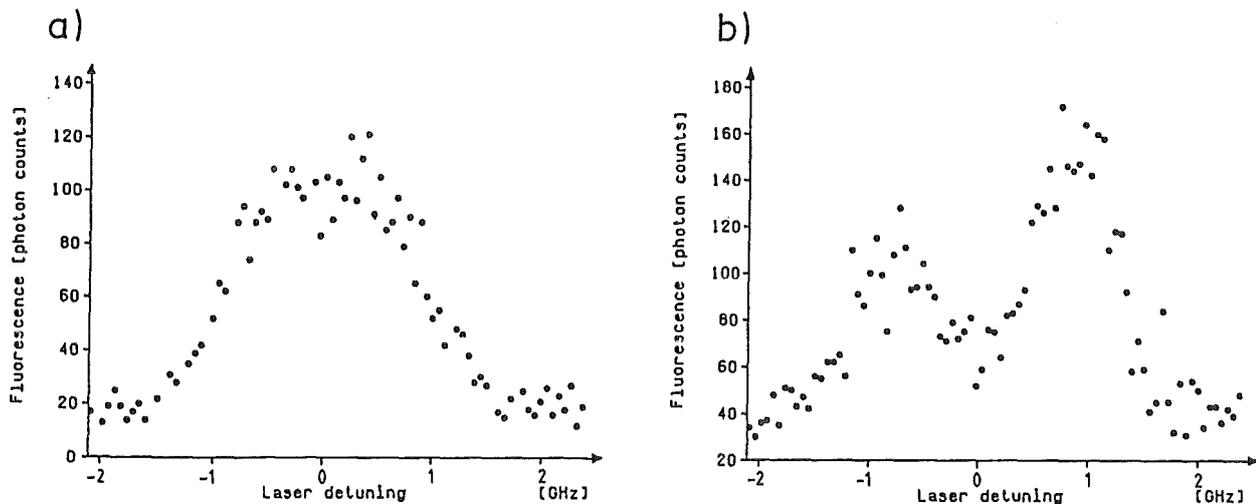


Abbildung 31. Gepulste Anregung der Thoriumionen, wobei einmal nur der innere Teil der Fluoreszenz der Ionenwolke beobachtet wird (a) und in (b) der äußere Teil. Die Lichtpulse regen die Ionen im Nulldurchgang des Wechselfeldes an. Das wesentlich breitere Spektrum des äußeren Teils der Fluoreszenz zeigt, daß die schnellen Ionen sich vor allem im äußeren Bereich der Ionenwolke befinden.

Mit Hilfe des ortsselektiven Fluoreszenznachweises bei gepulster Anregung wurde gezeigt, wie sich bei einer Hälfte der Ionenwolke bei verschiedenen Phasen die Geschwindigkeitsverteilung ändert. Es ist aber auch möglich, bei einer bestimmten Phase die Fluoreszenz an verschiedenen Orten ihrer Entstehung zu messen, indem unterschiedliche Blenden nur Teilbereiche des Fluoreszenzlichts durchlassen. Auf diese Weise bekommt man Informationen über die örtliche Verteilung der Geschwindigkeiten der Ionen. Als Beispiel sind in Abbildung 31 zwei Spektren gezeigt, bei denen einmal eine Lochblende nur den inneren Teil des Fluoreszenzlichts durchläßt (Abb. 31 a) und einmal nur der äußere Teil, indem eine Scheibe im Strahlengang steht (Abb. 31 b). Die Größe der Blende und der

Scheibe ist so gewählt, daß jeweils die Hälfte der Fläche, die das Fluoreszenzlicht einnimmt, blockiert wird. Die Lichtpulse werden nur dann eingestrahlt, wenn die Spannung einen Nulldurchgang hat. Die Teilspektren der beiden Ionenhälften haben im inneren Teil der Ionenwolke (Spektrum mit Kreisblende) einen kleineren Frequenzabstand als das Spektrum der äußeren Ionen. Das bedeutet, daß die Ionen, die sich gerade in der Nähe der Fallenmitte aufhalten, kleinere Mikro-Geschwindigkeitsamplituden haben als die, die sich weiter außen befinden. Dies ist zu verstehen, wenn man berücksichtigt, daß die Feldstärke in der Mitte der Falle Null ist und an der Wand der Ringelektrode ihr Maximum hat. Das speichernde Feld sollte sich deshalb auf die äußeren Ionen stärker auswirken.

5.3 Dopplerfreie Zwei-Stufen-Anregung

5.3.1 Zwei-Stufen-Anregung an gespeicherten Ionen

Mit der in geeigneter Weise gepulsten Anregung von Ionen in einer Paul-Falle ist, wie oben gezeigt, eine Reduzierung der Breite der Spektren um einen Faktor drei zu erreichen. Für die Messung der Hyperfeinstruktur-Aufspaltung von Ionen ist dies jedoch noch nicht ausreichend (Abb. 32). Um eine weitere Verschmälerung der Spektrallinien zu bekommen, wurde deshalb eine andere spektroskopische Methode angewendet, nämlich die Zwei-Stufen-Anregung.

Mit zwei Lichtstrahlen geeigneter Wellenlängen werden die Ionen, ausgehend vom Grundzustand, nacheinander angeregt, und die Fluoreszenz vom obersten Zustand wird gemessen. Die beiden Lichtstrahlen überlappen dabei einander und verlaufen parallel oder antiparallel. Dadurch, daß die erste Anregung vom Grundzustand bei fester Frequenz erfolgt, befinden sich im mittleren Zustand zunächst nur Ionen einer bestimmten Geschwindigkeit, zum Beispiel $v=0$. Die Frequenz des Lichtstrahls für den nachfolgenden zweiten Schritt wird durchgestimmt, und die Ionen gelangen vom mittleren Zustand in den oberen Zustand. Durch das Präparieren von Ionen innerhalb eines schmalen Geschwindigkeitsintervalls durch den ersten Anregungsschritt sollte die Linienbreite des mit dem zweiten Schritt gemessenen Spektrums nur durch die natürlichen Breiten der zwei angeregten Zustände bestimmt sein. Bei den für die Zwei-Stufen-Anregung an Hafniumionen ausgewählten Übergängen ist dies auch der Fall (Abb. 33).

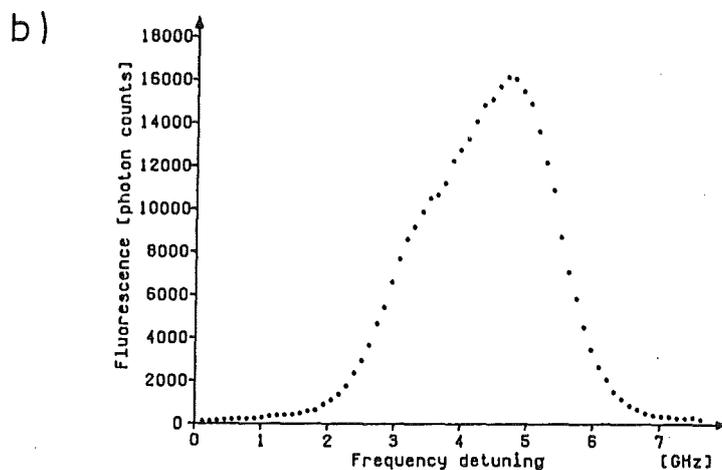
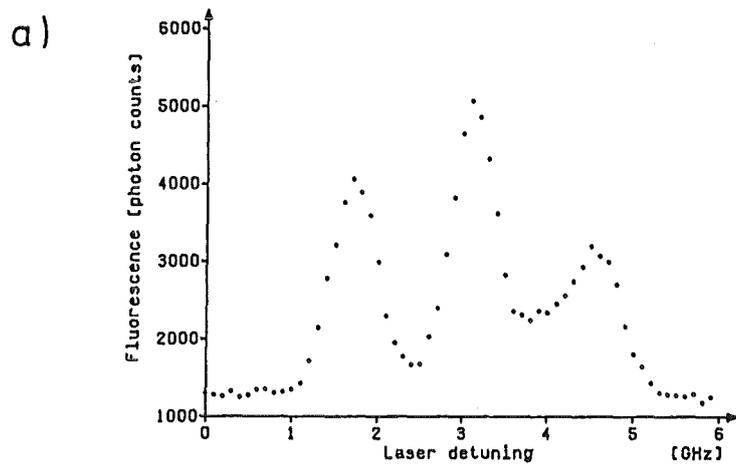


Abbildung 32. Gepulste Anregung an Ionen, die Hyperfeinstruktur zeigen.

a) Das Spektrum an ^{229}Th – Ionen ($I=5/2$) besteht aus 10 Einzellinien [Ka89].

b) ^{177}Hf hat den Kernspin $I=7/2$, das Spektrum besteht aus 12 Linien, außerdem ist noch eine Beimischung von ^{178}Hf in der linken Flanke zu erkennen.

Eine Lorentzkurve mit einer Halbwertsbreite von 190 MHz wurde dabei an das Spektrum angepaßt und gibt die Linienform sehr gut wieder.

Im Gegensatz dazu haben Zwei-Stufen-Spektren an Thoriumionen eine ganz andere Form. In Abbildung 34 ist das Spektrum von ^{232}Th dargestellt. Die beobachtete Linienbreite beträgt 1000 MHz. Zum Vergleich ist ein Spektrum mit der na-

türlichen Linienbreite von 32 MHz (siehe Kap. 5.3.2), mit eingezeichnet. Das Spektrum ist also wesentlich breiter als erwartet.

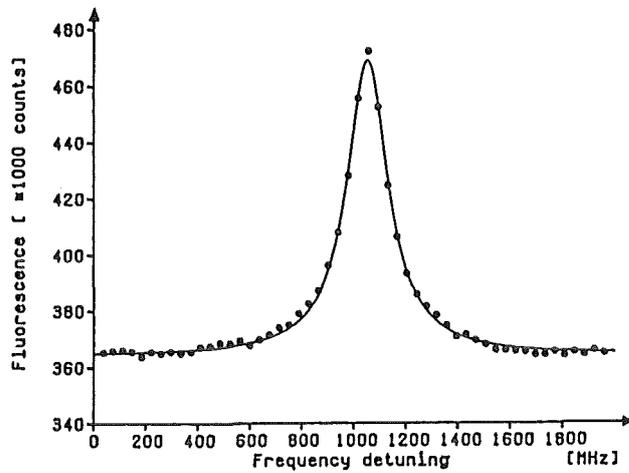


Abbildung 33. Zwei-Stufen-Spektrum von ^{178}Hf . Die erste Anregung erfolgt bei 301 nm bei fester Frequenz, die zweite Anregung bei 272 nm wird durchgestimmt. Die beiden Laserstrahlen wurden gegenläufig eingestrahlt.

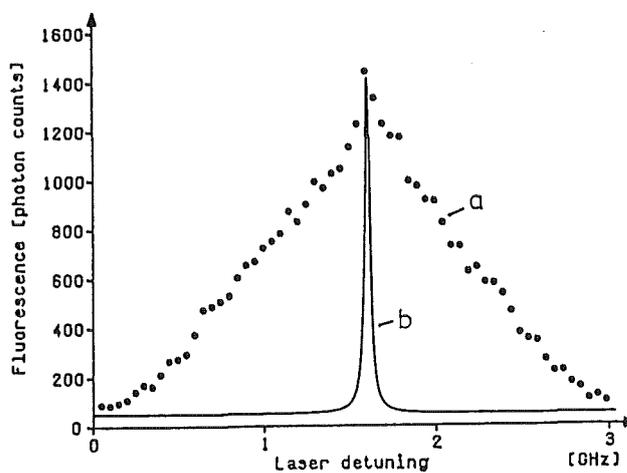


Abbildung 34. Zwei-Stufen-Spektrum von ^{232}Th (kontinuierliche Anregung). Der erste Laserstrahl bei fester Frequenz regt die Ionen mit $v=0$ an, der zweite Laserstrahl wird durchgestimmt. Das Spektrum ist wesentlich breiter als die natürlichen Breiten der beiden Übergänge erwarten lassen (b).

Die Ursache der Verbreiterung des Zwei-Stufen-Spektrums für Thoriumionen liegt in der Geschwindigkeitsänderung der Ionen, während sie im mittleren Zustand sind, hervorgerufen durch das speichernde Wechselfeld. Die maximale Signalrate ergibt sich, wenn beide Laser Ionen mit der Geschwindigkeit $v=0$ anregen. Ist die Frequenz des zweiten Laserstrahls aber resonant für eine Geschwindigkeit $v_2 \neq 0$ eingestellt, dann können zunächst keine Ionen angeregt werden. Erst wenn ein Ion durch Geschwindigkeitsänderung aufgrund des angelegten Wechselfeldes die Geschwindigkeit v_2 erreicht, wird es weiter angeregt. Die Linienform ergibt sich so aus zwei konkurrierenden Prozessen: Entweder gelangt ein angeregtes Ion vom mittleren Zustand durch spontane Emission in einen tieferen Zustand, oder es wird weiter angeregt, sofern es durch die Geschwindigkeitsänderung resonant mit der Frequenz des zweiten Laserstrahls wird. Der wesentliche Unterschied zwischen Hafniumionen und Thoriumionen liegt dabei in der unterschiedlichen Verweildauer im mittleren Zustand. Bei Thorium beträgt die natürliche Lebensdauer dieses Zustandes etwa $1 \mu\text{s}$ (Messung der Abnahme der Fluoreszenz von diesem Zustand nach gepulster Anregung; siehe auch Ende von Kap. 5.3.3), während sie bei Hafniumionen maximal 35 ns groß ist (siehe Kap. 4.4). Bevor sich eine Geschwindigkeitsänderung in den Spektren der Hafniumionen bemerkbar machen kann, sind die Ionen schon in tiefer liegende Zustände zerfallen. Beim Thoriumion reicht die natürliche Lebensdauer des mittleren Zustands und damit die Aufenthaltsdauer jedoch aus, um eine Auswirkung der Beschleunigung zu beobachten.

Eine ausführliche Darstellung und Untersuchung dieser Linienform bei gespeicherten Thoriumionen ist in [Ri88] gegeben. Da die Form des Zwei-Stufen-Spektrums durch die Beschleunigung der Ionen verursacht wird, ergibt sich auch hier die Möglichkeit, etwas über die zeitliche Entwicklung der Ionenbewegung zu erfahren, insbesondere über das Beschleunigungsverhalten. Darüber und über ein einfaches Modell zur recht guten Beschreibung der Linienform des Spektrums wird an anderer Stelle berichtet [KM92].

Ein wichtiger Punkt dabei ist das Verhältnis der Lebensdauer des mittleren Zustandes zur Periodendauer $T=2\pi/\Omega$ des angelegten Feldes, die etwa $1,7 \mu\text{s}$ beträgt. Die Form und die Breite der Spektren, die sich bei verschiedenen Lebensdauern τ_m des mittleren Zustandes und damit unterschiedlichen Verhältnissen τ_m/T ergeben würden, sind in Abbildung 35 dargestellt. Bei extrem kurzer Lebensdauer ($0,1 \text{ ns}$) dominiert die entsprechend große natürliche Linienbreite das Spektrum, das dann etwa 2000 MHz breit wäre. Liegt die Lebensdauer im Bereich

von 1 ns bis 100 ns, wird das Spektrum schmaler, wie an den Spektren von Hafniumionen zu sehen ist. Ein Minimum wird bei etwa 100 ns erreicht, die volle Halbwertsbreite beträgt dann 0,01 GHz. Im Bereich von 1 μ s ist die Lebensdauer schon vergleichbar mit der Periodendauer, deshalb ist dieses Spektrum beschleunigungsverbreitert um etwa 1000 MHz. Dies ist an den Zwei-Stufen-Spektren von Thoriumionen zu erkennen. Bei einer Lebensdauer von 10 μ s schließlich sollten die Ionen wieder die ursprüngliche Geschwindigkeitsverteilung haben, das Spektrum entspricht deshalb dem einer Ein-Stufen-Anregung mit der vollen Dopplerbreite von 2000 MHz.

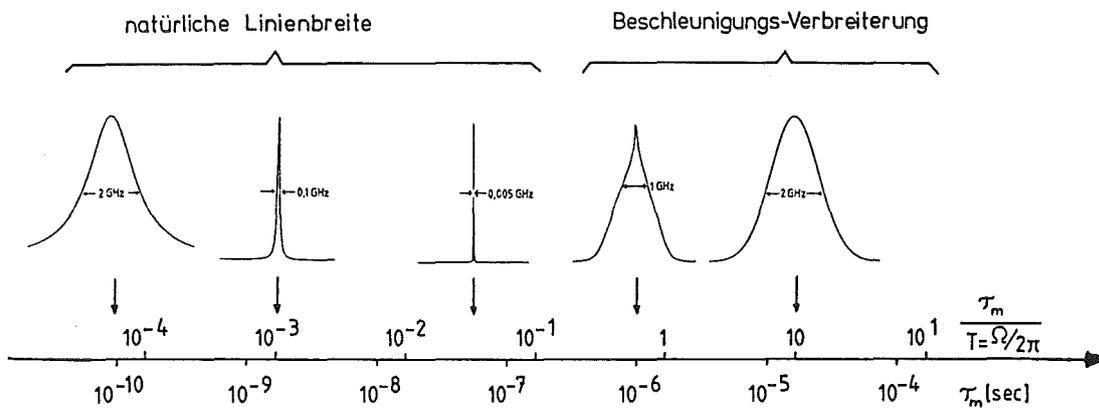


Abbildung 35. Form und Breite der Zwei-Stufen-Spektren in Abhängigkeit von der Lebensdauer τ_m des mittleren Zustands (die natürliche Breite des obersten Zustands wird als Null angenommen). Weitere Erläuterungen befinden sich im Text.

Im Rahmen dieser Arbeit werden weiterführend neue Methoden dargestellt, die zu einer weiteren Verbesserung der Auflösung führen, so daß die Breite der Spektren nicht mehr durch Beschleunigungsverbreiterung bestimmt wird.

5.3.2 Dopplerfreies Zwei-Stufen-Spektrum

Eine Möglichkeit die Breite des Zwei-Stufen-Spektrums zu reduzieren, besteht darin, in geeigneter Weise den Zwei-Stufen-Prozeß gegenüber dem Zwei-Photon-Prozeß zu unterdrücken. Auch das Zwei-Stufen-Spektrum besteht zu einem, wenn

auch geringen, Teil aus Zwei-Photon-Anregungen [KM92]. Ist nun der Laserstrahl für die erste Anregung so verstimmt, daß die Frequenz außerhalb des Dopplerspektrums liegt, dann bleibt als Zwei-Stufen-Spektrum lediglich der Zwei-Photonen-Anteil übrig (Abb. 36).

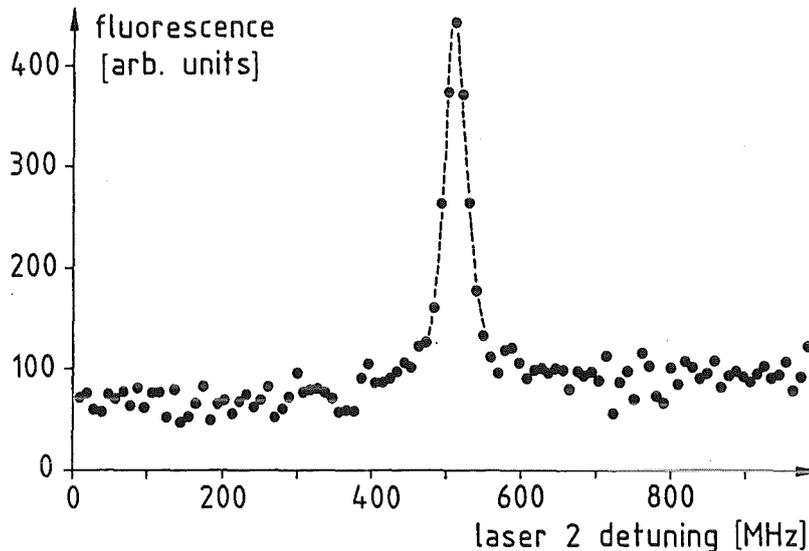


Abbildung 36. Dopplerfreies Zwei-Photonen-Spektrum von ^{232}Th . Der erste Laser ist 2,5 GHz von der Resonanz verstimmt. Unter diesen Bedingungen überwiegt der Zwei-Photon-Prozeß.

Die Zwei-Stufen-Anregung macht sich nur noch in dem zu höherer Frequenz ansteigenden Untergrund bemerkbar. Das Spektrum hat eine Breite von 35 MHz, das ist eine Verschmälerung von ungefähr einer Größenordnung. In die Breite dieses Spektrums gehen zwei Anteile ein: Zum einen die natürliche Breite des oberen Zustandes, die höchstens 32 MHz beträgt (siehe unten) und zum anderen ein Anteil, der durch die unterschiedliche Frequenz der beiden Laserstrahlen verursacht wird [Ri88].

Die Signalhöhe des Spektrums ist sehr klein, sie beträgt bei Laserleistungen von einigen Milliwatt nur 1% des resonanten Zwei-Stufen-Spektrums. Damit ist die Sensitivität in vielen Fällen nicht mehr ausreichend. Allerdings gibt es die Möglichkeit, durch Erhöhung der Lichtleistungen die Signalrate zu steigern. Das Produkt der beiden Laserleistungen müßte einen Faktor hundert größer sein, damit die Signalrate die gleiche Höhe erreicht wie das Zwei-Stufen-Spektrum. Der Un-

tergrund stiege jedoch, verursacht durch Streulicht, ebenfalls an. Die Anwendungen dieser Methode sind zwar begrenzt, aber nicht unrealistisch.

Eine weitere Möglichkeit ergibt sich auch beim Zwei-Stufen-Spektrum durch die Anwendung der gepulsten Anregung. Die Lösung der Bewegungsgleichung zeigt, daß ebenso wie die Geschwindigkeit auch die Beschleunigung genau der Oszillation des angelegten Feldes folgt (vgl. Abb. 6). Andere Beschleunigungsanteile sind lediglich als Schwebung zu erkennen. Auch hier ist deshalb zu erwarten, daß bei gepulster Anregung der Ionen in bestimmten Phasen mit der Frequenz $\Omega/2\pi$ sich die Beschleunigungsverteilung ändert. Sie ist minimal für die Anregung im Nulldurchgang der Wechselspannung, da dann in der Ionenfalle das von außen angelegte Feld Null ist und die Ionen ihre jeweilige Geschwindigkeit nicht ändern.

Der experimentelle Aufbau für gepulste Zwei-Stufen-Spektren ist der gleiche wie für die Ein-Stufen-Anregung (siehe 4.2.2). Gepulst wird der Laserstrahl für die erste Anregung und der Laserstrahl für die zweite Anregung wird durchgestimmt. Das Ergebnis eines solchen Experiments ist an Thoriumionen in Abbildung 37 a gezeigt. Der Laserpuls ist 150 ns breit und die (ungepulsten) Laserleistungen betragen wenige Milliwatt. Die Halbwertsbreite beträgt 104 MHz, im Vergleich dazu hat das entsprechende ungepulste Zwei-Stufen-Spektrum (Abb. 37 b) eine Breite von 1000 MHz. Die Signalrate des gepulsten Spektrums erreicht dabei 90% des ungepulsten. Mit dieser Methode der gepulsten Anregung der Ionen im Nulldurchgang der Fallenspannung läßt sich also die Auflösung nahezu ohne Signalverlust um eine Größenordnung verbessern [MK91].

Auch in diesem gepulsten Zwei-Stufen-Spektrum sind aber noch Anteile der Beschleunigungsverteilung vorhanden. Gelangt nämlich ein Ion durch einen Laserpuls in den mittleren Zustand und wird nicht sofort weiter angeregt, dann kann es durch die Beschleunigung (die aber kleiner ist als bei kontinuierlicher Anregung), nach einer gewissen Zeit doch noch vom (kontinuierlichen) zweiten Laserstrahl angeregt werden. Das Ion hat dann aber eine von $v=0$ verschiedene Geschwindigkeit und dieser Signalbeitrag ist als Verbreiterung im Spektrum in Abbildung 37 a links und rechts des Maximums zu erkennen.

Um auch noch diese Restverbreiterung zu beseitigen, wird das Signal vom Photomultiplier im Takt mit der Frequenz $\Omega/2\pi$ in kurzen Zeitintervallen gezählt (Aufbau in Abb. 23). Das Zeitintervall ist so gewählt, daß nur während und nach einem erfolgten Laserpuls das Fluoreszenzsignal registriert wird. Fluoreszenzlicht von Ionen, die erst durch die allmählich einsetzende Beschleunigung in Resonanz mit

dem zweiten Laserstrahl gelangen und eine Verbreiterung des Signals verursachen, wird dann nicht gezählt.

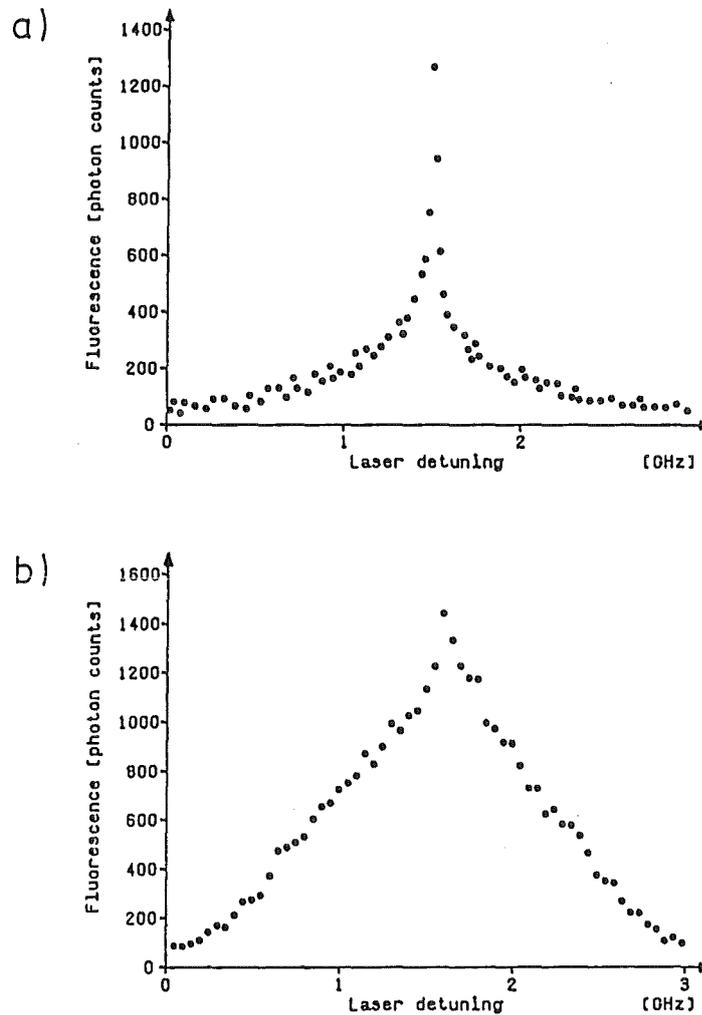


Abbildung 37. Vergleich der gepulsten Zwei-Stufen-Anregung an ^{232}Th . mit der kontinuierlichen Anregung.

a) Der erste Laserstrahl bei fester Frequenz ist gepulst in solcher Phase mit Ω , daß die 100 ns-Pulse nur um $U(t)=0$ Ionen anregen. Die Beschleunigungsverbreiterung wird dadurch entscheidend reduziert. Die Signalrate des gepulsten Spektrums erreicht 90% des un gepulsten.

b) Spektrum mit kontinuierlicher Anregung.

Im typisch 150 ns langen Intervall, während dessen das Signal registriert wird, ändert sich die Geschwindigkeit der Ionen nicht meßbar. Das Ergebnis ist ein dopplerfreies Zwei-Stufen-Spektrum (Abb. 38).

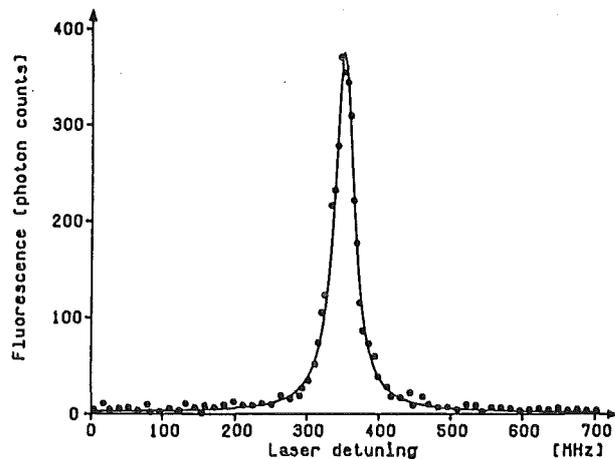


Abbildung 38. Gepulste Zwei-Stufen-Anregung, wobei zusätzlich das Fluoreszenzsignal nur die ersten 150 ns während und nach dem Laserpuls gemessen wird. Die Signalhöhe erreicht 75% des ungepulsten Spektrums. Die Breite des Spektrums beträgt nur noch 32 MHz.

Die Breite beträgt nur noch 32 MHz, die Form läßt sich mit einer Lorentzkurve sehr gut anpassen. Der Unterschied zur oben beschriebenen Zwei-Photon-Anregung liegt vor allem in der Signalhöhe. Das Spektrum mit gepulster Anregung des Laserstrahls für die erste Anregung, einschließlich der Zählintervalle für das Fluoreszenzsignal, erreicht zu 75% die Höhe des ungepulsten Spektrums, während das Zwei-Photonen-Signal nur 1% hoch war. Gleichzeitig nimmt der Untergrund im Vergleich zum ungepulsten Spektrum um einen Faktor 40 ab, da erstens der Laserstrahl gepulst wird und zweitens das Photomultiplier-Signal nicht während des ganzen Laserpulses gezählt wird.

Die Linienbreiten und Signalhöhen der Zwei-Stufen-Spektren, die sich mit den verschiedenen Methoden ergeben, sind in Tabelle 8 gezeigt.

5.3.3 Untersuchungen der Ionenbewegung mit der Zwei-Stufen-Anregung

Analog zur Ein-Stufen-Anregung, bei der es mit der Methode der gepulsten Anregung möglich war, die Geschwindigkeitsverteilung in Abhängigkeit von der Zeit zu verfolgen, kann mit der gepulsten Zwei-Stufen-Anregung die zeitliche Entwicklung der Beschleunigungsverteilung der Ionen beobachtet werden. Dies ge-

schiebt, indem die Phase des gepulsten Laserstrahls für die erste Anregung verändert wird und jeweils ein Zwei-Stufen-Spektrum gemessen wird. Dabei wird die Frequenz des zweiten, kontinuierlichen Laserstrahls durchgestimmt (Abb. 39). Die maximale mittlere Beschleunigung und damit die größte Breite tritt wie erwartet bei Anregung der Ionen im Maximum der Fallenspannung auf. Das Spektrum bei dieser Phase ist breiter als das ungepulste Zwei-Stufen-Spektrum. Addiert ergeben die Spektren wieder die Linienform des ungepulsten Zwei-Stufen-Spektrums.

| Methode | Halbwertsbreite | Signalhöhe |
|---|-----------------|------------|
| kontinuierliche Zwei-Stufen-Anregung | 1000 MHz | 100% |
| kontinuierliche Zwei-Photon-Anregung (Laser 1 ist 2,5 GHz weg von der Resonanz) | 35 MHz | 1% |
| 150 ns Pulse von Laser 1 | 100 MHz | 90% |
| 80-ns-Pulse von Laser 1 mit 150-ns-Intervall für das Fluoreszenzsignal | 32 MHz | 75% |

Tabelle 8. Vergleich der gepulsten mit der ungepulsten Anregung von Zwei-Stufen-Spektren an ^{232}Th .

Aus der Untersuchung der gepulsten Ein-Stufen-Anregung zeigte sich, daß hauptsächlich der schnelle Bewegungsanteil der Ionen mit der Frequenz $\Omega/2\pi$ die Dopplerverbreiterung verursacht. Da im Fall der Zwei-Stufen-Anregung bei gepulster Anregung mit dieser Frequenz sogar die natürliche Linienbreite der beteiligten Zustände erreicht wird, spielen andere Bewegungsanteile überhaupt keine Rolle mehr. Dies läßt sich auch auf ganz andere Weise mit der Zwei-Stufen-Anregung überprüfen. Dazu werden die Frequenzen der beiden Laser so eingestellt, daß die Ionen bei der Geschwindigkeit $v=0$ resonant angeregt werden. Der erste Laserstrahl ist wieder in bestimmten Phasen bezüglich der Wechselspannung gepulst. Gemessen wird die Fluoreszenz, die in Intervallen von 200 ns bis 250 ns Dauer gezählt wird. Die Phase dieses Zählfensters wird nun bezüglich des Laserpulses zeitlich verschoben (Abb. 40).

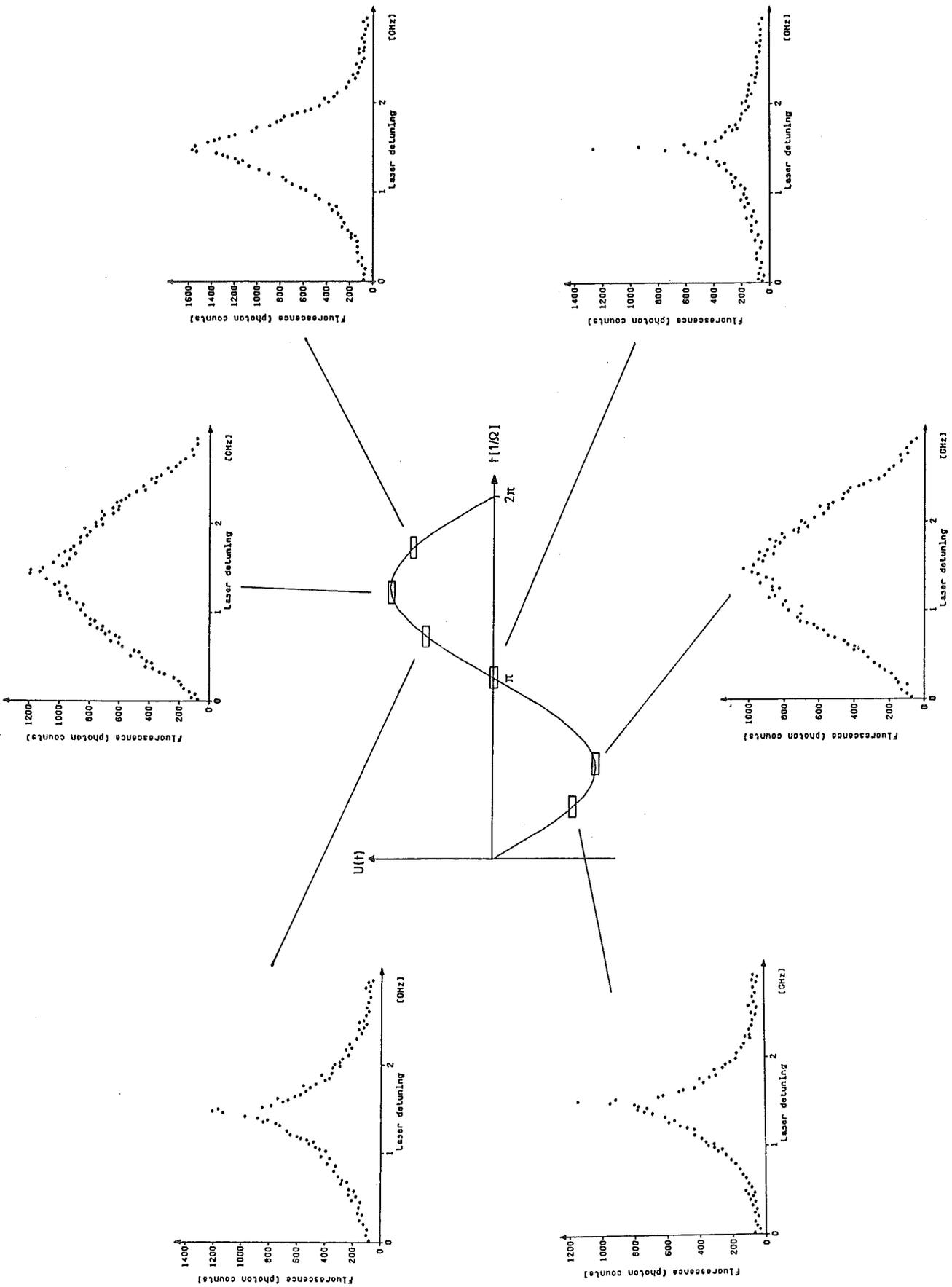


Abbildung 39. Gepulste Zwei-Stufen-Anregung mit unterschiedlicher Phase des Laserpulses bezüglich $U(t)$. Die Pulse sind 150 ns lang.

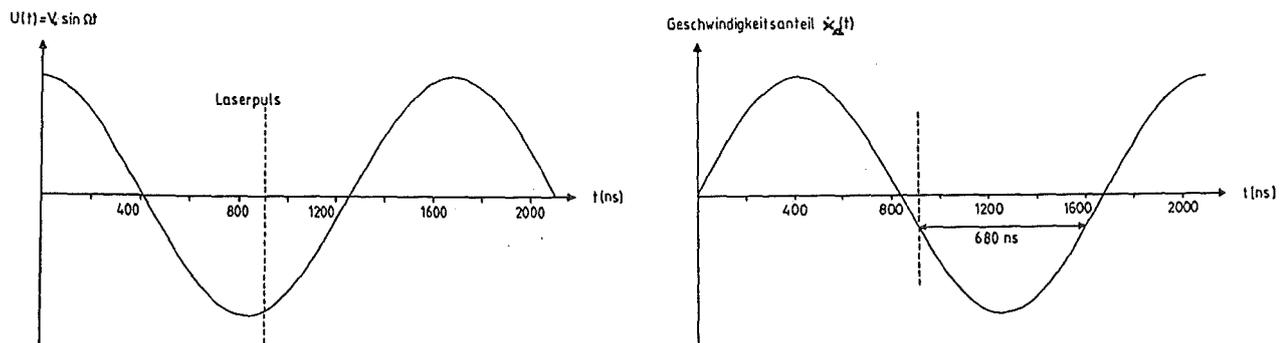
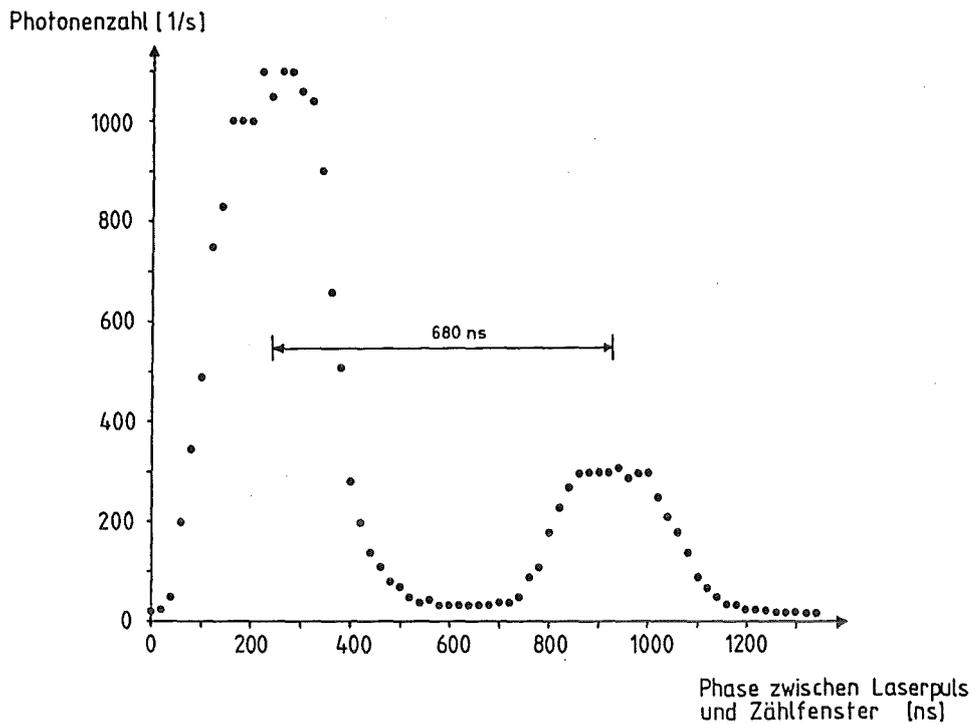


Abbildung 40. Fluoreszenz der Zwei-Stufen-Anregung in Abhängigkeit von der Zeit zwischen Laserpuls und Zählfenster. Die Signallrate wird nur innerhalb des Zählfensters gemessen. Das zweite Maximum erscheint, wenn der schnelle Geschwindigkeitsanteil $\dot{x}_\Omega(t)$ wieder den gleichen Wert annimmt wie zum Zeitpunkt des Laserpulses. Das geschieht bei der hier eingestellten Phase des Laserstrahls zur Wechselspannung nach 680 ns.

Das Signal ist zunächst Null, wenn das Zählfenster zeitlich vor dem Laserpuls liegt, erreicht ein Maximum und fällt dann ab. In die Steilheit des Abfalls gehen die Lebensdauer des oberen Zustands und die Auflösung der Meßeinrichtungen ein. In diesem Fall ist die Lebensdauer so kurz, daß die zeitliche Auflösung der

Apparatur nicht ausreicht. Es ergibt sich die Abschätzung, daß die Lebensdauer kleiner als 50 ns ist. Da die volle Breite des dopplerfreien Spektrums 32 MHz beträgt und der mittlere Zustand eine Lebensdauer von 1000 ns. hat (dem entspricht eine Linienbreite von 0,2 MHz), ergibt sich daraus eine Lebensdauer des oberen Zustandes von 5 ns. Diese Zeit ist tatsächlich klein gegen die zeitliche Auflösung der Zähl Elektronik, so daß die Flankensteilheit des Maximums in Abbildung 40 nur apparative Ursachen hat.

Zunächst überraschend im weiteren zeitlichen Verlauf des Fluoreszenzsignals ist das Auftreten eines zweiten Signalmaximums. Der Abstand Δt der beiden Maxima hat dabei einen ganz bestimmten Wert. Das zeigt der untere Teil von Abbildung 40, in der die Phase des Laserpulses bezüglich der Spannung $U(t)$ und des schnellen Geschwindigkeitsanteils $\dot{x}_\Omega(t)$ eingezeichnet sind. Der zeitliche Abstand Δt der zwei Maxima entspricht der Zeitdauer, die das Ion braucht, um wieder die gleiche Geschwindigkeit einzunehmen. Da nur Ionen angeregt werden, die die Komponente $v=0$ in Richtung des Laserstrahls haben, bedeutet das zunächst, daß sich die Geschwindigkeitskomponente des schnellen Bewegungsanteils und der Geschwindigkeitsanteil der Makrobewegung zu Null addieren. Während den 1000 ns, nach denen das zweite Maximum beobachtet wird, bleibt der Makroanteil fast konstant. Die Zeit, bis das Ion wieder die Geschwindigkeit $v=0$ einnimmt, hängt also überwiegend von der Änderung des schnellen Bewegungsanteils ab, die eine harmonische Schwingung darstellt. Das zweite Maximum ist deshalb das Signal derjenigen Ionen, die nach Erreichen des mittleren Zustands nicht weiter angeregt werden, sondern durch das äußere Feld ihre Geschwindigkeit ändern. Da die beiden Laserstrahlen eine feste Frequenz haben, können diese Ionen erst dann weiter angeregt werden, wenn sie wieder die gleiche Geschwindigkeit einnehmen. Das passiert nach einer Zeit Δt .

In Abbildung 41 ist dies verdeutlicht, indem der Abstand der zwei Maxima in Abhängigkeit von verschiedenen Phasen des gepulsten Laserstrahls gemessen wurde. Die Übereinstimmung mit dem einfachen Modell, nach dem der schnelle Geschwindigkeitsanteil einer harmonischen Schwingung mit der Frequenz $\Omega/2\pi$ folgt, während in dieser Zeitskala sich die anderen Geschwindigkeitsanteile nicht ändern, ist dabei sehr gut. Die Abweichung der Modellgeraden zu den Meßpunkten bei größer werdendem Peakabstand hängt vermutlich bereits mit der Änderung der anderen Geschwindigkeitsanteile zusammen.

Aus dem Höhenverhältnis der beiden Maxima bei verschiedenen Phasen des Zählfensters, also verschiedenen zeitlichen Abständen von Laserpuls und Nach-

weis, kann noch die Lebensdauer des mittleren Zustands ermittelt werden. Sie beträgt 1000 ns. Dieser Wert stimmt mit dem Ergebnis einer anderen Meßmethode überein, bei der die zeitliche Abnahme der Signalrate von diesem Zustand nach gepulster Ein-Stufen-Anregung beobachtet wurde.

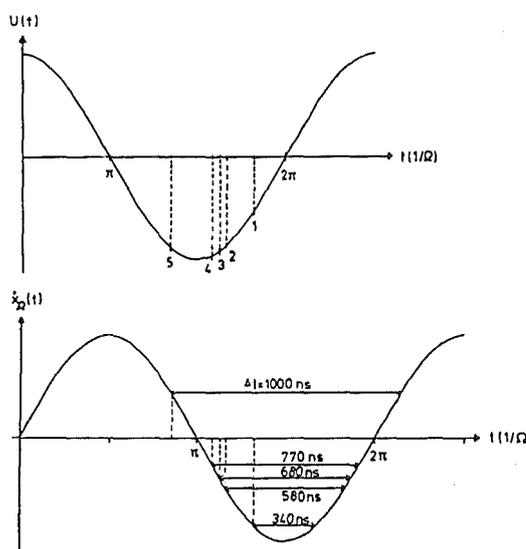
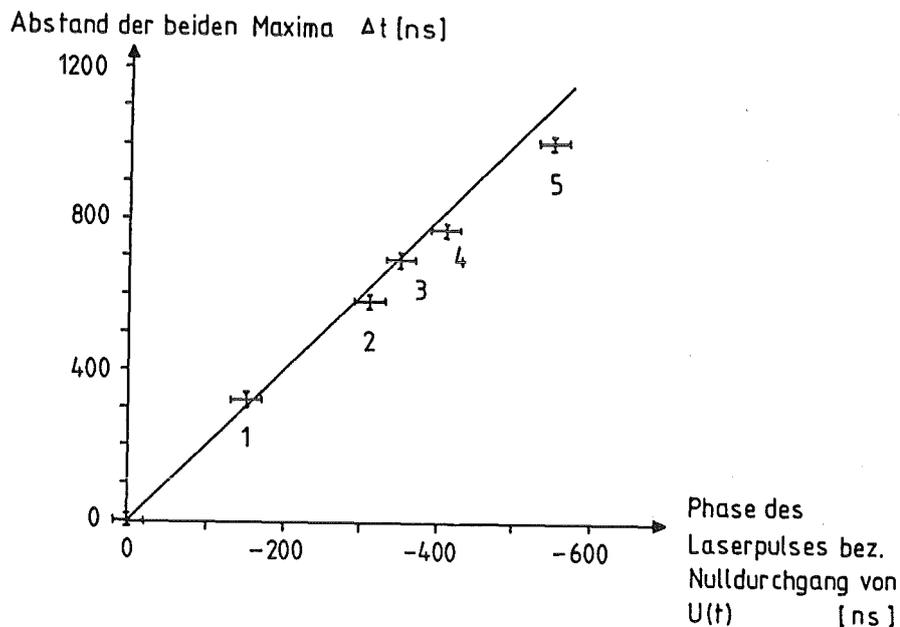


Abbildung 41. Bei verschiedenen Phasen des Laserpulses wurde der Abstand der beiden Maxima bestimmt, die entstehen, wenn das Zählfenster gegenüber dem Laserpuls zeitlich verschoben wird (vgl. Abb. 40). Die eingezeichnete Gerade ergibt sich, wenn der Abstand der beiden Maxima allein auf die Änderung des schnellen Geschwindigkeitsanteil \dot{x}_Ω zurückzuführen ist.

5.4 Überblick über die spektroskopischen Methoden

| Methode | Relative Signalhöhe | Halbwerts- breite | Bemerkungen |
|--|------------------------------|---|---|
| Ein-Stufen-Anregung | 100% (100%) (Bezugspunkt) | 2200 MHz (4800 MHz) | Konventionelle Laserspektroskopie; Geschwindigkeitsverbreiterung des Spektrums. |
| Gepulste Ein-Stufen-Anregung im Maximum der Wechselspannung $V_0 \sin \Omega t$ | 80% (50%) | 700 MHz (1400 MHz) | Die Ionen haben eine schmalere Geschwindigkeitsverteilung im Maximum der Wechselspannung, dadurch nimmt die Breite des Spektrums um einen Faktor drei ab. |
| Zwei-Stufen-Anregung; die erste Anregung erfolgt bei fester Frequenz, der zweite Laserstrahl wird durchgestimmt | 100% (1%) | 500 MHz bis 1000 MHz (190 MHz) | Die Beschleunigung der Thoriumionen im ersten angeregten Zustand verbreitert das Spektrum. Die großen Schwankungen der Halbwertsbreiten bei verschiedenen Ionenwolken sind noch unverstanden. Bei Hafnium ist die Lebensdauer des ersten angeregten Zustandes so kurz, daß keine Verbreiterung beobachtet wird. |
| Zwei-Photon-Anregung; der erste Laserstrahl regt die Ionen nicht-resonant an. | 1% | 35 MHz | Dadurch, daß kein Zwischenzustand populiert wird, gibt es auch keine Beschleunigungsverbreiterung mehr. Die Halbwertsbreite wird durch die Lebensdauer des angeregten Zustands verursacht. |
| Gepulste Zwei-Stufen-Anregung; der erste Laser regt Ionen nur im Nulldurchgang der Wechselspannung an, und die Fluoreszenz wird nur während und kurz nach dem Puls gezählt | 75% | 32 MHz | Im Nulldurchgang von $U(t)$ ist das anliegende Feld Null, deshalb gibt es keine Beschleunigungsverbreiterung mehr. Bei Hafniumionen ist diese Methode nicht notwendig, da die Lebensdauer des mittleren Zustands zu kurz für eine nennenswerte Beschleunigungsverbreiterung ist. |

Tabelle 9. Übersicht über die verschiedenen zur Verfügung stehenden Methoden. Die Werte sind für die Spektroskopie an Thoriumionen angegeben. In Klammern stehen die Zahlen für die Hafniumionen, sofern die jeweilige Methode verwendet wurde.

Im Vorausgegangenen wurde gezeigt, daß die Verbreiterung von Spektrallinien, die an Ionen in einer Paulschen Ionenfalle gemessen wurden, unmittelbar auf das speichernde Feld zurückzuführen sind. Im Gegensatz zu anderen Ensembles von

freien Atomen, zum Beispiel einem Gas, verändert sich zeitlich der Phasenraum von gespeicherten Ionen, in diesem Fall vor allem mit der Frequenz $\Omega/2\pi$ der anliegenden Wechselspannung. Diese nicht-statistische Dynamik der Ionen bietet nun die Möglichkeit, neue spektroskopische Methoden anzuwenden, um die Linienbreiten zu reduzieren. Dies wurde anhand der gepulsten Ein-Stufen- und Zwei-Stufen-Anregung gezeigt. Die verwendeten und entwickelten laserspektroskopischen Methoden, die in diesem Kapitel dargestellt wurden, sind noch einmal als Zusammenfassung in Tabelle 9 aufgeführt.

Die gepulste Zwei-Stufen-Anregung wurde bereits erfolgreich bei den laserspektroskopischen Untersuchungen an ^{229}Th –Ionen eingesetzt. Im Gegensatz zur un-gepulsten Zwei-Stufen-Anregung konnten alle Hyperfeinkomponenten aufgelöst werden.

5.5 Zusammenfassung der Untersuchungen zur Ionenbewegung

Die durchgeführten laserspektroskopischen Untersuchungen, bei denen die Ionen nur in bestimmten Phasen zur Wechselspannung angeregt wurden, lassen sich mit Resultaten aus der Lösung der Mathieu-Differentialgleichung vergleichen. Die verschiedenen Experimente mit gepulster Anregung zeigen, daß die Mikrobewegung sowohl die Geschwindigkeit wie auch die Beschleunigung dominiert, wobei das für alle Ionen in Phase mit der anliegenden Wechselspannung geschieht.

Die Lösungen der Bewegungsgleichung für ein einzelnes Ion in einer sonst leeren Falle aus Kapitel 3.1. sind hier noch einmal in ihrer Struktur dargestellt:

$$\begin{aligned}
 U(t) &= U_0 + V_0 \cos \Omega t & F_{1,2,4,5} &= f_{1,2,4,5}(A,B, c_1, c_{-1}) \cdot \sin \left[\frac{\beta \Omega}{2} t + \varepsilon_{1,2,4,5}(A,B) \right] \\
 x(t) &= F_1(t) - F_2(t) \cos \Omega t & F_3 &= f_3(A,B, c_1, c_{-1}) \cdot \cos \left[\frac{\beta \Omega}{2} t + \varepsilon_3(A,B) \right] \\
 \dot{x}(t) &= F_3(t) + F_4(t) \sin \Omega t \\
 \ddot{x}(t) &= + F_5(t) \cos \Omega t
 \end{aligned}$$

Zunächst läßt sich aus den Experimenten feststellen, daß alle beobachteten Phasenlagen zwischen Spannung, Geschwindigkeit und Beschleunigung durch die Mathieu-Gleichung richtig wiedergegeben werden. Dabei genügt es, nur die Mi-

krobewegung zu berücksichtigen. In dieser Hinsicht spielt es keine Rolle, ob sich nur wenige oder viele Ionen in der Falle befinden. Sie unterscheiden sich lediglich durch ihre Amplitude und der Phase zwischen Mikro- und Makrobewegung.

Die Gleichungen lassen aber noch eine weitere Interpretation zu: In die Amplituden F_1 gehen die langsame Makrobewegung, die Anfangsbedingungen A , B und die Koeffizienten c_1 , c_{-1} ein. In der Zeitskala der Makrobewegung ändert sich F_1 nur wenig, das zeigten die Experimente mit der gepulsten Zwei-Stufen-Anregung. Dann lassen sich die Gleichungen aber auch als Lösung der Bewegungsgleichung eines schwach gekoppelten, gedämpften harmonischen Oszillators verstehen, wobei die Eigenfrequenz des Ions klein gegenüber der antreibenden Frequenz ist: Ort und Spannung verlaufen dabei gegenphasig und die Dämpfung wird durch F_1 bestimmt. Die Eigenfrequenz des Ions ist die Frequenz der Makrobewegung. Die exakte Realisierung dieser Vorstellung wäre ein geladenes Teilchen in einem Plattenkondensator, an dem eine Wechselspannung anliegt. Der Unterschied der Ionenfalle zu einem Plattenkondensator, nämlich die rotationshyperboloidische Elektrodenform, macht sich lediglich in einer Zeitabhängigkeit der Amplitude F_1 bemerkbar, die mit der Kreisfrequenz $\beta\Omega/2$ moduliert ist, und in einem weiteren Summanden, der letztendlich die Größe der Ionenwolke bestimmt.

6. Kernladungsradien von Hafniumisotopen

6.1 Zur Theorie der Isotopieverschiebung

Unter der Isotopieverschiebung einer Spektrallinie versteht man den Unterschied der Übergangsfrequenz von einem Isotop deselben Elements zum anderen. Sie wird durch die Änderung der Masse, der Gestalt und dem Volumen des Kerns verursacht. Dies wird in zwei Beiträgen berücksichtigt, nämlich im Masseneffekt (ME) und im Kernvolumeneffekt (KVE).

Der Masseneffekt wird durch die Änderung der Kernmasse bei unterschiedlicher Neutronenzahl verursacht. Eine Änderung der Masse bewirkt eine Änderung der kinetischen Energie des Kerns. Der Kern mit der Masse M und die Elektronen der Masse m bewegen sich um den gemeinsamen Schwerpunkt. Die Elektronen bewegen sich dann wie Teilchen mit der reduzierten Masse $Mm/M+m$ in einem Zentralpotential. Eine Änderung der Kernmasse M führt zu einer anderen reduzierten Masse und damit ändern sich die Energieniveaus. Dies ist der normale Masseneffekt (NME). Die bis jetzt nicht berücksichtigte Korrelation zwischen den Elektronen wird ebenso durch eine unterschiedliche Kernmasse beeinflusst. Dieser Anteil heißt spezifischer Masseneffekt (SME).

Im normalen Masseneffekt (NME) sind die Wechselwirkungen der einzelnen Elektronen mit dem Kern berücksichtigt:

$$\text{NME}^{AA'} \sim \sum_i p_i^2.$$

Der Impuls des Elektrons i sei p_i und die Massenzahlen der beiden Isotope seien A und A' . Der Unterschied in der Übergangsfrequenz aufgrund des normalen Masseneffekts kann berechnet werden [HS74]. Er lautet

$$\nu_{\text{NME}}^A - \nu_{\text{NME}}^{A'} = \delta \nu_{\text{NME}}^{AA'} = \frac{m_{\text{el}}}{m_p} \frac{A - A'}{AA'} \nu^A.$$

Dabei ist ν^A die Übergangsfrequenz, $\delta\nu^{AA'}$ der Frequenzunterschied und m_e/m_p das Verhältnis aus Elektronenmasse und Protonenmasse. Für den verwendeten Übergang an Hafniumionen beträgt der Unterschied zwischen Isotopen mit einem Neutronenzahl-Unterschied von zwei ($\nu^A \simeq 10^{15}$ Hz, $m_e/m_p \simeq 1/1835$)

$$\nu_{\text{NME}}^{A+2} - \nu_{\text{NME}}^A = \delta\nu_{\text{NME}}^{A+2,A} = 34 \text{ MHz.}$$

Die gemessenen Isotopieverschiebungen betragen etwa 2000 MHz, der Beitrag des normalen Masseneffektes liegt also unter 2%.

Die Berechnung des spezifischen Masseneffektes (SME) dagegen ist weitaus schwieriger, da die Korrelation der Elektronen untereinander berechnet werden muß:

$$\text{SME}^{AA'} \sim \sum_{i>j} p_i p_j.$$

Abgesehen von Alkali-Atomen sind theoretische Vorhersagen bislang nicht verfügbar. Vergleiche der möglichen Wege zur Bestimmung des spezifischen Masseneffektes sind in [HS74,BC76] beschrieben. Im Falle des Hafnium kann eine Abschätzung gegeben werden [AH87]. Für einen Übergang zwischen Zuständen der Form $ns^2 \rightarrow nsnp$, wie es beim Ein-Stufen-Spektrum an Hafnium der Fall ist, gilt

$$\delta\nu_{\text{SME}}^{AA'} = (0,0 \pm 0,5)\delta\nu_{\text{NME}}^{AA'}.$$

Der spezifische Masseneffekt beträgt danach höchstens die Hälfte des normalen Masseneffektes. Dieser Wert ist auch verträglich mit Untersuchungen von [AH91], bei denen für 33 Übergänge an den Hafniumionen ^{178}Hf und ^{180}Hf unter anderem der Masseneffekt angegeben wurde.

Der Beitrag des spezifischen Masseneffektes zur Isotopieverschiebung der Hafniumionen bei dem verwendeten Übergang kann deshalb mit

$$\nu_{\text{SME}}^{A+2} - \nu_{\text{SME}}^A \leq \pm 17 \text{ MHz}$$

abgeschätzt werden. Da die Fehler bei der Bestimmung des mittleren quadratischen Kernladungsradius durch die unten angegebene Kalibrierung wesentlich größer sind als dieser Betrag, wird der spezifische Masseneffekt lediglich als zusätzlicher Fehler berücksichtigt. Der normale Masseneffekt dagegen wurde bei der Auswertung der Isotopieverschiebungs-Messungen mit eingerechnet.

Der Kernvolumeneffekt wird verursacht durch die Änderung der Bindungsenergie des Elektrons, da es eine gewisse Aufenthaltswahrscheinlichkeit im Kern hat: Enthält ein Kern mehr oder weniger Neutronen, so ändert sich dessen Ladungsverteilung, was wiederum die Bindungsenergie des Elektrons beeinflusst. Damit hat die Änderung der Ladungsverteilung des Kerns Einfluß auf die Übergangsenergie des Elektrons:

$$v_{KVE}^A - v_{KVE}^{A'} = \delta v_{KVE}^{AA'} = F \cdot \lambda^{AA'}$$

In den elektronischen Faktor F gehen im wesentlichen der Unterschied der Elektronendichten des betrachteten Übergangs ein. Die Änderung der Kernladungsradien zwischen zwei Isotopen stecken im Faktor $\lambda^{AA'}$:

$$\begin{aligned} \lambda^{AA'} &= \delta \langle r^2 \rangle^{AA'} + \frac{C_2}{C_1} \delta \langle r^4 \rangle^{AA'} + \frac{C_3}{C_1} \delta \langle r^6 \rangle^{AA'} + \dots \\ &= K \cdot \delta \langle r^2 \rangle^{AA'} \end{aligned}$$

mit

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

Der Wert von K kann modellmäßig berechnet werden. Die C_n heißen Seltzer-Koeffizienten und können entweder berechnet oder durch Messungen der Isotopieverschiebung in Röntgenspektren gemessen werden [HS74]. Die Verhältnisse der radialen Momente $\delta \langle r^{2n} \rangle^{AA'} / \langle r^2 \rangle^{AA'}$ werden zum Beispiel mit Hilfe des Dropletmodells berechnet [MS83]. Damit ist der Faktor K bestimmt. Er weicht für alle Kerne nur wenig von eins ab ($0,92 < K < 1$), bei Hafnium ist $K = 0,95$ [TF85]. Der Hauptbeitrag der Kernladungsverteilung zum Kernvolumeneffekt resultiert also von der Änderung des mittleren quadratischen Kernladungsradius $\langle r^2 \rangle$.

Da für Hafniumisotope bereits Daten für $\delta \langle r^2 \rangle^{AA'}$ vorliegen, muß der Faktor F nicht bestimmt werden. Stattdessen kann ein schon bekannter Wert von $\delta \langle r^2 \rangle^{AA'}$ eines Isotopenpaares als Kalibrierung verwendet werden. Der spezifische Masseneffekt wird (wie oben beschrieben) nur als zusätzlicher Fehler berücksichtigt. Als Kalibrierung wird ein Wert von [AH91] benutzt:

$$\langle r^2 \rangle^{180} - \langle r^2 \rangle^{178} = \delta \langle r^2 \rangle_{\text{cal.}}^{180,178} = 0,076(4) \text{ fm}^2$$

Dieser Wert wurde aus optischen Isotopieverschiebungs-Messungen an Hafniumionen und Skalierung von theoretischen Werten an die Meßdaten gewonnen

[AH91]. Die Isotopieverschiebung $\delta \langle r^2 \rangle^{180,178}$ von 33 Übergängen des Hafniumions wurden dafür gemessen. Mit nichtrelativistischen Hartree-Fock-Rechnungen [Fr78] wurden für reine Russel-Saunders-Terme die Elektronendichten am Kernort berechnet und unter Berücksichtigung von Feinstrukturanalysen [Me68] die Elektronendichten für die gemessenen Terme bestimmt. Durch einen Skalierungsfaktor für alle Terme wurde mit der so berechneten Elektronendichte der Kernvolumeneffekt bestimmt und an die experimentellen Daten angepaßt. Einer der gemessenen Übergänge ist ein reiner 6s-6p-Übergang: $5d^26s(a^4F_{9/2}) \rightarrow 5d^26p(z^4G_{7/2}^o)$. Für diesen kann aus den Elektronendichten der elektronische Faktor F am genauesten berechnet werden. Durch Vergleich mit dem experimentellen Wert des Kernvolumeneffekts ergibt sich dann der Kernparameter $\lambda^{180,178}$ und mit $K=0,95$ die Änderung des mittleren quadratischen Kernladungsradius $\delta \langle r^2 \rangle^{180,178}$.

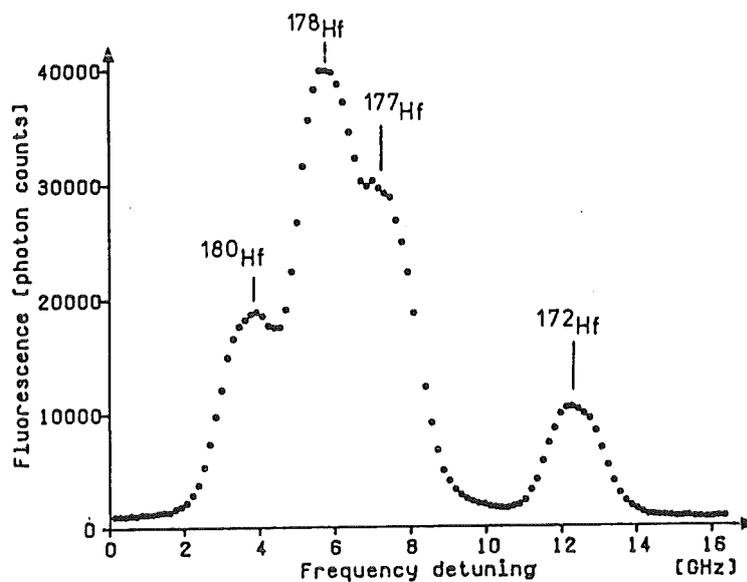


Abbildung 42. Spektrum von ^{172}Hf . Außer diesem Isotop ist noch ein Isotopengemisch zu sehen, das vor allem aus ^{180}Hf und ^{178}Hf besteht.

6.2 Messungen und Auswertung

Mit der Methode der gepulsten Ein-Stufen-Anregung (siehe Kap. 5.2) wurde die Isotopieverschiebung des Übergangs $0 \rightarrow 33181 \text{ cm}^{-1}$ von den Hafniumionen

^{172}Hf , ^{174}Hf , ^{176}Hf und ^{180}Hf bezüglich ^{178}Hf gemessen. Als Beispiel ist in Abbildung 42 ein Spektrum mit ^{172}Hf gezeigt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 10 dargestellt.

| Massenzahl A | Isotopieverschiebung von Hf II des Übergangs $0 - 33181 \text{ cm}^{-1}$ $\nu^A - \nu^{178}$ [MHz] | Kernparameter $\lambda^{A,178}$ [fm ²] | Änderung des mittleren quadratischen Kernladungsradius $\xi(\langle r^2 \rangle^A - \langle r^2 \rangle^{178})$ [fm ²] |
|--------------|--|--|--|
| 180 | -2068(28) | 0,072(4) * | 0,076(2) |
| 176 | 1836(18) | -0,064(4) | -0,067(1) |
| 174 | 3673(14) | -0,127(9) | -0,134(2) |
| 172 | 6602(15) | -0,230(15) | -0,242(3) |

Tabelle 10. Isotopieverschiebung von verschiedenen Hafniumisotopen bezüglich ^{178}Hf . Die Fehler der Isotopieverschiebung sind Ungenauigkeiten der Messung. Die Fehler von $\lambda^{A,178}$ und $\delta \langle r^2 \rangle^{A,178}$ werden ausschließlich durch die Kalibrierung verursacht. In den angegebenen Fehler von $\xi \delta \langle r^2 \rangle$ gehen der Masseneffekt und die Meßungenauigkeit ein, der Kalibrierungsfehler steckt in $\xi = 1 \pm 0,06$.

Die Werte der Kernparameter λ und die Änderung der mittleren quadratischen Kernladungsradien wurden mit der in Kap. 6.1 beschriebenen Kalibrierung berechnet. Der Masseneffekt wurde dabei berücksichtigt. Die Werte für das Isotop ^{172}Hf waren bis dahin unbekannt.

Der Fehler von λ und $\delta \langle r^2 \rangle$, der im Bereich von 7% liegt, wird vor allem durch die Kalibrierung verursacht. Da eine Änderung der Kalibrierung innerhalb der Fehlergrenzen die Werte für alle Isotope ändert, ist es sinnvoll, den Fehler der Kalibrierung als gemeinsamen Skalierungsfaktor ξ zu berücksichtigen. Für die hier angegebene Kalibrierung ist $\xi = 1 \pm 0,06$. Die sich in dieser Weise ergebenden Werte für $\delta \langle r^2 \rangle$ sind in der letzten Spalte von Tabelle 10 eingetragen. Die dort angegebenen Fehler setzen sich noch aus der Berücksichtigung des Masseneffekts und dem Meßfehler zusammen.

Bis auf die Isotopieverschiebung von ^{172}Hf können die Werte mit schon bekannten Messungen verglichen werden [AH87]. In Tabelle 11 ist der relative Kernparameter λ für diese Messungen und aus anderen Messungen dargestellt. Aus der Tabelle ist zu sehen, daß die Werte für die schon bekannten relativen Isotopieverschiebungen mit diesen Messungen im Rahmen der Fehler übereinstimmen.

| Massenzahl A | Relativer Kernparameter $\lambda^{A, 178}$ | |
|--------------|--|------------------|
| | Diese Messungen | Werte aus [AH87] |
| 172 | -3,19(10) | - |
| 174 | -1,77(6) | -1,735(15) |
| 176 | -0,88(3) | -0,868(3) |
| 178 | 0 | 0 |
| 180 | 1 | 1 |

Tabelle 11. Vergleich der relativen Kernparameter aus dieser Messung mit Werten aus [AH87]

In Abbildung 43 sind die Änderungen der Kernladungsradien der verschiedenen Isotope graphisch dargestellt. Die mit dem Dropletmodell (Standard-Parameter-Satz [MS83]) berechneten Werte für Hafniumkerne sind mit eingezeichnet.

Das Dropletmodell [MS69] ist eine Erweiterung des Tröpfchenmodells. Die Protonenverteilung wird getrennt von der Neutronverteilung berechnet, da deren Radien nicht gleich sind. Außerdem wird die Coulomb-Abstoßung der Protonen berücksichtigt und ein diffuser Kern wird zugelassen. Die Kalibrierung der Werte, die den Standard-Parameter-Satz bilden, wurde an Bleikernen durchgeführt.

Die Deformation eines Kernes wurde bisher noch nicht berücksichtigt. Eine Möglichkeit, dies in die Änderung des mittleren quadratischen Kernladungsradius einfließen zu lassen, besteht darin, einen Korrekturterm [GS67] einzuführen, der auf experimentell bestimmbare Größen zurückzuführen ist:

$$\delta \langle r^2 \rangle_{\text{def.}} = \delta \langle r^2 \rangle_{\text{sph.}} + \delta \langle r^2 \rangle_{\text{sph.}} \frac{5}{4\pi} \sum_i \delta \langle \beta_i^2 \rangle$$

Der Term $\delta \langle \beta_2^2 \rangle$ ist die Änderung der mittleren quadratischen 2^1 -Pol-Deformation des Kerns. Den Hauptanteil an der nichtsphärischen Korrektur bildet die Quadrupoldeformation (β_2 - Werte).

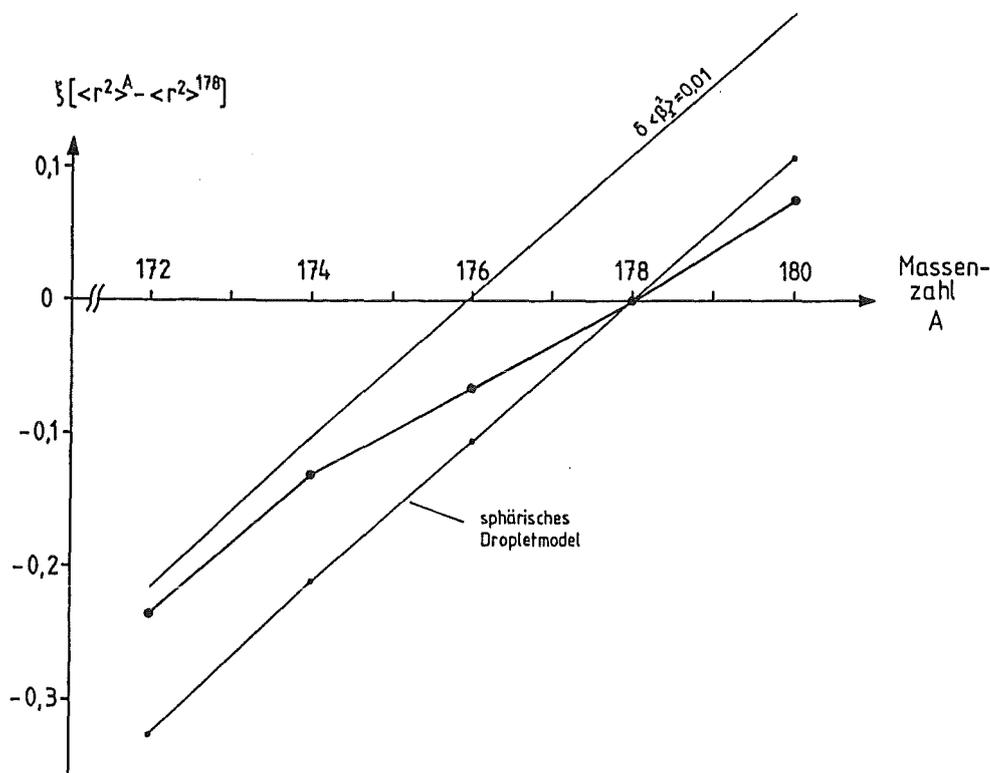


Abbildung 43. Änderung des mittleren quadratischen Kernladungsradius von Hafnium. Der Fehler der Kalibrierung ist in ξ berücksichtigt. Die Meßungenauigkeit und der Fehler aus dem spezifischen Masseneffekt sind dagegen kleiner als die eingezeichneten Meßpunkte. Außer den Werten aus dem sphärischen Dropletmodell ist eine Kurve eingezeichnet, die sich unter Berücksichtigung einer konstanten Deformationsänderung, bezogen auf ^{178}Hf , ergibt.

Die β_2 sind aus den gemessenen reduzierten elektrischen Übergangswahrscheinlichkeiten (BE2-Werte) bestimmt worden [RM87]. Die damit berechneten Korrekturen für Hafniumkerne sind in Tabelle 12 dargestellt. Die große Ungenauigkeit der berechneten Werte wird durch die Streuung der experimentell bestimmten BE2-Werte verursacht [RM87]. Die hier gewonnenen experimentellen Werte für die Änderung des mittleren quadratischen Kernladungsradius stimmen zwar damit überein, die große Unsicherheit in der Quadrupolkorrektur erlaubt jedoch keine gesicherten Aussagen.

| Mas- sen- zahl A | Sphärisches Droplet- modell | | β_2 (Aus [RM87]) | Korrektur durch Qua- drupolde- formation (aus β^2) [fm ²] | Droplet- modell $\delta \langle r^2 \rangle^{A,178}$ [fm ²] |
|------------------------|--|--|------------------------------|---|--|
| | $\langle r^2 \rangle$ [fm ²] | $\delta \langle r^2 \rangle^{A,178}$ [fm ²] | | | |
| 180 | 27,9351 | 0,106 | 0,272(18) | -0,051±0,11 | 0,055(100) |
| 176 | 27,7234 | -0,106 | 0,296(11) | 0,095±0,07 | -0,011(70) |
| 174 | 27,6180 | -0,211 | 0,287(29) | 0,042±0,18 | -0,169(180) |
| 172 | 27,5128 | -0,316 | 0,274(20) | -0,038±0,12 | -0,354(120) |

Tabelle 12. Sphärisches Dropletmodell mit Quadrupolkorrektur aus den experimentell bestimmten BE2-Werten.

Daß die Deformation der Hafniumkerne berücksichtigt werden muß, zeigt in Abbildung 43 der Vergleich des sphärischen Dropletmodells mit den experimentellen Werten. Die Steigung der experimentellen Kurve ist kleiner als die mit dem Dropletmodell berechnete. Das wird als Änderung der Deformation verstanden. Die Hafniumkerne ändern ihre Deformation so, daß sie mit abnehmender Neutronenzahl abnimmt.

6.3 Ausblick auf die Messungen am $I=16^+$ -Isomer ^{178m}Hf

Die an Ionen in einer Paulschen Ionenfalle entwickelten spektroskopischen Methoden zur Reduzierung der Linienbreiten ohne nennenswerten Verlust der Nachweisempfindlichkeit sind unter anderem ausgerichtet auf die Messungen am Hochspin-Isomers $^{178m_2}\text{Hf}$.

Das Isomer hat eine sehr lange Lebensdauer von 31 Jahren und einen Spin $I^\pi = 16^+$ ($K=16$) bei einer Anregungs-Energie von 2,45 MeV. Es wurde nach Neutronenbestrahlung von natürlichem Hafnium mit der Reaktion $^{177}\text{Hf}(n, \gamma)^{178m_2}\text{Hf}$ entdeckt [HR68,HR73]. Aus Zerfallseigenschaften wurde gefolgert, daß das Isomer

durch einen Vier-Quasi-Teilchen-Zustand aus zwei Protonen und zwei Neutronen aufgebaut wird [BG76]. Die lange Lebensdauer wird durch die kleine Übergangswahrscheinlichkeit des E3-Übergangs vom $I=16(K=16)$ -Isomer-Zustand zum $I=13(K=8)$ -Zustand bestimmt.

Die genauere Untersuchung der Kernstruktur dieses Hoch-Spin-Isomers verspricht Einsichten in das Zusammenspiel von Quasi-Teilchen-Freiheitsgraden und kollektivem Verhalten der Kernnukleonen. Die Möglichkeit, das Isomer in Mengen von Nanogramm bis zu einem Mikrogramm zu erzeugen [Og91], hat verschiedene Experimente angeregt. Während etwa in der GSI, Darmstadt durch Coulomb-Anregung eines $^{178m_2}\text{Hf}$ -Targets, mit einem Blei-Strahl das Übergangs-Quadrupolmoment bestimmt werden soll [Wo91], ist im Institut für Kernphysik 3 des KfK, Karlsruhe eine Laserspektroskopische Messung der Isomerieverschiebung und der Hyperfeinstruktur-Aufspaltung geplant. In diesem Zusammenhang sind folgende Problemfelder zu bedenken:

–*Herstellung*: Bei der Erzeugung des Isomers ist zum einen ein hoher Wirkungsquerschnitt wichtig, zum anderen soll das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte $\sigma(^{178m_2}\text{Hf})/\sigma(^{178}\text{Hf})$ möglichst groß sein. Unter diesen Voraussetzungen wurde der Beschuß von Ytterbium mit Heliumkernen ausgewählt: $^{176}\text{Yb}(^4\text{He},2n)^{178m_2}\text{Hf}$. Der Wirkungsquerschnitt beträgt bei einer Energie $E_x = 35$ MeV etwa 9 mb für eine Targetdicke von 80 mg/cm². Der Anteil des Isomers am Grundzustand beträgt etwa 10% [OK91]. Im JINR, Dubna, Russland und Alma Ata, Kasachstan wurden bereits Proben mit 10^{13} - 10^{14} Isomeratomen hergestellt. Weitere Proben mit bis zu 10^{15} Atomen sind für das Jahr 1992 geplant [Og91].

–*Chemische Aufbereitung und Massenseparation*: Die Abtrennung der Hafniumatome vom Ytterbium-Target erfolgt nach dem in Kap. 3.3 angegebenen Schema [Go90]. Durch andere Reaktionskanäle und durch geringe Verunreinigung des ^{176}Yb -Targets mit anderen Ytterbium-Isotopen werden andere Hafniumisotope in einer Menge erzeugt, die groß gegenüber der Zahl der Isomer-Atome ist. Aufgrund des begrenzten Fassungsvermögens der Ionenfalle (ca. $5 \cdot 10^5$ Ionen) ist dann bei Anwesenheit anderer Isotope der Anteil der Isomer-Ionen so klein, daß sie Laserspektroskopisch nicht nachgewiesen werden können. Aus diesem Grund ist eine Massentrennung erforderlich. Vorversuche am CSNSM, Orsay zeigten dabei eine Effizienz der Trennung von 1% bis 5%. Letztendlich bleiben also höchstens Proben mit 10^{12} bis 10^{13} Isomer-Atome (d.h. wenige Nanogramm) bei einem zehnfachen Überschuß an ^{178}Hf -Atomen übrig. Hierfür ist die Empfindlichkeit der spektroskopischen Verfahren einzustellen.

–*Spektroskopie:* Bei dem für die Ein-Stufen-Anregung ausgewählten Übergang besteht das Spektrum des Isomers aus zwölf Hyperfeinstruktur-Komponenten. Die maximale Aufspaltung hat im wesentlichen die Größe $F_{\max} \cdot \mu H(0)/(IJ)$ ($H(0)$ ist das durch die Elektronen am Kernort erzeugte Magnetfeld, I der Kernspin, J der Drehimpuls des elektronischen Terms und F die Hyperfeinstruktur-Quantenzahl) [Ko56]. Das magnetische Moment des Isomers ist bereits aus anderen Messungen bekannt, der beobachtete Wert ist $\mu = 7,26$ n.m. [PK89] und damit einen Faktor zehn größer als die magnetischen Momente der stabilen ungeraden Hafnium-Isotope. Aus vorläufigen Untersuchungen mit gepulster Ein-Stufen-Anregung und kontinuierlicher Zwei-Stufen-Anregung an ^{177}Hf und ^{179}Hf läßt sich deren Aufspaltung mit 2 ± 1 GHz abschätzen. Die Isomer-Aufspaltung erstreckt sich dann über 12 ± 6 GHz, der Effekt des Quadrupolmomentes ist dabei nicht berücksichtigt. Während die ^{177}Hf – Aufspaltung mit der gepulsten Ein-Stufen-Anregung nicht aufgelöst werden kann (vgl. Abb 31b), ist das bei der Isomer-Aufspaltung jedoch möglich. Die erzielte Nachweisempfindlichkeit reicht aus, um das Isomer in einer massengetrennten Probe durch einige der Hyperfein-Übergänge nachweisen zu können: Bei dem in Kapitel. 4.3 dargestellten Übergang beträgt die Zählrate bei voller Falle mit gepulster Anregung der Ionen etwa 800 kHz. Die Signalrate pro Hyperfeinstruktur-Komponente des Isomers erreicht dann einige Kiloherz, während die Signalrate des ^{178}Hf 720 kHz groß ist. Aufgrund der großen Hyperfeinstruktur-Aufspaltung ist es dann möglich, abseits der ^{178}Hf –Komponente einige der Hyperfeinaufspaltungs-Komponenten zu messen.

7. Literaturverzeichnis

- [AH87] P. Aufmuth, K. Heilig, A. Steudel, Atomic Data and Nuclear Data Tables 37, 455 (1987)
- [AH91] P. Aufmuth, I. Henneberg, A. Siminski, A. Steudel, Z. Phys. D 18, 107 (1991)
- [BC76] J. Bauche, R.-J. Champeau, Adv. At. Mol. Phys. 12, 39 (1976)
- [BG76] W. de Boer, P. Goudsmit, B. Meijer, J. Kapteyn, J. Konijn R. Kamer-mans, Nucl. Phys. A263, 397 (1976)
- [BK68] G.D. Boyd, D.A. Kleinman, J. Appl. Phys. 39, 3597 (1968)
- [BP85] J.J. Bollinger, J.D. Prestage, W.M. Itano, D.J. Wineland, Phys. Rev. Let-ters 54, 10, 1000 (1985)
- [BP89] R. Blümel, E. Peik, W. Quint, H. Walther, Springer Proceedings in Phy-sics 41, 152 (1989)
- [CM58] C.H. Corliss, W.F. Meggers, J. Research NBS 61, 4, 269, RP2904 (1958)
- [Da76] P.H. Dawson, "Quadrupole Mass Spectrometry and its Applications", Elsevier, Amsterdam (1976)
- [Da80] P.H. Dawson, Advances in Electronics and Electron Physics, suppl. 13, 173b (1980)
- [DB89] F. Diedrich, J.C. Bergquist, W.M. Itano, D.J. Wineland, Phys. Rev. Let-ters 62, 403 (1989)
- [De88] W. Demtröder, Springer Series in Chemical Physics 5 (1988)
- [Er87] W. Ertmer, Physica Scripta 36, 306 (1987)
- [Fr78] C. Froese Fischer, Comput. Phys. Commun. 14,145 (1978)

- [GL78] S. Gerstenkorn, P. Luc, "Atlas du Spectre d'Absorption de la Molécule d'Iode", Centre National de la Recherche Scientifique, Paris (1978)
- [GL79] S. Gerstenkorn, P. Luc, Rev. Phys. Appl. 14, 791 (1979)
- [Go90] B. Gorski, private communication (1990)
- [GS67] A. Golovin, A. Striganov, Sov. Phys. Lett. 16, 71 (1967)
- [HR68] R. Helmer, C. Reich, Nucl. Phys. A114, 649 (1968)
- [HR73] R. Helmer, C. Reich, Nucl. Phys. A211, 1 (1973)
- [HS74] K. Heilig, A. Steudel, Atomic Data and Nuclear Data Tables 14, 613 (1974)
- [IW77] R. Iffländer, G. Werth, Metrologia 13, 167 (1977)
- [Ka89] W. Kälber, Report KfK 4513 (1989)
- [KB91] D. Kowalewska, K. Bekk, S. Göring, A. Hanser, W. Kälber, G. Meisel, H. Rebel, Phys. Rev. A 44, R1442 (1991)
- [KM92] W. Kälber, G. Meisel, J. Rink, R. C. Thompson, Journal of Modern Optics (1992) (in Druck)
- [Ko56] H. Kopfermann, "Kernmomente", Akad. Verlagsgesellschaft Frankfurt (1956)
- [Ko91] D. Kowalewska, Report KfK 4802 (1991)
- [KR89] W. Kälber, J. Rink, K. Bekk, W. Faubel, S. Göring, G. Meisel, H. Rebel, R. C. Thompson, Z. Phys. A, 334, 103 (1989)
- [LC77] V.S. Letokhov, V.P. Chebotayev, Springer Series in Optical Science 4 (1977)

- [MC75] W.F. Meggers, C.H. Corliss, B.F. Scribner, NBS Monographs 145, part 1, 98 (1975)
- [Me68] R. Mehlhorn, Ph.D. Thesis, University of California (1968)
- [Mi92] H.-J. Mielke, Diplomarbeit Universität Karlsruhe (1992) (in Vorbereitung)
- [MK91] G. Meisel, W. Kälber, J. Rink, DE C2 Patentschrift, Heft 44, Patentblatt 110 (1991)
- [MKR91] G. Meisel, W. Kälber, J. Rink, DE A1 Offenlegungsschrift, Heft 37, Patentblatt 111 (1991)
- [Mo70] C. Moore, NBS 35, Vol 3, 143 (1970)
- [MS34] W.F. Meggers, B.F. Scribner, J.Research NBS 13, 625, RP732 (1934)
- [MS69] W.D. Myers, W.J. Swiatecki, Ann. of Phys. 55, 395 (1969)
- [MS83] W.D. Myers, K.-H. Schmidt, Nucl. Phys. A 410, 61 (1983)
- [NH78] W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P.E. Toschek, H.G. Dehmelt, Appl. Phys. 17, 123 (1978)
- [Og91] Yu. Oganessian, private communication (1991)
- [OK91] Yu. Oganessian, S. Karamian, C. Briançon, H. Wollersheim R. Kulesa, Nucl. Phys. News 1, 3, 28 (1991)
- [Ot88] E. Otten, "Nuclear radii and moments of unstable nuclei", in "Treatise on heavy ion science", 8, 517, ed. D. A. Bromley, Plenum Press (1988)
- [PK89] H. Postma, B. Kastelein, Hyperf. Interac. 52, 79 (1989)
- [Pe36] F.M. Penning, Physica 3, 873 (1936)

- [PO58] W. Paul, O. Osberghaus, E. Fischer, Forschungsberichte des Wirtschafts- und Verkehrsministeriums Nordrhein-Westfalen Nr. 415, Westdeutscher Verlag, Köln (1958)
- [Re88] H. Rebel, in "Recent Advances in Nuclear Physics", 223, eds. M. Petrovici and N.V. Zamfir, World Scientific (1988)
- [Ri88] J. Rink, Diplomarbeit Universität Karlsruhe (1988)
- [RM87] S. Raman, C. Malarkey, W. Miltner, C. Nestor, P. Stelson, Atomic Data and Nuclear Data Tables 36, 1 (1987)
- [Ru86] W. Ruster, Dissertation Universität Mainz (1986)
- [Sc90] R. Schruft, Diplomarbeit Universität Karlsruhe (1991)
- [Sc92] M. Schubert, Diplomarbeit Universität Karlsruhe (1992) (in Vorbereitung)
- [Sh76] K. Shimoda, Topics in Applied Physics 13, Springer (1976)
- [St84] A. Steiger, Report KfK 3820 (1984).
- [St88] S. Stenholm, Physica Scripta T22, 69 (1988)
- [TF85] G. Torbohm, B. Fricke, A. Rosén, Phys. Rev. A 31, 2038 (1985)
- [We84] G. Werth, "Trapped Ion Spectroscopy", in "Progress in Atomic Spectroscopy", part C, 151, eds. H. J. Beyer, H. Kleinpoppen, Plenum Press (1984)
- [Wo91] H. Wollersheim, GSI-91-24 Preprint, GSI Darmstadt (1991)
- [ZC74] R. Zalubas, C. Corliss, J. Research NBS 78A, 2, 163 (1974)

Einige Worte des Dankes

Die vorliegende Arbeit wurde in Zusammenarbeit mit der Laserspektroskopie-Gruppe des Instituts für Kernphysik 3 durchgeführt. Das Kernforschungszentrum Karlsruhe hat die Forschungsarbeiten durch ein Stipendium ermöglicht.

Ich möchte mich bei all denen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Im besonderen danke ich Herrn Priv. Doz. Dr. G. Meisel für die vielen Anregungen, die interessanten Diskussionen und die ständige Gesprächsbereitschaft.

Die meisten Experimente wurden gemeinsam mit Herrn Dr. W. Kälber, Herrn cand. phys. H.-J. Mielke und Herrn cand. phys. M. Schubert durchgeführt. Für die Hilfe und die Zusammenarbeit bedanke ich mich sehr.

Herrn Prof. Dr. H. Rebel danke ich für die Unterstützung der Forschungsarbeiten in den unterschiedlichsten Bereichen.

Frau Dr. B. Gorski führte die Abtrennung und chemische Aufbereitung des ^{172}Hf durch. Dafür und für die vielen anderen Proben bedanke ich mich. Letztendlich danke ich meinen Freunden und Bekannten, die mir in schwierigen Phasen halfen und mich während der besonders arbeitsintensiven Wochen mit den lebensnotwendigen Dingen versorgten, ohne die Forschung nicht möglich wäre.