

# **Inaugural-Dissertation**

zur

**Erlangung der Doktorwürde**

der

**Naturwissenschaftlich-Mathematischen**

**Gesamtfakultät**

**der Ruprecht-Karls-Universität**

**Heidelberg**

**vorgelegt von**

**Dipl.-Phys. Volkhard Mäckel**

**aus Freiburg im Breisgau**

**Tag der mündlichen Prüfung: 30. 6. 2010**



# **Laserspektroskopie hochgeladener Ionen an der Heidelberger Elektronenstrahl-Ionenfalle**

**Gutachter: Priv.-Doz. Dr. J. R. Crespo López-Urrutia  
Prof. Dr. S. Jochim**



### **Zusammenfassung:**

In dieser Arbeit wurde zum ersten Mal ein verbotener Übergang in hochgeladenen Ionen, produziert und gespeichert in einer Elektronenstrahl-Ionenfalle (EBIT), mittels resonanter Laseranregung unter direktem Nachweis der Fluoreszenzphotonen untersucht. Der M1  $1s^2 2s^2 2p^2 \ ^2P_{3/2} - ^2P_{3/1}$ -Übergang in borartigem  $\text{Ar}^{13+}$  wurde mit einem durchstimmbaren, gepulsten Farbstofflaser angeregt. Die laserinduzierte Fluoreszenz wurde in Abhängigkeit der Laserfrequenz gemessen und somit die Übergangswellenlänge zu 441.25575(17) nm bestimmt. Darüberhinaus wurde die Temperatur der Ionen durch Verdampfungskühlung erheblich gesenkt, so daß ein Auflösungsvermögen von  $\lambda/\delta\lambda = 15000$  erreicht und die Zeemanaufspaltung des Übergangs im Magnetfelds der EBIT aufgelöst werden konnte. Die ermittelten  $g$ -Faktoren des  $2P_{1/2}$ - sowie des  $2P_{3/2}$ -Zustands stimmen exzellent mit früheren Resultaten überein. Weiterhin ermöglichte der Einsatz der Laserspektroskopie eine erstmalige Untersuchung der Plasmadynamik von Ionen, die über eine Zeitdauer von mehreren Sekunden magnetisch in einer EBIT gespeichert waren. Die in diesen Untersuchungen erreichte Genauigkeit ist denen der besten Wellenlängenmessungen an hochgeladenen Ionen ebenbürtig. Diese neue Methode eröffnet jedoch einen Zugang zu wesentlich genaueren Messungen bis hin zu neuen optischen Frequenzstandards, die auf verbotenen Übergängen in hochgeladenen Ionen basieren und um Größenordnungen unempfindlicher gegenüber äußere Felder und Störungen sind als Übergänge in Atomen und niedriggeladenen Ionen.

### **Abstract:**

This work demonstrates for the first time resonant laser excitation of a forbidden transition in highly charged ions produced and stored in an electron beam ion trap (EBIT) by directly monitoring the fluorescence photons. The M1 transition  $1s^2 2s^2 2p^2 \ ^2P_{3/2} - ^2P_{3/1}$  of boronlike  $\text{Ar}^{13+}$  was excited by means of a tunable, pulsed dye laser. By monitoring the laser-induced fluorescence in dependence of the laser frequency, the transition wavelength was determined to be 441.25575(17) nm. Furthermore, by applying evaporative cooling, the temperature of the ions was considerably reduced, thus increasing the resolving power to  $\lambda/\delta\lambda = 15000$ . Thus the Zeeman splitting of the transition due to the magnetic field in the EBIT was resolved. The inferred  $g$  factors for the  $2P_{1/2}$  and  $2P_{3/2}$  levels are in excellent agreement with earlier experiments. Additionally, the application of laser spectroscopy allowed for the first time investigations of the plasma dynamics ions, stored magnetically in an EBIT over a period extending several seconds. The accuracy achieved in this first investigation is equal to that of the best wavelength measurements in highly charged ions. This new method however opens a path to much higher accuracies up to determining new optical frequency standards based on forbidden transitions in highly charged ions, which are by orders of magnitude more insensitive to external fields and perturbations than transitions in atoms and low-charged ions.



# Inhaltsverzeichnis

<b>Einleitung</b>	<b>5</b>
<b>1 Theorie</b>	<b>9</b>
1.1 Einelektronensysteme . . . . .	9
1.1.1 Nichtrelativistische Beschreibung: Schrödingergleichung . . . . .	9
1.1.2 Relativistische Beschreibung: Diracgleichung . . . . .	11
1.1.3 Rückstoßeffekte . . . . .	12
1.1.4 Quantenelektrodynamik . . . . .	13
1.1.5 Hyperfeinaufspaltung . . . . .	14
1.2 Mehrelektronensysteme . . . . .	15
1.2.1 Methoden nach Hartree und Hartree-Fock . . . . .	16
1.2.2 Multikonfigurations-Dirac-Fock-Methode . . . . .	17
1.2.3 Relativistische Viel-Körper-Störungstheorie . . . . .	18
1.2.4 Quantenelektrodynamische Viel-Körper-Störungstheorie . . . . .	18
1.2.5 Kernbeiträge . . . . .	19
1.3 Elektromagnetische Übergänge . . . . .	19
1.3.1 Dipolübergänge . . . . .	21
1.3.2 Zeemanaufspaltung . . . . .	23
1.3.3 Linienbreite . . . . .	27
<b>2 Laserspektroskopie an der Heidelberger EBIT</b>	<b>29</b>
2.1 Bisherige laserspektroskopische Messungen an hochgeladenen Ionen . . . . .	29
2.2 Die Heidelberger Elektronenstrahl-Ionenfalle . . . . .	34

2.2.1	Die Elektronenkanone . . . . .	36
2.2.2	Die Ionenfalle . . . . .	37
2.2.3	Kollektor . . . . .	38
2.2.4	Ionen- und Gasinjektion . . . . .	39
2.2.5	Ionenwolke in der Falle . . . . .	40
2.3	Die physikalischen Grundlagen einer EBIT . . . . .	41
2.3.1	Elektronenstrahl . . . . .	41
2.3.2	Atomare Prozesse . . . . .	42
2.3.3	Raumladung und Ionenkompensation . . . . .	45
2.3.4	Heizung und Kühlung . . . . .	48
2.3.5	Der magnetische Fallenmodus . . . . .	51
<b>3</b>	<b>Experimenteller Aufbau</b>	<b>57</b>
3.1	Das Lasersystem . . . . .	57
3.1.1	Pumplaser . . . . .	57
3.1.2	Farbstofflaser . . . . .	58
3.2	Strahlführung . . . . .	61
3.3	Kalibration . . . . .	62
3.3.1	Hohlkathodenlampe . . . . .	62
3.3.2	Etalon . . . . .	64
3.3.3	Kalibration der im Wellenlängenbereich des M1-Übergangs liegenden Neonlinien . . . . .	67
3.3.4	Kalibration der einzelnen Scans . . . . .	70
3.4	Photonendetektion . . . . .	73
3.5	Streulichtunterdrückung . . . . .	74
3.6	Meßprinzip und Datenaufnahme . . . . .	78
3.7	Abschätzung der Signalrate . . . . .	80
3.8	Herstellung des Überlapps zwischen Ionenwolke und Laser . . . . .	84

<b>4 Messungen</b>	<b>95</b>
4.1 Wellenlängenbestimmung . . . . .	95
4.1.1 Kühlung . . . . .	98
4.1.2 Wellenlängenbestimmung . . . . .	105
4.2 Zeemanaufspaltung . . . . .	110
4.3 Magnetischer Fallenmodus . . . . .	112
4.3.1 Verlustkanäle . . . . .	113
4.3.2 Verdampfungskühlung . . . . .	118
<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>121</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>125</b>



# Einleitung

Die Erforschung der elektronischen Struktur von Atomen und Ionen hat schon seit über einhundert Jahren entscheidend zum Fortschritt in unserem Verständnis der mikroskopischen und makroskopischen Welt beigetragen. Dabei wurde unsere Kenntnis vom Aufbau der Atome im Wesentlichen durch die Untersuchung optischer Spektren gewonnen. Den ersten wichtigen Schritt machten G. R. Kirchhoff und R. Bunsen als sie 1859 in Heidelberg die Spektralanalyse begründeten. Sie entdeckten, daß verschiedene chemische Elemente die Flamme eines Gasbrenners auf charakteristische Weise färben [1]. Mit einem Prismenspektrometer konnten sie zeigen, daß jedes Element ein ganz bestimmtes Spektrum, bestehend aus charakteristischen Linien aufweist, das betrachtet, aufgezeichnet und gemessen werden konnte. Ein besonders bemerkenswertes Ergebnis ihrer Spektralanalysen ist die Erklärung der dunklen Linien im Spektrum des Sonnenlichts, die von Fraunhofer entdeckt und systematisch studiert wurden. Bunsen und Kirchhoff bemerkten, daß bestimmte Emissionslinien der mit Natrium gefärbten Gasflamme mit dunklen Linien im Sonnenspektrum übereinstimmen. Kirchhoff zog die richtige Schlußfolgerung, daß es sich bei der Verdunklung der Spektrallinien um Absorptionslinien von Natrium handelt, das in der Sonnenatmosphäre enthalten ist. Die Spektren anderer im Sonnenlicht vorkommender chemischer Elemente zeigten ähnliche, distinktive dunkle Linien. Durch den Vergleich der Spektren erkannten Kirchhoff und Bunsen, daß mit ihrem Analyseverfahren die chemische Zusammensetzung des Weltalls bestimmt werden kann.

Besonders für die Atomphysik führte diese Entdeckung zu wichtigen theoretischen Erkenntnissen. Aufbauend auf den Untersuchungen der Spektrallinien wurde das Bohrsche Atommodell entwickelt [2], mit dem die Atomspektren erklärt werden konnten. Durch stetige Verbesserung der Meßmethoden wurde eine immer höhere experimentelle Präzision erreicht, wodurch die Weiterentwicklungen der theoretischen Modelle iniiert wurden. So wurde durch spektroskopische Messungen an Atomen die Entwicklung der Quantenmechanik von Heisenberg, Schrödinger und weiteren Physikern angeregt. Experimentelle Abweichungen von den quantenmechanischen Vorhersagen führten zu relativistischen Erweiterungen von O. Klein, W. Gordon und P.A.M. Dirac [3]. Die Entdeckung der Lamb-Verschiebung durch W. Lamb und R. Retherford [4], die eine Energiedifferenz zwischen

den  $2s_{1/2}$  und  $2p_{1/2}$ -Niveaus beobachteten, führte zur Entstehung der Quantenelektrodynamik (QED). Sie wurde als erste der Quantenfeldtheorien vor etwa 60 Jahren formuliert. Damit wurde zum ersten Mal die zentrale Bedeutung der Wechselwirkung der Elementarteilchen mit dem Vakuum erkannt. Die spektroskopische Beobachtung der Strahlung, die Atome aussenden, war ebenfalls essentiell für die Entdeckung verschiedenster physikalischer Prozesse und Größen wie Spin, Kernspin, und Kernaussdehnung. Untersucht man die Struktur und die Eigenschaften von Atomen, so zeigt sich, daß jedoch für den Nachweis dieser wichtigen Effekte in der Atomphysik eine sehr hohe Meßgenauigkeit erreicht werden muß, da ihre Beiträge zu den Übergangsenergien in Atomen teilweise verschwindend gering sind. So liegt der relative Anteil der Feinstruktur, die einen relativistischen Effekt darstellt und durch die Spin-Bahn-Kopplung auf den Elektronenspin hinweist, im Wasserstoff nur bei  $10^{-5}$  der Bindungsenergie. Der relative Beitrag der Hyperfeinstruktur, die mit dem Kernspin zusammenhängt, ist mit  $10^{-7}$  nochmals wesentlich geringer. Analoges gilt für die QED-Beiträge. Daher muß zur Vermessung dieser Beiträge und somit zur Überprüfung theoretischer Modelle oft ein erheblicher experimenteller Aufwand betrieben werden.

Als 1960 T. Maiman zusammen mit N. Basov den ersten funktionierenden Laser entwickelte [5], schufen sie eine Lichtquelle, die die optische Spektroskopie und somit die gesamte Atomphysik von Grund auf revolutionierte. Der Einsatz von Lasern in spektroskopischen Experimenten hat es den Wissenschaftlern ermöglicht eine mit klassischen Methoden bisher unerreichbare Genauigkeit zu erlangen [6]. Von ihren Anfängen an hat die Laserspektroskopie die klassischen Methoden in Empfindlichkeit, Auflösung und Meßgenauigkeit bei weitem übertroffen. Durch die Entwicklung der Farbstofflaser in den Siebzigern durch P. P. Sorokin [7] lagen den Experimentatoren hochmonochromatische Lichtquellen vor, die über große Wellenlängenbereiche durchstimmbare sind und aufgrund der hohen Intensität, der schmalen Bandbreite sowie der Phasenkohärenz hochauflösende Spektroskopie ermöglichen. Dies eröffnete einen weiten Bereich neuer Techniken wie z.B. die Sättigungsspektroskopie [8], mit der die Limitierung der experimentellen Auflösung durch die Dopplerverbreiterung umgangen werden konnte. Die Entwicklung der Laserkühlung [9, 10] ermöglichte neben der Forschung der Bose-Einstein-Kondensate [11] das Abkühlen einzelner Atome auf niedrigste Temperaturen, womit Ungenauigkeiten verursacht durch die Dopplerverbreiterungen praktisch ausgeschlossen waren. Die Entwicklung des Frequenzkamms in der Arbeitsgruppe von Theodor Hänsch, wofür er 2005 den Nobelpreis erhielt [12], ermöglichte die Wellenlängenbestimmung im optischen Bereich mit extrem hoher Präzision. Das prominenteste Beispiel, das die vormals ungeahnten Möglichkeiten der Laserspektroskopie demonstriert, ist die Vermessung des  $1S - 2S$  Übergangs in Wasserstoff, der 2000 auf  $10^{-14}$  genau vermessen wurde [13] und somit einer der genauest bekannten Größen in der Physik ist. Die hier erreichte Genauigkeit ist so hoch, daß zusammen mit einer erneut durchgeführten Messung dieses Übergangs einige Jahre später eine neue Grenze der zeitlichen Verän-

derung der Feinstrukturkonstanten  $\alpha$  aufgestellt werden konnte [14]. Mittlerweile können optische Übergänge in einfach geladenem Aluminium und Quecksilber so genau vermessen werden, daß ihre Unsicherheit kleiner als die derzeitige SI-Realisierung der Sekunde ist und daher das Frequenzverhältnis beider Übergänge angegeben wird, das bis auf die siebzehnte Nachkommastelle bekannt ist [15].

Diese Laserspektroskopischen Methoden haben aufgrund ihres enormen Potentials einen festen Platz in der physikalischen Forschung gefunden. Betrachtet man jedoch den Forschungsbereich der hochgeladenen Ionen, ist der Einsatz der Laserspektroskopie noch sehr verhalten. Dabei ist die Physik der hochgeladenen Ionen eine der wichtigsten und aktivsten Bereiche der modernen Atomphysik. So sind in der Astronomie hochgeladene Ionen von großer Bedeutung, da nach neueren kosmologischen Modellen der größte Teil der sichtbaren baryonischen Materie im Universum sehr heiß ist und somit hochionisiert vorliegt [16]. Zusätzlich bieten hochionisierte atomare Systeme mit wenigen verbleibenden Elektronen ausgezeichnete Möglichkeiten, um relativistische Effekte, QED-Beiträge sowie die Einflüsse der Elektron-Elektron-Wechselwirkung auf die Bindungsenergien gezielt zu untersuchen. Da die verbleibenden Elektronen wesentlich stärker an den Atomkern gebunden sind als bei einem neutralen Atom mit derselben Elektronenzahl, skalieren relativistische, Kernstruktur- und QED-Effekte, welche in äußeren Schalen neutraler Atome meist nur einen sehr kleinen Beitrag aufweisen, häufig mit hohen Potenzen der Kernladungszahl  $Z$ , so daß ihre relativen Beiträge zur gesamten Übergangsenergie stark zunehmen und damit wesentlich einfacher zu beobachten sind. So skalieren z.B. sowohl die Beiträge der QED als auch die Feinstrukturaufspaltung mit  $Z^4$ , die Verschiebung der Niveaus aufgrund von Kerngrößenbeiträgen mit  $Z^6$  und die Hyperfeinstrukturaufspaltung mit  $Z^3$ , während die Bindungsenergie nur mit  $Z^2$  steigt. Auch für theoretische Berechnungen sind hochgeladene Ionen vorteilhaft, da sie aufgrund ihrer geringen Anzahl verbleibender Elektronen einfacher zu beschreiben sind. Zudem haben hochgeladene Ionen die besondere Eigenschaft, daß ihre verbleibenden Elektronen nahe am Kern in einem wesentlich stärkerem Feld gebunden sind als die Elektronen in einem neutralen Atom mit der selben Anzahl Elektronen. Sie sind daher praktisch unempfindlich gegenüber DC- und AC- Starkverschiebungen, und damit insbesondere sehr stabil trotz äußerer Einflüssen wie z.B. durch die vom Laser oder durch die Ionenfalle verursachten Felder.

Die Erzeugung hochgeladener Ionen im Labor geschieht hauptsächlich über Elektronenstoß-Ionisation, wobei die Schwerpunktsenergie beim Stoß größer als die Bindungsenergie des Elektrons sein muß, um es aus dem Atom zu lösen [17]. Zur Erzeugung und Speicherung der höchsten Ladungszuständen stehen zum einen Beschleunigeranlagen in Verbindung mit Schwerionen-Speicherringen, zum anderen Elektronenstrahl-Ionenfallen (EBIT) zur Verfügung, mit denen Ionen bis hin zum nackten Uran bereitgestellt werden können. Für spektroskopische Untersuchungen bieten EBITs den großen Vorteil, daß die Ionen in Ruhe erzeugt

werden und somit Übergangsfrequenzen direkt ohne Korrektur einer Dopplerverschiebung, wie es bei Speicherringen notwendig ist, bestimmt werden können. Die trotz dieses Vorteils geringe Anzahl an bisher erfolgreichen laserspektroskopischen Messungen an hochgeladenen Ionen in einer EBIT liegt hauptsächlich an den sehr geringen Anregungsquerschnitten zu einer kleinen Signalrate führt, was den Nachweis der Laseranregung erheblich erschwert. Die in EBITs vorliegende nicht allzu hohe Dichte ist jedoch gerade für die Untersuchung dipol-verbotener Übergänge von hoher Bedeutung, da die Stoßabregung der angeregten Zustände mit langen Lebensdauern vernachlässigbar ist. Solche dipol-verbotenen Übergänge in hochgeladenen Ionen spielen insbesondere in der Astronomie eine wichtige Rolle. So identifizierte 1942 Edlén Spektrallinien der Sonnenkorona als solche verbotenen Übergänge [18]. Diese Art der Übergänge kann auch in verschiedenen astrophysikalischen Objekten beobachtet werden. Zudem spielen sie in der Plasmaphysik eine große Rolle. Da solche Plasmen oftmals eine geringe Dichte aufweisen, zerfallen angeregte Zustände innerhalb der Grundzustandskonfiguration über M1-Übergänge. Die optischen Emissionslinien der dipol-verbotenen Übergänge ermöglichen Temperatur- und Dichteuntersuchungen in Plasmen, wie sie im Labor als auch in der Astronomie vorherrschen. Zudem haben die magnetischen Dipol (M1)- und elektrische Quadrupolübergänge (E2) zwischen Feinstrukturniveaus im Wesentlichen relativistische Ursachen und enthalten sehr große QED-Beiträge. Daher liefert die genaue Vermessung solcher Übergänge gute Möglichkeiten zur Überprüfung relativistischer und quantenelektrodynamischer Beschreibungen der elektronischen Struktur von Ionen und Atomen. Zudem bieten gerade hochgeladene Ionen mit wenigen Elektronen gute Möglichkeiten, Beiträge der relativistischen Elektron-Elektron-Wechselwirkung [19] zu vermessen.

In der hier vorliegenden Arbeit wurde daher ein Experiment an der Heidelberger Elektronenstrahl-Ionenfalle aufgebaut, mit dem solche verbotenen Übergänge in hochgeladenen Ionen mittels Laseranregung genau vermessen werden können. Erste Anwendungen waren präzise Wellenlängenbestimmungen sowie Untersuchungen der Dynamik gefangener Ionenensembles in einer magnetischen Fallenkonfiguration. Dabei konnte zum ersten Mal die Diffusion einer Wolke hochgeladener Ionen über mehrere Sekunden, sowie die Entwicklung ihrer Dichte und Temperatur verfolgt werden. Im ersten Kapitel wird ein Überblick über die theoretische Beschreibung von Ein- und Wenigelektronatomen gegeben. Im zweiten Kapitel wird die in dieser Arbeit verwendete Elektronenstrahl-Ionenfalle ausführlich erklärt. Das dritte Kapitel liefert eine detaillierte Beschreibung des eingesetzten Lasersystems sowie der verwendeten Datenaufnahme. Im vierten Kapitel werden die durchgeführten Messungen vorgestellt. Eine Zusammenfassung der erzielten Ergebnisse sowie ein Ausblick schließen diese Arbeit ab.

# Kapitel 1

## Theorie

### 1.1 Einelektronensysteme

#### 1.1.1 Nichtrelativistische Beschreibung: Schrödingergleichung

Ausgehend vom Rutherford'schen Atommodell [20] formulierte N. Bohr sein Planetenmodell [2], in dem negativ geladene Elektronen strahlungslos einen positiven Kern auf diskreten Bahnen  $n$  umkreisen. Strahlung kann nur bei Übergängen in andere Bahnen ausgesandt werden. Zusätzlich verlangte er, daß das gesamte Drehmoment des Systems die Quantenbedingung  $|L| = m_K r v = n \hbar$  erfüllt ( $m_K$ : Kernmasse). Diese Postulate lassen nur Kreisbahnen mit den Radien  $r = a_0 \cdot n^2 / Z$  zu, wobei  $a_0 = 5,2917 \cdot 10^{-11}$  m als Bohrradius bezeichnet wird. Sommerfeld erweiterte dieses Modell durch Annahme von elliptischen Bahnen der Elektronen und war damit in der Lage, die Feinstruktur des Wasserstoffspektrums zu erklären [21].

Die Annahme diskreter Umlaufbahnen der Elektronen und somit die Einschränkung der Bindungsenergie auf diskrete Werte legte die Grundlage zur Quantenmechanik. Ausgehend von De Broglies Wellen-Teilchen-Formalismus entwickelten E. Schrödinger, W. Heisenberg und P.A.M. Dirac eine wesentlich grundlegendere Theorie der Quantenmechanik [22]. Sie beschreibt ein Teilchen durch eine Wellenfunktion  $\Psi(\mathbf{r}, t)$ , wobei das Betragsquadrat  $\Psi(\mathbf{r}, t)\Psi^*(\mathbf{r}, t)$  als die Wahrscheinlichkeitsdichte gedeutet wird, mit der man das Teilchen am Ort  $\mathbf{r}$  zur Zeit  $t$  findet. Dabei werden Observablen durch Operatoren dargestellt, die auf die Wellenfunktionen wirken. Die Erwartungswerte dieser Operatoren ergeben die möglichen Ergebnisse einer physikalischen Messung dieser Größen. Die Dynamik eines Elektrons der Masse  $m_e$  zur Zeit  $t$  in dem Potential  $V(\mathbf{r}, t)$  wird dann beschrieben durch:

$$\hat{H}_S \Psi(\mathbf{r}, t) = i \hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \quad (1.1)$$

mit dem Hamiltonoperator  $\hat{H}_S$  als Observable der Gesamtenergie des Systems

$$\hat{H}_S = -\frac{\hbar^2}{2m}\Delta + V(\mathbf{r}, t). \quad (1.2)$$

In einem zeitunabhängigen Potential  $V(\mathbf{r})$  vereinfacht sich die Schrödingergleichung zu

$$\hat{H}\Psi(\mathbf{r}) = E\Psi(\mathbf{r}). \quad (1.3)$$

Somit gilt für die Wellenfunktion eines Elektrons im Coulombpotential eines Atomkerns mit der Kernladung  $Z$ :

$$\hat{H}\Psi_{nlm} = \left(-\frac{\hbar^2}{2\mu}\Delta - \frac{Ze^2}{r}\right)\Psi_{nlm} = E_{nlm}\Psi_{nlm}, \quad (1.4)$$

wobei hier wie im Rest dieses Kapitels Gauß-Einheiten verwendet wurden. Es steht  $e$  für die Elementarladung und  $\hbar$  für die Planck-Konstante.  $\Psi_{nlm}$  ist die Wellenfunktion mit der Hauptquantenzahl  $n$ , der Drehimpulsquantenzahl  $l$  und der magnetischen Quantenzahl  $m$ . Die Mitbewegung des Kerns wird durch die Einführung der reduzierten Masse

$$\mu = \frac{m_e \cdot m_K}{m_e + m_K} \quad (1.5)$$

berücksichtigt, wobei mit  $m_K$  die Masse des Kerns bezeichnet wird.

Da für ein Eielektronensystem das Coulombpotential nur vom Radius abhängt, kann die Wellenfunktion in ein Produkt aus einem Radialteil und einem winkelabhängigen Teil aufgespalten werden:

$$\Psi_{nlm}(\mathbf{r}) = R_{nl}(r)Y_{lm}\left(\frac{\mathbf{r}}{r}\right). \quad (1.6)$$

$R_{nl}$  ist die sogenannte Radialwellenfunktion mit dem Betrag  $r = |\mathbf{r}|$  als Argument und  $Y_{lm}$  eine Kugelflächenfunktion mit der Einheitsrichtung  $(\mathbf{r}/r)$ . Die Energieeigenwerte hängen nur von der Hauptquantenzahl  $n$  ab und sind durch

$$E_n = -\frac{\mu(Z\alpha c)^2}{2n^2} \quad (1.7)$$

gegeben. Hierbei bezeichnet  $\alpha = e^2/\hbar c \approx 1/137$  die von Sommerfeld eingeführte Feinstrukturkonstante, und  $c$  die Lichtgeschwindigkeit.

Mit diesen Ansätzen erhält man eine fundamentale Beschreibung des Wasserstoffspektrums, die mit den experimentellen Daten recht gut übereinstimmt. Abweichungen zeigen sich jedoch bei genauerem Hinsehen in der Feinstruktur, die von Lamb an Wasserstoff entdeckt wurde [4], wofür er 1955 den Nobelpreis erhielt. Durch die Feinstruktur wird die

von der Schrödingergleichung vorhergesagte Entartung bezüglich der Quantenzahl  $n$  aufgehoben. Die größte Einschränkung dieser Theorie liegt darin, daß sie keine relativistischen Effekte berücksichtigt. Da sie die erste Ableitung nach der Zeit und die zweite Ableitung nach dem Ort enthält, ist sie nicht invariant bezüglich der Lorentztransformation.

### 1.1.2 Relativistische Beschreibung: Diracgleichung

Ausgehend vom relativistischen Energieansatz  $E = \sqrt{p^2 c^2 + m_e^2 c^4}$  entwickelte Dirac daher die Diracgleichung [3] als lorentzinvariante Erweiterung der Schrödingergleichung mit dem Operator  $\hat{H}_D$

$$\hat{H}_D = \left( -i\hbar c \boldsymbol{\alpha} \nabla + \beta m_e c^2 + \hat{V}(r) \right), \quad (1.8)$$

und den  $4 \times 4$  Diracmatrizen  $\boldsymbol{\alpha}$  und  $\beta$ :

$$\alpha_i = \begin{pmatrix} 0 & \sigma_i \\ \sigma_i & 0 \end{pmatrix} \quad \text{und} \quad \beta = \begin{pmatrix} I & 0 \\ 0 & -I \end{pmatrix}. \quad (1.9)$$

Dabei ist  $I$  die  $2 \times 2$  Einheitsmatrix und  $\sigma_i$  sind die Paulimatrizen

$$\sigma_1 = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_2 = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} \quad \text{und} \quad \sigma_3 = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}. \quad (1.10)$$

Als Lösung der Diracgleichung ergeben sich vierzeilige Bispinoren

$$\Psi = \begin{pmatrix} \phi_{+\alpha} \\ \phi_{+\beta} \\ \phi_{-\alpha} \\ \phi_{-\beta} \end{pmatrix}. \quad (1.11)$$

Die Wellenfunktion ist aus zwei jeweils zweikomponentigen Teilen zusammengesetzt. Diese lassen sich als das Elektron und sein Antiteilchen mit entgegengesetzter Ladung, das Positron, interpretieren. Die Wellenfunktionen setzen sich für das Elektron wie für das Positron aus zwei Komponenten zusammen, die als Spinoren  $\mathbf{s}$  bezeichnet werden. Der Spin ist eine Eigenschaft des Elektrons, die sich aus der Diracgleichung ergibt. Er wird durch die Quantenzahlen  $s = 1/2$ ,  $m_s = \pm 1/2$  charakterisiert und liefert eine Erklärung für das Stern-Gerlach-Experiment [23]. Das Elektron besitzt aufgrund des Spins ein permanentes magnetisches Moment  $\boldsymbol{\mu} = \gamma \mathbf{s}$ , wobei  $\gamma$  als gyromagnetisches Verhältnis bezeichnet wird. Die Wechselwirkung des Spins  $\mathbf{s}$  mit dem Bahndrehimpuls  $\mathbf{l}$  führt zur Feinstrukturaufspaltung des Wasserstoffspektrums.

Unter Annahme eines ruhenden punktförmigen Kerns und dem Coulombpotential  $V = Ze/r$  kann die Diracgleichung analytisch gelöst werden. Für die Zustände mit der Hauptquantenzahl  $n$  und der Quantenzahl  $j = l + s$  für den Gesamtdrehimpuls ergeben sich die Eigenwerte

$$E_{nj} = m_e c^2 \left\{ \left[ 1 + \left( \frac{Z\alpha}{n - (j + \frac{1}{2}) + \sqrt{(j + \frac{1}{2})^2 - (Z\alpha)^2}} \right)^2 \right]^{-\frac{1}{2}} - 1 \right\}. \quad (1.12)$$

Die Diracgleichung besagt somit, daß Zustände mit gleichem  $n$  und  $j$  entartet sind. Für leichte Atome kann der Hamiltonoperator angenähert werden zu

$$\hat{H}_{Dirac} = \hat{H}_{NR} + \hat{H}_{Rel} + \hat{H}_{LS} + \hat{H}_{Darwin}. \quad (1.13)$$

Dabei ist  $\hat{H}_{NR}$  der nichtrelativistische Hamiltonoperator aus 1.4,  $\hat{H}_{Rel}$  beschreibt die relativistische Massenzunahme des Elektrons,  $\hat{H}_{LS}$  die Wechselwirkung der magnetischen Momente des Elektronspins und des Orbits (Spin-Bahn-Kopplung).  $\hat{H}_{Darwin}$  kann als „Zitterbewegung“ des Elektrons interpretiert werden und ist eine Konsequenz aus der Unschärfe der Ortsbestimmung des Elektrons. Mit dieser Näherung ergeben sich die Energieeigenwerte zu

$$E_{nj} = \frac{m_e c^2 (Z\alpha)^2}{2} \frac{(Z\alpha)^2}{n^2} \left[ 1 + \frac{(Z\alpha)^2}{n} \left( \frac{1}{j + 1/2} - \frac{3}{4n} \right) \right]. \quad (1.14)$$

Die Aufspaltung der  $nl$ -Niveaus in zwei Komponenten wird als Feinstrukturaufspaltung bezeichnet. Die Größenordnung wird durch  $Z\alpha/n^3$  bestimmt, so daß die Aufspaltung gerade für niedrige Zustände eine wichtige Rolle spielt.

### 1.1.3 Rückstoßeffekte

Bei der analytischen Lösung der Diracgleichung wurde von einem unendlich schweren Atomkern ausgegangen. Im Gegensatz zur Schrödingergleichung läßt sich die Mitbewegung des Kerns in der Dirac'schen Darstellung nicht mehr allein durch die Einführung einer reduzierten Masse berücksichtigen. Da unter Einbeziehung einer endlichen Kernmasse die Diracgleichung nicht mehr analytisch lösbar ist, müssen die Rückstoßkorrekturen durch Näherungen beschrieben werden. Die Korrekturen können nach Ordnungen von  $Z\alpha$  entwickelt werden. Eine Entwicklung bis zur Ordnung  $(Z\alpha)$  findet sich z.B. in [24]. Der Beitrag der Rückstoßkorrektur bis zur Ordnung  $(Z\alpha)^4$  ist für  $l > 0$  gegeben durch

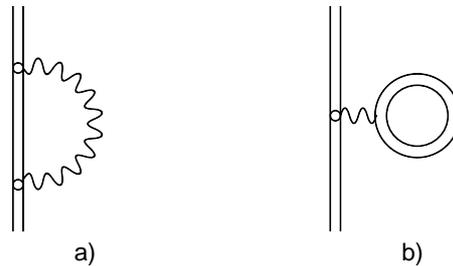


Abbildung 1.1: Feynmandiagramme der QED-Korrekturen erster Ordnung: a) Selbstenergie (SE) und b) Vakuumpolarisation (VP). Die Zeitachse verläuft von unten nach oben. Gerade doppelte Linien beschreiben gebundene Elektronen. Wellenlinien entsprechen virtuellen Photonen.

$$\Delta E = \frac{(Z\alpha)^4}{2n^3} \frac{\mu^3}{m_K^2} \left[ \frac{1}{j + 1/2} - \frac{1}{l + 1/2} \right]. \quad (1.15)$$

1947 zeigten Lamb und Retherford, daß im Wasserstoff die  $2s_{1/2}$  und  $2p_{1/2}$  Zustände, die beide  $j = 1/2$  besitzen, um 1000 Mhz aufgespalten sind [4], was der Diractheorie widerspricht. Im Allgemeinen wird die gesamte Abweichung eines Zustands von dem von der Diractheorie berechneten Wert als Lambverschiebung bezeichnet. Die Abweichungen von den oben genannten Annahmen eines ruhenden punktförmigen Atomkernes reichen allerdings nicht aus, diese Abweichungen zu erklären. Dies ist erst im Rahmen der Quantenelektrodynamik möglich geworden.

#### 1.1.4 Quantenelektrodynamik

Die Quantenelektrodynamik (QED) ist eine quantenfeldtheoretische Beschreibung des Elektromagnetismus im Rahmen der Quantenphysik. Sie beschreibt die Wechselwirkung geladener Teilchen untereinander und mit dem elektromagnetischen Feld durch Emission, Absorption oder Austausch virtueller Photonen. Die Stärke der Kraft zwischen zwei Elementarladungen wird durch die elektromagnetische Kopplungskonstante, die Feinstrukturkonstante  $\alpha$  bestimmt. Mathematisch werden die Wechselwirkungen störungstheoretisch (perturbativ) mit  $\alpha$  als Expansionsparameter behandelt, wobei die Ordnungszahl der Anzahl der ausgetauschten virtuellen Photonen entspricht. Die einzelnen Beiträge dieser Entwicklung werden oft in sogenannten Feynman-Diagrammen dargestellt. Fig. 1.1 zeigt die beiden einfachsten Feynmandiagramme in erster Ordnung  $\alpha$ . Der Propagator der Wechselwirkung, das virtuelle Austauschphoton, wird durch eine Wellenlinie symbolisiert, die Anzahl der Knoten geben die Ordnung  $\sqrt{\alpha} \times \sqrt{\alpha}$  wieder. Ein- und auslaufende Linien stellen reelle, d.h. beobachtbare Teilchen dar. Die Doppellinie beschreibt ein Elektron im externen Feld eines Kerns. Bei einem freien Elektron sowie beim Wasserstoffatom liefert die sogenannte Selbstenergie (SE) (Fig 1.1 a)) den wichtigsten Beitrag zur Strahlungskorrektur.

Die Selbstenergie läßt sich anschaulich als die Folge einer ständigen Emission und Reabsorption virtueller Photonen durch ein Elektron erklären. Im Rahmen der Heisenbergschen Unschärferelation  $\Delta E \cdot \Delta t \leq \hbar$  verletzt dies nicht die Energieerhaltung [25, 26]. Dies führt zu einem effektiven Ausschmieren der Ladungsverteilung, d.h. das Elektron erscheint nicht mehr punktförmig, sondern über ein kleines Volumen verteilt. Für ein gebundenes Elektron ergibt sich dadurch eine Anhebung des Energieniveaus um

$$\Delta E_{SE} = \frac{\alpha (Z\alpha)^4}{\pi n^3} F(Z\alpha, R) m_e c^2. \quad (1.16)$$

Die Werte der Funktion  $F(Z\alpha)$  in der ersten Ordnung sind in der Literatur für verschiedene  $n, l, j$  und  $Z$  tabelliert (z.B. in [27]). Eine weitere Änderung der Bindungsenergie ergibt sich durch die Vakuumpolarisation (VP). Hierbei werden durch die virtuellen Photonen, die ein gebundenes Elektron mit dem Feld austauschen, virtuelle Elektron-Positron-Paare erzeugt (siehe Abb. 1.1 (b)). Diese „richten sich im elektrischen Feld des Kerns aus“ und erzeugen so eine Polarisation des Vakuums. Sie bewirkt, daß das Elektron eine scheinbar höhere Kernladung sieht und somit stärker an den Kern gebunden wird. Entwickelt man den Beitrag der Vakuumpolarisation nach  $Z\alpha$ , erhält man mit dem ersten Korrekturterm das sogenannte Uehlingpotential [28], während der restliche Beitrag als Wichmann-Kroll-Beitrag [29] bezeichnet wird.

Während beim Wasserstoff die relativistischen und QED-Beiträge klein sind, sind sie bei schweren wasserstoffähnlichen Systemen wesentlich ausgeprägter, da die führenden QED-Beiträge mit  $Z^4$ , der nichtrelativistische Anteil der Bindungsenergie allerdings nur mit  $Z^2$  wächst. Die QED-Beiträge zur  $2s_{1/2} - 2p_{1/2}$ -Aufspaltung im lithiumähnlichen Uran liefern beispielsweise ca. 15% der Gesamtaufspaltung. Für wasserstoffähnliche Systeme sind die QED-Beiträge in [30] aufgelistet.

### 1.1.5 Hyperfeinaufspaltung

Die Wechselwirkung der magnetischen Momente des Elektrons und des Kerns führen analog zur Feinstrukturaufspaltung zu einer weiteren Aufspaltung. Der Drehimpuls des elektronischen Systems  $\mathbf{j}$  koppelt mit dem Kernspin  $\mathbf{I}$  zum gesamten Drehimpuls  $\mathbf{F}$ . Damit ergibt sich eine Energieverschiebung von

$$\Delta E_{HFS} = \frac{F(F+1) - I(I+1) - j(j+1)}{2j(j+1)(2I+1)} A \quad (1.17)$$

mit der Hyperfeinkonstante  $A$ . Ihr Wert ist für wasserstoffähnliche Systeme im  $1s S_{1/2}$ -Zustand

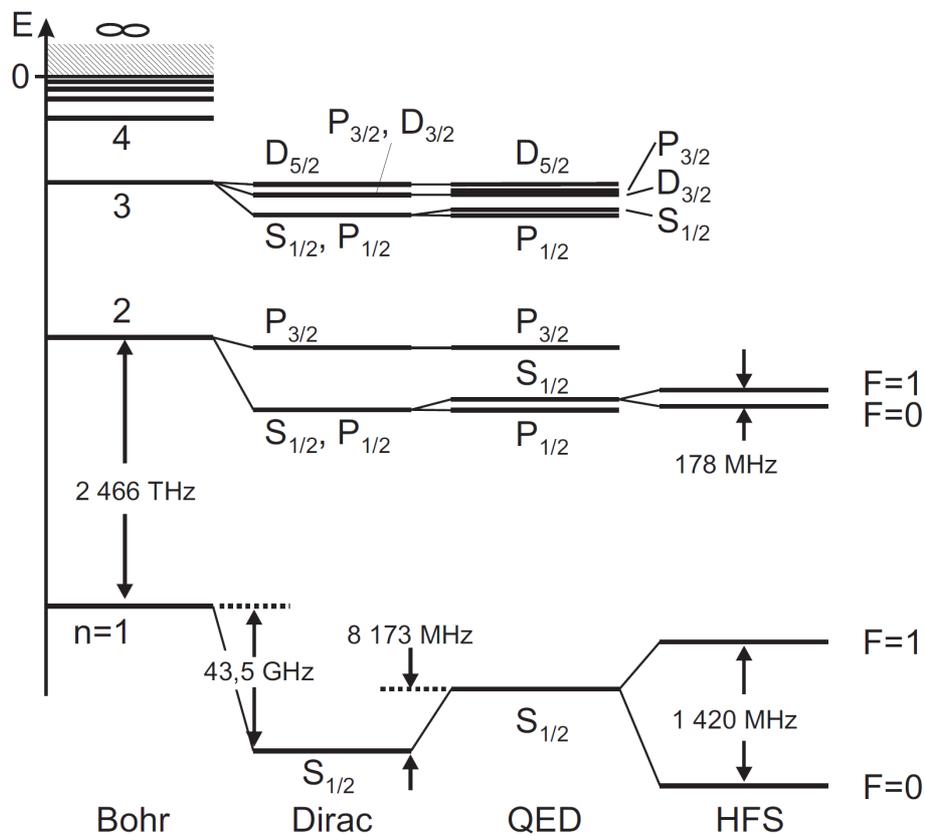


Abbildung 1.2: Schematische Darstellung der Energieniveaus in atomarem Wasserstoff. Aufgetragen sind die Strukturen der jeweiligen Niveaus mit dem Bohrschen-Atommodell (Bohr), der Feinstruktur (Dirac) sowie der Lamb-Verschiebung (QED) und der Hyperfeinstruktur (HFS). Die Energieskala ist nicht maßstabsgetreu.

$$A = \frac{hcR_\infty \alpha^2 Z^3}{n^3} g_I \frac{m_e}{m_K}. \quad (1.18)$$

Hierbei ist  $R_\infty$  die Rydbergkonstante und  $g_I$  der g-Faktor des Kerns. Bei Wasserstoff führt die Hyperfeinaufspaltung des Grundzustandes zur 21 cm-Linie, die für die Astronomie eine wichtige Rolle spielt und zuerst 1951 beobachtet wurde [31]. Da die Hyperfeinkonstante mit  $Z^3$  skaliert, liegt die Übergangsenergie der Hyperfeinaufspaltung bei wasserstoffähnlichen Ionen für  $Z \geq 60$  im optischen Bereich.

## 1.2 Mehrelektronensysteme

Bei Atomen mit zwei oder mehreren Elektronen kann aufgrund der Elektron-Elektron-Wechselwirkung keine analytische Lösung der Wellengleichung mehr gefunden werden, so daß

auf Näherungsmethoden zurückgegriffen werden muß. Der folgende Abschnitt gibt einen kurzen Überblick über die aktuell gebräuchlichen Methoden.

### 1.2.1 Methoden nach Hartree und Hartree-Fock

Eine der ersten Variationsmethoden ist die Hartree- bzw. Hartree-Fock-Methode [32, 33]. Um die Schrödingergleichung

$$\left( -\frac{\hbar}{2\mu} \sum_{i=1}^n \Delta_i - e^2 \left( \sum_{i=1}^n \frac{Z}{r_i} - \sum_{i \leq j} \frac{1}{r_{ij}} \right) \right) \Psi(r_1, \dots, r_n) = E \Psi(r_1, \dots, r_n) \quad (1.19)$$

mit  $r_{ij} = |r_i - r_j|$  zu lösen, wird das Mehrelektronenproblem auf ein Eielektronenproblem mit einem modifizierten Potential zurückgeführt. Die Wechselwirkung zwischen einem Elektron  $i$  und den übrigen  $n - 1$  Elektronen sowie dem Atomkern wird durch die Zentralfeldnäherung

$$\frac{Ze^2}{r_i} + \sum_{i \neq j} \frac{e^2}{r_{ij}} \quad (1.20)$$

beschrieben, was anschaulich bedeutet, daß man die Wechselwirkung der Elektronen untereinander durch die Summe der statischen Felder der übrigen Elektronen annähert. Somit erhält man den Hamiltonoperator

$$\hat{H} = \frac{\hbar}{2\mu} \sum_i \Delta_i - \frac{Ze^2}{r_i} + \sum_{i \neq j} \frac{e^2}{r_{ij}}. \quad (1.21)$$

Als Näherungsansatz für die Mehrelektronen-Wellenfunktion  $\Psi$  wird ein Produktansatz der entsprechenden Einzelelektronenfunktionen  $\varphi_n$  genommen. Der einfachste Ansatz mit

$$\Psi(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \dots, \mathbf{x}_n) = \varphi_1(\mathbf{x}_1) \varphi_2(\mathbf{x}_2) \cdots \varphi_n(\mathbf{x}_n) \quad (1.22)$$

führt zur Hartree-Methode. Bei der Hartree-Fock-Methode wird das Pauliprinzip durch die Einführung einer antisymmetrischen Wellenfunktion berücksichtigt. Die Wellenfunktion läßt sich dabei kompakt durch die Slaterdeterminante

$$\Psi(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \dots, \mathbf{x}_n) = \frac{1}{\sqrt{n!}} \begin{vmatrix} \varphi_1(\mathbf{x}_1) & \varphi_2(\mathbf{x}_1) & \cdots & \varphi_n(\mathbf{x}_1) \\ \varphi_1(\mathbf{x}_2) & \varphi_2(\mathbf{x}_2) & \cdots & \varphi_n(\mathbf{x}_2) \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \varphi_1(\mathbf{x}_n) & \varphi_2(\mathbf{x}_n) & \cdots & \varphi_n(\mathbf{x}_n) \end{vmatrix} \quad (1.23)$$

ausdrücken.

Ausgehend vom Ritzschen Variationsprinzip wird die Gesamtenergie des Mehrteilchenzustands iterativ minimiert. Trotz der einfachen Herangehensweise erreicht diese Methode bei der Bestimmung der Energieniveaus in Systemen mit niedrigem  $Z$  eine Genauigkeit von typischerweise 1%.

### 1.2.2 Multikonfigurations-Dirac-Fock-Methode

Um relativistische Effekte zu berücksichtigen, kann man statt von der Schrödingergleichung von der Diracgleichung ausgehen. Analog zur Hartree-Fock Methode wird von einem antisymmetrischen Produkt aus Einzelwellenfunktionen der Diracgleichung ausgegangen. Für höhere Genauigkeiten ist es jedoch nötig, auch die elektronischen Wechselwirkungen mit nicht besetzten Zuständen einzuschließen. Damit wird implizit der Tatsache Rechnung getragen, daß die ursprünglich angesetzten Basisfunktionen der Einzelelektronen nicht mehr korrekt sind. Dies kann durch eine lineare Überlagerung von Slaterdeterminanten oder Konfigurationszustandsfunktionen (CSF) erreicht werden, die dann die Mehrelektron-Atomzustandsfunktion (ASF)

$$\overbrace{\Phi_{PJM}}^{ASF} = \sum_{k=1}^N c_k \overbrace{\Psi_{k,PJM}}^{CSF} \quad (1.24)$$

bilden. Die Konfigurationen müssen dabei dieselben Quantenzahlen für den Gesamtdrehimpuls  $J$ , Parität  $P$  sowie dieselbe magnetische Quantenzahl  $m$  aufweisen. Die Mischungskoeffizienten  $c_k$  können mit einem gegebenen Satz CSF durch Diagonalisieren des Hamiltonoperators berechnet werden. Sie sind die Lösungen der Eigenwertgleichung

$$\sum_{k=1}^N \left( \langle \Psi_{k',PJM} | \hat{H} | \Psi_{k,PJM} \rangle - E_{ASF} \delta_{kk'} \right) c_k = 0. \quad (1.25)$$

Dieser Ansatz führt zu der Konfigurationswechselwirkungsmethode (CI), wenn man die Wellenfunktionen unverändert läßt. Dagegen werden bei der Multikonfigurations-Dirac-Fock-Methode (MCDF) zusätzlich die Wellenfunktionen variiert. Nach Vorgabe der Startwellenfunktionen liefert die CI die Startwerte für die Mischkoeffizienten sowie für das Wechselwirkungspotential. Danach wird die Wechselwirkung der Elektronen untereinander berechnet und entsprechend neue Wellenfunktionen bestimmt. Dieser Rechenzyklus wird so lange wiederholt, bis die Wellenfunktionen und deren Energieeigenwerte konvergieren. Die relativistische Korrektur der bisher angenommenen instantanen Wechselwirkungen für ein Elektronenpaar  $i, j$  untereinander geschieht in niedrigster Ordnung durch den sogenannten Breit-Operator

$$\hat{B}_{ij} = -\frac{1}{2r_{i,j}} \left( \alpha_i \cdot \alpha_j + \frac{(\alpha_i \cdot r_{i,j})(\alpha_j \cdot r_{i,j})}{r_{i,j}^2} \right). \quad (1.26)$$

Dieser wird entweder direkt zum Dirac-Coulomb-Operator hinzugefügt oder mittels Störungsrechnung berücksichtigt. Um mit dieser Methode gebundene Zustände in Atomen oder Ionen numerisch zu lösen, wurden die ersten Programme von Desclaux [34] und Grant [35] veröffentlicht.

### 1.2.3 Relativistische Viel-Körper-Störungstheorie

Bei der Relativistischen Viel-Körper-Störungstheorie (engl.: relativistic many-body perturbation theory, kurz RMBPT) wird die Wechselwirkung zwischen den Elektronen als eine Störung der Hartree-Fock-Wellenfunktionen behandelt. Die Anwendung der RMBPT ergibt sich somit als eine direkte Anwendung der einfachen Störungstheorie. In der Regel werden die Korrekturen der Energiewerte durch Störungsrechnungen zweiter Ordnung bestimmt, was als RMBPT(2) bezeichnet wird. Dies führt meist zu einer Verbesserung der Genauigkeit im Vergleich zu den Ergebnissen der Hartree-Fock-Methode. Im Prinzip könnten auch höhere Ordnungen der Störungsrechnungen durchgeführt werden, dies bringt aber erfahrungsgemäß keinen weiteren Gewinn in Genauigkeit. Die relativistische Version der MBPT, ausgehend von der Dirac-Gleichung, wird mit RMBPT abgekürzt.

### 1.2.4 Quantenelektrodynamische Viel-Körper-Störungstheorie

Ein Ansatz, sowohl Vielkörperbeiträge als auch quantenelektrodynamische Beiträge systematisch zu berücksichtigen, besteht darin, die Elektron-Elektron-Wechselwirkung quantenfeldtheoretisch durch Austausch virtueller Photonen zu behandeln (siehe Abschnitt 1.1.4). Der Austausch eines virtuellen Photons entspricht dem Coulomb-Breit-Operator zuzüglich der Retardierungsbeiträge höherer Ordnung. Die Genauigkeit dieser Methode wird durch die Berücksichtigung von Diagrammen, die den Austausch von zwei oder mehr Photonen beschreiben, weiter erhöht. Die Korrektur der Zweiphotonenbeiträge ist allerdings nicht gleich der störungstheoretischen Behandlung der Coulomb-Breit-Wechselwirkung in zweiter Ordnung. In einer streng feldtheoretischen Behandlung treten Retardierungskorrekturen auf, die von der Frequenz der ausgetauschten virtuellen Photonen abhängen. Beim Austausch zweier Photonen treten zusätzlich Dreikörper-Wechselwirkungen auf. Bei einer effizienteren numerischen Herangehensweise wird, ähnlich wie bei der RMBPT-Methode, das Elektron-Wechselwirkungspotential durch eine Zentralfeldnäherung  $V_c$ , beschrieben und im Hamiltonian nullter Ordnung berücksichtigt. Die Differenz zwischen dem Potential  $V_c$  und der quantenfeldtheoretischen Photonenaustauschwechselwirkung wird störungstheoretisch

berechnet. Diese Modifizierung ist besonders bei niedrigem  $Z$  notwendig, um eine bessere Übereinstimmung mit experimentellen Messungen zu erhalten.

#### 1.2.5 Kernbeiträge

Insbesondere bei schweren Atomen führt die endliche Ausdehnung des Kerns zu einer Veränderung des Potentials, die damit die Energieniveaus von der Größe des Kerns abhängig macht. Verwendet man im Hamiltonoperator statt des Coulombfelds eines punktförmigen Kernes ein Feld, das durch eine ausgedehnte Ladungsverteilung erzeugt wird, so wird dieser Effekt damit berücksichtigt. Zur Beschreibung der Ladungsverteilung wird oft eine homogen geladene Kugel oder eine Ladungsverteilung gemäß der Fermiverteilung

$$\rho_{Kern}(r) = \frac{\rho_0}{1 + e^{(r-\bar{c})/(t \ln 3)}} \quad (1.27)$$

mit den Parametern  $\bar{c}$  und  $a$  angenommen [36]. Hierbei ist  $\bar{c}$  der Radius, bei dem die Ladungsverteilung auf die Hälfte ihres Maximums abgefallen ist,  $t$  beschreibt die Dicke der Hautschicht.

## 1.3 Elektromagnetische Übergänge

Betrachtet man Übergänge von einem höherenergetischen Anfangszustand  $a$  zu einem energetisch niedrigeren Endzustand  $e$  in einem Atom, so impliziert man eine zeitliche Entwicklung der beteiligten Zustände. Da jedoch sowohl der Anfangs- als auch der Endzustand Eigenfunktionen mit den Energiewerten  $E_a$  und  $E_e$  sind und das Kernpotential als zeitlich konstant angenommen wird, ergibt sich von der Quantenmechanik her kein Grund, warum ein Eigenzustand in einen anderen übergehen sollte. Bei der Wechselwirkung mit einem äußeren Strahlungsfeld sind jedoch die Eigenfunktionen des neuen Hamiltonoperators, der die Wechselwirkung mit einschließt, in der Regel nicht mehr Eigenfunktionen des ursprünglichen Operators, so daß jetzt Übergänge möglich sind. Häufig wird eine solche Wechselwirkung semiklassisch, d.h. Atome werden quantenmechanisch, elektromagnetische Felder dagegen klassisch behandelt, um stimulierte Absorption sowie Emission zu behandeln. Für die spontane Emission ist dagegen eine Quantisierung des Strahlungsfeldes nötig. In diesem Rahmen läßt sich die Wechselwirkung des Atoms mit dem Vakuumfeld beschreiben, die zum spontanen Übergang von einem angeregten Zustand in einen tieferliegenden Zustand im Atom führt.

In der Coulombbeziehung läßt sich der Hamiltonoperator eines Atoms in einem äußeren quellfreien Feld mit Vektorpotential  $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{A}(t) \exp(i\mathbf{k}\mathbf{r})$  schreiben als

$$\hat{H} = \hat{H}_{Atom} + i\hbar \frac{e}{mc} \mathbf{A} \nabla + \frac{e^2 A^2}{2mc^2}. \quad (1.28)$$

Die Beiträge durch das äußere Feld lassen sich als Störung des ursprünglichen Hamiltonoperators  $\hat{H}_{Atom}$  betrachten, wobei der zweite Term Einphotonübergängen und der dritte Term Zweiphotonübergängen entspricht. Das elektromagnetische Feld läßt sich in quantisierter Form schreiben als [37]:

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{\alpha} c \sqrt{\frac{\hbar}{2\omega}} \left[ a_{\mathbf{k},\alpha}(0) \boldsymbol{\epsilon}^{(\alpha)} e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}-\omega t)} + a_{\mathbf{k},\alpha}^{\dagger}(0) \boldsymbol{\epsilon}^{(\alpha)} e^{-i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}-\omega t)} \right]. \quad (1.29)$$

Hierbei ist  $V$  das Normalisierungsvolumen, und  $\mathbf{k}$  der Wellenvektor, der die Propagationsrichtung der elektromagnetischen Welle angibt und senkrecht auf dem Polarisationsvektor  $\boldsymbol{\epsilon}^{(\alpha)}$  steht ( $\mathbf{k} \perp \boldsymbol{\epsilon}$ ). Die Summation erfolgt über alle Wellenvektoren und Polarisationsfreiheitsgrade. Im Falle von linearer Polarisation nimmt  $\alpha$  die Werte  $\alpha = 1, 2$  an. Der Operator  $a_{\mathbf{k},\alpha}^{\dagger}$  erzeugt bei Anwendung auf einen allgemeinen Photonenzustand  $|n_{\mathbf{k}}\rangle$  ein Photon im Zustand  $(\mathbf{k}, \alpha)$ , während  $a_{\mathbf{k},\alpha}$  entsprechend ein Photon vernichtet. Die Anteile des Vektorpotentials, die die Absorption sowie Emission eines Photons beschreiben, haben die Form

$$\mathbf{A}^{Abs} = \boldsymbol{\epsilon}^{(\alpha)} \sqrt{\frac{n_{\mathbf{k},\alpha} \hbar}{2V\omega}} c e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}-\omega t)} \text{ sowie } \mathbf{A}^{Emis} = \boldsymbol{\epsilon}^{(\alpha)} \sqrt{\frac{[n_{\mathbf{k},\alpha} + 1] \hbar}{2V\omega}} c e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}-\omega t)}. \quad (1.30)$$

Mit Hilfe der zeitabhängigen Störungstheorie ergeben sich daraus die Übergangsraten  $W_{ea}^{Abs}$  und  $W_{ae}^{Emis}$

$$W_{ea}^{Abs} = \frac{4\pi^2}{m^2} e^2 \frac{n_{\mathbf{k},\alpha} \hbar}{V \omega_{ae}} |M_{ae}|^2 \text{ und } W_{ae}^{Emis} = \frac{4\pi^2}{m^2} e^2 \frac{(n_{\mathbf{k},\alpha} + 1) \hbar}{V \omega_{ae}} |M_{ae}|^2 \quad (1.31)$$

mit dem Matrixelement  $M_{ae} = \langle \Psi_a | e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \boldsymbol{\epsilon}^{(\alpha)} \times \nabla | \Psi_e \rangle$ . Die spontane Emission  $W_{ae}^{Sp}$  bei Abwesenheit eines externen Feldes beschreibt man wie  $W_{ae}^{Emis}$ , wobei die Anzahl der Photonen  $n_{\mathbf{k},\alpha}$  im äußeren Feld Null ist. Bezieht man die Zustandsdichte der Endzustände des ausgesandten Photons mit ein

$$\rho_e(\omega) d\Omega = \frac{V}{(2\pi)^3} \frac{\omega^2}{c^3} d\Omega, \quad (1.32)$$

ergibt sich für die Abstrahlrate eines Photons in den Raumwinkel  $d\Omega$

$$W_{ae}^{Sp} = \frac{\hbar}{2\pi m^2 c^3} \omega_{ae} |M_{ae}|^2 d\Omega. \quad (1.33)$$

### 1.3. Elektromagnetische Übergänge

---

Im Fall der Laseranregung kann man im klassischen Sinn den Photonenfluß  $\Phi = c(n/V)$  beschreiben als Anzahl  $n$  der Photonen, die das Volumen  $V$  mit der Lichtgeschwindigkeit  $c$  durchfahren. Die Übergangsrate der Absorption lässt sich damit (1.31) als

$$W_{ea}^{Abs} = \frac{4\pi^2}{m^2 c} e^2 \frac{\Phi \hbar \omega_{ae}}{\omega_{ae}^2} |M_{ae}|^2 \quad (1.34)$$

ausdrücken. Die Absorptionsrate  $W_{ea}^{Abs}$  ist somit proportional zur spektralen Intensität  $I_\omega = \Phi \hbar \omega$ . Teilt man die Absorptionsrate durch den Photonenfluß, erhält man den Wirkungsquerschnitt ( $\sigma_{ea}$ ) für stimulierte Absorption

$$\sigma_{ea} = \frac{W_{ea}}{\Phi}. \quad (1.35)$$

#### 1.3.1 Dipolübergänge

Die Berechnung von  $M_{ae}$  kann stark vereinfacht werden, indem man den exponentiellen Term

$$e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} = 1 + (i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}) + \frac{1}{2!} (i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r})^2 + \frac{1}{3!} (i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r})^3 + \dots, \quad (1.36)$$

um  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}$  entwickelt. Für wasserstoffähnliche Systeme gilt als Abschätzung

$$r \approx a_0, \lambda = 2\pi/k \approx a_0/(Z\alpha) \Rightarrow \mathbf{k}\mathbf{r} \approx Z\alpha \ll 1 \quad (1.37)$$

für kleine und mittlere  $Z$ , d.h. die Wellenlänge ist typischerweise sehr viel größer als die räumliche Ausdehnung des Atoms. Daher läßt sich der exponentielle Faktor durch 1 ersetzen. Diese Näherung bezeichnet man als elektrische Dipolnäherung, die entsprechenden Übergänge entsprechend als Dipolübergänge (E1). Mit dieser Näherung läßt sich  $M_{ae}$  durch das elektrische Dipolmoment  $\mathbf{D}_{ae} = -e\mathbf{r}$  ausdrücken:

$$M_{ae} = -\frac{m\omega_{ae}}{e\hbar} \epsilon^{(\alpha)} \cdot \mathbf{D}_{ae}. \quad (1.38)$$

Definiert man den Winkel  $\theta$  zwischen den Vektoren  $\epsilon^{(\alpha)}$  und  $\mathbf{D}_{ae}$ , so ergibt sich mit

$$\left( \epsilon^{(\alpha)} \cdot \mathbf{D}_{ae} \right)^2 = \cos^2 \theta \quad (1.39)$$

die charakteristische Dipolabstrahlung. Für unpolarisierte sowie ungerichtete Abstrahlung ergibt sich die Übergangsrate nach Integration über den gesamten Raumwinkel und unter Einschluß der beiden möglichen Polarisationsrichtungen als Übergangswahrscheinlichkeit

$$A_{ae}^{E1} = \frac{4\omega^3}{3\hbar c^3} |\mathbf{D}_{ae}|^2. \quad (1.40)$$

Die Übergangsrate ist abhängig von der dritten Potenz der Wellenlänge bzw. der Energiedifferenz des Anfangs- und Endzustands sowie vom Überlapp der entsprechenden Wellenfunktionen. Der Ausdruck

$$|\langle \Psi_f | -e\mathbf{r} | \Psi_i \rangle|^2 \quad (1.41)$$

wird als Linienstärke  $S_{ae}$  bezeichnet. Werden statt der Dipolnäherung auch die höheren Multipole berücksichtigt, ergeben sich zusätzlich zu den E1-Übergängen weitere Beiträge der Multipolstrahlung. Der nächste Beitrag ist der magnetische Dipolübergang (M1). Dessen Wechselwirkungsoperator wird bei einem Mehrelektronatom in der  $LS$ -Kopplung durch

$$\hat{H}_{ww}^{M1} = \frac{e\hbar}{2m_0c} (\mathbf{L} + g_s \mathbf{S}) \quad (1.42)$$

mit  $g_s \approx 2$  beschrieben. Die Linienstärke ergibt sich in der  $LS$ -Kopplung unter der Berücksichtigung, daß M1-Übergänge nur zwischen der Feinstruktur eines Terms möglich sind [38], d.h.  $L_a = L_e$  und  $S_a = S_e$  zu

$$S_{ae}^{M1} = \left( \frac{e\hbar}{2mc} \right)^2 \frac{(L + S + J + 1)(L + S - J + 1)(S + J - L)(J + L - S)}{4J}. \quad (1.43)$$

Speziell für  $Ar^{13+}$  ergibt sich für den  $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2} - {}^2P_{1/2}$ -Übergang (Tupitsyn:2005):

$$A_{ae}^{M1} = \frac{4\omega^3}{9\hbar c^3} \mu_B^2 = \frac{1}{\lambda^3} 8,99117 \times 10^9 \text{ s}^{-1} \approx 100 \text{ s}^{-1} \quad (1.44)$$

mit der Übergangswellenlänge  $\lambda$  in nm.

Zusätzlich müssen zu den Übergangsraten je nach Art des Übergangs (E1, M1 oder Übergänge höherer Polaritäten) verschiedene Auswahlregeln beachtet werden, die von den Quantenzahlen des Anfangs- und Endzustands abhängen. Zum einem gibt es strenge Regeln, die sich aus den Erhaltungsgesetzen und den Winkelanteilen der Übergangsmatrixelemente ergeben und unabhängig vom Kopplungsschema der Drehimpulse sind, während aus der  $LS$ -Kopplung zusätzliche Auswahlregeln folgen. Die Auswahlregeln sind in Tabelle (1.3.1) zusammengefaßt. Da Dipolübergänge die stärksten Übergänge sind, werden diese als erlaubte Übergänge bezeichnet. Angeregte Zustände, von denen keine Dipolübergänge erlaubt sind, können über Übergänge höherer Multipolordnungen zerfallen. Aufgrund der wesentlich geringeren Übergangswahrscheinlichkeit werden solche Zustände als metastabil bezeichnet.

### 1.3. Elektromagnetische Übergänge

Übergang	Elektrischer Dipol (E1) „erlaubt“	Magnetischer Dipol (M1) „verboten“	Elektrischer Quadrupol (E2) „verboten“
<b>Strenge Regeln</b>	$\Delta J = 0, \pm 1$ (0 ↔ 0)	$\Delta J = 0, \pm 1$ (0 ↔ 0)	$\Delta J = 0, \pm 1, \pm 2$ (0 ↔ 0) (1/2 ↔ 1/2) (0 ↔ 1)
	$\Delta M_J = 0, \pm 1$ (0 ↔ 0 wenn $\Delta J = 0$ )	$\Delta M_J = 0, \pm 1$ (0 ↔ 0 wenn $\Delta J = 0$ )	$\Delta M_J = 0, \pm 1, \pm 2$
	$\Delta P = -1$	$\Delta P = 1$	$\Delta P = 1$
<b>Bei LS-Kopplung</b>	$\Delta S = 0$  $\Delta L = \pm 1$ (0 ↔ 0)	$\Delta S = 0$  $\Delta L = 0$ $\Delta J = \pm 1$	$\Delta S = 0$  $\Delta L = 0, \pm 2$ (0 ↔ 0), (0 ↔ 1)

Tabelle 1.1: Auswahlregeln für Übergänge zwischen atomaren Zuständen.

#### 1.3.2 Zeemanaufspaltung

Die bisherigen Berechnungen zu den Energieniveaus wurden für isolierte Atome, d.h. ohne Einwirkung eines äußeren magnetischen Feldes gemacht. Nimmt man die Existenz eines äußeren Feldes an, ergibt sich als Konsequenz, daß der Hamiltonoperator nicht mehr invariant bezüglich Drehungen ist und seine Eigenzustände nicht mehr gleichzeitig Eigenzustände des Drehimpulses sind. Für homogene Felder ist zumindest der Gesamtdrehimpuls in Feldrichtung eine Konstante der Bewegung, d.h. unter Verwendung von Zylinderkoordinaten reduziert sich die Behandlung auf ein zweidimensionales Problem.

Beschreibt man ein homogenes, zeitlich konstantes Magnetfeld in z-Richtung durch das Vektorpotential

$$\vec{A}(\vec{r}) = -\frac{1}{2} \begin{pmatrix} -y \\ x \\ 0 \end{pmatrix} B_z, \quad (1.45)$$

ergibt sich mit dem Hamiltonoperator  $\hat{H}_B^e$  für ein freies Elektron im magnetischen Feld

$$\hat{H}_B^e = \frac{\hat{p}_i^2}{2m_e} + \frac{e}{2m_e} (\hat{l}_i + g_s \hat{s}_i) \vec{B} \quad (1.46)$$

Übergang		Parallel	Senkrecht
		( $\Theta = 0^\circ$ )	( $\Theta = 90^\circ$ )
E1	$\Delta M = 0$	–	$\pi$
	$\Delta M = \pm 1$	$r, l$ zirkular	$\sigma$
M1	$\Delta M = 0$	–	$\sigma$
	$\Delta M = \pm 1$	$r, l$ zirkular	$\pi$

Tabelle 1.2: Polarisationen der Dipol-Zeemankomponenten.  $\Theta$  gibt den Winkel zwischen Sichtachse und Magnetfeld an.

die Wechselwirkung eines Atoms mit dem magnetischem Feld in der  $LS$ -Kopplung in erster Ordnung zu

$$\hat{W}_B = \frac{e}{2m_e} \left( g_L \hat{L} + g_s \hat{S} \right) B = \frac{eB_z}{2m_e} \left( g_L \hat{L}_z + g_s \hat{S}_z \right). \quad (1.47)$$

Hierbei sind  $g_L$  sowie  $g_s$ , die g-Faktoren des Drehimpulses  $\vec{L}$  sowie des Elektronspins  $\vec{s}$ , über

$$\vec{\mu}_s = -g_s \mu_B \frac{\vec{s}}{\hbar} \text{ sowie } \vec{\mu}_L = g_L \mu_B \frac{\vec{L}}{\hbar}, \quad (1.48)$$

definiert, wobei  $g_L$  exakt eins ist und  $g_s$  extrem genau vermessen wurde [39] und  $2,002319\dots \approx 2$  beträgt. Im Fall, daß der Gesamtspin null ist, bleiben die Eigenzustände des ungestörten Hamiltonoperators weiterhin Eigenzustände des Operators im Magnetfeld. Allerdings ist die Entartung bezüglich der Quantenzahl  $M_L$  aufgehoben. Die Energien sind unabhängig von  $L$  jeweils um den Betrag

$$\Delta E_{M_L} = \frac{e\hbar B_z}{2m_e} M_L = \mu_B B_z M_L \quad (1.49)$$

verschoben, wobei  $\mu_B$  das Bohrsche Magneton ist. Diese Aufspaltung wird als normaler Zeemaneffekt bezeichnet. Weit häufiger ist jedoch der Gesamtelektronspin ungleich Null. In diesem Fall kann man analog zu (1.48) das magnetische Moment des Gesamtdrehimpulses definieren über

$$\vec{\mu}_J = g_J \mu_B \vec{J} / \hbar \quad (1.50)$$

### 1.3. Elektromagnetische Übergänge

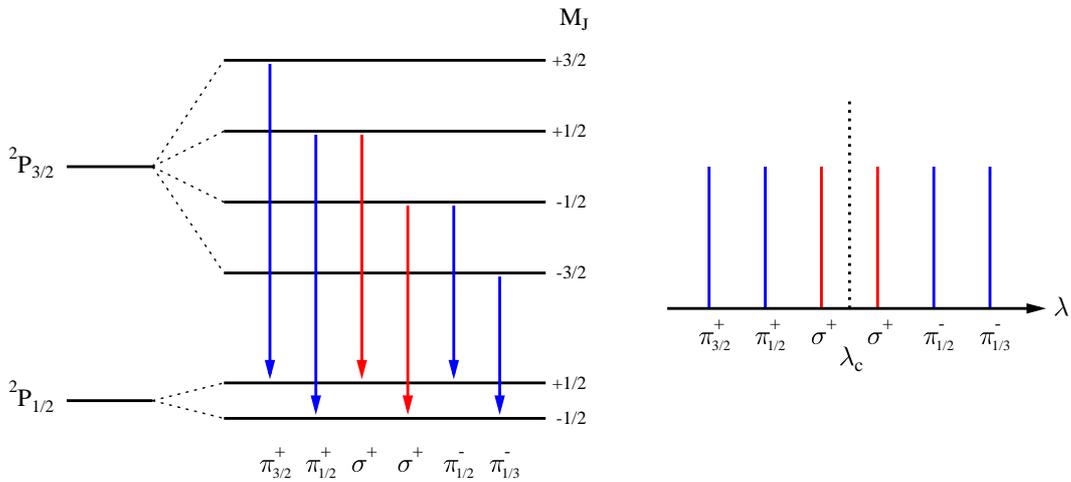


Abbildung 1.3: Anomale Zeemanaufspaltung für den  $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2} - ^2P_{1/2}$  M1-Übergang in  $Ar^{13+}$ . Links ist die Aufspaltung der einzelnen Niveaus mit den möglichen Übergängen gezeigt, und rechts die Wellenlängenverschiebungen bezüglich der Zentralwellenlänge  $\lambda_c$ .

mit dem Landéfaktor  $g_J$ . Da jedoch, im Gegensatz zu  $g_L, g_s$  ungleich eins ist, ist das magnetische Moment des Gesamtdrehimpuls  $\mu_J = (\mu_B/\hbar)(L + g_S S)$  nicht parallel zu  $J$  und somit der Landéfaktor  $g_J$  nicht nur von  $J$ , sondern auch von  $L$  und  $S$  abhängig:

$$g_J = \frac{J(J+1) + L(L+1) - S(S+1)}{2J(J+1)} + g_s \frac{J(J+1) - L(L+1) + S(S+1)}{2J(J+1)}. \quad (1.51)$$

Ein Beispiel für die anomale Zeemanaufspaltung ist für den  $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2} - ^2P_{1/2}$  M1-Übergang in  $Ar^{13+}$  in Abbildung 1.3 gezeigt.

Aufgrund der durch das Magnetfeld festgelegten Vorzugsrichtung wird die Strahlung der einzelnen Übergänge nicht mehr isotrop ausgesandt. Für Dipolübergänge mit  $\Delta M = 0$  ergibt sich die charakteristische Dipolverteilung  $I(\Theta) \propto \sin^2 \theta$ , und für Übergänge mit  $\Delta M \pm 1$  ist  $I(\Theta) \propto (1 + \cos^2 \Theta)$ , wobei  $\Theta$  den Winkel zwischen der Sichtachse und dem Magnetfeld angibt. Abbildung 1.4 zeigt die Winkelverteilung für die einzelnen Zeemankomponenten vom M1-Übergang in  $Ar^{13+}$ . Summiert man über alle einzelnen Komponenten auf, ergibt sich in der Summe wieder eine isotrope Abstrahlung. Die einzelnen Übergänge werden aufgrund ihrer Polarisation bei Abstrahlung unter  $\Theta = 90^\circ$  entweder mit  $\pi$  bei Polarisation parallel zum Magnetfeld oder mit  $\sigma$  bei senkrechter Polarisation bezeichnet. Bei E1-Übergängen sind die Komponenten mit  $\Delta M = \pm 1$   $\sigma$ -polarisiert und diejenigen mit  $\Delta M = 0$   $\pi$ -polarisiert. Für M1-Übergänge ist diese Zuordnung vertauscht (siehe Tabelle 1.3.2 und Abbildung 1.5).

Die obige Annahme eines schwachen Magnetfelds bedeutet anschaulich, daß die  $LS$ -Kopp-

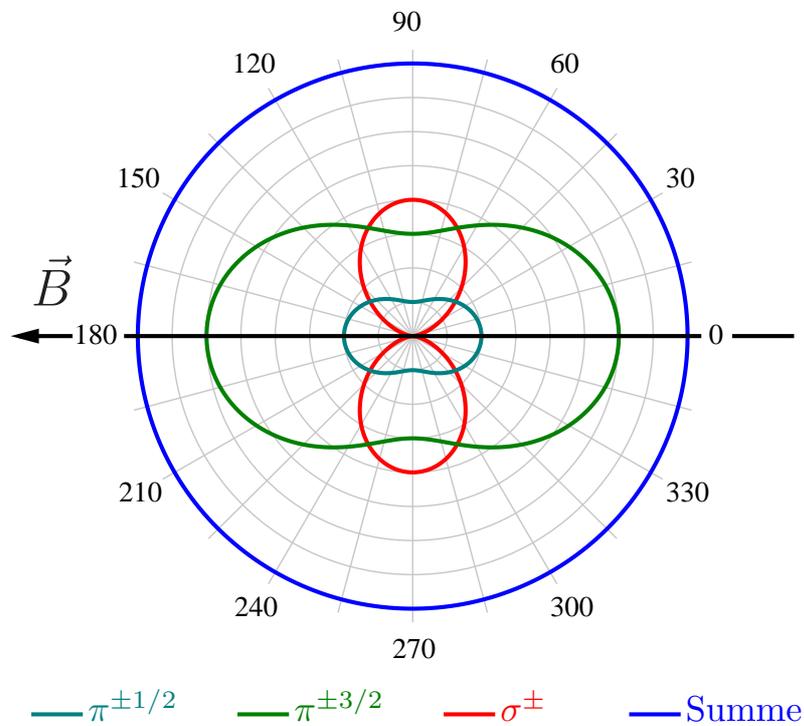


Abbildung 1.4: Emissionscharakteristik des Fluoreszenzlichtes in Polar-Darstellung für den  $M1$ -Übergang in  $Ar^{13+}$  (in willkürlichen Einheiten). Die Winkelverteilung ist für die drei Linienpaare (hellblau:  $\pi^{\pm 1/2}$ , grün:  $\pi^{\pm 3/2}$  sowie rot:  $\pi^{\pm 1/2}$ ) sowie ihre Summe (blau) angegeben. Das Magnetfeld verläuft parallel zur  $z$ -Achse.

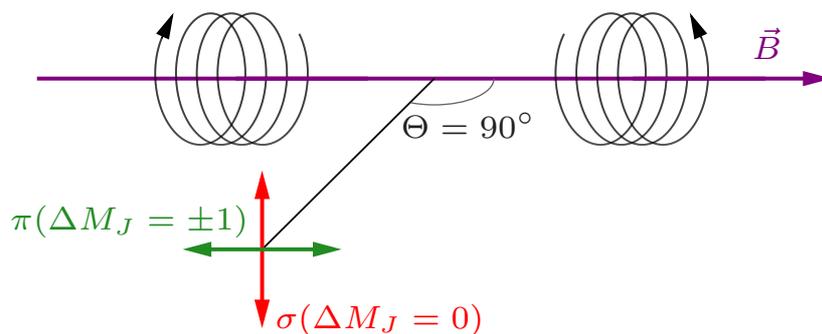


Abbildung 1.5: Die Zeemankomponenten des  $M1$ -Übergangs in  $Ar^{13+}$  erscheinen unter einem Beobachtungswinkel von  $\Theta = 90^\circ$  linear polarisiert ( $\pi$ -Komponenten parallel und  $\sigma$ -Komponenten senkrecht zum Magnetfeld). Parallel zum Magnetfeld werden nur die  $\pi$ -Komponenten in zirkularer Polarisation abgestrahlt.

lung stärker ist als die Kopplung der einzelnen Spins an das Magnetfeld, d.h. daß die Zeemanaufspaltung [40] kleiner ist als die Feinstrukturaufspaltung. Dies ist aber gerade bei hochgeladenen Ionen selbst bei den stärksten erreichbaren Magnetfeldern im Labor gewährleistet. Bei einem starken Magnetfeld wäre ansonsten die  $LS$ -Kopplung nicht mehr gegeben und die Zustände werden nach der  $z$ -Komponente des Gesamtdrehimpulses sowie Gesamtspins unterteilt. Die Energieverschiebungen ergeben sich dann direkt zu

$$\Delta E_{M_L, M_S} = \mu_B (M_L + g_S M_S). \quad (1.52)$$

Diese Aufspaltung wird als Paschen-Back-Effekt [41] bezeichnet.

### 1.3.3 Linienbreite

#### Natürliche Linienbreite

Untersucht man mit spektroskopischen Methoden Strahlungsübergänge in Atomen oder Ionen, so ist die Auflösung nicht nur durch die instrumentelle Auflösung beschränkt, auch die Übergänge selber weisen neben ihrer natürlichen Linienbreite starke Verbreiterungen ihrer Linienprofile aufgrund des Dopplereffekts, externen elektrischen und magnetischen Feldern (Stark- und Zeemaneffekt) sowie Stößen auf. In einem Zweiniveausystem mit der Übergangsrate  $A_{ae}$  aus (1.40) verringert sich die Bevölkerung des angeregten Zustands  $a$  exponentiell mit

$$n_a(t) = n_a(0)e^{-A_{ae}t} = n_a(0)e^{-t/\tau} \text{ mit } \tau = 1/A_{ae} \quad (1.53)$$

Der Photonenfluß  $I$  ist proportional zu  $n_a(0)$  und nimmt daher ebenfalls exponentiell mit der Zerfallskonstanten  $\Gamma = A_{ae} = 1/\tau$  ab. Das frequenzabhängige Linienprofil ergibt sich aus der Fouriertransformierten des Photonenflusses zu

$$I(\omega) = \frac{\Gamma}{2\pi} \frac{1}{(\omega - \omega_0)^2 + (\Gamma/2)^2} \quad (1.54)$$

und wird als Lorentzprofil mit der Breite  $\Gamma$  bezeichnet. Gibt es allerdings mehrere Zerfallskanäle, beinhaltet  $\Gamma$  die Summe aller Zerfallskanäle vom angeregten Zustand  $a$ . Gibt es vom Endzustand  $e$  weitere Zerfälle zu tieferen Zuständen, ist  $\Gamma$  gegeben durch die Summe aller Zerfallskanäle von  $a$  und  $e$ :

$$\Gamma = \Gamma_a + \Gamma_e = \sum_{i \leq a} A_{ai} + \sum_{j \leq b} A_{bj}. \quad (1.55)$$

### Dopplerverbreiterung

Die thermische Bewegung der Atome bzw. Ionen mit der Geschwindigkeit  $v$  relativ zum Beobachter sorgt dafür, daß die Spektrallinie mit der Frequenz  $\omega_0$  aufgrund der Dopplerverschiebung

$$\omega = \omega_0 \pm \frac{v}{c} \text{ für } v \ll c \quad (1.56)$$

zusätzlich verbreitert wird. Unter der Annahme, daß die Geschwindigkeit der Ionen einer Maxwellverteilung entspricht, ergibt sich für die Anzahl der Ionen der Masse  $m$  und Temperatur  $T$  im Geschwindigkeitsintervall zwischen  $v$  und  $v + \delta v$  die Verteilung

$$N(v)dv = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \frac{1}{\sqrt{2k_B T/m}} \exp \left[ - \left( \frac{v}{\sqrt{2k_B T/m}} \right)^2 \right] dv. \quad (1.57)$$

Die Größe  $k_B$  ist die Boltzmannkonstante. Dies führt zur Dopplerverbreiterung

$$I(\omega) = \frac{1}{\sqrt{\pi} \Delta\omega_D} \exp \left[ - \left( \frac{\omega - \omega_0}{\Delta\omega_D} \right)^2 \right] \quad (1.58)$$

mit der Dopplerbreite (FWHM)

$$\Delta\omega_D = \frac{2\omega_0}{c} \left( 2 \ln 2 \frac{k_B T}{m} \right)^{1/2} \approx 7,7 \cdot 10^{-5} \omega_0 \sqrt{T[eV]/m[a.u.]} \quad (1.59)$$

Für den M1-Übergang in  $\text{Ar}^{13+}$  ergibt sich bei  $\lambda_0 = 441 \text{ nm}$  mit der Masse  $m_{\text{Ar}} = 40 \text{ a.u.}$  bei einer Temperatur  $T = 300 \text{ eV}$  eine Dopplerverbreiterung von  $\Delta\lambda = 0,1 \text{ nm}$ .

## Kapitel 2

# Laserspektroskopie an der Heidelberger EBIT

### 2.1 Bisherige laserspektroskopische Messungen an hochgeladenen Ionen

Die ersten der wenigen existierenden laserspektroskopischen Untersuchungen an hochgeladenen Ionen wurden an wasserstoff- und heliumähnlichen Ionen ausgehend von metastabilen Zuständen durchgeführt. Das Prinzip der Messungen beruht auf der resonanten Anregung aus einem metastabilen Zustand zu einem mit einer wesentlich kürzeren Lebensdauer. Der Nachweis der Anregung geschieht mittels Detektion des Röntgenphotons beim Übergang in den Grundzustand. Um die Ionen im angeregten Zustand zu erzeugen, wird ein beschleunigter niedriggeladener Ionenstrahl durch eine Abstreifolie geschickt. Da zum Erreichen eines großen Wirkungsquerschnitts für die Anregung und Ionisation eines Elektrons in der  $n$ -Schale die Ionengeschwindigkeit in der Größenordnung der Bohrschen Geschwindigkeit  $Z\alpha c/n$  liegen muß, müssen die Ionen auf relativistische Geschwindigkeiten beschleunigt werden. Dabei wird die Beschleunigung so gewählt, daß gleich der richtige Ladungszustand mit einem Anteil im gewünschten metastabilen Level erzeugt wird. Alternativ erzeugt man nackte Atomkerne und läßt sie durch eine zweite Folie laufen, in der durch Elektroneneinfang der gewünschte Zustand bevölkert wird.

Bei wasserstoffähnlichen Ionen bieten sich der  $2S_{1/2} - 2P_{1/2}$ -Übergang (Lambverschiebung) sowie der  $2S_{1/2} - 2P_{3/2}$ -Übergang (Feinstruktur - Lambverschiebung) an (siehe Abbildung 2.1), die über einen weiten Bereich von  $Z$  zwischen  $10 \mu\text{m}$  und  $200 \text{ nm}$  liegen und somit im Prinzip für laserspektroskopische Messungen zugänglich sind. Allerdings sorgen die kurzen Lebensdauern der  $2P$ -Niveaus für eine große natürliche Linienbreite. Für Präzisionsmessungen muß daher der Schwerpunkt der Resonanz genau bestimmt werden.

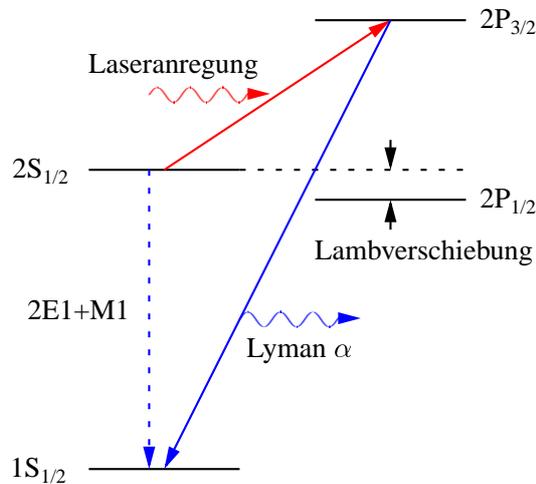


Abbildung 2.1: Energieschema von wasserstoffähnlichen Ionen mit den für die Untersuchung der Lambverschiebung relevanten Übergängen.

Der Scan des  $2S_{1/2} - 2P_{3/2}$ -Übergangs ist für die Laserspektroskopie geeigneter, da die notwendige relative Frequenzänderung des Lasers kleiner ist und üblicherweise 1-2% der Wellenlänge beträgt. Der Nachweis der Anregung erfolgt mittels Detektion der Röntgenstrahlung, die beim Übergang in den Grundzustand  $1S_{1/2}$  abgestrahlt wird. Die Differenz zur berechneten Feinstrukturaufspaltung ( $2P_{1/2} - 2P_{3/2}$ ) liefert die Lamb-Verschiebung. Allerdings sorgt die kurze Lebensdauer der  $2P$ -Niveaus für eine große natürliche Linienbreite des Übergangs. Die Zerfallsrate für den  $2P - 1S$ -Übergang lässt sich für verschiedene  $Z$  zu  $A \approx 6,3 \cdot 10^8 Z^4 s^{-1}$  angeben [42]. Die Lamb-Verschiebung skaliert allerdings nicht ganz mit  $Z^4$ , so daß sich das Verhältnis QED-Beitrag zu natürlicher Linienbreite von 10,6 bei Wasserstoff zu 4 bei  $Z = 15$  verringert [43].

### Schnelle Ionenstrahlen

Das erste laserspektroskopische Experiment dieser Art wurde von Kugel et al. [44] durchgeführt. Niedrig geladenes Fluor ( $^{19}\text{F}$ ) wurde mit einem Van de Graaff-Beschleuniger auf 64 MeV beschleunigt und durch eine Abstreifolie vollständig ionisiert. Durch Elektroneneinfang in einer zweiten Folie wurden  $\text{F}^{8+}$ -Ionen erzeugt, wobei sich ungefähr 1% der Elektronen im metastabilen  $2S_{1/2}$ -Zustand mit einer mittleren Lebensdauer von  $0,23 \mu\text{s}$  befanden. Der Ionenstrahl wurde von einem Laserstrahl gekreuzt, der die Elektronen zum  $2P_{3/2}$ -Niveau anregt. Dieser Zustand zerfällt rasch in den Grundzustand unter Aussendung eines Photons mit 826 eV, das mit einem Proportionalzähler registriert wurde. Um die Laserwellenlänge über die Resonanz zu fahren, wurde die Dopplerverschiebung aufgrund der hohen Ionengeschwindigkeit ausgenutzt, indem die für die Ionen sichtbare Wellenlänge  $\omega'$

## 2.1. Bisherige laserspektroskopische Messungen an hochgeladenen Ionen

---

durch Verändern des Kreuzungswinkels  $\theta$  zwischen dem Laser der Frequenz  $\omega_l$  und dem Ionenstrahl nach der Gleichung

$$\omega' = \omega\gamma(1 - \beta \cos \theta) \quad (2.1)$$

variiert wurde, wobei  $\beta = v/c$  und  $\gamma = (1 - \beta^2)^{1/2}$  ist. Die erreichte Genauigkeit entspricht 1% der Lambverschiebung von 13,8 meV. Weitere laserspektroskopische Messungen dieser Art zur Bestimmung der Lambverschiebung wurden an Phosphor [45, 46], Schwefel [47, 48] und Chlor [49] durchgeführt. Zur Berechnung der eigentlichen Übergangsfrequenz  $\omega'$  muß allerdings die Geschwindigkeit der Ionen genau bekannt sein, d.h. die Genauigkeit solcher Messungen ist durch den Fehler der Geschwindigkeitsmessung begrenzt. Neben der Ungenauigkeit der Ionengeschwindigkeit sorgt auch die Divergenz des Ionenstrahls für einen weiteren systematischen Fehler, da eine transversale Dopplerverbreiterung verursacht wird. Durch Einstellen eines kollinearen Überlapps zwischen Ionen- und Laserstrahl läßt sich neben einer Verlängerung der Wechselwirkungszeit diese Verbreiterung durch die kinematische Kompression [50] verringern. Zusätzlich ergeben sich die Vorteile einer geringeren Winkelabhängigkeit der Dopplerverschiebung. Allerdings ist damit die Abhängigkeit der gemessenen Übergangsfrequenz von der Ionengeschwindigkeit maximal. Zudem besteht das Problem, daß die Durchschnittsgeschwindigkeit der metastabilen Ionen der Geschwindigkeit aller Ionen entspricht. Die experimentelle Lösung besteht in der Anregung der Resonanzen mit der Frequenz  $\omega'$  im Ruhesystem des Ions durch zwei gegenläufige Laserstrahlen mit den Laborfrequenzen  $\omega_1$  und  $\omega_2$ . Befindet sich der erste Strahl in Resonanz mit dem Übergang, so ergibt sich die Beziehung

$$\omega' = \omega_1\gamma_1(1 - \beta_1 \cos \theta_1), \quad (2.2)$$

und entsprechend für den zweiten Laserstrahl in Resonanz

$$\omega' = \omega_2\gamma_2(1 + \beta_2 \cos \theta_2), \quad (2.3)$$

wobei  $\theta_1$  und  $\theta_2$  die Winkel zwischen den Laserstrahlen und des Ionenstrahls sind. Ist einer der Laser durchstimmbare, lassen sich beide Gleichungen mit  $\beta_1 = \beta_2$  sowie  $\theta_1 = \theta_2 = 0$  erfüllen, und man erhält  $\omega' = (\omega_1\omega_2)^{1/2}$ . Die Übergangsfrequenz läßt sich somit bestimmen, ohne daß die Geschwindigkeit des Ionenstrahls bekannt sein muß. Wenn die Laserfrequenzen nicht durchstimmbare sind (wie z.B. bei einem CO<sub>2</sub>-Laser), muß die Ionengeschwindigkeit variiert werden, um beide Resonanzbedingungen zu erfüllen. Man kann jedoch die Laserfrequenzen  $\omega_1$  und  $\omega_2$  so auswählen, daß die Ionengeschwindigkeit hierfür kaum geändert werden muß, wodurch die Abhängigkeit der gemessenen Frequenz von der Dopplerverschiebung stark reduziert wird [51]. Setzt man  $\theta_1 = \theta_2$ , erhält man

$$\omega' = \frac{\gamma_1 \gamma_2 (\beta_1 + \beta_2)}{\frac{\gamma_2 \beta_2}{\omega_1} + \frac{\gamma_1 \beta_1}{\omega_2}} \quad (2.4)$$

Für die Bestimmung der Übergangsfrequenz sind zwei Messungen notwendig, wobei die Strahlenergie während der einzelnen Messungen sehr stabil sein muß. Ein Beispiel für den Zugewinn an Präzision ist die Vermessung des  $1s2s^1S_0 - 1s2p^3P_1$ -Übergangs in heliumartigem Silizium [52] bei der Präzision um einen Faktor 30 im Vergleich zu der vorhergehenden Messung mit nur einem Laserstrahl gesteigert werden konnte [53]. Allerdings verbleiben weiterhin Meßunsicherheiten durch die hohen Geschwindigkeiten der Ionen, die letztendlich nur gelöst werden können, wenn man Ionen untersucht, die im Laborsystem ruhen.

Ein weiterer Übergang in wasserstoffartigen Ionen, die mit laserspektroskopischen Ionen untersucht wurde, ist die Hyperfeinaufspaltung des Grundzustands. Für hohe  $Z$  um 80 liegen diese Übergänge im optischen Bereich. An der GSI in Darmstadt wurden zwei Messungen durchgeführt, in denen die Hyperfeinaufspaltung über direkte Laseranregung und Detektion der laserinduzierten Fluoreszenz bestimmt wurde. Die erste Messung wurde an wasserstoffähnlichen Bismut ( $^{209}\text{Bi}^{82+}$ ) [54] am Speicherring ESR für schwere Ionen [55] durchgeführt. Zur Erzeugung hochgeladenen Bismuts wurde ein niedriggeladener Ionenstrahl mit dem Schwerionensynchrotron SIS auf 200 MeV/Nukleon beschleunigt und durch eine Abstreifolie geschickt. Dabei erzeugte wasserstoffähnliche Ionen wurden in den ESR-Speicherring gespeichert. Die anfängliche Geschwindigkeitsverbreiterung wurde durch Elektronenkühlung [56] reduziert. Die mittlere Lebensdauer der Ionen betrug mehr als eine Stunde, wobei insgesamt  $1,8 \cdot 10^8$  Ionen mit einer Geschwindigkeit  $\beta = 0,58666(11)$  gespeichert wurden. Zur Ermittlung der Übergangswellenlänge zwischen den  $F = 4$  und  $F = 5$  Hyperfeinniveaus wurde ein Farbstofflaser durchgestimmt und die erfolgte Anregung bei  $\lambda = 243,87(4)$  nm durch das Zählen der Fluoreszenzphotonen mit Photomultipliern registriert. Durch die kolineare Einkopplung des Lasers in den Speicherring ergab sich eine Dopplerverschiebung des Lasers zu kürzeren Wellenlängen im Ruhesystem der Ionen. Daher war die Genauigkeit der Wellenlängenbestimmung limitiert durch die der Geschwindigkeitsbestimmung. Eine weitere Messung wurde an Blei ( $^{207}\text{Pb}^{81+}$ ) [57] durchgeführt. Das Licht eines Nd:YAG-Lasers wurde auf 532,222(5) nm frequenzverdoppelt und koaxial in den Speicherring eingekoppelt. Die Frequenzabstimmung im Ruhesystem der Ionen erfolgte mit Hilfe der die Dopplerverschiebung, die den im Infraroten liegenden Übergang in Resonanz mit der Laserwellenlänge brachte. Die Genauigkeit der bestimmten Wellenlänge von  $\lambda = 1019,7(2)$  nm ist wiederum durch die Unschärfe in der Geschwindigkeit der Ionen begrenzt.

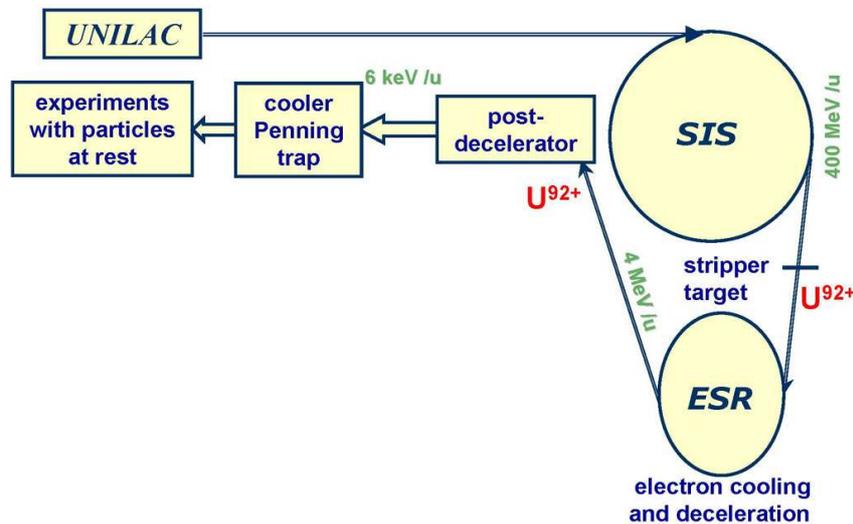


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der HITRAP-Anlage an der GSI in Darmstadt.

### Speicherringe

Um hohe Genauigkeiten zu erreichen, ist es daher unumgänglich, laserspektroskopische Messungen an im Laborsystem ruhenden Ionen durchzuführen. Die erste Möglichkeit besteht aus der Extraktion und Abbremsen der Ionen, wie z.B. in der HITRAP-Anlage (siehe Abbildung 2.2) geplant [58]. Nachdem Ionen produziert und im ESR gespeichert sind, sollen sie von  $400 \text{ MeV/u}$  auf  $4 \text{ MeV/u}$  und anschließend in einer linearen Abbremsereinheit auf  $6 \text{ keV/u}$  abgebremst werden. Danach sollen sie in einer Penningfalle gesammelt werden, die sie auf  $4 \text{ K}$  abkühlt und an weitere Experimente verteilt. Für Details dieser Falle sei z.B. auf [59] verwiesen. HITRAP befindet sich zur Zeit in der Kommissionierungsphase.

### Elektronenstrahl-Ionenfallen

Wesentlich einfacher kann es hingegen sein, hochgeladene Ionen direkt in Ruhe zu erzeugen und zu fangen, wie es in einer Elektronenstrahl-Ionenfalle (EBIT) geschieht. Dadurch entfallen zum einen die Nachteile der schnellen Ionenstrahlen, da keine Dopplerverschiebung mehr berücksichtigt werden muß, zum anderen gibt es auch keine Ionenverluste bei dem Transport zu externen Fallen. Erste Überlegungen für den Einsatz der Laserspektroskopie gab es an der Oxforder EBIT [60]. Berilliumartiges Argon sollte in der EBIT erzeugt und in den  $1s^2 2s 2p^3 P_2$  Zustand mit einer Lebensdauer von  $15 \text{ ms}$  angeregt werden. Mit einem

durchstimmbaren Laser wird der  $1s^2 2s 2p^3 P_2 - ^3 P_1$ -Übergang stimuliert und somit die Anzahl der Ionen im angeregten Zustand verringert, was durch eine geringere Fluoreszenzrate nachweisbar ist [61]. Ein zweiter Vorschlag betraf die Vermessung des  $2S_{1/2} - 2P_{1/2}$ -Übergangs in wasserstoffähnlichem Silizium [62]. Die erste erfolgreiche Messung wurde schlußendlich an der Oxforder EBIT an wasserstoffähnlichem Stickstoff durchgeführt [63]. Durch die Anregung des  $2S_{1/2} - 2P_{1/2}$ -Übergangs bei  $12 \mu\text{m}$  mit einem  $\text{CO}_2$ -Laser konnte ein Anstieg in der Zählrate der Lyman- $\alpha$ -Photonen nachgewiesen werden. Die Wellenlänge wurde zu  $11,976(7) \mu\text{m}$  bestimmt, wobei hauptsächlich die geringe Statistik sowie die große natürliche Linienbreite zum Fehler beigetragen haben. Eine resonante Laseranregung bei wesentlich höheren Energien wurde 2007 mit einer EBIT am freien Elektronenlaser in Hamburg durchgeführt [64]. Bei einer Strahlenergie von  $48,6 \text{ eV}$  wurde in lithiumartigen Eisen der  $1s^2 2s^2 S_{1/2} - ^2 P_{1/2}$ -Übergang resonant angeregt und die ausgesandten Fluoreszenzphotonen beim Übergang in den Grundzustand registriert.

Die in dieser Arbeit vorgestellten Messungen wurden an der Heidelberger Elektronenstrahl-Ionenfalle ausgeführt. Das Prinzip der hier durchgeführten Messungen der Wellenlänge des M1-Übergangs in borartigem Argon beruht auf der resonanten Absorption eines einzelnen Photons von einem durchstimmbaren Farbstofflaser, während die Zählrate der Fluoreszenzphotonen in Abhängigkeit der Laserfrequenz gemessen wird. Das verwendete Lasersystem besteht aus einem Farbstofflaser, gepumpt von einem gepulsten Nd:YAG-Laser. Der Laserstrahl wurde in die EBIT eingekoppelt und in Überlapp mit den Ionen gebracht. Die Fluoreszenzphotonen wurden mittels im Vakuum installierter Linsen aufgesammelt und mit einem Photomultiplier registriert, wobei das Streulicht vom Laser mit Hilfe eines Chopperrades unterdrückt wurde. In diesem Kapitel wird ausführlich das Prinzip und die physikalischen Grundlagen einer EBIT eingegangen. Im nachfolgendem Kapitel wird der experimentelle Aufbau, bestehend aus dem Lasersystem, der Photonendetektion sowie der Datenaufnahme erklärt.

## 2.2 Die Heidelberger Elektronenstrahl-Ionenfalle

Das Prinzip einer Elektronenstrahl-Ionenfalle liegt in der Erzeugung von hochgeladenen Ionen durch Stoßionisation mit einem Elektronenstrahl, der durch seine negative Raumladung die positiv geladenen Ionen radial gefangen hält. Die EBIT ist eine Weiterentwicklung der Elektronenstrahl-Ionenquelle (EBIS), die zuerst 1969 gebaut wurde [65]. Die erste EBIT wurde 1986 am Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL) unter der Leitung von Levine *et al.* entwickelt [66, 67], deren Weiterentwicklung [68], Super-EBIT genannt, ist in der Lage, nacktes Uran zu erzeugen [69].

Die wichtigsten Bauteile einer EBIT sind die Elektronenkanone zur Erzeugung des Ele-

## 2.2. Die Heidelberger Elektronenstrahl-Ionenfalle

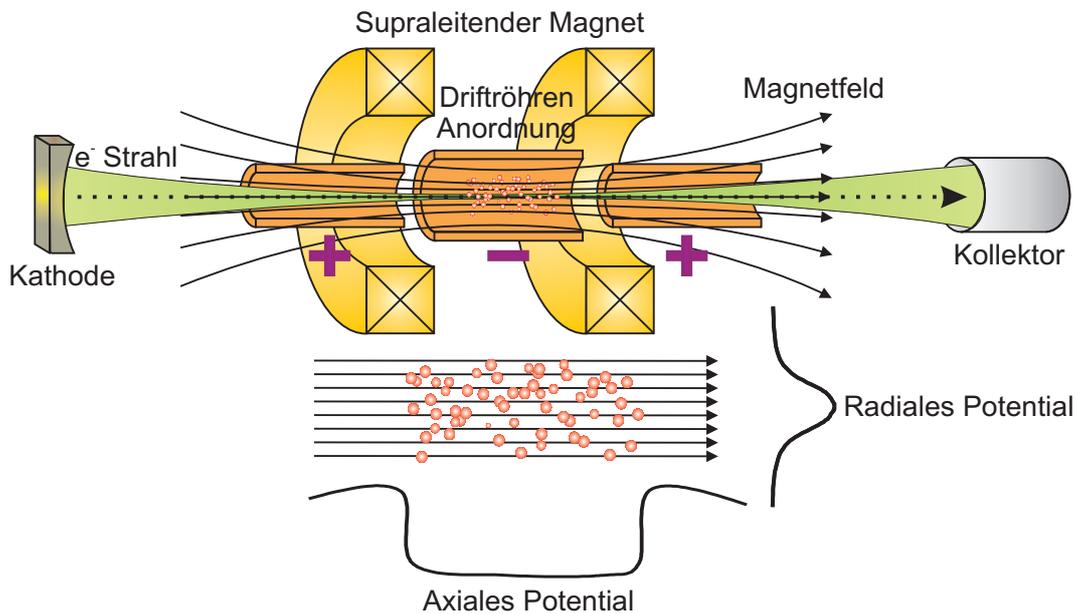


Abbildung 2.3: Funktionsprinzip einer EBIT. Der Elektronenstrahl wird in der Kathode erzeugt und zur Falle hin beschleunigt. Nachdem der Strahl die Falle durchlaufen hat, wird er wieder abgebremst und im Kollektor aufgefangen. Ein starkes Magnetfeld, erzeugt durch supraleitende Spulen in Helmholtz-Anordnung, sorgt für eine hohe Kompression des Elektronenstrahls in der Fallenmitte. Die negative Raumladung des Strahls bewirkt einen radialen Einfang der positiv geladenen Ionen, während der axiale Einfang durch entsprechende elektrostatische Potentiale an den die Fallenmitte umgebenden Driftröhren gewährleistet wird.

kronenstrahls, die Falle, bestehend aus mehreren hintereinander aufgereihten zylindrischen Elektroden, den sogenannten Driftröhren, umgeben von einem Magneten, und dem Kollektor, wo der Elektronenstrahl endet. Die aus einer Kathode austretenden Elektronen werden durch eine positiv geladene Anode angezogen, während eine dazwischenliegende Fokuselektrode den Strahl bündelt. Eine zwischen Elektronenkanone und mittlerer Driftröhre anliegende Potentialdifferenz beschleunigt die Elektronen zur Falle hin. Die Abstoßung der Elektronen untereinander wird durch ein starkes Magnetfeld kompensiert, das von zwei supraleitenden Magnetfeldspulen in einer Helmholtzanordnung erzeugt wird, zwischen denen sich die Falle befindet. Sie produzieren ein starkes Magnetfeld, dessen Feldlinien parallel zur Fallenachse verlaufen. Tritt der Elektronenstrahl in die Fallenregion ein, folgen die Elektronen den Trajektorien der Magnetfeldlinien und werden zum Fallenzentrum hin komprimiert. Dadurch erzeugt der Elektronenstrahl eine hohe negative Raumladung, welche die positiv geladenen Ionen in radialer Richtung anzieht. Der Einfang der Ionen entlang des Elektronenstrahls erfolgt durch ein positives Potential gegenüber der Fallenmitte, das an die äußeren Driftröhren angelegt wird. Nach Verlassen der Driftröhren werden die Elektronen wieder abgebremst und im Kollektor deponiert.

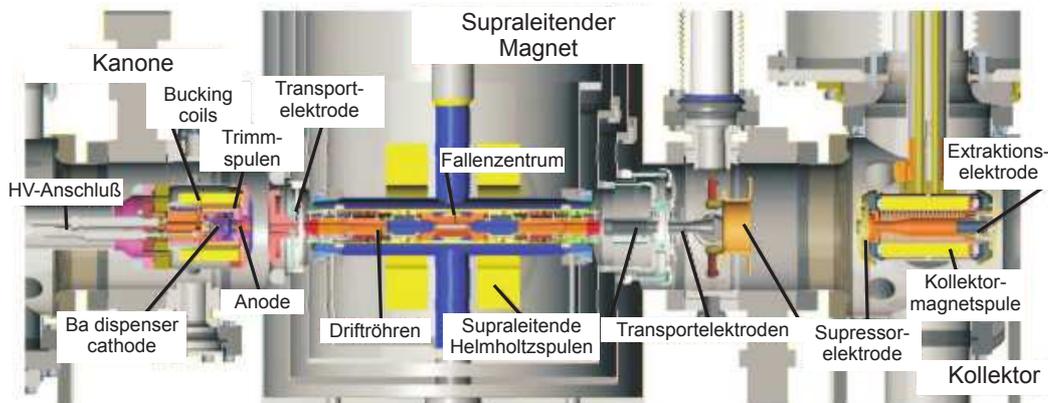


Abbildung 2.4: Querschnitt der Heidelberger EBIT.

Die Heidelberger EBIT wurde an der Universität Freiburg 1998 bis 1999 entwickelt und gebaut [70]. Im Jahr 2001 wurde sie zum Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg verlegt. Eine Besonderheit der Heidelberger EBIT liegt in ihrer horizontalen Konstruktionsweise. Dadurch wird die Extraktion hochgeladener Ionen für Experimente außerhalb der EBIT vereinfacht. Ein weiterer Vorteil liegt im geringen Verbrauch an flüssigem Helium, das zum Kühlen des supraleitenden Magneten verwendet wird. Die Stärke des Magnetfelds beträgt bis zu 8 Tesla, was eine Kompression des Elektronenstrahls bis zu einem Durchmesser von  $50 \mu\text{m}$  ermöglicht. Dies entspricht einer Elektronenstrahldichte von bis zu  $15000 \text{ A/cm}^2$  bei einem typischen Strom von 300 mA.

### 2.2.1 Die Elektronenkanone

Die Elektronenkanone der Heidelberger EBIT ist schematisch in Abbildung 2.5 dargestellt. Das Herzstück ist eine Kathode mit sphärisch-konkaver Form (Pierce-Geometrie). Sie besteht aus einer porösen Wolframmatrix, die mit Barium durchsetzt ist (Dispenser Type Cathode). Das Barium gelangt durch chemische Reaktionen mit anderen der Kathode zugesetzten Substanzen als Bariumoxid an die Oberfläche und bewirkt dort eine niedrige Austrittsarbeit von etwa 2,0 eV. Mit einem Wolframfilament wird die Kathode auf Temperaturen von ca.  $1100 \text{ }^\circ\text{C}$  geheizt. Die Fokuselektrode steuert den Emissionsstrom und kompensiert die Randeffekte des Kathodenfelds. Die Anodenelektrode erzeugt ein zusätzliches Feld zur Extraktion der Elektronen. Diese beiden Elektroden bestimmen die Intensität des Elektronenstrahls.

Sowohl die Kathode als auch die Fokuselektrode sind mit einem Schild aus Weicheisen umgeben, um sie vor dem Magnetfeld der Helmholtzspulen abzuschirmen. Zusätzlich wird eine Solenoidspule als Kompensationsspule eingesetzt, um das verbleibende Magnetfeld auszugleichen. Eine weitere Solenoidspule dient als Abgleichspule für eine weitere Fokussierung

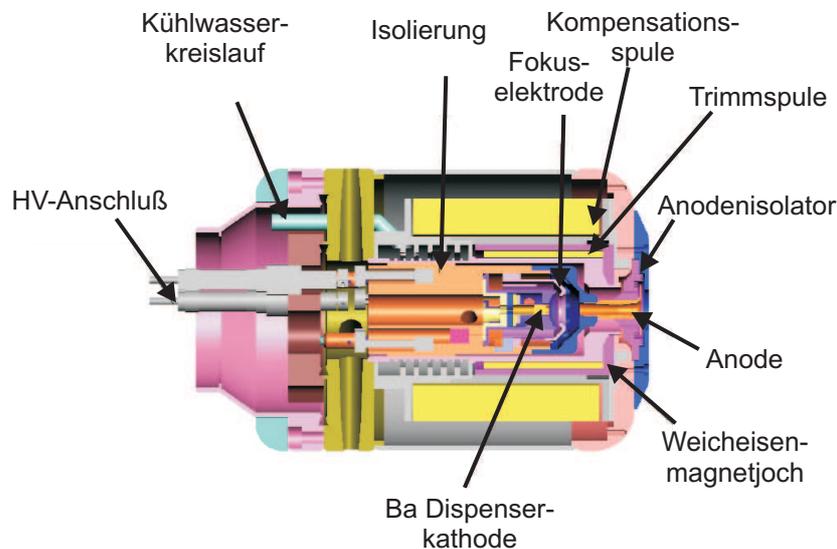


Abbildung 2.5: Querschnitt der Elektronenkanone.

des Elektronenstrahls.

### 2.2.2 Die Ionenfalle

Die Ionenfalle besteht aus neun röhrenförmigen Kupferelektroden (Driftröhren), deren Innendurchmesser sich zur Fallenmitte hin verjüngen (Abbildung 2.6). Sie sind in Längsrichtung hintereinander angeordnet. Die mittlere Elektrode besitzt vier längliche Öffnungen von 40 mm Länge, die einen optischen Zugang zu den eingefangenen Ionen erlauben. Die innere Elektrode ist 40 mm lang, während die äußeren Elektroden von innen nach außen gesehen jeweils eine Länge von 55 mm, 56 mm, 27 mm und 15 mm aufweisen. Durch Anlegen geeigneter Spannungen an die Driftröhren können Fallen mit Längen zwischen 40 mm und 350 mm realisiert werden.

Das Magnetfeld für die Kompression des Elektronenstrahls wird durch zwei supraleitende Magnetspulen aus Niob-Titan in einer Helmholtzkonfiguration erzeugt. Diese Spulen müssen konstant mit flüssigem Helium gekühlt werden, um sie supraleitend zu halten. Sie befinden sich in einem Kryostat, der mit flüssigem Helium gefüllt ist. Der Kryostat ist von zwei thermischen Schichten umgeben. Der äußere wird auf etwa 50 Kelvin, der zweite auf etwa 20 Kelvin gekühlt. Die Falle befindet sich in der zentralen Bohrung des Magneten, dessen Wände auf 4,2 Kelvin liegen. Durch das Abkühlen der Fallenregion auf 4,2 Kelvin werden im Fallenninneren Vakua bis zu  $10^{-13}$  mbar erreicht.

Aufgrund der Bauweise der EBIT gibt es zwei horizontale Zugänge zur Beobachtung der

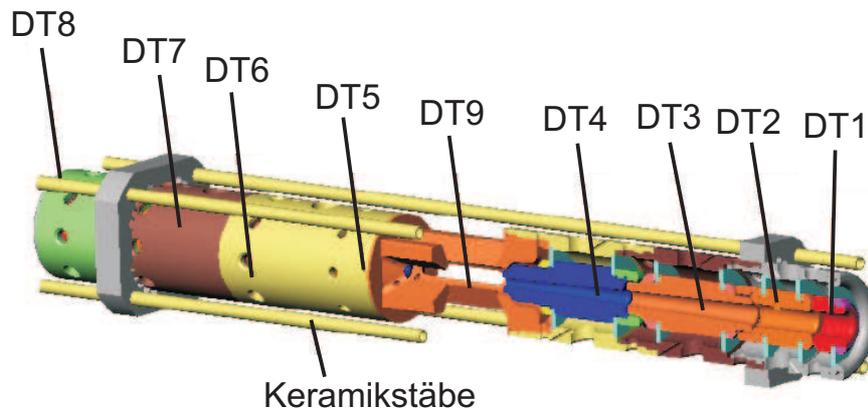


Abbildung 2.6: Anordnung der neun Driftröhren.

Falle. Sie sind jeweils 300 mm von der Fallenmitte entfernt. Auf der einen Seite ist ein Berylliumfenster mit einer Foliendicke von  $205\ \mu\text{m}$  zur Röntgenspektroskopie montiert. Zusätzlich befinden sich zwischen dem Fenster und der Falle zwei weitere Berylliumfolien, die die Vakua der beiden thermischen Schilde trennen. Auf der gegenüberliegenden Seite ist der Zugang zur Falle mit einem Quarzfenster für optische Spektroskopie eingerichtet. Innerhalb des EBIT-internen Vakuums befinden sich zwei Quarzlinsen mit einem Durchmesser von 38 mm und einer Brennweite von 150 mm, die ein reelles Abbild der Falle außerhalb des Vakuums erzeugen.

### 2.2.3 Kollektor

Nachdem der Elektronenstrahl die Falle verlassen hat, wird er auf eine Energie von etwa 1500 Volt abgebremst. Durch ein Magnetfeld der supraleitenden Spulen wird das am Kollektor (Abbildung 2.7) noch spürbare Magnetfeld kompensiert. Der Strahl divergiert, und die Elektronen treffen auf die Innenwand des Kollektors, der den Strom ableitet. Um zu verhindern, daß durch den Strahl dort erzeugte Sekundärelektronen in die Falle gelangen, sitzt vor dem Kollektor eine sogenannte Suppressorelektrode mit einem leicht negativen Potential. Am anderen Ende des Kollektors befindet sich die Extraktionselektrode, an der ebenfalls ein negatives Potential anliegt. Dieses Potential ist höher als die verbleibende kinetische Energie der Elektronen und stellt damit eine undurchdringbare Barriere für sie dar. Sie dient zudem zur Extraktion der Ionen für weitere Experimente. Der Kollektor wird mit Wasser gekühlt, um die als Wärme freiwerdende Energie abzuführen.

## 2.2. Die Heidelberger Elektronenstrahl-Ionenfalle

<i>Magnetfeld</i>	8 T
<i>Maximal erreichte Elektronenstrahlenergie</i>	100 keV
<i>Maximal erreichter Emissionsstrom</i>	530 mA
<i>Stromdichte</i>	maximal 15000 A/cm <sup>2</sup>
<i>Kryostat und Kryokühler</i>	50 K thermischer Schild, 32 W 20 K thermischer Schild, 8 W
<i>Fassungsvermögen Heliumtank</i>	50 l
<i>Heliumverbrauch</i>	0,2 – 0,3 l Flüssighelium / Stunde
<i>Erzeugte Ionen</i>	bis Ba <sup>56+</sup> oder Hg <sup>78+</sup>

Tabelle 2.1: Einige Kenndaten der Heidelberger EBIT.

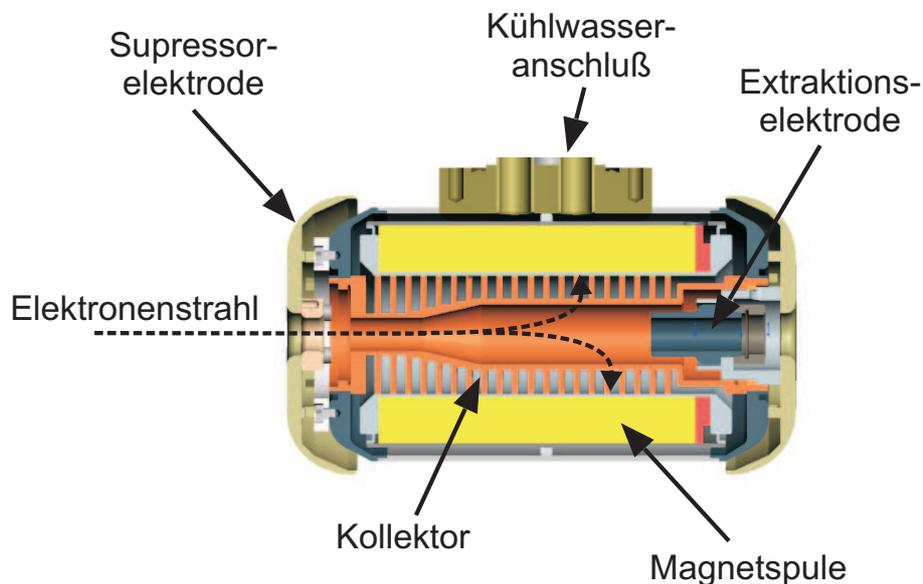


Abbildung 2.7: Querschnitt des Kollektors.

### 2.2.4 Ionen- und Gasinjektion

Für die Untersuchung hochgeladener Ionen bietet die Heidelberger EBIT verschiedene Möglichkeiten, die Falle mit dem gewünschten Element zu füllen. Gase können über einen Gasinjektor zugeführt werden, der in Abbildung 2.8 schematisch dargestellt ist. Der Gasinjektor liefert einen gebündelten Strahl aus neutralen Atomen in die Fallenregion. Er besteht aus vier Stufen, die differentiell gepumpt werden. Der Gasanschluß erfolgt mittels eines Nadelventils mit der ersten Stufe, in der ein Druck von etwa  $10^{-6}$  mbar herrscht. Die erste Stufe ist mit der zweiten durch eine Schlitzblende verbunden, die den Druck in der zweiten Stufe auf  $10^{-9}$  mbar reduziert. Durch weitere Schlitze in den thermischen Schilden wird der Atomstrahl weiter kollimiert bevor er in der Fallenregion den Elektronenstrahl kreuzt. Die

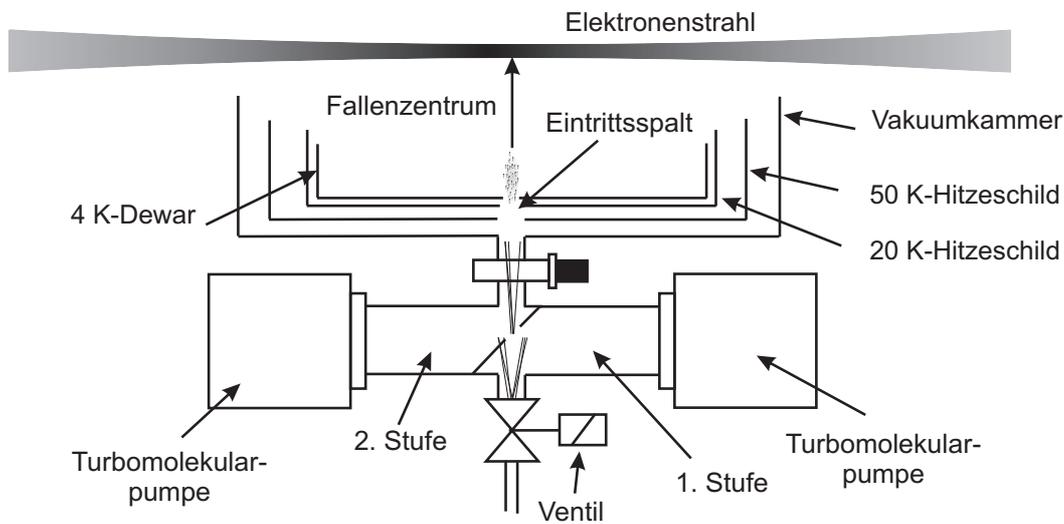


Abbildung 2.8: Das zweistufige differentiell gepumpte Injektionssystem.

Kälteschilde wirken dabei wie zwei zusätzliche differentielle Pumpstufen. Der Enddruck in der Fallenregion wird auf etwa  $10^{-13}$  mbar geschätzt. Er kann jedoch über die eingestellte Dichte des Atomstrahls über einen weiten Bereich variiert werden. Für Feststoffe stehen eine Laserionenquelle [71] und ein Ofen [72] zur Verfügung.

### 2.2.5 Ionenwolke in der Falle

Die gefangenen Ionen werden durch Stoßionisation sukzessive ionisiert, solange die kinetische Energie des Elektronenstrahls die Bindungsenergie übersteigt. Gleichzeitig können die Ionen durch Elektronstöße angeregt werden und über Abstrahlung von Photonen in den Grundzustand übergehen. Zusätzlich finden auch radiative und dielektronische Rekombinationsprozesse statt, bei denen Elektronen aus dem Elektronenstrahl oder von neutralen Restgasatomen eingefangen werden und damit den Ladungszustand des beteiligten Ions verringern. Nach einer gewissen Zeit stellt sich zwischen der Stoßionisation und den Rekombinationsprozessen ein Gleichgewicht ein. Die Ionen werden dabei in einem zylindrischen Volumen mit einem Durchmesser von einigen hundert  $\mu\text{m}$  um den Elektronenstrahl herum gespeichert. Abbildung 2.9 zeigt eine Wolke aus  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen, aufgenommen mit einer handelsüblichen Spiegelreflexkamera (Nikon D40) durch den seitlichen Beobachtungsport mit einer gesamten Aufnahmedauer von 5 Minuten. Während der Messung wurde kontinuierlich Argongas als ballistischer Atomstrahl über den mehrstufig differentiell gepumpten Gasinjektor in die EBIT injiziert. Der Druck in der ersten differentiell gepumpten Kammer wurde auf  $6,4 \cdot 10^{-8}$  mbar eingestellt. Zur Ionisation der Argonionen wurde ein Elektronenstrom von  $I_e = 105$  mA verwendet, der auf eine Energie von 1020 eV gebracht wurde.

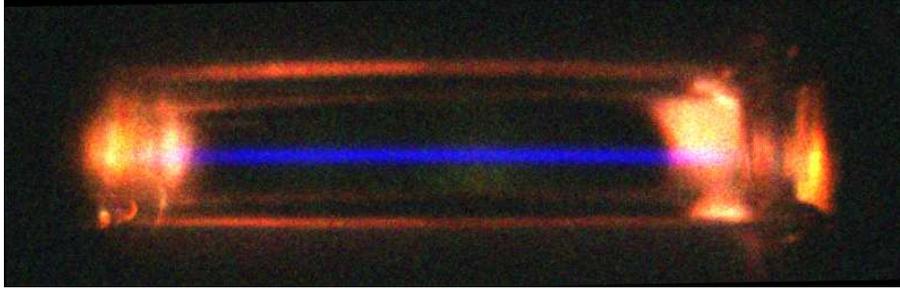


Abbildung 2.9: Wolke aus  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen (blau), die sich in einem zylindrischen Volumen um den Elektronenstrahl herum aufhalten. Die Elektronen regen durch Stöße den Feinstrukturübergang  $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2} - ^2P_{1/2}$  an, der durch Ausstrahlung von Licht mit einer Wellenlänge von 441 nm in den Grundzustand übergeht. In rot sind die Ränder des Driftröhrenfensters zu sehen, die das Licht der Heizkathode reflektieren.

Aus der Aufnahme ergibt sich eine Breite der Ionenwolke von  $600 \mu\text{m}$ , die allerdings nicht auf die Apparatenbreite korrigiert ist, aber trotzdem einen guten Eindruck über die räumliche Verteilung der Ionenwolke liefert. Deutlich zu sehen ist, daß sich die Ionen in einem langen, dünnen Zylinder um den Elektronenstrahl herum aufhalten.

## 2.3 Die physikalischen Grundlagen einer EBIT

### 2.3.1 Elektronenstrahl

Die einfachste Beschreibung des Elektronenstrahls unter der Annahme eines laminaren Elektronenflusses in einem homogenen axialen Magnetfeld wurde von Brillouin [73] gemacht, wobei davon ausgegangen wurde, daß am Ort der Entstehung kein Magnetfeld existiert und keine Transversalbewegung vorherrscht. Der Elektronenradius  $r_B$  hängt dann vom Strom  $I_e$ , dem Magnetfeld  $B$  und der Elektronengeschwindigkeit  $v_e$  ab:

$$r_B = \sqrt{\frac{2m_e I_e}{\pi \epsilon_0 v_e e B^2}}. \quad (2.5)$$

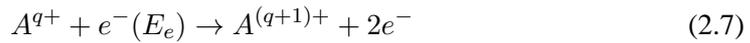
Diese Beschreibung wurde von Herrmann [74] auf einen nichtlaminaren Strahl erweitert, wobei auch die Anfangstemperatur der Elektronen mit berücksichtigt wurde. Unter der Annahme, daß die Geschwindigkeit der Elektronen unabhängig von ihrer radialen Position ist, kann ein effektiver Radius des Elektronenstrahls unter Berücksichtigung der Eigenschaften der Kathode (Radius  $r_c$ , Restfeldstärke  $B_c$  auf der Oberfläche und Temperatur  $T_c$ ) sowie des Magnetfeldes für die Strahlkompression angegeben werden. Der „Herrmannradius“  $r_H$  ist definiert als derjenige Radius, der 80% des gesamten Elektronenstrahls umfaßt

$$r_H = r_B \sqrt{\frac{1}{2} + \frac{1}{2} \sqrt{1 + 4 \left( \frac{8m_e k_B T_c r_c^2}{e^2 r_B^4 B^2} + \frac{B_c^2 r_c^4}{B^2 r_B^4} \right)}}. \quad (2.6)$$

Dabei ist  $k_B$  die Boltzmannkonstante. Setzt man  $T_c$  und  $B_c$  Null, erhält man wieder Gleichung (2.5) wie von Brillouin angegeben. Der Strahlradius hängt somit von  $\sqrt{I_e}$  ab, was durch Messungen an der Tokyo-EBIT [75] bestätigt wurde.

### 2.3.2 Atomare Prozesse

Die wichtigsten Prozesse in der EBIT, die den Ladungszustand der gefangenen Ionen beeinflussen, sind die Stoßionisation (SI), die Strahlungsrekombination (RR) sowie der Ladungsaustausch mit neutralem Hintergrundgas (EX). Die direkte Einfachionisation durch den Elektronenstrahl



ist möglich, sobald die Elektronenstrahlenergie  $E_e$  die Ionisationsenergie  $I_P$  übertrifft. Ein Beispiel hierfür ist in Abbildung 2.10 für 31- und 32-fach geladenes Xenon gezeigt. Bei einem Emissionsstrom von 350 mA wurde die Elektronenstrahlenergie in Schritten von 10 eV von 2450 eV bis 2950 eV durchgeföhren. Der Nachweis der Ionen erfolgte durch Detektion der stoßangeregten optischen Übergänge in diesen Ionen [76], aufgenommen mit einem Czerny-Turner-Spektrometer, dessen Aufbau detailliert in [77] beschrieben ist. Der Verlauf der Kurven ergibt sich aus der Tatsache, daß  $\text{Xe}^{31+}$  sowie  $\text{Xe}^{32+}$  erst ab einer Schwellenenergie, vorgegeben durch die Bindungsenergie des herauszulösenden Elektrons, erzeugt werden kann, wobei die Erzeugungsräte stetig ansteigt. Wird allerdings die Schwelle für den nächsthöheren Ladungszustand überschritten, ergibt sich eine Abnahme der Konzentration des entsprechenden Ladungszustandes. Die optimale Energie zur Erzeugung eines gewünschten Ladungszustandes liegt somit direkt unterhalb der Schwelle für den nächsthöheren Ladungszustand.

Unter Strahlungsrekombination versteht man den Einfang eines Elektrons aus dem Elektronenstrahl, wobei die freiwerdende Energie (kinetische Energie des Strahls plus Bindungsenergie) als Photon ausgesandt wird:



Parallel dazu kann auch die dielektronische Rekombination stattfinden, bei der die freiwerdende Energie verwendet wird, ein bereits gebundenes Elektron in einen höheren Zustand

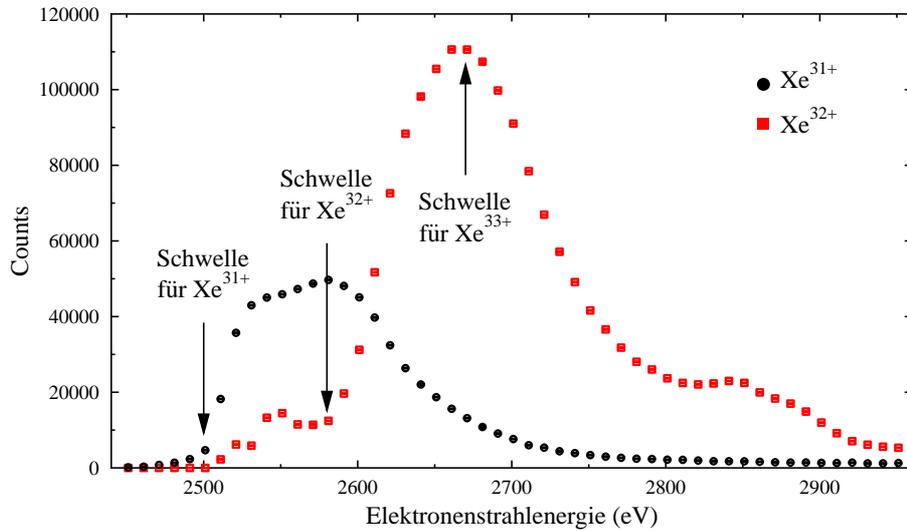


Abbildung 2.10: Signalstärke des optischen  $3d^5 \ 4G_{9/2} - 4G_{7/2}$ -Übergangs in  $\text{Xe}^{31+}$  (schwarze Kreise) sowie des Übergangs  $3d^4 \ 5D_3 - 5D_2$  in  $\text{Xe}^{32+}$  (rote Quadrate), aufgenommen mit einem Czerny-Turner-Spektrometer in Abhängigkeit von der angelegten Beschleunigungsspannung für den Elektronenstrahl.

anzuregen. Wenn dieses Elektron wieder in den Grundzustand übergeht, kann die freiwerdende Energie wieder als Photon ausgesandt werden, so daß derselbe Endzustand wie bei der Strahlungsrekombination vorliegt. Da diese Art der Rekombination ein resonanter Prozess ist, kann er nur bei bestimmten Strahlenergien stattfinden. Eine detaillierte Beschreibung dieses Prozesses findet sich in [78] sowie [79].

Beim Ladungsaustausch ist die Wechselwirkung zwischen den Ionen und neutralem Gas ausschlaggebend, da die Wahrscheinlichkeit für Ladungsaustausch zwischen Ionen aufgrund ihrer gegenseitigen Abstoßung wesentlich geringer ist. Der Prozess läßt sich beschreiben als:



Dabei ist  $p$  die Anzahl der Elektronen, die das Ion  $A$  der Ladung  $q$  durch den Stoß mit dem neutralen Atom oder Molekül  $B$  aufnimmt. Ein empirisch ermitteltes Skalierungsgesetz zur Berechnung absoluter Wirkungsquerschnitte wurde 1979 von Müller und Salzborn veröffentlicht [80]. Für den Übertrag eines Elektrons ergibt sich der Wirkungsquerschnitt zu

$$\sigma_{q,q-1} = 1,43 \cdot 10^{-12} q^{1,17} (I_0[\text{eV}])^{-2,76} [\text{cm}^2], \quad (2.10)$$

mit dem Ionisationspotential  $I_0$  des neutralen Atoms in eV.

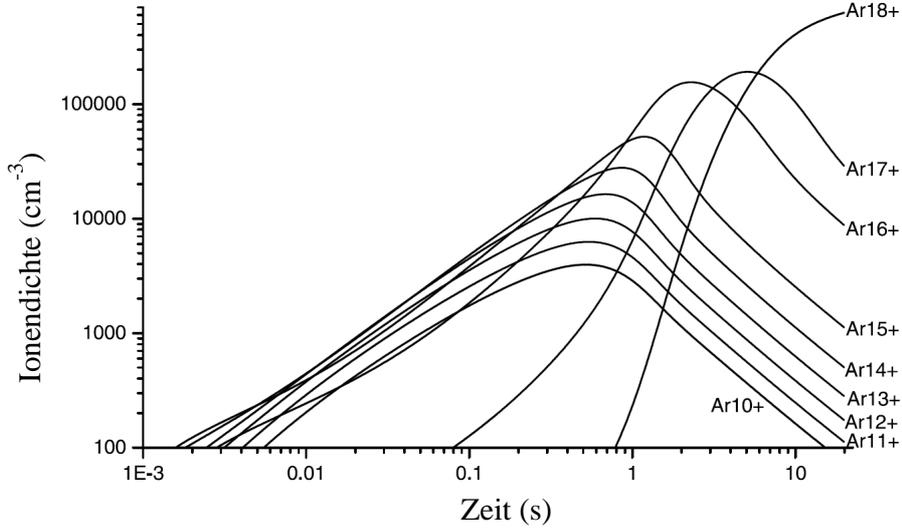


Abbildung 2.11: Zeitliche Entwicklung der Ladungszustände von Argonionen, entnommen aus [81]. Die Berechnungen wurden unter der Annahme einer Elektronenstrahlenergie von 9 keV und einem Strom von 75 mA, einer axialen Falle von 50 V und einem Magnetfeld von 3 T gemacht.

Für diese gesamten Prozesse ergeben sich folgende Ratengleichungen:

$$R_q^{SI} = \frac{J_e}{e} N_{q-1} \sigma_{q-1}^{SI}(E_e) f(r_e, r_{q-1}) \quad (2.11)$$

$$R_q^{RR} = \frac{J_e}{e} N_{q+1} \sigma_{q+1}^{RR}(E_e) f(r_e, r_{q+1}) \quad (2.12)$$

$$R_q^{EX} = N_0 N_{q+1} \sigma_{q+1}^{EX} \bar{v}_{q+1}, \quad (2.13)$$

wobei  $J_e$  die Stromdichte des Elektronenstrahls ist. Der Überlappfaktor zwischen dem Elektronenstrahl und den Ionen mit der Ladung  $q$  ist durch  $f(r_e, r_q) = (\pi r_e^2) / (\pi r_q^2)$  beschrieben.  $\sigma_q$  ist der Wirkungsquerschnitt für den entsprechenden Prozess. Betrachtet man dazu noch Verluste durch Ionen, die die Falle verlassen  $R_q^{Esc}$ , ergibt sich für die zeitliche Entwicklung eines Ladungszustands  $q$ :

$$\frac{dN_q}{dt} = R_{q-1}^{SI} - R_q^{SI} + R_{q+1}^{RR} - R_q^{RR} + R_{q+1}^{EX} - R_q^{EX} + R - R_q^{Esc}. \quad (2.14)$$

Eine numerische Simulation wurde z.B. in [81] durchgeführt, wobei für den Wirkungsquerschnitt der Stoßionisation  $\sigma_q^{SI}$  die von Lotz hergeleitete Formel verwendet [82] wurde,  $\sigma_q^{EX}$  über die Müller-Salzborn-Formel [80] und  $\sigma_q^{RR}$  mit einer Näherung in [83] berechnet wurde. Die zeitliche Entwicklung für Argonionen ist in Abbildung 2.11 gezeigt.

Ein weiterer grundlegender Prozess für die Spektroskopie an hochgeladenen Ionen ist die Stoßanregung vom Grundzustand  $nl$  in einen angeregten Zustand  $n'l'$

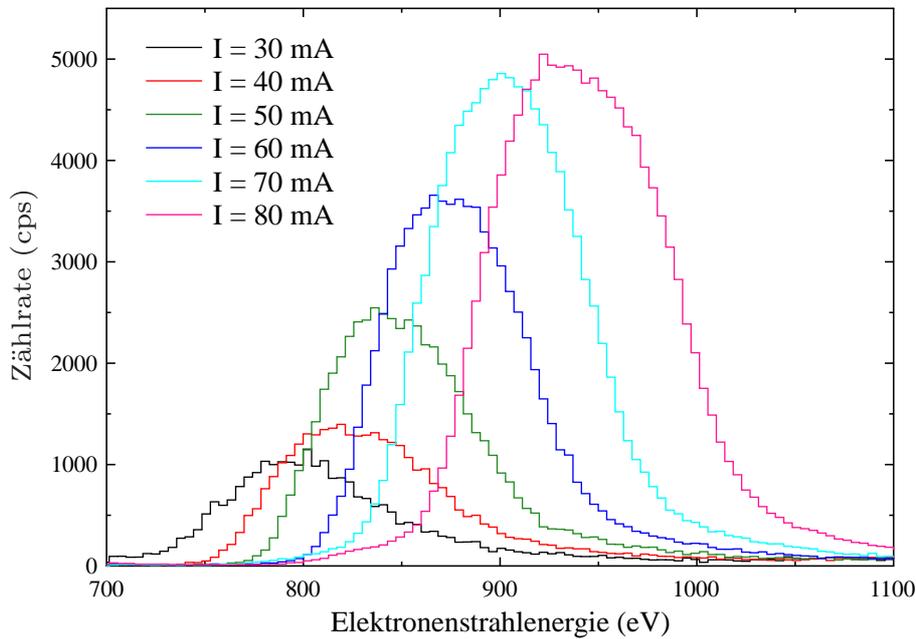
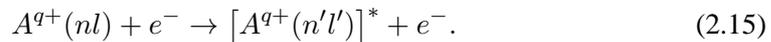


Abbildung 2.12: Zählrate des durch Elektronenstöße angeregten Fluoreszenzsignals des  $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2} - 2p^2 P_{1/2}$ -Übergangs in  $\text{Ar}^{13+}$  in Abhängigkeit von der Elektronenstrahlenergie, aufgenommen für verschiedene Ströme.



Die Stoßanregung mit anschließendem elektromagnetischen Übergang in einen tieferen Zustand erlaubt es, effektiv Übergänge in hochgeladenen Ionen vom optischen Bereich [76] bis hin zur Röntgenstrahlung [84] spektroskopisch zu untersuchen.

### 2.3.3 Raumladung und Ionenkompensation

Die Raumladung des Elektronenstrahls sorgt nicht nur für den radialen Einfang der Ionen, sondern auch dafür, daß ein Anteil der kinetischen Energie der Elektronen, die durch die Potentialdifferenz zwischen Kathode und den Driftröhren gegeben ist, in potentielle Energie umgewandelt wird und so nicht mehr bei der Wechselwirkung mit den Ionen zur Verfügung steht. Die effektive Wechselwirkungsenergie entspricht dann nicht mehr der angelegten Beschleunigungsspannung, sondern ist um den Betrag der Raumladung reduziert. Ausgehend von der Poissongleichung

$$\Delta\Phi = -\frac{\rho_{el}}{\epsilon_0} \quad (2.16)$$

erhält man unter der Annahme eines zylindrischen homogenen Strahls mit Radius  $r_e$

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r \frac{\partial}{\partial r} \Phi = \begin{cases} \frac{n_e q_e}{\epsilon_0} & \text{für } r \leq r_e \\ 0 & \text{für } r \geq r_e, \end{cases} \quad (2.17)$$

wobei nur das Feld in radialer Richtung betrachtet wurde. Setzt man als Randbedingung an, daß der Übergang des Potentials der Raumladung bei  $r = r_e$  kontinuierlich ist sowie Null an den Driftröhrenwänden ( $r = r_d$ ) beträgt, ergibt sich

$$\Phi = \begin{cases} \frac{I_e}{4\pi\epsilon_0 v_e} \left[ \left(\frac{r}{r_e}\right)^2 + 2 \ln\left(\frac{r_e}{r_d}\right)^2 - 1 \right] & \text{für } r \leq r_e \\ \frac{I_e}{2\pi\epsilon_0 v_e} \ln\left(\frac{r}{r_d}\right) & \text{für } r \geq r_e. \end{cases} \quad (2.18)$$

wobei hier die Ladungsdichte  $\rho_e$  durch  $I_e/\pi r_e^2 v_e$  ersetzt wurde.

Die Raumladung ist maximal in der Mitte des Elektronenstrahls. Drückt man die Geschwindigkeit der Elektronen durch ihre Energie aus, erhält man näherungsweise für die Raumladung bei  $r = 0$ :

$$V_{sp}(r=0)[V] \approx \frac{30I_e[A]}{\sqrt{1 - \left(\frac{E_e[\text{keV}]}{511} + 1\right)^{-2}}} \left( \ln\left(\frac{r_e}{r_t}\right)^2 - 1 \right). \quad (2.19)$$

Neben der radialen Raumladung ergibt sich aufgrund der verschiedenen Driftröhrendurchmesser auch ein axiales Raumladungspotential. Die Berechnung der axialen Raumladung in der Mitte der Driftröhren erfolgt aus der Differenz der radialen Raumladung für zwei benachbarte Driftröhren bei  $r = 0$ . Die Heidelberger EBIT hat ein Fallenzentrum mit einem Radius von 5 mm, wogegen die benachbarten Driftröhren einen Radius von 1.5 mm aufweisen. Die axiale Raumladung bei  $r = 0$  ergibt sich damit zu

$$V_{sp}^{ax} = \frac{72.24I_e[A]}{\sqrt{1 - \left(\frac{E_e[\text{keV}]}{511} + 1\right)^{-2}}}. \quad (2.20)$$

Bei der Berechnung der Raumladung muß allerdings noch berücksichtigt werden, daß die positiv geladenen Ionen in der Falle einen bedeutenden Teil der negativen Raumladung kompensieren können. Eine genaue Bestimmung der Kompensation ist schwierig, da die Anzahl der Ionen sowie deren Ladungszustand stark von den Betriebsparametern der EBIT abhängen. Unter der Annahme, daß das Ladungsverhältnis zwischen Ionen und Elektronen in der Falle unabhängig vom Strom ist, kann man die gesamte Raumladung feststellen, indem man die nötigen Beschleunigungsspannungen zum Erreichen einer dielektronischen

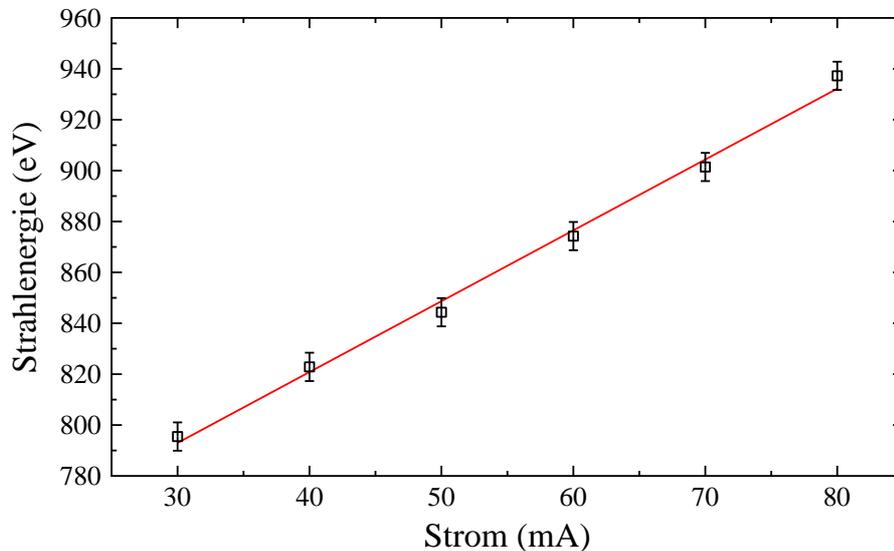


Abbildung 2.13: Angelegte Beschleunigungsspannung für den Elektronenstrahl, bei der die Fluoreszenzrate maximal ist, aufgetragen gegen den Strom.

Resonanz in Abhängigkeit vom Strom vermisst und gegen Null extrapoliert [79]. Alternativ kann auch das Erreichen der Schwelle für die Produktion eines neuen Ladungszustands verwendet werden. Abbildung 2.12 zeigt die Zählrate des Fluoreszenzsignals des  $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2} - 2P_{1/2}$ -Übergangs in  $\text{Ar}^{13+}$  für verschiedene Ströme in Abhängigkeit von der angelegten Beschleunigungsspannung. Während dieser Messung betrug der Injektionsdruck in der zweiten Kammer  $1,0 \cdot 10^{-8}$  mbar. Die Kurvenform des Signals ergibt sich aus der Tatsache, daß  $\text{Ar}^{13+}$  erst ab einer gewissen Strahlenergie erzeugt werden kann. Überschreitet die Elektronenstrahlenergie diese Schwelle, steigt die Produktionsrate und damit die gemessene Zählrate stetig an, bis die Schwelle zur Erzeugung von  $\text{Ar}^{14+}$  überschritten wurde. Trägt man die Strahlenergie beim Erreichen der maximalen Zählrate auf, so sieht man eine lineare Abhängigkeit dieser Energie vom Strom. Ein linearer Fit dieser Daten ergibt eine Raumladungskorrektur von  $2.8(2)$  eV/mA. Extrapoliert man die Energiewerte zu 0 mA, erhält man einen Wert für die Ionisationsenergie von  $710(8)$  eV, der recht nahe am theoretische Wert des Ionisationspotentials von  $\text{Ar}^{14+}$  von 744 V liegt. Die Differenz erklärt sich dadurch, daß Elektronen am Rand des Elektronenstrahls, die nicht die gesamte Raumladung verspüren, die notwendige kinetische Energie für die Ionisation von  $\text{Ar}^{13+}$  schon bei etwas niedrigeren Beschleunigungsspannungen erhalten und die Ionenanzahl reduzieren. Daher wird das Maximum der Zählrate schon erreicht, bevor die mittlere kinetische Energie des Elektronenstrahls dem Ionisationspotential des nächthöheren Ladungszustands entspricht.

### 2.3.4 Heizung und Kühlung

Die Stöße zwischen Elektronen und Ionen führen zu einer Aufheizung der Ionen. Zum einen geschieht dies durch direkten Energieübertrag durch die Stöße, zum anderen kann die fortlaufende Ionisation zu einer Energieerhöhung führen, wenn sich das Ion außerhalb des Potentialminimums befindet und durch die höhere Ladungsstufe auf den Weg zum Potentialminimum eine erhöhte Energie aufnehmen kann. Durch Stöße zwischen den Ionen thermalisiert die Wolke mit der Temperatur  $T_i$  für den Ladungszustand  $i$ . Für ein Ion mit der Ladung  $q_i = i \cdot e$  ergibt sich die radiale Dichteverteilung [85]

$$\rho(r) = \rho(0) \exp \left[ -\frac{q_i V(r)}{kT_i} \right], \quad (2.21)$$

wobei das Potential  $V(r)$  das gesamte durch Elektronenstrahl, Ionen und Driftröhren erzeugte Potential ist. Durch die Aufheizung dehnt sich die Ionenwolke aus, so daß sich nur ein Anteil  $N_i^{in}$  der  $N_i$  im Elektronenstrahl aufhält. Der Faktor  $(q_i V)/(kT_i)$  gibt an, wie stark ein Ion radial gebunden ist. Haben verschiedene Ionensorten die gleiche Temperatur, so sind die höchstgeladenen am stärksten gebunden. Die Temperatur ist dabei durch das axial angelegte Potential begrenzt. Ionen, deren kinetische Energie größer ist ( $E_{kin} > q_i V_{ax}$ ), können die Falle axial verlassen und die Ionenwolke durch Entzug ihrer kinetischen Energie wieder kühlen. Die Rategleichung für die Entwicklung der Energie läßt sich beschreiben durch [86]:

$$\frac{dN_i kT_i}{dt} = \left( \frac{dN_i kT_i}{dt} \right)^{eHeat} + \left( \frac{dN_i kT_i}{dt} \right)^{Transfer} + \left( \frac{dN_i kT_i}{dt} \right)^{Esc}. \quad (2.22)$$

Der erste Term ist die Landau-Spitzer-Heizrata

$$\left( \frac{dN_i kT_i}{dt} \right)^{eHeat} = \frac{4}{3} \nu_{ie} N_i \frac{m_e}{M_i} E_e \quad (2.23)$$

mit der Elektronenmasse  $m_e$  und der Elektronenenergie  $E_e$  sowie der Kollisionsrate  $\nu_{ie}$

$$\nu_{ie} = 4\pi \frac{n_e}{v_e^3} \left( \frac{q_i e^2}{4\pi \epsilon_0 m_e} \right)^2 \ln \Lambda_{ie}. \quad (2.24)$$

Hierbei beschreibt der Coulomb-Logarithmus  $\Lambda_{ij}$ , das Verhältnis zwischen minimalem und maximalem Stoßparameter als Folge der Debye-Abschirmung. Sein Wert liegt typischerweise zwischen 10 und 20 [87]. Für Elektron-Ionenstöße ergibt sich  $\Lambda_{ei}$  mit der Elektronendichte  $n_e$  in  $\text{cm}^{-3}$  und der Temperatur  $T_e$  in eV zu [88]

$$\Lambda_{ie} = 24 - \ln \left( \frac{\sqrt{n_e}}{T_e} \right). \quad (2.25)$$

### 2.3. Die physikalischen Grundlagen einer EBIT

---

In Einheiten von eV/s läßt sich die Heizrate schreiben als [69]

$$\frac{dE_i}{dt} = 442 \frac{q^2 j_e}{E_e A_i} \Lambda_{ie} [\text{eV/s}]. \quad (2.26)$$

Die Stromdichte  $j_e$  ist in A/cm und die Elektronenstrahlenergie  $E_e$  in eV einzusetzen.  $A_i$  ist die Massenzahl des Ions.

Der zweite Term in (2.22) berücksichtigt den Energieaustausch zwischen zwei verschiedenen Ladungszuständen  $i$  und  $j$  und läßt sich beschreiben durch

$$\left( \frac{dN_i kT_i}{dt} \right)^{\text{Transfer}} = \sum_j 2\nu_{ij} N_i \frac{M_i}{M_j} \frac{kT_j - jT_i}{\left( 1 + \frac{M_i kT_i}{M_j kT_j} \right)^{3/2}}. \quad (2.27)$$

mit der Kollisionsrate

$$\nu_{ij} = \frac{4}{3} \sqrt{2\pi} n_j \left( \frac{q_i q_j e^2}{4\pi\epsilon_0 M_i} \right)^2 \left( \frac{M_i}{kT_i} \right)^{3/2} \ln \Lambda_{ij}. \quad (2.28)$$

Der zugehörige Coulomb-Logarithmus ist gegeben durch [88]

$$\Lambda_{ij} = 23 - \ln \left[ \frac{q_i q_j (m_i + m_j)}{m_i T_j + m_j T_i} \left( \frac{n_i q_i^2}{T_i} + \frac{n_j q_j^2}{T_j} \right) \right]. \quad (2.29)$$

Die Verdampfung des hochenergetischen Endes der Temperaturverteilung führt zu einer evaporativen Kühlung, wenn durch Stöße dieser Bereich wieder aufgefüllt wird. Die Fluchtrate der Ionen läßt sich als eine Näherungslösung der Fokker-Planck-Gleichung angeben zu [89]

$$\frac{dN_i^{\text{Esc}}}{dt} = -N_i \nu_i \left( \frac{e^{-\omega_i}}{\omega_i} - \sqrt{\omega_i} [\text{erf}(\omega_i) - 1] \right). \quad (2.30)$$

Die Energie der Ionenwolke reduziert sich dadurch somit um

$$\frac{dN_i kT_i}{dt} = - \left[ \frac{3}{2} N_i \nu_i e^{-\omega_i} - \frac{dN_i^{\text{Esc}}}{dt} \right] kT_i. \quad (2.31)$$

Der Faktor  $\omega_i$  beschreibt hierbei, wie stark die Ionen durch das axiale bzw radiale Potential sowie das Magnetfeld gebunden sind

$$\omega_i^{\text{ax}} = \frac{q_i e V_{DT}}{kT_i} \text{ sowie } \omega_i^{\text{rad}} = \frac{q_i e V_{\text{rad}} + q_i e B r_{dt} \left( \frac{2kT_i}{3M_i} \right)^{1/2}}{kT_i}. \quad (2.32)$$

Dabei ist  $V_{tr}$  die axiale Falltiefe, die sich aus dem an den Driftröhren angelegten Potential ergibt, und  $V_{rad}$  das radiale Potential verursacht durch die Raumladung des Elektronenstrahls. Spektroskopische Messungen und theoretische Modelle haben gezeigt, daß sich üblicherweise für den Ladungszustand  $q_i$  im stationären Zustand eine Temperatur von  $T_i = 0,1 q_i e V_{ax}$  einstellt [89].

Gerade bei spektroskopischen Messungen ist es wichtig, trotz der Aufheizung der Ionenwolke durch den Elektronenstrahl hohe Ladungszustände bei niedrigen Temperaturen zu erreichen. Die kontinuierliche Aufheizung kann insbesondere bei schweren Ionen dazu führen, daß alle Ionen die Falle verlassen können. Um die Ionentemperatur zu verringern, müssen die gefangenen Ionen auf geeignete Weise gekühlt werden. In EBITs wird hierfür die Verdampfungskühlung angewandt [66]. Dieses Prinzip besteht darin, daß Ionen mit einer kinetischen Energie, die größer ist als die mittlere Energie der Ionenwolke, aus der Falle entweichen und der Ionenwolke somit Energie entzogen wird. Bei schweren Ionen werden zum Kühlen leichtere Elemente in die Falle eingebracht. Durch Stöße thermalisieren sie mit den zu kühlenden Ionen, während sie vom Elektronenstrahl vollständig ionisiert werden. Da die axiale Bindungsenergie der Ionen mit der Ladung  $q_i$  durch  $q_i V$  gegeben ist, verlassen die leichten Ionen bevorzugt die Falle, wodurch der Ionenwolke Energie entzogen und somit die schweren Ionen gekühlt werden [90]. Die Leistungsfähigkeit dieser Kühlmethode wurde z.B. an neonartigem Gold ( $\text{Au}^{69+}$ ) gezeigt, das mit einem kontinuierlichen Zufluß von Titanatomen gekühlt wurde, womit eine mittlere Einfangsdauer von 4,5 Stunden erreicht wurde [91]. Bei leichten Ionen ist dagegen kein zusätzliches Kühlgas notwendig, da die Heizrate durch den Ionenstrahl nach Gleichung (2.23) mit  $q^2$  skaliert. Hier ist es ausreichend, die energiereichen Anteile der zu kühlenden Ionenspezies verdampfen zu lassen, indem für diese das Verlassen der Falle durch ein seichtes Potential begünstigt wird. In axialer Richtung geschieht dies durch Anlegen einer hinreichend niedrigen Spannung an die äußeren Driftröhren. Da allerdings die Raumladung des Elektronenstrahls aufgrund der verschiedenen Driftröhrendurchmesser nach Gleichung 2.20 ein zusätzliches axiales Potential erzeugt, ist bei größeren Strömen das Anlegen einer bis zu 200 V positiven Spannung an die mittlere Driftröhre notwendig ("invertierte Falle"), um insgesamt ein seichtes Fallenpotential zu erreichen und damit eine hohe Kühlrate zu erhalten. So wurde z.B. bei der Vermessung dielektronischer und trielektronischer Resonanzen durch Anlegen einer invertierten Falle bei einem Strom von 200 mA eine Auflösung von 13 eV bei einer Energie von 10 kV erreicht [92].

Die Absenkung des Fallenpotentials läßt sich auch für schwere Ionen zusätzlich zum Einsatz eines Kühlgases verwenden. So wurden z.B.  $\text{Cs}^{45+}$ -Ionen in der EBIT auf 60 eV abgekühlt [93]. Eine weitere Möglichkeit besteht in der Verringerung des Stroms und damit der Raumladung des Elektronenstrahls, um so das Verdampfen heißer Ionen in radialer Richtung zu erleichtern. Zugleich wird durch die geringere Stromdichte die Heizrate redu-

ziert. Unter Einsatz dieser Technik wurde zusammen mit einem flachen axialen Potential bei borartigem Argon eine Temperatur von 7 eV erreicht [94]. Als weitere Kühlmethode, die entwickelt wurden, sind die gepulste Verdampfungskühlung [95] und die sympathetische Kühlung [96] zu nennen.

#### 2.3.5 Der magnetische Fallenmodus

Neben der Raumladung sorgt auch das starke Magnetfeld der EBIT für einen radialen Einfang der Ionen. Dies wird im sogenannten magnetischen Fallenmodus (magnetic trapping mode) [97] ausgenutzt, in der die Ionen wie in einer Penning-Malmberg-Falle [98] axial weiterhin durch die Potentialdifferenz der Driftröhren, radial aber durch das Magnetfeld gefangen sind, das die Ionen aufgrund der Lorentzkraft  $\mathbf{v} \times \mathbf{B}$  auf Kreisbahnen mit Radien von typischerweise einigen hundert Mikrometern zwingt. Beispielsweise für  $\text{Ar}^{13+}$  ergeben sich bei einer Temperatur von  $T_i = 350 \text{ eV}/k_b$  Gyrationradien von  $200 \mu\text{m}$ . Da aufgrund des fehlenden Elektronenstrahls keine Stoßanregung mehr durch diesen erfolgt, wird dieser Fallenmodus insbesondere bei Lebensdauern von metastabilen Zuständen eingesetzt, wobei die Lebensdauer durch den exponentiellen Zerfall der Photonenzählraten bestimmt wird (siehe z.B. [99, 100] und Referenzen darin). Für die hier durchgeführten laserspektroskopischen Messungen ist der Einsatz des magnetischen Fallenmodus erforderlich, um die um einen Faktor 100 stärkere Photonenzählrate aufgrund der Stoßanregung durch den Elektronenstrahl zu unterdrücken.

Schaltet man den Elektronenstrahl aus, dehnt sich die Ionenwolke in radialer Richtung aus, da aufgrund der schlagartig fehlenden negativen Raumladung des Elektronenstrahls die Coulombabstoßung der Ionen untereinander maßgeblich für die Ionenbahnen sind. Solch eine Ausdehnung der Ionenwolke wurde in einem früheren Experiment von Serpa *et al.* bei der Vermessung der Lebensdauer des  $3d^{45}D_3$ -Niveaus in titanähnlichen Xenon festgestellt [101]. Als Detektionssystem wurde ein Spektrometer mit einem verstellbaren Eintrittsspalt und einem PMT verwendet, um den optischen  ${}^5D_3 - {}^5D_2$ -Übergang zu beobachten. Bei der Positionierung des  $200 \mu\text{m}$  breiten Spalts auf die Mitte des Elektronenstrahls ergab sich ein plötzlicher Abfall der Zählrate beim Ausschalten des Elektronenstrahls. Nachdem der Eintrittsspalt um  $400 \mu\text{m}$  von der Elektronenstrahlachse und damit an den Rand der Ionenwolke verschoben wurde, ergab sich direkt nach Ausschalten des Elektronenstrahls eine schlagartige Zunahme der Zählrate. Dies wurde durch eine radiale Ausdehnung der Ionenwolke erklärt, wodurch vermehrt Ionen in den Sichtbereich des Spektrometers gelangen.

Die weitere Ausdehnung der Ionenwolke aufgrund der Coulombabstoßung wird durch das starke Magnetfeld effizient unterdrückt. Das homogene Magnetfeld  $\mathbf{B}$  in der Falle zwingt die Ionen aufgrund der Lorentzkraft  $\mathbf{F}_L = q(\mathbf{v} \times \mathbf{B})$  auf Kreisbahnen um die Magnetfeldlinien. Bei einer Iontemperatur von 150 eV beträgt der Gyrationradius für  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen

ungefähr  $150 \mu\text{m}$ . Stöße der Ionen untereinander als auch mit neutralen Atomen können zu einem Impulsaustausch führen, der die Ionen in Richtung einer niedrigeren Ionendichte diffundieren läßt. Allerdings bewirkt die Impulserhaltung, daß bei Stößen zwei gleicher Ionen die Mittelpunkte ihrer Kreisbahnen mit gleichem Betrag in entgegengesetzte Richtungen verschoben werden, so daß sich keine Gesamtverschiebung der Stoßpartner ergibt [102] und somit die Gesamtausdehnung der Ionenwolke stark gebremst wird.

Eine einfache Modellierung ausgehend von den Vlasov-Gleichungen findet sich in [103], die die zeitliche Entwicklung der Ionendichte mit der Gleichung

$$\frac{d\rho(r, t)}{dt} = -K\rho(r, t) \frac{\partial\rho(r, t)}{\partial r} \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{1}{\rho(r, t)} \frac{\partial^2\rho(r, t)}{\partial r^2} \right) \quad (2.33)$$

und der Diffusionskonstanten

$$K \approx \frac{8\sqrt{kT_i}m_i^{3/2}}{387\pi^{3/2}B^4\epsilon_0^2} \ln \Lambda \quad (2.34)$$

beschreibt. Die Güte des magnetischen Fallenmodus wird vor allem durch das Magnetfeld der EBIT bestimmt, das die radiale Driftgeschwindigkeit mit der vierten Potenz unterdrückt. In der Heidelberger EBIT kommt ein Magnetfeld von 8 T zum Einsatz, so daß im Vergleich zu anderen EBITs mit 3 T die Diffusionsgeschwindigkeit um einen Faktor 50 reduziert.

Um Informationen über die Dynamik der Ionenwolke nach dem Ausschalten des Elektronenstrahls zu erhalten, wurden exemplarisch Messungen mit  $\text{Ar}^{13+}$  durchgeführt. Hierfür wurde die EBIT in einem zyklischen Modus betrieben. Zuerst wurden für 700 ms mit einem Strom von 100 mA und einer Beschleunigungsspannung von 990 V  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen erzeugt, und danach für 500 ms im magnetischen Fallenmodus gehalten. Zum Erreichen dieser Spannung wurde an die Kathode  $-600 \text{ V}$  angelegt und das Driftröhrenensemble auf  $390 \text{ V}$  gelegt. Das axiale Potential der die Fallenmitte umgebenden Driftröhren 4 und 5 wurde auf  $1000 \text{ V}$  gesetzt. Während der gesamten Messung wurde kontinuierlich Argongas mit einem Injektionsdruck von  $6.4 \cdot 10^{-8} \text{ mbar}$  injiziert. Das durch das In-Vakuum-Linsensystem erzeugte reelle Abbild der Wolke wurde über zwei weitere Linsen mit einer Brennweite von  $150 \text{ mm}$  und einem Durchmesser von  $50 \text{ mm}$  auf den Chip der oben beschriebenen CCD-Kamera mit hoher Zeitauflösung aufgenommen. Bei jedem Zyklus wurde nach Ausschalten des Elektronenstrahls eine Aufnahme mit einer Belichtungszeit von  $10 \text{ ms}$  gemacht, wobei die Verzögerung zwischen Ausschalten des Strahls und Beginn der Belichtung variiert wurde, um die zeitliche Entwicklung der Ionenwolke zu ermitteln. Dabei wurde für jeden aufgenommenen Zeitschritt zwischen 2000 und 6000 Einzelaufnahmen aufsummiert und eine entsprechende Anzahl Dunkelaufnahmen ohne Ionenwolke aufgenommen, wobei die Ionenbildung durch eine invertierte Fallenkonfiguration unterdrückt wurde. Ebenfalls wurde

### 2.3. Die physikalischen Grundlagen einer EBIT

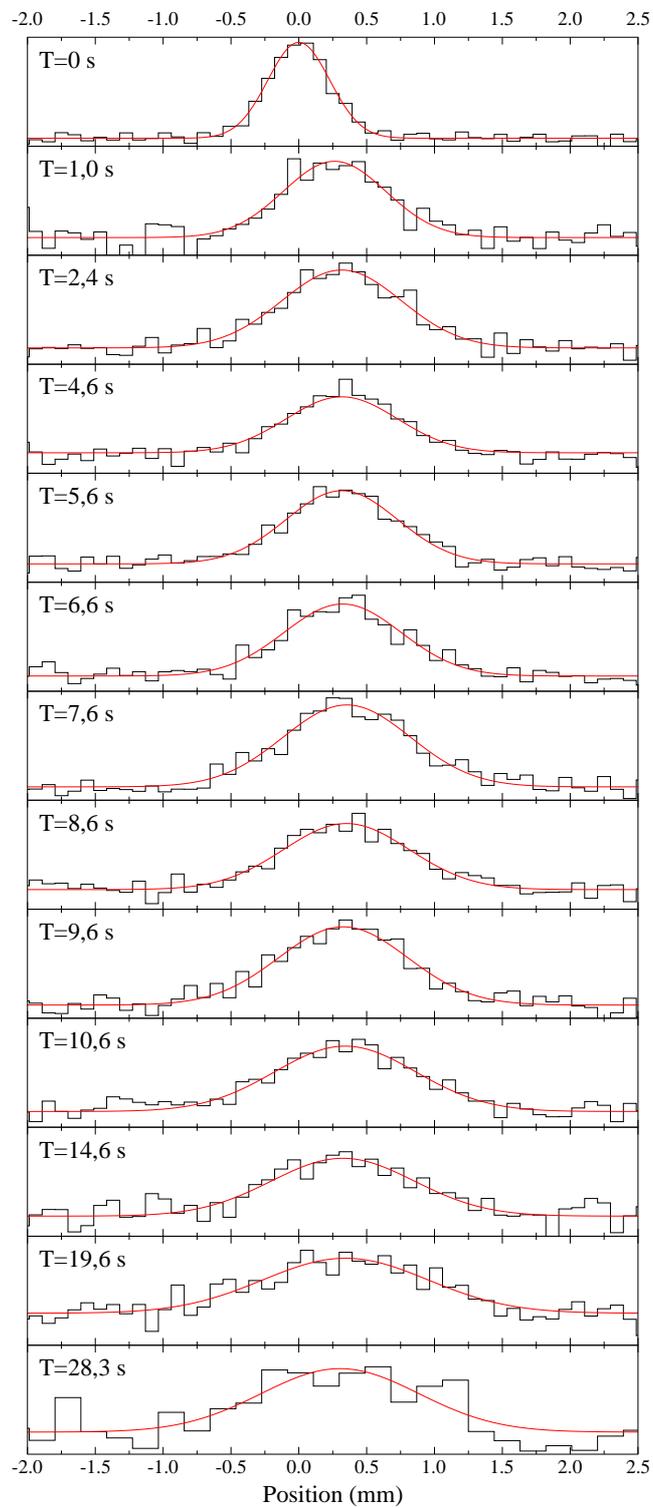


Abbildung 2.14: Zeitliche Entwicklung der Argon-Ionenwolke, nachdem der Elektronenstrahl ausgeschaltet wurde. Eine seitliche Bewegung des Schwerpunktes der Ionendichteverteilung um 0,3 mm ist deutlich zu sehen.

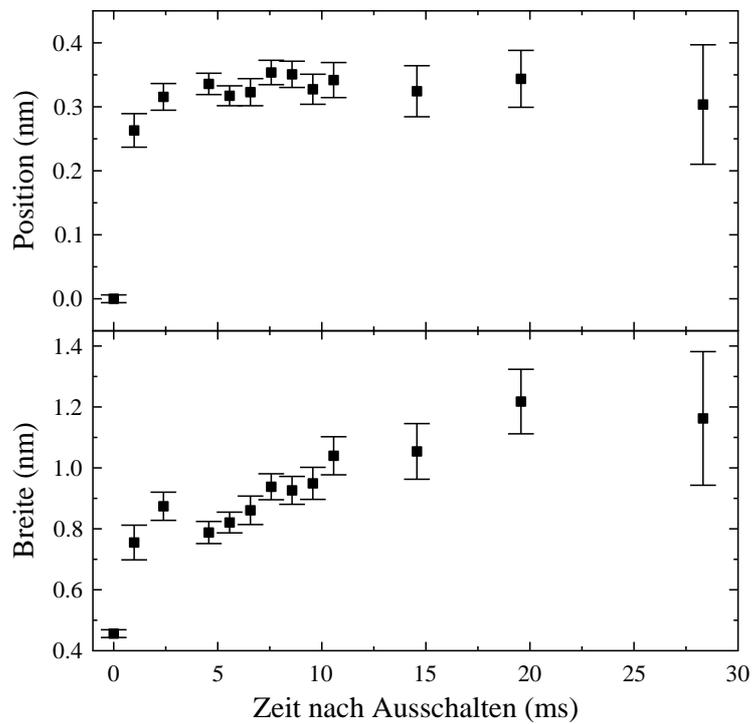


Abbildung 2.15: Zeitliche Entwicklung der Halbwertsbreite der  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenwolke und des Schwerpunkts relativ zum ursprünglichen Schwerpunkt nach Ausschalten des Elektronenstrahls.

eine Aufnahmereihe 20 ms vor Ausschalten des Strahls aufgenommen. Die resultierenden Bilder wurden auf die Achse senkrecht zum Elektronenstrahl projiziert, um das Profil der Wolke zu erhalten, das mit einem Gaußprofil angepaßt wurde. In Abbildung 2.16 ist die zeitliche Entwicklung der so erhaltenen Amplitude wiedergegeben. Beschreibt man diese Entwicklung mit einem exponentiellen Zerfall, erhält man eine Lebensdauer von  $10,0(4)$  ms, in guter Übereinstimmung mit der gemessenen Lebensdauer des angeregten  $1s^22s^22p^2P_{3/2}$  Zustands von  $\tau = 9,573(4)$  ms [100].

Abbildung 2.14 zeigt die zeitliche Entwicklung der radialen Ausdehnung der  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenwolke nach Ausschalten des Elektronenstrahls. Nach dem Ausschalten erfolgt eine instantane Aufweitung der Ionenwolke, gefolgt von einer sich verlangsamenden Expansion (Abb. 2.15 unten). Deutlich zu sehen ist eine Verschiebung des Schwerpunktes bei Ausschalten des Strahls (2.15 oben). Dies liegt daran, daß der Elektronenstrahl nicht mittig durch die Driftröhren verläuft (siehe Abbildung 3.24. Durch den Elektronenstrahl wird das effektive Potential der Falle verschoben, womit die Ionenwolke ein anderes Potential sieht. Durch das Abschalten des Elektronenstrahls fällt diese Potentialänderung weg und die Wolke verschiebt ihren Schwerpunkt.

### 2.3. Die physikalischen Grundlagen einer EBIT

---

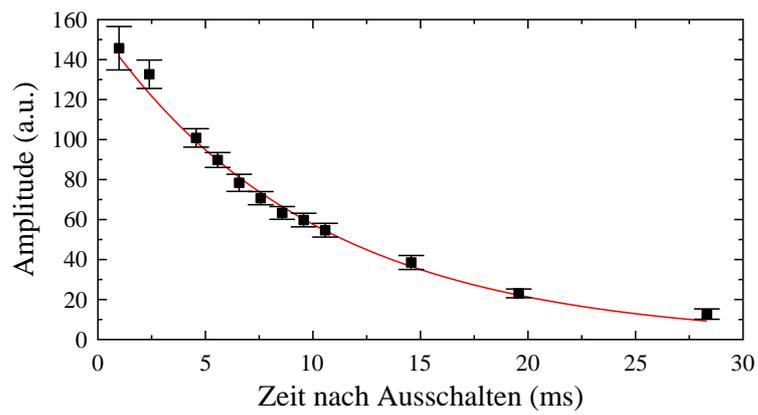


Abbildung 2.16: Zeitliche Entwicklung der Photonenzählrate des  $^2P_{3/2} - ^2P_{3/2}$ -Übergangs in  $\text{Ar}^{13+}$  nach Ausschalten des Elektronenstrahls. Die rote Linie zeigt einen exponentiellen Fit an die Zerfallskurve.



## Kapitel 3

# Experimenteller Aufbau

Nachdem im letzten Kapitel die Produktion und Speicherung hochgeladener Ionen mit der EBIT detailliert beschrieben wurde, werden im folgenden Kapitel der experimentelle Aufbau und das Prinzip der in dieser Arbeit durchgeführten Messungen dargestellt. Der für die Laserspektroskopie verwendete Aufbau sowie die Fluoreszenzdetektion und die Datenaufnahme werden erläutert. Nach der Darstellung der Meßmethode und der Charakterisierung der zur Laseranregung und zur Datenaufnahme verwendeten Komponenten erfolgt eine Abschätzung der zu erwartenden Fluoreszenzzählrate. Das Kapitel schließt mit einer Darstellung, wie der Überlapp zwischen dem Laserstrahl und der Ionenwolke hergestellt wurde, sowie dem Nachweis über die erfolgte Herstellung, ab.

### 3.1 Das Lasersystem

#### 3.1.1 Pumplaser

Das in diesen Messungen verwendete Lasersystem besteht aus einem Pumplaser und einem durchstimmbaren Farbstofflaser. Als Pumplaser wird ein Nd:YAG-Festkörperlaser (GCR-190 von Spectra-Physics) mit einer Pulsrate von 100 Hz verwendet. Als aktives Medium kommen zwei Stäbe aus Yttrium-Aluminium-Granat dotiert mit Neodym (Nd:YAG) zum Einsatz. Sie sind in Reihe im Resonator eingebaut, wobei jeder Stab von einem Paar Blitzlichtlampen umgeben ist, das sie optisch pumpt. Die Stäbe werden dabei über Kreuz mit 50 Hz gepumpt, d.h. der erste Stab wird von der oberen Lampe, der zweite Stab von der unteren Lampe aktiviert, in nachfolgenden Schritt wird der erste Stab von der unteren Lampe, der zweite Stab von der oberen Lampe gepumpt, so daß als Summe eine Schußfrequenz von 100 Hz erreicht wird. Im Nd:YAG-Kristall wird das Vier-Level-System zum Pumpen genutzt. Die Blitzlichtlampen regen Elektronen vom Grundzustand in sogenannte Pump-

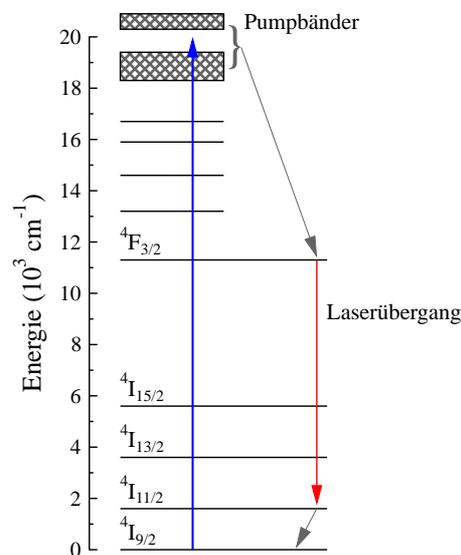


Abbildung 3.1: Energieniveaus des Nd:YAG-Lasers.

bänder an, von wo sie über strahlungslose Stöße in das obere Laserniveau  ${}^4F_{3/2}$  mit einer Lebensdauer von  $230 \mu\text{s}$  übergehen. Der wahrscheinlichste Laserübergang führt zum  ${}^4I_{11/2}$ -Zustand. Da dieser Zustand schnell in den Grundzustand zerfällt, bleibt die Besetzungszahl dieses Zustands niedrig, so daß eine Besetzungsinversion für den Laserübergang einfach herzustellen ist. Die verwendeten Energieniveaus und Übergänge sind in Abbildung 3.1 schematisch dargestellt. Durch Verkürzung des Laserpulses auf  $< 10 \text{ ns}$  wird eine Spitzenleistung von etwa  $10^7 \text{ W}$  bei einer Gesamtpulsenergie von  $350 \text{ mJ}$  erreicht. Die Pulsdauer wird mit einem elektrooptischen Kristall (Pockelszelle) gesteuert, der durch Drehung der Polarisationsrichtung die Güte des Resonators und somit die Laserschwelle steuern kann. Die Pockelszelle wird geschaltet, nachdem sich durch das Pumpen eine maximale Besetzungsinversion eingestellt hat (Q-Switching). Die Wellenlänge des Lasers liegt im Infraroten bei  $1064 \text{ nm}$ . Durch nichtlineare harmonische Kristalle kann die zweite Harmonische ( $532 \text{ nm}$ , Pulsenergie  $120 \text{ mJ}$ ) und die dritte Harmonische ( $355 \text{ nm}$ ,  $70 \text{ mJ}$ ) erzeugt werden.

### 3.1.2 Farbstofflaser

Als Farbstofflaser wird ein Laser der Firma Sirah verwendet (Typ: PrecisionScan). Als laseraktives Material kommen verschiedene Farbstoffmoleküle zum Einsatz, die aufgrund der Aufspaltung elektronischer Niveaus in viele dicht beieinanderliegende Vibrations- und Rotationsniveaus mit überlappenden Emissionslinien ein kontinuierliches Fluoreszenzspektrum besitzen. Dies ermöglicht eine kontinuierliche Durchstimbarkeit des Farbstofflasers, wobei die zur Verfügung stehende Bandbreite abhängig vom Farbstoff zwischen  $10 \text{ nm}$  und  $100 \text{ nm}$  liegt.

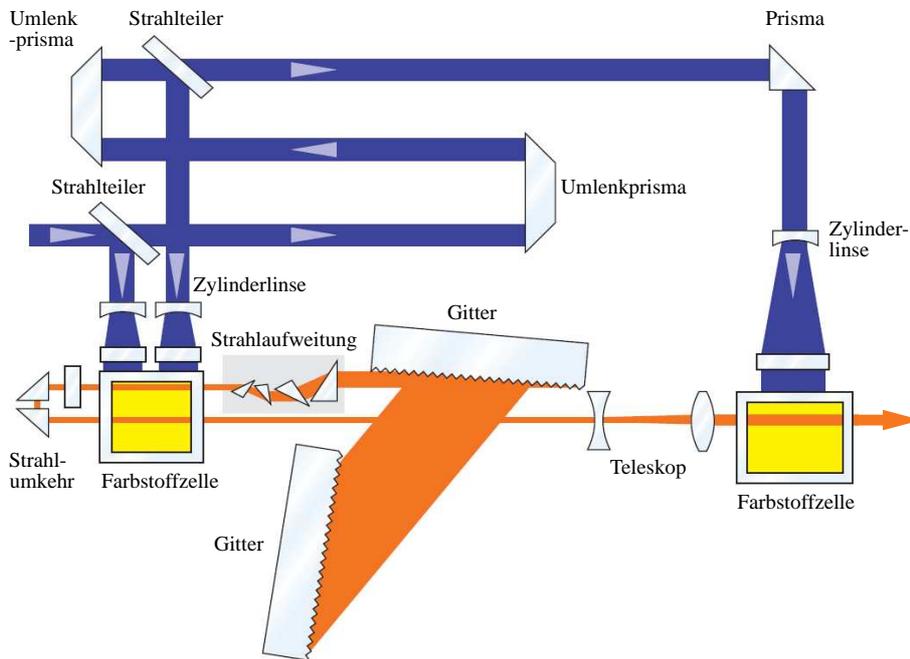


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung des PrecisionScan Farbstofflasers.

Der Resonator besteht aus einem Auskoppler, zwei Gittern in Littrow-Konfiguration, mit denen die gewünschte Wellenlänge ausgewählt werden kann, und einer Küvette, durch die der Farbstoff, gelöst in einem geeigneten Lösungsmittel, fließt. Der Pumpstrahl wird mit zwei Strahlteilern zur Küvette geleitet und mittels Zylinderlinsen je zu einer Linie fokussiert. Mit dem ersten Strahl wird der Farbstoff im Resonator gepumpt, der zweite Strahl pumpet einen zweiten Bereich der Küvette, der als Vorverstärker für den ausgekoppelten Laserstrahl dient, der mithilfe dreier Prismen gedreht und am Ort des zweiten Pumpstrahls wieder durch die Küvette geschickt wird. Schließlich läuft der Strahl durch eine zweite Küvette, die mit dem größten Anteil der Pumpenergie versorgt wird und als Hauptverstärker für den Farbstofflaser dient. Das Schema des Lasers ist in Abbildung 3.2 dargestellt. Die Ausgangsleistung des Lasers hängt von der Leistung des Pumplasers und der Konversionseffizienz des Farbstoffes ab, die üblicherweise zwischen 10 % und 20 % liegt. Die Wellenlänge des Lasers wird durch Wahl des Winkels des zweiten Gitters im Resonator eingestellt. Die Steuerung des Winkels erfolgt mittels eines Schrittmotors über ein mechanisches Getriebe, wobei sich pro Schritt die Wellenlänge des Lasers um 0,22 nm ändert. Die Positionen des Schrittmotors werden von einem mechanisch festgelegten Nullpunkt aus gezählt und sind damit eindeutig bestimmt.

Der Farbstofflaser läßt sich über den gesamten optischen Bereich von 330 nm bis 900 nm durchstimmen, wobei unter der Verwendung eines Frequenzverdopplers (second harmonic generator, SHG) der Bereich bis zu 200 nm erfaßt werden kann. Für die Experimente zur

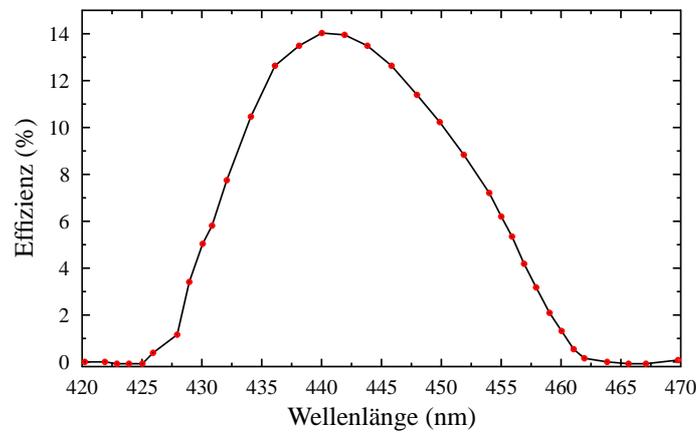


Abbildung 3.3: Effizienzkurve von Coumarin 120.

Anregung des M1-Übergangs in  $\text{Ar}^{13+}$  mit der Wellenlänge  $\lambda = 441,256 \text{ nm}$  wurde der Farbstoff Coumarin 120 gelöst in Ethanol verwendet, der sein Effizienzmaximum von 14 % bei 441 nm aufweist. Die Effizienzkurve ist in Abbildung 3.3 gezeigt. Die maximale Ausgangsleistung des Farbstofflasers betrug 800 mW bzw 8 mJ pro Puls.

<b>Nd:YAG-Laser</b>		
Wellenlänge [ $\lambda$ ]	Pulsdauer [ns]	Pulsenergie [mJ]
1064	8 – 9	350
532	6 – 7	120
355	5 – 6	70
Linienbreite	$\Delta\nu \simeq 30 \text{ GHz}$	
Repetitionsrate	100 Hz	
Strahldivergenz	< 0.5 mrad	
<b>Farbstofflaser</b>		
Wellenlängengenauigkeit	< 30 pm	
Wellenlängenstabilität	2 pm/°C	
Divergenz (typisch)	0.5 mrad	
Polarisation	> 98 % (vertikal)	
ASE (amplified stimulated emission)	< 0.5 %	
Linienbreite $\Delta\nu$	0.0012 nm bzw 1,85 GHz	

 Tabelle 3.1: Kenndaten für den Nd:YAG-Laser (*Spectra Physics*) sowie für den Farbstofflaser (*Sirah Dye Precision Scan*)

### 3.2. Strahlführung

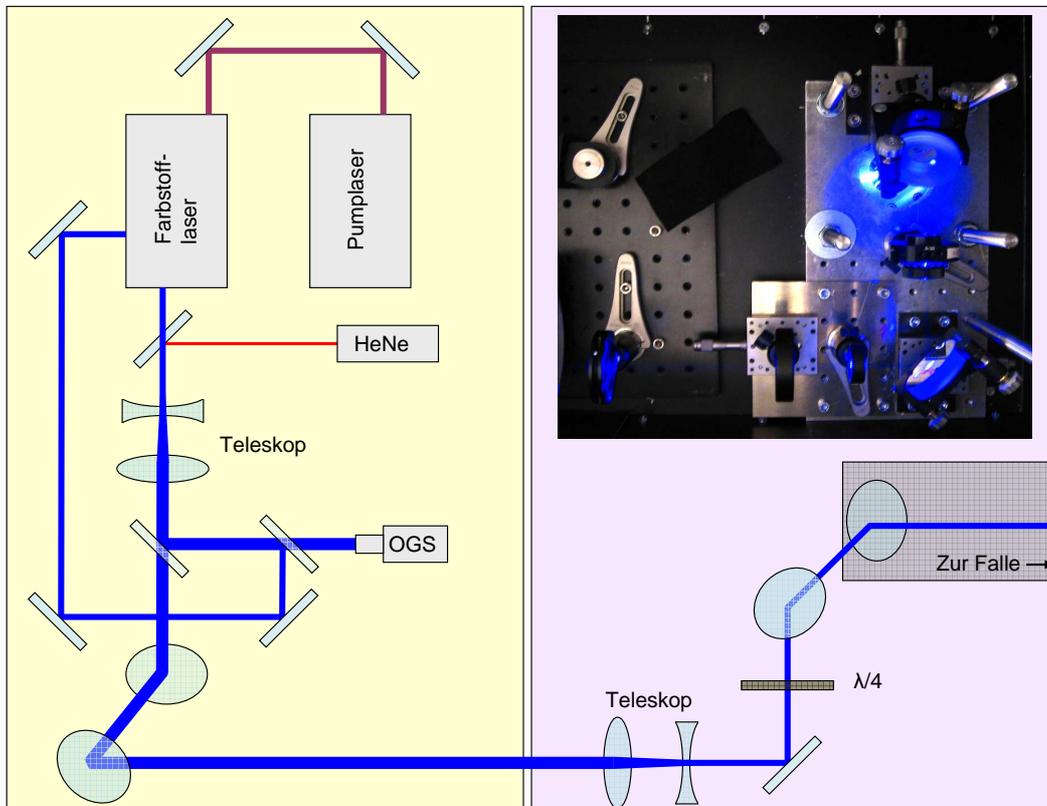


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung des Strahlengangs. Der gelb unterlegte Teil befindet sich im Laserlabor, der rötlich unterlegte im EBIT-Labor. Auf dem Bild rechts oben ist das Teleskop zum Fokussieren sowie die zwei Spiegel außerhalb des Vakuums zur Justage des Laserstrahls gezeigt.

### 3.2 Strahlführung

Das gesamte Lasersystem ist zwecks Temperaturstabilisierung in einem eigenen klimatisierten Raum untergebracht, der direkt neben dem Labor liegt, in dem die EBIT aufgestellt ist. Der Laserstrahl wird erst durch ein galileisches Teleskop, bestehend aus einer plankonkaven Linse mit 50 mm Brennweite und einer plankonvexen Linse mit 200 mm Brennweite, auf den vierfachen Radius aufgeweitet. Danach wird der Strahl mit zwei geeigneten Spiegeln ( $\lambda/10$  Aluminiumbeschichtete Spiegel vom Typ Valumax der Firma Newport) durch eine Wanddurchführung in das EBIT-Labor geleitet (Siehe Abbildung 3.4).

Im EBIT-Labor wird der Laserstrahl durch den Kollektor coaxial zum Magnetfeld in die EBIT eingekoppelt und auf die Ionenwolke fokussiert. Die Einkopplung ins Vakuum erfolgt durch ein horizontal angebrachtes Glasfenster, das sich hinter dem Kollektor befindet. Ein dielektrischer Breitbandspiegel (Semrock MaxMirror) im Vakuum, der mittels eines pneumatischen Manipulators in den Strahlengang der EBIT eingefahren wird, lenkt den von oben kommenden Laserstrahl um, so daß er coaxial zum Magnetfeld durch den Kollektor

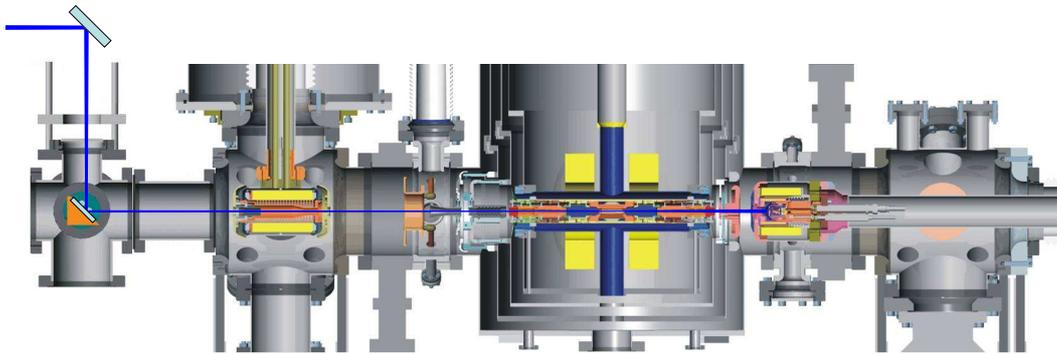


Abbildung 3.5: Strahlengang des Lasers durch die EBIT. Der von links kommende Laserstrahl wird mit zwei Umlenkspiegeln (von denen nur einer gezeigt ist) senkrecht nach unten umgelenkt und tritt durch ein horizontales Quarzfenster in das Vakuum ein. Ein im Vakuum festsitzender Spiegel reflektiert den Strahl um  $90^\circ$ , so daß er koaxial zur EBIT-Achse durch den Kollektor und die Driftröhren läuft, bis er an der Kathode in der Elektronenkanone gestoppt wird.

und die Driftröhren läuft. Auf dem optischen Port fest fixiert befindet sich ein kleiner optischer Tisch, auf dem zwei Spiegel auf Linearmanipulatoren montiert sind, die den aus dem Laserraum kommenden Strahl senkrecht nach unten durch den optischen Port auf den im Vakuum sitzenden Spiegel lenken. Diese zwei Spiegel dienen der Feinjustage des Laserstrahls, um einen optimalen Überlapp mit der Ionenwolke herzustellen. Dabei lassen sich mit den Linearmanipulatoren die horizontale bzw. vertikale Position des Lasers in der Fallenmitte, und mit Justageschrauben in den Spiegelhalterungen der Winkel des Lasers zur EBIT-Achse jeweils einstellen. Die Fokussierung des Strahls erfolgt mit Hilfe eines weiteren Teleskops, bestehend aus einer plankonvexen Linse mit 150 mm Brennweite und einer plankonkaven Linse mit 100 mm Brennweite. Das Teleskop reduziert zum einen den Strahldurchmesser um 30 %, um später Streulicht zu vermeiden, zum anderen wird der Laser auf die 135 cm entfernte Fallenmitte fokussiert. Nach Durchlaufen der Fallenregion trifft der Strahl auf die Kathode in der Elektronenkanone und wird dort gestoppt. Der Strahlengang des Lasers in der EBIT ist in Abbildung 3.5 gezeigt.

### 3.3 Kalibration

#### 3.3.1 Hohlkathodenlampe

Um den Laser zu kalibrieren, wird ein Teil des Strahls im Laserlabor auf eine Hohlkathodenlampe gelenkt und unter Ausnutzung des optogalvanischen Effekts die Wellenlänge bestimmt [104]. Dieser Effekt beruht auf der Tatsache, daß sich bei einer Gasentladung der Strom bei einer fest angelegten Spannung durch Absorption von Photonen verändern

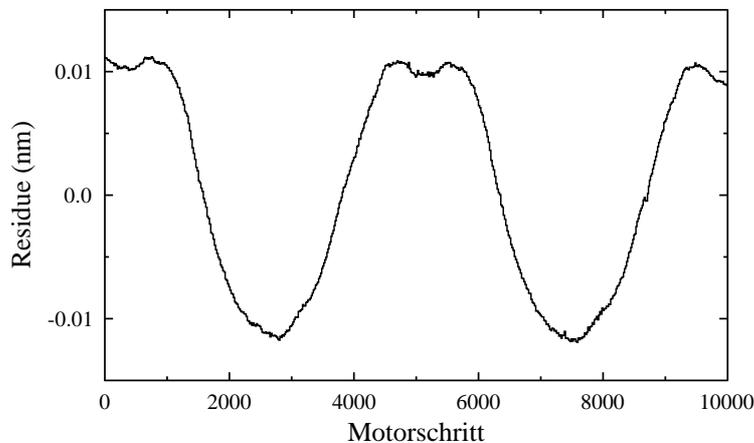


Abbildung 3.6: Residuum einer Parabel als Dispersionskurve. Die Abweichungen ergeben sich aus der nichtkonstanten Schrittgröße des Gitterwinkels beim Durchfahren des Schrittmotors.

läßt. Die Übergänge in den Gasatomen, die angeregt werden und in der Regel zu einer verkleinerten Ionisationsenergie und damit zu einem größeren Entladungsstrom führen, sind dabei sehr genau bekannt. Für eine Kalibration betrachtet man die Stromänderungen, induziert durch die einzelnen Laserschüsse, in Abhängigkeit von der Laserfrequenz. Mittels Durchstimmen der Laserfrequenz über einen größeren Wellenlängenbereich und gleichzeitiger Aufnahme des Entladungsstroms können so Referenzlinien aufgenommen werden, mit denen die Laserwellenlänge kalibriert wird. In den hier durchgeführten Messungen wurde eine Lampe mit Neon als Füllgas benutzt und die Wellenlängen der Übergänge aus [105] entnommen. Die Hohlkathodenlampe wird von einer Spannungsversorgung OGC-PS der Firma *Sirah* betrieben, die an einem Ausgang bei jedem Laserschuß ein Signalpuls mit einer Fläche proportional zur Stromänderung ausgibt. Mit Hilfe der bekannten Übergangsfrequenzen kann man im Prinzip eine Dispersionsfunktion zwischen Motorschritt und Wellenlänge erstellen. Allerdings zeigt sich, daß die Schrittgröße der Wellenlängenänderung nicht gleichmäßig ist, sondern aufgrund von Unzulänglichkeit der verwendeten Mechanik periodischen Schwankungen unterworfen ist, welche die sich mit dem Motorschritt stetig ändernde Wellenlänge um die eigentliche Dispersionsfunktion schwanken läßt. Diese Schwankungen lassen sich deutlich erkennen, wenn man z.B. die Interferenzmaxima eines Etalons (siehe Abschnitt 3.3.2) gegen den Motorschritt über einen Wellenlängenbereich von 1 nm aufträgt und das Residuum der Daten zu einer geeigneten Dispersionskurve (in diesem Beispiel wird eine Parabel verwendet) betrachtet. Ein solches Residuum ist in Abbildung 3.6 gezeigt.

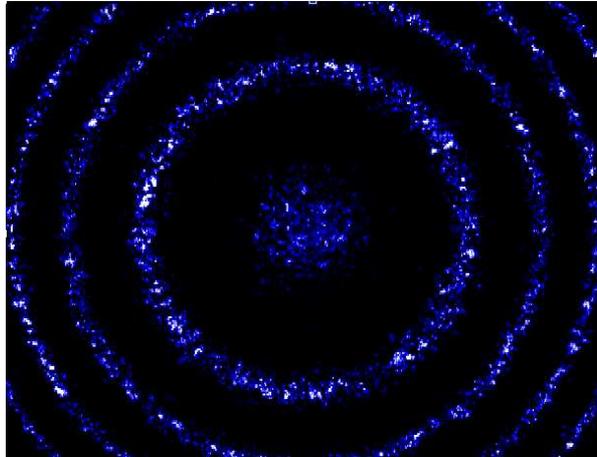


Abbildung 3.7: Interferenzmuster des Etalons im Sirah Lambda-Lock-Systems, aufgenommen mit der dazugehörigen, fest eingebauten CCD-Kamera.

### 3.3.2 Etalon

Um bei dem Durchfahren des Gitters die Schrittgröße der Wellenlängenänderung zu vermessen, wird ein weiterer Teil des Strahls zurück zum Farbstofflaser in ein zum Laser gehöriges, internes System zur Wellenlängenstabilisierung (Lambda-Lock) eingespeist. Es besteht aus einem Luftspalt-Etalon mit einem freien Spektralbereich von 0,1 nm und einer fest mit dem Etalon montierten CCD-Kamera. Der Laserstrahl wird mit einer Streulinse aufgeweitet, bevor es durch das Etalon läuft. Das Interferenzmuster wird mittels einer Sammellinse auf eine CCD-Kamera abgebildet. Alternativ zum Lambda-Lock steht ein Etalon (Firma SLS Optics) mit einem freien Spektralbereich von  $\delta\lambda = 0,004$  nm bei 440 nm und einer effektiven Finesse  $F = 11$  zur Verfügung. Ein Teil des Laserstrahls wird durch ein Teleskop mit fünffacher Vergrößerung aufgeweitet und als paralleler Strahl durch das Etalon geführt. Das transmittierte Licht wird von einer Photodiode ausgelesen. Bei einem Etalon der Länge  $l$  und der optischen Wegdifferenz  $2l$  werden solche Wellenlängen  $\lambda_m$  maximal durchgelassen, für die gilt:

$$m\lambda_m = 2l. \quad (3.1)$$

Durchfährt man die Wellenlänge  $\lambda$ , erhält man periodisch Maxima, wobei der Abstand zwischen zwei Maxima durch den freien Spektralbereich

$$\delta\lambda = \frac{\lambda_m}{m+1} \quad (3.2)$$

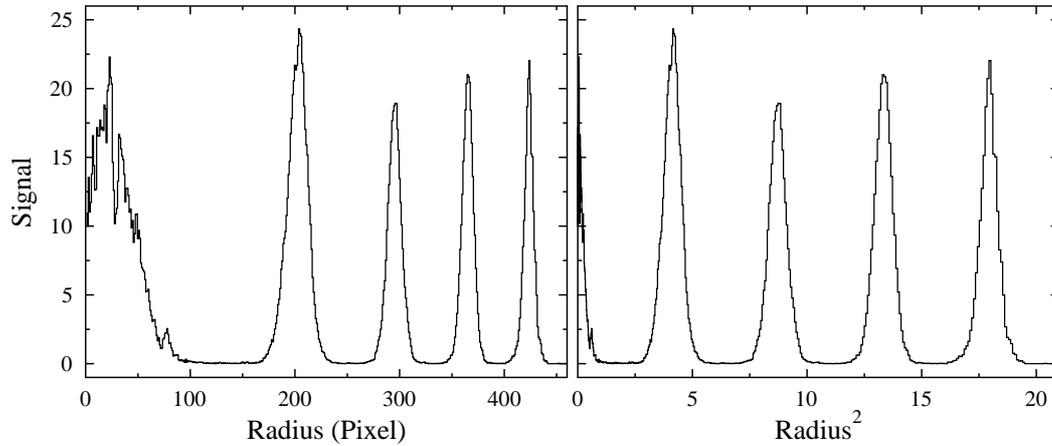


Abbildung 3.8: Interferenzmuster aus Abbildung 3.7, radial aufsummiert (linker Graph). Im rechten Graphen das selbe Interferenzmuster wie links, allerdings ist die x-Achse quadriert und durch  $10^4$  normiert, um gemäß Gleichung (3.7) einen linearen Verlauf der Maxima zu erhalten.

bestimmt ist. Die Anzahl der durchfahrenen Interferenzordnungen gibt ein Maß für die Wellenlängenänderung.

Bei dem laserinternen Lamda-Lock wird nicht nur die Transmission in der Mitte des Interferenzbildes, sondern das vollständige Interferenzmuster bis zur vierten Ordnung mit einer CCD-Kamera registriert. Anhand der Veränderungen des Interferenzmusters wird die Frequenzänderung des Lasers registriert. Die Transmission eines Etalons ist durch die Airy-Funktion

$$I_t = I_0 \frac{1}{1 + F \sin^2(\Delta/2)} \text{ mit } \Delta = \frac{2\pi}{\lambda} 2l \cos \alpha \quad (3.3)$$

gegeben [106]. Die Transmission wird dann maximal, wenn das Licht das Etalon unter den Winkeln  $\alpha_p$  zur Flächennormalen durchläuft, für welche die Bedingung

$$2l \cos \alpha_p = m\lambda \quad (3.4)$$

erfüllt ist. Durchstrahlt man das Etalon mit monochromatisches Licht, erhält man ein System konzentrischer Ringe  $p$  (siehe Abbildung 3.7), die jeweils unter dem Winkel  $\alpha_p$  erscheinen, wobei die Ordnung  $m$  von innen nach außen kleiner wird [107]. Ist der Winkel des innersten Ringes  $\alpha_0 = 0$ , so gilt wieder Gleichung (3.3.2) mit  $m = m_0$ . Ist  $\alpha_0 > 0$ , so gilt  $2d > m_0\lambda$ . Die Differenz

$$\epsilon = \frac{d}{\lambda/2} - m_0 \quad (3.5)$$

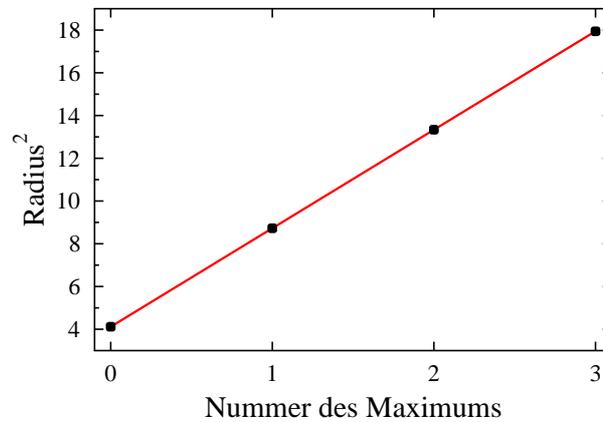


Abbildung 3.9: Quadrierte Positionen der Maxima aufgetragen gegen die entsprechende Nummer der Maxima. Die fraktionale Ordnung  $\epsilon$  ergibt sich aus dem Quotienten aus dem y-Achsenabschnitt und der Steigung.

gibt in Einheiten von  $\lambda/2$  (bzw. den Anteil einer Ordnung) an, um wieviel der doppelte Plattenabstand länger ist als  $m_0\lambda$ . Da die Winkel  $\alpha \ll 1$  sind, kann mit  $\cos \alpha \approx 1 - \alpha^2/2$  (3.4) geschrieben werden als

$$2l\left(1 - \frac{\alpha_p^2}{2}\right) = (m_0 - p)\lambda. \quad (3.6)$$

Damit ergeben sich die Winkel  $\alpha_p$  der Interferenzringe und somit ihre Radien auf der CCD zu

$$\alpha_p^2 = \frac{\lambda l}{p + \epsilon} \text{ bzw. } r_p^2 = \frac{f^2 \lambda l}{p + \epsilon}, \quad (3.7)$$

wobei die Radien  $r_p$  mit der Brennweite  $f$  der abbildenden Sammellinse über

$$r_p = f \tan \alpha \approx f \alpha \quad (3.8)$$

zusammenhängen. Abbildung 3.8 zeigt im linken Graph die Winkelsummutation des Interferenzspektrums aus 3.7 und im rechten Graph das selbe Spektrum, allerdings mit quadrierter x-Achse. Trägt man die quadrierten Radien gegen die Nummer  $p$  der Interferenzringe auf, wobei die Ringe von innen nach außen durchgezählt werden, ergibt sich eine Gerade mit der Steigung  $f^2\lambda/l$  und dem y-Achsenabschnitt  $\epsilon f\lambda/d$ . Teilt man den y-Achsenabschnitt durch die Steigung, erhält man somit direkt die fraktionale Ordnung  $\epsilon$ . Wird die Laserwellenlänge schrittweise von kleineren zu größeren Wellenlängen verstellt, steigt  $\epsilon$  für jeden Schritt soweit an, bis eine neue Transmissionsordnung für  $\alpha = 0$  erreicht ist. Summiert man zur jeweiligen fraktionellen Ordnung  $\epsilon$  die Anzahl der bereits durchfahrenen Maxima

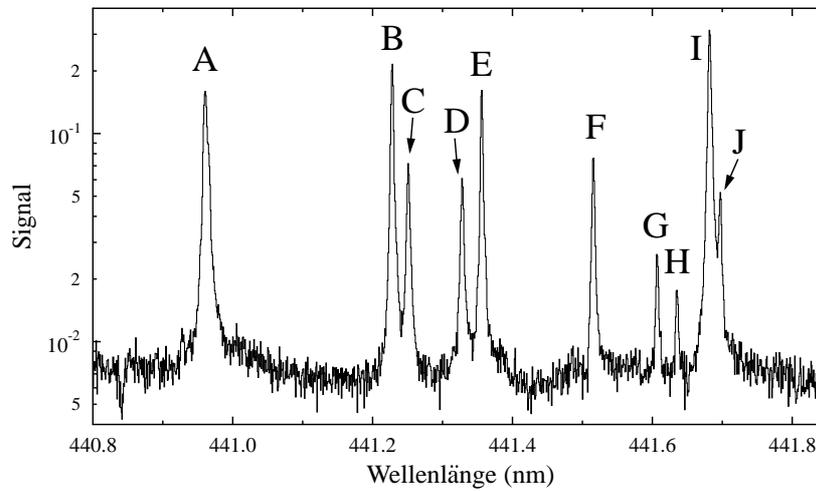


Abbildung 3.10: Kalibrationsspektrum einer Eisen-Hohlkathodenlampe mit Neon als Füllgas.

$n$  bei  $\alpha = 0$ , erhält man für die einzelnen Wellenschritt die Ordnungszahlen  $n + \epsilon$ , die unter Verwendung der Beziehung

$$\lambda = \frac{2l}{m_0 + n + \epsilon} \quad (3.9)$$

in Wellenlängen umgerechnet werden können. Die Größen  $2l$  und  $m_0$  werden über ein Kalibrationsspektrum mit bekannten Übergangswellenlängen bestimmt.

### 3.3.3 Kalibration der im Wellenlängenbereich des M1-Übergangs liegenden Neonlinien

Die Kalibration des Lasers während der Fluoreszenzmessungen erfolgt mit Hilfe des zeitgleich aufgenommenes Signal der Hohlkathodenlampe. Abbildung 3.10 zeigt ein Kalibrationsspektrum von 440,8 - 441,8 nm einer Eisen-Hohlkathodenlampe mit Neon als Füllgas. Um den Bereich des M1-Übergangs von Argon bei 441,256 nm finden sich 10 Linien, von denen allerdings nur fünf (A, B, E, F, I) vermessen wurden [108], wobei die ermittelten Wellenlängen nicht die gewünschte Genauigkeit haben. Daher wurden die Wellenlängen dieser zehn Linien über sehr genau bekannte Neonlinien bestimmt, die sich in der erweiterten näheren Umgebung befinden. Ein Teil des Laserstrahls wurde in die Hohlkathodenlampe geleitet, ein weiterer Teil durch das vorher beschriebene Etalon. Die mit der Photodiode registrierte Transmission wurde parallel zum Signal der Hohlkathodenlampe und der Position des Schrittmotors registriert. Abbildung (3.11) zeigt einen Ausschnitt des Hohlkathodenspektrums aus (3.10) zusammen mit dem Interferenzmuster des Etalons.

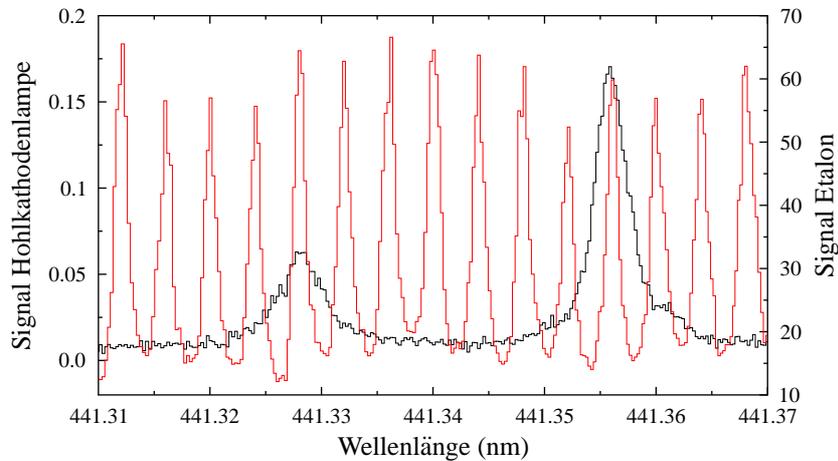


Abbildung 3.11: Kalibrationsspektrum einer Eisen-Hohlkatodenlampe mit Neon als Füllgas.

Der Farbstofffaser wurde zwischen 430 und 450 nm mit der kleinsten Schrittweite von 0,2 pm durchfahren. Insgesamt wurden 27 Scans aufgenommen, wobei die Laserwellenlänge abwechselnd aufsteigend und absteigend durchfahren wurde. Für die Auswertung wurden zuerst die Positionen der Interferenzmaxima bestimmt, indem an jedes einzelne Maximum eine Gaußkurve angepaßt wurde und dessen Zentrum bestimmt wurde. Anschließend wurden die Maxima von der kleinsten Wellenlänge an aufsteigend durchnummeriert. Man erhält eine Liste mit den Maximapositionen in Einheiten von Motorschritten und der zugewiesenen Ordnungsnummer. Bei einem Interferometer der Länge  $l$  tritt ein Transmissionsmaximum immer dann ein, wenn der Laufwegunterschied  $\delta$  ein ganzzahlig Vielfaches der Wellenlänge ist:

$$\delta = 2l = n\lambda. \quad (3.10)$$

Fängt man bei einer willkürlichen Wellenlänge  $\lambda_0$  an, die Transmissionsmaxima durchnummerieren, ergibt sich folgender Zusammenhang zwischen der Wellenlänge  $\lambda$  und der Nummer  $a$  eines Maximums:

$$\lambda = \frac{\lambda_0}{1 - a/a_0}, \quad (3.11)$$

wobei  $a_0$  die Ordnung des Maximums angibt, dem bei der Durchnummerierung die 0 zugewiesen wurde. Für die Kalibrierung der aufgenommenen Spektren werden anhand der erhaltenen Listen der Interferenzmaxima die Motorschritte in Ordnungsnummern umgerechnet, wobei für Motorschritte, die zwischen zwei Maxima liegen, der entsprechende Wert durch lineare Interpolation ermittelt wird. Anschließend werden die Positionen vorgegebener Neonlinien bestimmt, wobei die einzelnen Linien durch Lorentzkurven angepaßt

### 3.3. Kalibration

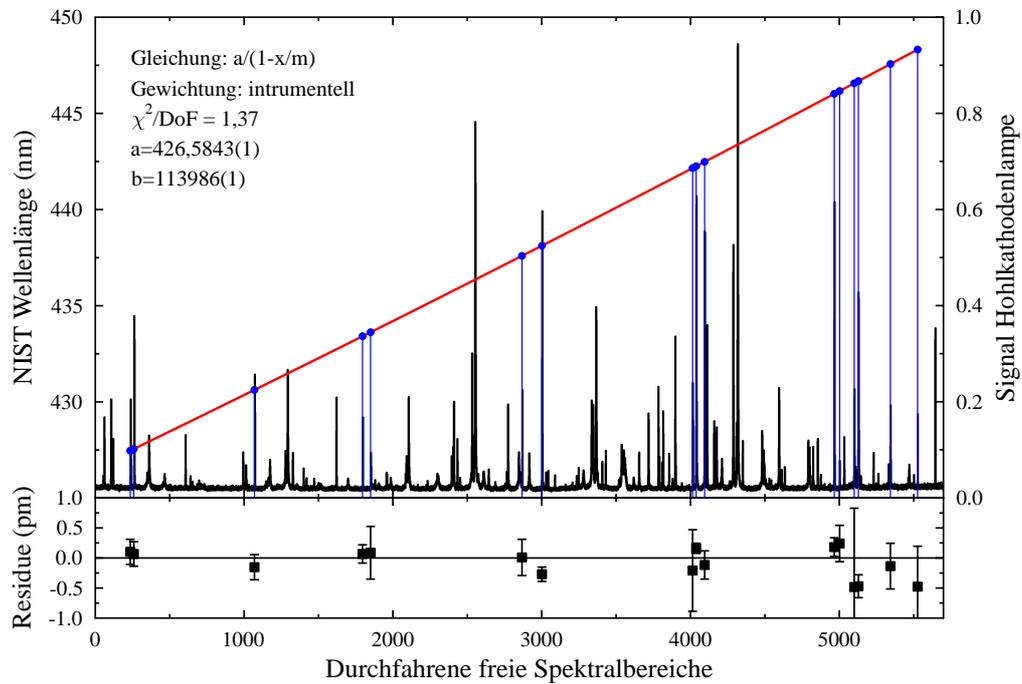


Abbildung 3.12: Kalibrationsspektrum einer Eisen-Hohlkatodenlampe mit Neon als Füllgas.

Element	Wellenlänge(nm)
NeI	427.46617(20)
NeI	427.55590(20)
NeI	430.62508(20)
NeI	433.41267(5)
NeI	433.62268(20)
FeI	437.5929(3)
NeI	438.1220(1)
NeI	442.15553(20)
NeI	442.25205(5)
NeI	442.48065(20)
NeI	446.0175(1)
FeI	446.1652(3)
NeI	446.56544(20)
NeI	446.68120(5)
NeI	447.5656(1)
NeI	448.3190(1)

Tabelle 3.2: Zur Kalibration verwendete Übergänge in Neon und Eisen. Die Wellenlängen sind aus [105] und [109] entnommen, verfügbar online unter [110].

Linie	Wellenlänge (nm)
A	440.96043(4)
B	441.22801(3)
C	441.25109(4)
D	441.32788(5)
E	441.35591(3)
F	441.51545(3)
G	441.60702(5)
H	441.63502(6)
I	441.68202(3)
J	441.69696(5)

Tabelle 3.3: Gewichtete Mittelwerte der Linien, die als Referenzen für die Laserfluoreszenzmes-  
sungen des M1-Übergangs in Argon verwendet werden.

wurden. Anschließend wurde mit der Beziehung (3.11) eine Dispersionskurve bestimmt für die Umrechnung der Ordnungsnummern in Wellenlängen. Abbildung 3.12 zeigt ein entsprechendes Kalibrationsspektrum. Die Wellenlängen der zur Kalibration verwendeten Neonlinien sind in Tabelle 3.3.3 aufgelistet. Nach erfolgter Kalibration wurden bei jedem Spektrum die Wellenlängen der für die Fluoreszenzmessungen relevanten Linien bestimmt, wobei als resultierender Fehler die Summe aus dem Fehler der Schwerpunktsbestimmung und des  $1 - \sigma$ -Vertrauensintervalls der Dispersionskurve genommen wurde. Anschließend wurde aus allen 27 Einzelmessungen der gewichtete Mittelwert gebildet. Die einzelnen Werte sowie der erhaltene Mittelwert sind in den Graphen (3.13) und (3.14) gezeigt. Die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse sowie die hohe Auflösung führen zu einer sehr hohen Genauigkeit der Wellenlängen im Bereich von  $3 \cdot 10^{-5}$  bis  $6 \cdot 10^{-5}$  nm. Der systematische Fehler aufgrund der Wellenlängenungenauigkeiten der Kalibrationslinien aus Tabelle 3.3.3 beträgt dabei  $2 \cdot 10^{-5}$  nm.

### 3.3.4 Kalibration der einzelnen Scans

Bei jedem Scan werden zeitgleich das Linienspektrum der Hohlkathodenlampe sowie für jeden einzelnen Schritt das Interferenzmuster des Etalons im Farbstofflaser aufgenommen. Die durchfahrenen Ordnungen wurden mit der Funktion

$$\lambda = \frac{a}{1 + x/m_0} \quad (3.12)$$

angepaßt, wobei die mit  $a = 2l/m_0$  und  $x = n + \epsilon$  der Beziehung (3.9) entspricht. Als Referenzwellenlängen wurden die Werte aus Tabelle 3.3.3 genommen. Abbildung 3.15 zeigt

### 3.3. Kalibration

---

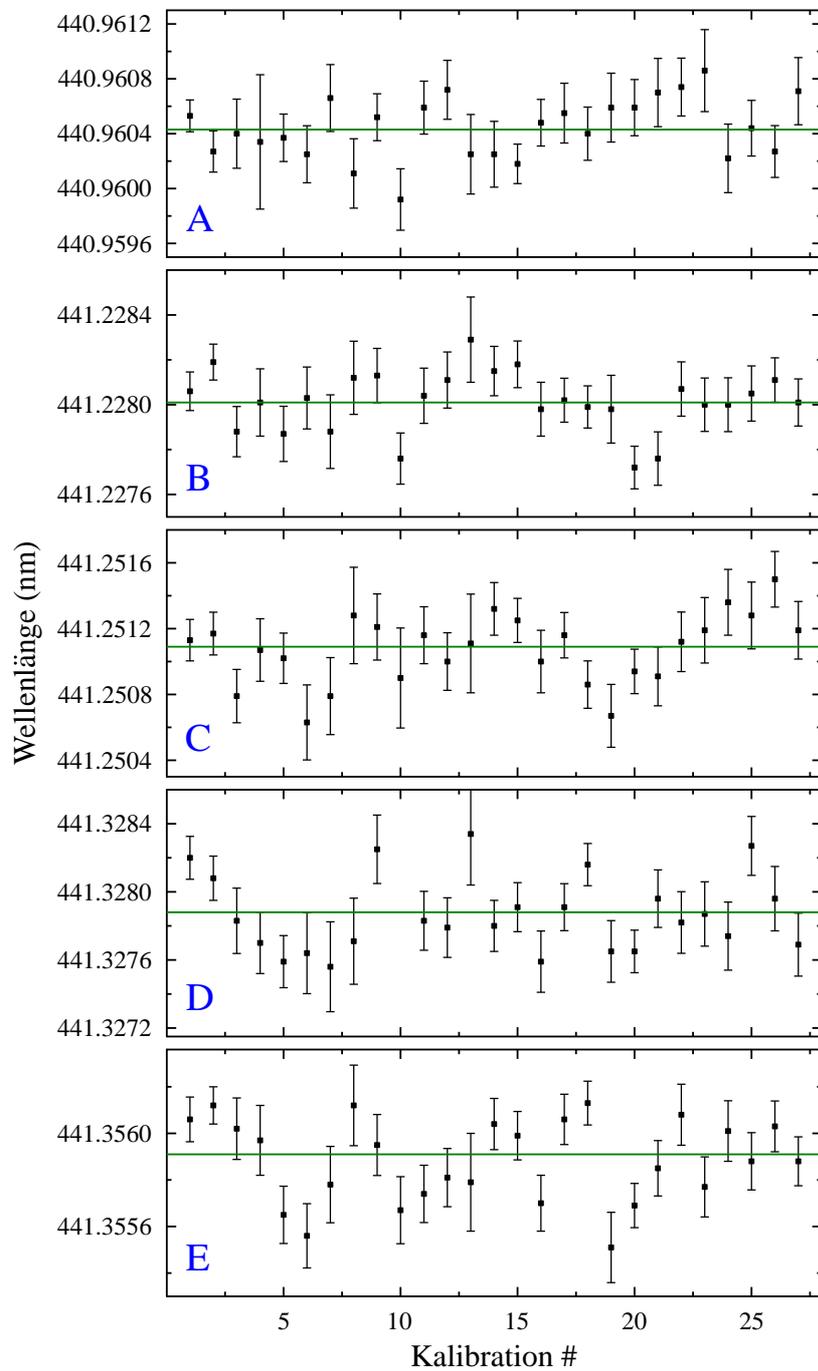


Abbildung 3.13: Bestimmung der Wellenlänge der Kalibrationslinien im Kalibrationsspektrum einer Eisen-Hohlkatodenlampe mit Neon als Füllgas.

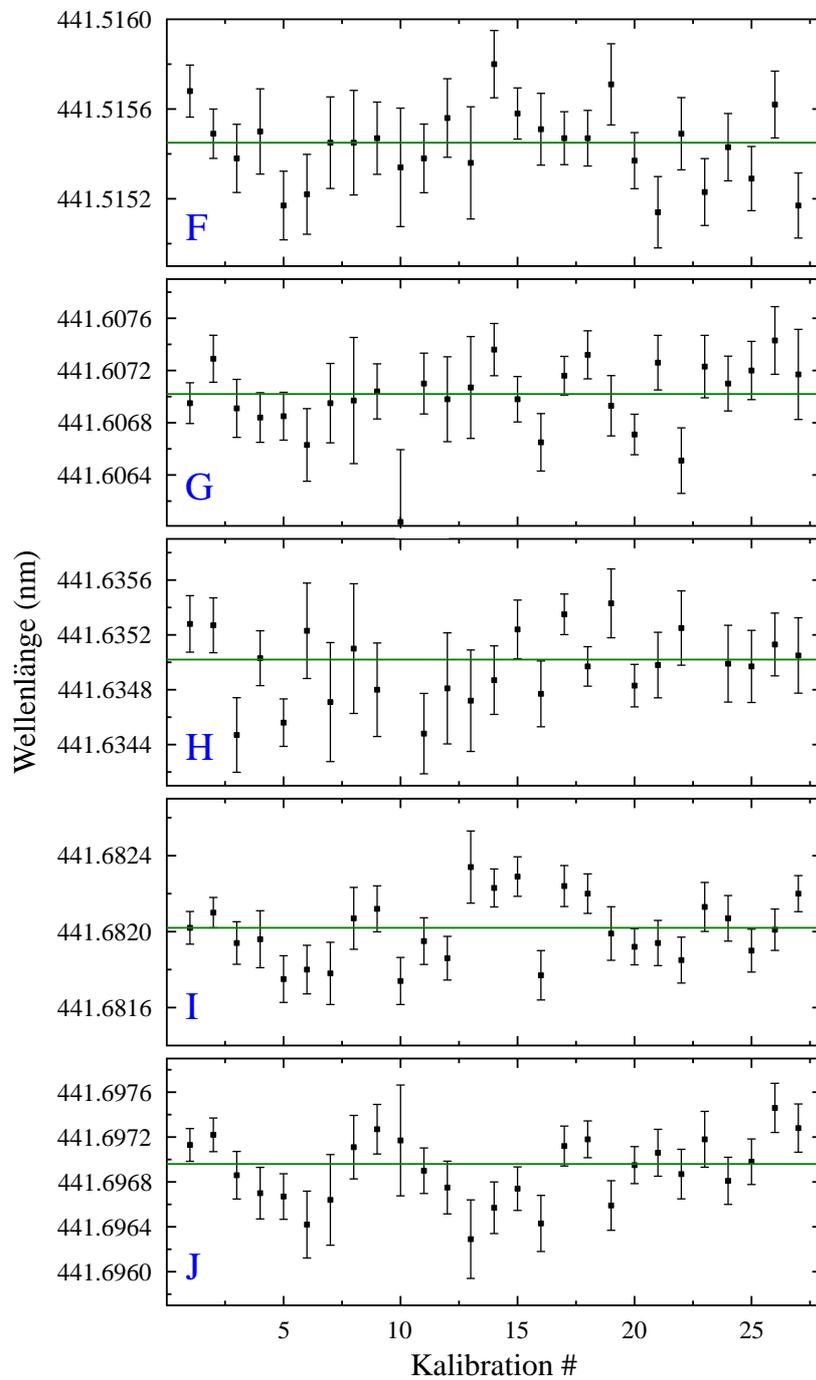


Abbildung 3.14: Bestimmung der Wellenlänge der Kalibrationslinien im Kalibrationsspektrum einer Eisen-Hohlkatodenlampe mit Neon als Füllgas.

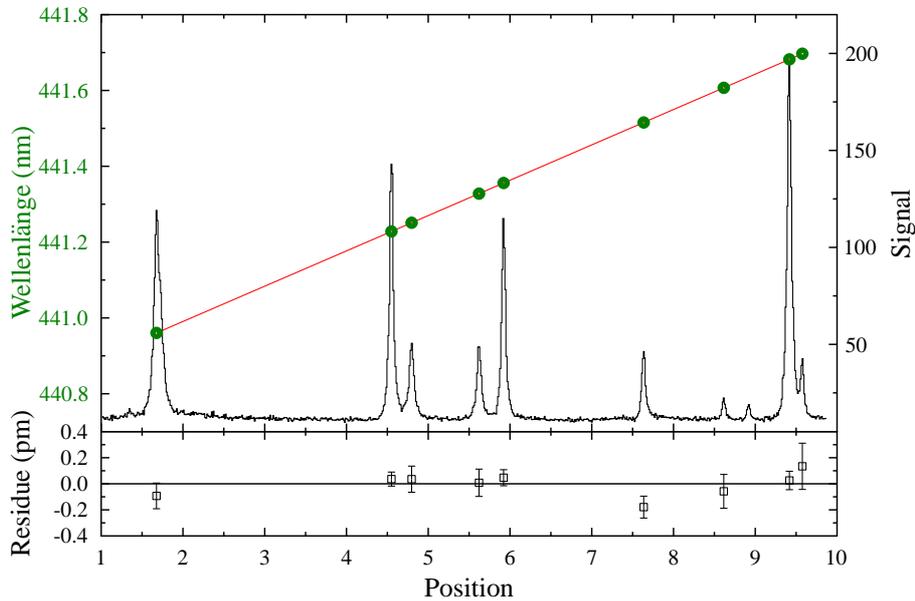


Abbildung 3.15: Referenzwellenlängen, aufgetragen gegen die Position der entsprechenden Linien. Gezeigt ist ebenfalls das Residuum der Funktion (3.12)

ein typisches Kalibrationsspektrum.

### 3.4 Photonendetektion

Für die Detektion von Photonen im optischen Bereich ist die Heidelberger EBIT mit einem Linsensystem ausgestattet. Die emittierten Photonen werden von zwei Linsen mit einem Durchmesser von  $D_l=38$  mm und einer Brennweite von  $f=150$  mm auf ein reelles Abbild außerhalb des Vakuumfensters (Transmission 90 %) fokussiert. Die Linsen decken dabei einen Raumwinkel von

$$\frac{\pi(D_l/2)^2}{4\pi f^2} = 3.9 \times 10^{-3} \quad (3.13)$$

ab. Dies gilt jedoch nur für Licht, das aus dem Fallenzentrum abgestrahlt wird. Geht man von der gesamten sichtbaren Fallenzentrum aus, so können insgesamt 75 % der in den Beobachtungsraumwinkel ausgesandten Photonen registriert werden. Die Photonen werden vom Ort des reellen Abbildes weiter durch eine innen hochpolierte Aluminiumröhre mit einem Innendurchmesser von 40 mm und einer Länge von 1150 mm zu einem Photovervielfacher (Photomultiplier, PMT) geführt, da das Streumagnetfeld der supraleitenden Magneten in der EBIT eine störungsfreie Arbeitsweise des PMT direkt am optischen Port verhindert. Für die erste Messung kam der PMT der Firma Hamamatsu (Modell

R2256) zum Einsatz, bestehend aus einer Bialkalikathode mit Quanteneffizienz von 15 % bei 440 nm und einer aktiven Fläche mit einem Durchmesser von 46 mm. Die Dunkelzählrate beträgt typischerweise 30 cps bei einer Kathodenspannung von  $V_K = 1250$  V. Die Pulse werden zu einen externen Vorverstärker geführt und zur Rauschunterdrückung von einem Diskriminator verarbeitet, der das Signal als TTL-Puls ausgibt. Der zweite, später verwendete Photodetektor ist das Modell XD2821 der Firma Photonis, bestehend aus einem PMT mit integrierter Hochspannungsversorgung, Vorverstärker und Diskriminator zusammengefaßt in einem Gehäuse und liefert direkt für jedes detektierte Photon einen TTL-Puls. Als Kathodenmaterial kam ebenfalls Bialkali zum Einsatz, so daß die Quanteneffizienz ebenfalls bei 15% lag. Die aktive Fläche besitzt zwar nur einen Durchmesser von 15 mm, bietet aber dafür den großen Vorteil einer niedrigen Dunkelzählrate von nur 8 cps. Als Verkleinerungsoptik wurde zwischen dem Aluminiumrohr und dem PMT ein innen verspiegelter Hohlkegel gesetzt. Die minimale Länge  $l$  des Kegels, der eine Kreisfläche mit Radius  $a$  auf den Radius  $b$  konzentriert, ist gegeben durch [111, 112]

$$l = \left(1 - \frac{b}{a}\right) \frac{a \cos \theta}{b/a - \sin \theta}, \quad (3.14)$$

wobei  $\theta$  der Maximalwinkel zwischen dem Strahl und der optischen Achse ist, unter dem der Strahl den Kegel am Ende wieder verläßt. Der Maximalwinkel ist durch die Brennweite  $f$  und Durchmesser des Linsensystems  $D_L$  gegeben über  $\tan \theta = D_L/f$  und beträgt  $14^\circ$ . Um den Innenradius des Lichtleiterrohrs  $a = 20$  mm auf  $b = 7$  mm zu reduzieren, wurde daher ein Kegel mit der Länge von  $l = 115$  mm verwendet. Längere Kegel, d.h. Kegel mit einem kleineren Öffnungswinkel, führen zu einem größeren Akzeptanzwinkel, wobei die obere Grenze durch das Kompressionsverhältnis gegeben ist über [113]

$$\frac{a}{b} = \frac{1}{\sin \theta}. \quad (3.15)$$

Allerdings führt ein längerer Kegel zu einer wesentlich höheren Anzahl an Reflektionen im Kegel, was bei einer Reflektivität  $< 1$  zu höheren Verlusten führt.

### 3.5 Streulichtunterdrückung

Der Aufbau der Laserstrahlführung sowie der Photonendetektion ist so ausgelegt, daß möglichst wenig Streulicht vom Laser den PMT erreicht. Allerdings gelangen pro Laserschuß, nimmt man eine Energie von 5 mJ pro Puls an, etwa  $10^{16}$  Photonen in die Falle, die an der Kathode gestreut werden. Durch Streuung und Mehrfachreflexion gelangen genügend Photonen zum PMT, um ihn zu sättigen oder gar zu zerstören. Die Möglichkeit, die Extraktionsspannung an der Photokathode während der Laserpulse auszuschalten, wurde auch

### 3.5. Streulichtunterdrückung

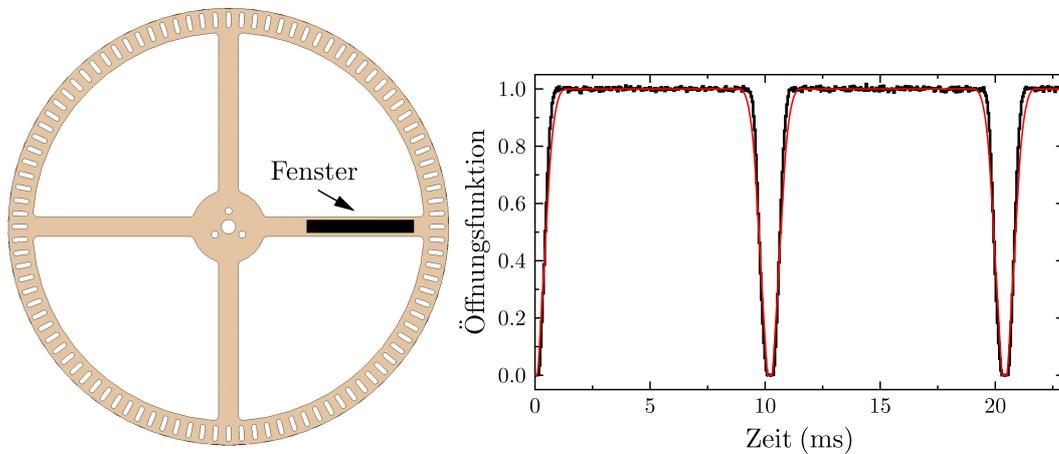


Abbildung 3.16: Das verwendete Unterbrecherrad (links), das Fenster ist durch das schwarze Rechteck angedeutet. Rechts ist die Öffnungsfunktion gezeigt, sowohl berechnet für eine homogene Ausleuchtung des Fensters (rot) als auch gemessen (schwarz).

getestet, brachte aber nicht die erweiterte Rauschunterdrückung. Dieses Problem könnte unter Umständen von einer verzögerten Fluoreszenz vom Fenstermaterial usw. verursacht worden sein. Daher wurde für die Durchführung der hier durchgeführten laserspektroskopischen Untersuchungen ein mechanisches Verschlussystem in Form eines Unterbrecherrads entwickelt. Um möglichst kurze Verschlusszeiten zu erhalten und den Transmissionsverlust zu minimieren, wurde die Tatsache ausgenutzt, daß durch das In-Vakuum-Linsensystem ein reelles Abbild der Ionenwolke außerhalb des Vakuums erzeugt wird. Durch die Position des Unterbrecherrads an dieser Stelle kann zum einen Streulicht, das von der Kathode stammt und an den Driftröhren reflektiert wird (die rot glühenden Ränder in Bild 2.9), räumlich vom Licht der Ionenwolke getrennt werden, zum anderen muß während eines Laserschusses nur eine kleine Fläche verdeckt werden. Das hierfür entwickelte Unterbrecherrad mit einem Durchmesser von 180 mm und einer Dicke von 1 mm besitzt vier Speichen mit einer Breite von 8 mm und befindet sich vor dem Rohr, das die Photonen zum PMT weiterleitet. Das Ende des Rohrs befindet sich in einer Halterung mit einem 40 mm langem und 6 mm hohem Sichtfenster, das von den Speichen des Unterbrecherrads überstrichen wird. Das Fenster ist dabei so positioniert, daß das Licht der Ionenwolke mittig hindurchgeht. Der Rand des Rades ist mit 100 Schlitzen versehen, die das Empfangssignal einer photosensitiven Infrarotdiode modulieren, womit eine sehr genaue Bestimmung der Umdrehungsfrequenz möglich ist. Die Umdrehungsgeschwindigkeit wird dabei über eine PID-Regelung eines Steuersystems (Thorlabs MC1200) auf einem gewünschten Wert gehalten. Die zeitliche Synchronisation des Unterbrecherrads mit dem Laser erfolgt über eine weitere Lichtschranke, die genau dann ein Signal ausgibt, wenn das Fenster verschlossen ist. Mit diesem Signal werden die Blitzlichtlampen und der Q-Switch des Lasers ausgelöst. Da der Pumplaser nur

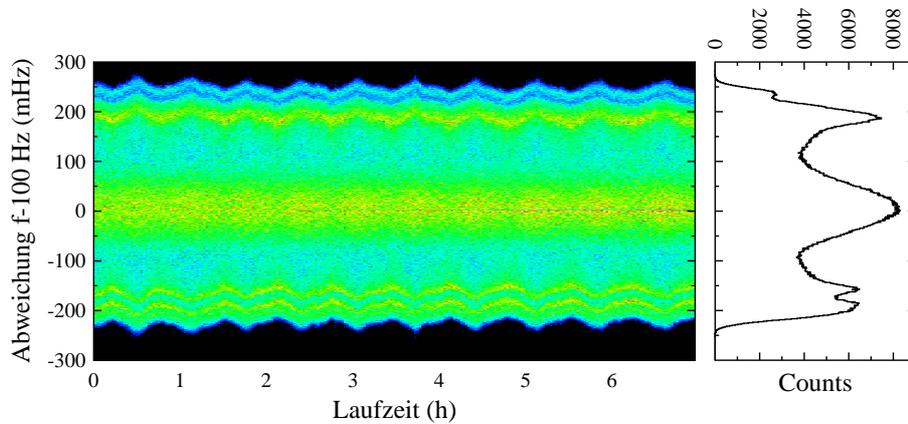


Abbildung 3.17: Zeitstabilität der Steuerung des Chopperrads, registriert mit der Lichtschranke, die den Laser triggert. Aufgetragen ist die Abweichung der Frequenz zweier hintereinanderfolgender Schüsse von der vorgegebenen Frequenz von 100 Hz.

in einem schmalen Frequenzbereich zwischen 95 Hz und 101 Hz arbeiten kann, wird das Unterbrecherrad und damit der Laser während der Messungen mit einer Verschlussfrequenz von 98 Hz betrieben.

Abbildung 3.17 zeigt die Laufzeitstabilität des Unterbrecherrades über sieben Stunden. Das Rad wurde mit einer Umdrehungsfrequenz von 25 Hz, d.h. mit einer Verschlussfrequenz von 100 Hz betrieben. Dabei wurde bei jedem Verschluss des Sichtfensters das Signal der Lichtschranke mit hoher Zeitaufösung registriert. Gezeigt ist die Abweichung der eingestellten Frequenz in mHz. Das Unterbrecherrad und die theoretisch berechnete sowie vermessene Öffnungsfunktion sind in Abbildung 3.16 gezeigt. Bei der theoretischen Berechnung wurde von einem gleichmäßig ausgeleuchtetem Fenster ausgegangen. Unter dieser Annahme ergibt sich eine Transmissionseffizienz von 90 %. Da die Ionenwolke wesentlich schmäler als die Höhe des Fensters ist, weist die gemessene Öffnungsfunktion schmalere Einschnitte auf.

Für die Selektion der zu vermessenden Wellenlänge wird ein Interferenzfilter (Semrock FF01-445/20) mit einer Zentralwellenlänge von 445 nm und einer durchschnittlichen Transmission von 93% über 20 nm hinter das Fenster des Unterbrecherrads gesetzt, an dem dann direkt das Aluminiumrohr zum PMT anschließt. An dieser Position angebracht, bewirkt der Interferenzfilter eine akustische Entkopplung des Unterbrecherrads vom Rohr, das ansonsten die durch die rotierenden Speichen erzeugten Schallwellen zum PMT weiterleiten würde und ein mechanisches Übersprechen verursachen könnte. Das Unterbrecherrad ist mitsamt des Steuermotors und der Rohrhalterung mit dem Sichtfenster in einem lichtundurchlässigen Gehäuse fest eingebaut, das auf der EBIT-Seite mittels lichtdichte Schaumstoffringe mit dem optischen Port verbunden wird. Das Aluminiumrohr verläßt das Gehäuse

### 3.5. Streulichtunterdrückung

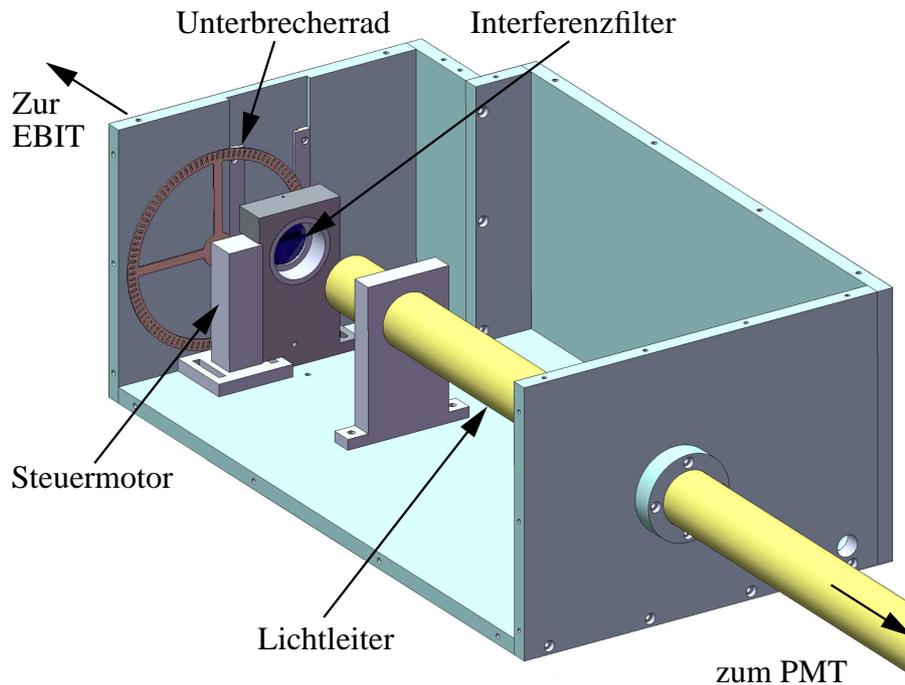


Abbildung 3.18: Aufbau zur Streulichtunterdrückung.

auf der gegenüberliegenden Seite und läuft weiter zum PMT. Um zu kontrollieren, ob sich das Fenster sowie der Filter an der Position der Wolke befinden, kann in dem Gehäuse das Licht statt durch das Rohr über zwei Spiegel zu einer Kamera geleitet werden, mit der die Position des Eintrittsfensters bezüglich des reellen Abbilds der Ionenwolke kontrolliert werden kann.

Die gesamte Nachweisrate ergibt sich unter Berücksichtigung des Nachweisraumwinkels, der Transmissionseffizienz der optischen Elemente, des Unterbrecherrads, der Aluminiumröhre, die zur Weiterleitung der Photonen zum PMT verwendet wird, sowie der Nachweiseffizienz der PMTs. Die Photonen, die zu 75 % unter einem Raumwinkel von  $3,9 \cdot 10^{-3}$  gesammelt werden, verlassen die EBIT durch zwei Linsen und das Vakuumfenster, bevor sie durch den Interferenzfilter laufen. Mit einem Reflektionsverlust von 5 % ergibt sich bei 8 durchlaufenen Oberflächen eine Transmissionseffizienz von 0,65. Der Interferenzfilter sowie das Unterbrecherrad haben eine Transmission von 90 %. Zusammen mit der Detektionseffizienz des PMTs von 15 % und Reflexionsverlusten im Aluminiumrohr von 50 % ergibt sich eine gesamte Nachweiseffizienz von  $\eta = 1,2 \cdot 10^{-4}$ .

### 3.6 Meßprinzip und Datenaufnahme

Die Wellenlängenbestimmung der verbotenen Übergänge in hochgeladenen Ionen erfolgt mittels der resonanten Absorption eines Photons und der Detektion der Fluoreszenzphotonen in Abhängigkeit von der Laserwellenlänge. Dazu wird das entsprechende Element mit der EBIT in den gewünschten Ladungszustand gebracht, wobei der Elektronenstrahl dann mittels Stoßanregung den zu untersuchenden Übergang in den Ionen anregt, die unter Aussenden von Photonen wieder in den Grundzustand übergehen. Will man diesen Übergang mit dem Laser anregen, muß daher vorher der Elektronenstrahl ausgeschaltet und die EBIT im magnetischen Fallenmodus betrieben werden. Das Schalten des Elektronenstrahls erfolgt durch Anlegen einer positiven bzw. negativen Hochspannung an die Fokuselektrode in der Elektronenkanone mittels eines Hochspannungs-Schalters. Nach Abschalten des Strahls gehen die angeregten Ionen in den Grundzustand über, von wo aus sie durch den Laser wieder angeregt werden können. Ein solcher Zyklus, bestehend aus Ionenproduktion und Ionenspeicherung, ist schematisch in Abbildung 3.20 dargestellt. Für die Messung wird die Laserwellenlänge schrittweise geändert, wobei bei jedem Schritt erst Ionen in der EBIT erzeugt werden und im magnetischen Fallenmodus die Fluoreszenzphotonen und die Laserwellenlänge registriert werden.

Die Steuerung der Messung sowie der Datenaufnahme erfolgt mit LabView. Das Programm setzt die Wellenlänge des Farbstofflasers, der an einer seriellen Schnittstelle direkt mit dem Rechner verbunden ist. Ebenfalls direkt angeschlossen ist die CCD-Kamera des Lambda-Lock-Systems, die mittels einer dazugehörigen ISA-Karte ausgelesen wird. Für die Ansteuerung der EBIT (das Ein- und Ausschalten des Strahls) steht eine PCI-Karte von National Instruments zur Verfügung, die einerseits Spannungssignale einlesen kann, andererseits analoge und digitale Signale mit einer Rate von 20 MHz ausgeben kann. Um den Elektronenstrahl der EBIT zu schalten, wird ein digitales Signal ausgegeben. Dieses Signal wird zu dem Hochspannungs-Schalter geleitet, der die Spannung der Fokuselektrode schaltet. Zusätzlich besitzt diese Karte einen Eingang, an dem ein externer Taktgeber angeschlossen werden kann. Nach Vorgabe der Start- und Endwellenlänge sowie der Schrittgröße wird zuerst der Farbstofflaser auf die Startwellenlänge gesetzt, danach wird der Elektronenstrahl für eine vorgegebene Dauer ein- und wieder ausgeschaltet, bevor der Laser zur nächsten Wellenlänge gefahren wird. Für jeden Wellenlängenschritt wird somit ein Zyklus bestehend aus Ionenproduktion und -speicherung durchfahren. Als Taktgeber für das Steuerprogramm wurde das Triggersignal vom Q-Switch des Pumplasers genommen, um sicherzustellen, daß für jede Wellenlänge die gleiche Anzahl an Laseranregungen gemessen wird. Die Zeiten für die Ionenproduktions- und Speicherdauer eines EBIT-Zyklus werden als Anzahl von Laserschüssen vorgegeben.

Während der Messung werden die Photonenergebnisse in einem Vielkanalaufnahmesystem

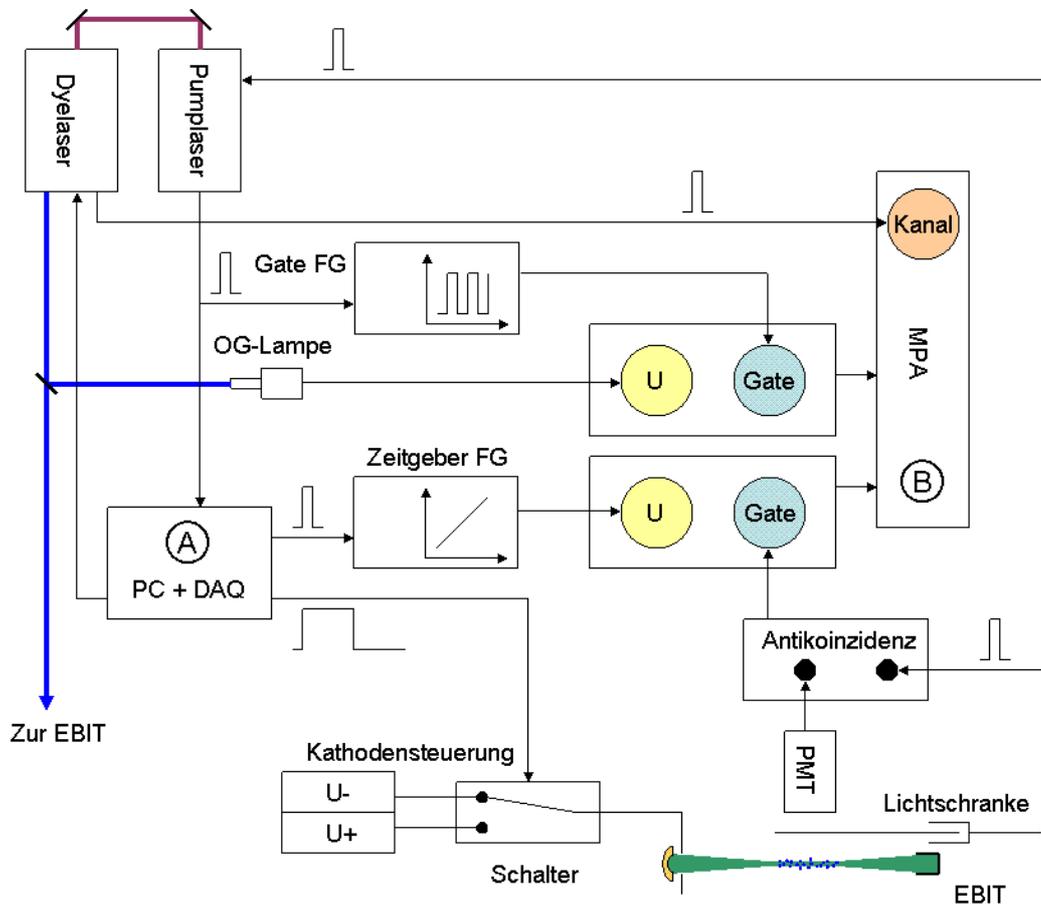


Abbildung 3.19: Schema der Meßanordnung zur laserspektroskopischen Untersuchung metastabiler Übergänge im optischen Bereich.

(Multi Parameter Acquisition, MPA) der Firma *FAST ComTec* aufgenommen. Dieses Datenaufnahmesystem ist in der Lage, mehrere Kanäle mit hohen Signalaraten sowie hoher Zeitauflösung unabhängig oder in Koinzidenz zueinander aufzuschreiben. Das System besteht aus einem Hauptmodul, das Signale von bis zu acht Meßmodulen verarbeiten und mit Zeitstempeln versehen kann, die entweder von einer internen Uhr stammen oder auch von außen vorgegeben werden können. Die einzelnen Meßmodule enthalten jeweils zwei Paare von Analog-Digitalwandlern (ADC), die unabhängig voneinander wahlweise für Pulshöhenanalysen, Spannungsmessungen oder Laufzeitmessungen eingesetzt werden können. Die TTL-Signale vom PMT laufen zuerst durch eine Konzidenzeinheit, die ausgehend vom Signal der Lichtschranke des Unterbrecherrades diejenigen Ereignisse unterdrückt, die während der Verschlußzeit des Lichtwegs zum PMT auftreten, um so die verbleibenden Streulichtsignale durch Laserphotonen auszuschließen. Danach werden die Photonenergebnisse in einem ADC im Spannungsmessungsmodus registriert, indem die einzelnen Ereignisse

bei ihrem Eintreffen am ADC eine Spannungsmessung des ADCs veranlassen. Die gemessene Spannung stammt von einem Funktionsgenerator, der während des Ionenproduktionszyklus eine linear steigende Spannungsrampe ausgibt und zu Beginn jedes Zyklus gestartet wird. Somit gibt es Zeitachse vor, mit der die registrierten Photonen zwischen Stoßanregung durch den Elektronenstrahl sowie Laseranregung während des magnetischen Fallenmodus unterschieden werden können. In einem zweiten ADC wird das Signal der Hohlkathodenlampe aufgenommen, mit dem später die Aufnahme kalibriert wird.

Die Spannungsmessung dieses Signals wird vom Triggersignal vom Q-Switch des Pumpasers gesteuert, der einen Funktionsgenerator startet, welches eine Reihe von Triggerpulsen erzeugt, die dafür sorgen, daß das Signal der Hohlkathodenlampe in seiner gesamten Breite digitalisiert wird. Die Wellenlänge des Farbstofflasers wird registriert, indem der Laser nach jeder erfolgten Wellenlängenänderung einen TTL-Puls an das Hauptmodul des MPA-Systems schickt, das nach jedem Puls die gemessenen Photonenergebnisse in einem neuen Kanal einsortiert. Die Datenaufnahme ist schematisch in Abbildung 3.19 gezeigt. Die gesamten Photonenergebnisse werden in einem zweidimensionalen Scatterplot wie in Abbildung 3.21 gezeigt, dargestellt, wobei die x-Achse die Laserwellenlänge und die y-Achse den zeitlichen Verlauf der Ionenproduktion und Speicherung zeigt. Projiziert man die Daten, nachdem der Elektronenstrahl abgeschaltet wurde und die stoßangeregten Zustände zerfallen sind, auf die Wellenlängachse, erhält man die Anzahl der registrierten Fluoreszenzphotonen in Abhängigkeit der Laserfrequenz.

### 3.7 Abschätzung der Signalrate

Unter Berücksichtigung der Anzahl der gefangenen Ionen und der spektralen Eigenschaften des eingesetzten Lasersystems kann mit Hilfe der Anregungswahrscheinlichkeit die Anregungsrate der Ionen durch den Laser berechnet werden. Aus der spontanen Zerfallsrate ergibt sich die gesamte laserinduzierte Fluoreszenzrate, und mit der Effizienz des Detektorsystems schließlich die zu erwartende Signalrate. Die Anzahl der sich in der Falle befindlichen  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen läßt sich über die Zählrate der Fluoreszenzphotonen aufgrund der Stoßionisation durch den Elektronenstrahl abschätzen. Nimmt man zum Beispiel die Raumladungsmessung in 2.12, erhält man für einen Strom von 80 mA eine maximale Zählrate  $R_{St}$  von 5 kHz. Bei einer Detektionseffizienz von  $\eta = 10^{-4}$  führt dies auf eine Gesamtabstrahlrate von 50 MHz. Die Stoßanregungsrate  $R_{St,tot}$  ist durch

$$R_{St,tot} = N_{Ar} f(r_e, r_{Ar}) \sigma_{St} \frac{I}{e} \frac{1}{\pi r_e^2} = N_{Ar} \sigma_{St} \frac{I}{e} \frac{1}{\pi r_{Ar}^2} \quad (3.16)$$

gegeben. Der Wirkungsquerschnitt für die Stoßanregung des M1-Übergangs ist in [114] zu

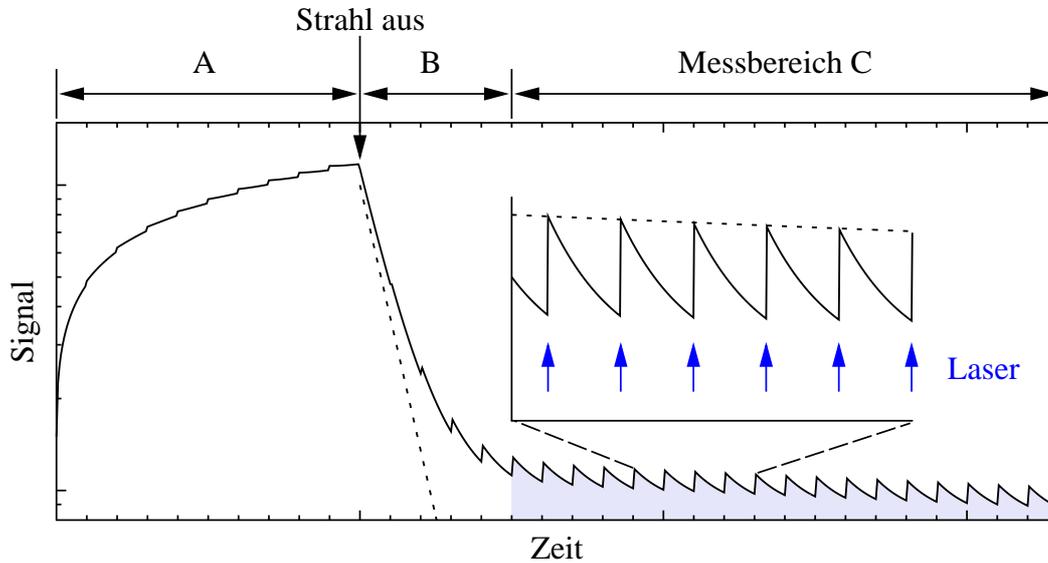


Abbildung 3.20: Zeitliche Entwicklung des Fluoreszenzsignals während eines Zyklus. Zuerst werden mit eingeschaltetem Elektronenstrahl  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen erzeugt (A), wobei gleichzeitig der M1-Übergang über Stöße angeregt wird. Nach Abschalten des Strahls (B) erfolgt ein exponentieller Zerfall der durch Stöße angeregten Zustände (gestrichelte Linie im Graph). Durch den resonanten Laser werden diese bei jedem Schuß wieder bevölkert und zerfallen bis zum nächsten Schuß (siehe innerer Graph). Der Nachweis der Anregung im Meßbereich (C) erfolgt mittels Zählen der Fluoreszenzphotonen in Abhängigkeit der Laserfrequenz.

$\sigma_{St} = 8,0 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^{-2}$  bestimmt. Allerdings werden nur diejenigen Ionen durch Stöße angeregt, die sich im Elektronenstrahl befinden. Dieser Anteil der Ionen an der gesamten Ionenzahl ist durch den Überlappfaktor  $f(r_e, r_{Ar})$  gegeben. Der Herrmannradius des Elektronenstrahls berechnet sich nach Gleichung (2.6) zu  $22 \mu\text{m}$ . Mit dem Durchmesser der Ionenwolke von  $580 \mu\text{m}$  ergibt sich ein geometrischer Überlapp von  $6 \cdot 10^{-3}$ . Die Anzahl angeregter Ionen ergibt sich somit zu  $N_{Ar} = 1,25 \cdot 10^6$ . Allerdings muß man zusätzlich zu der direkten Stoßanregung auch die Besetzung des  $^2P_{3/2}$ -Zustands durch Kaskadenübergänge von höherliegenden Zuständen beachten, die ebenfalls durch Stöße angeregt werden. Nimmt man als obere Abschätzungsgrenze an, daß durch den Elektronenstrahl stets die maximale Anzahl der Ionen (was aufgrund von  $g_{3/2}/g_{1/2} = 2$  bedeutet, dass dies 66 % aller Ionen sind) angeregt sind und daß die Abstrahlrate  $1/\tau = 100 \text{ Hz}$  beträgt, erhält man  $7,5 \cdot 10^5$  Argonionen, die sich in der Falle befinden. Aufgrund dieser Abschätzung wird daher von einer Ionenzahl von  $10^6$  ausgegangen.

Die Anregungsrate  $R_L$  des M1-Übergangs in  $\text{Ar}^{13+}$  durch die Laserphotonen ist gegeben durch

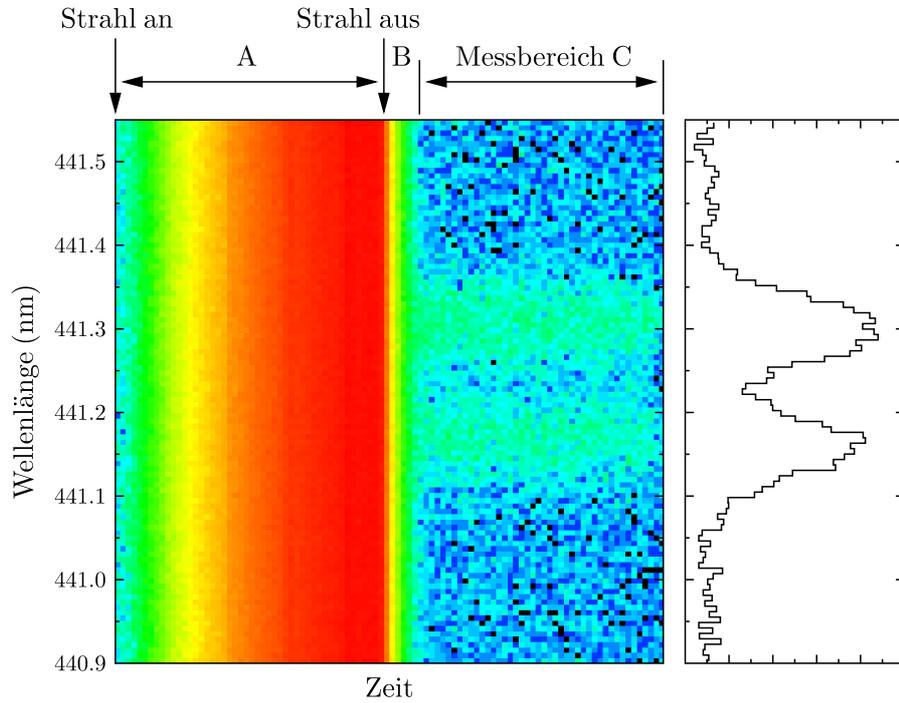


Abbildung 3.21: Typischer Wellenlängenscan des  $^2P_{3/2}-^2P_{1/2}$ -Übergangs in borartigem Argon, aufgenommen an der Heidelberger EBIT. Links ist ein zweidimensionaler Scatterplot gezeigt. Die x-Achse gibt den zeitlichen Verlauf der Ionenproduktion und -speicherung wieder, die y-Achse die Wellenlänge des Lasers. Die Wellenlänge des Farbstofflasers wird schrittweise verändert, wobei bei jedem Schritt ein EBIT-Zyklus, wie in Abbildung 3.20 gezeigt, durchfahren wird. Die Daten im Bereich (C) werden auf die Wellenlängenchse projiziert (rechts), in der die durch den Laser erfolgte Anregung sichtbar ist.

$$R_L = f_{rep} N_{Ion} \frac{A_{Laser}}{A_{Ar}} \int \Phi_{Laser}(E) \sigma_{M1}(E) dE \quad (3.17)$$

mit dem spektralen Fluß des Lasers  $\Phi_{Laser}(E) = N_{Laser}(E)/A_{Laser}$  gegeben durch die Anzahl der Photonen  $N_{Laser}(E)$  pro Zeit geteilt durch die Fläche  $A_{Laser}$ , der Schußrate  $f_{rep}$ , der Anzahl der Ionen  $N_{Ion}$  sowie der Querschnittsfläche der Ionenwolke  $A_{Ar}$ . Der energieabhängige Wirkungsquerschnitt der resonanten Photonenstreuung  $\sigma_{M1}$  ist

$$\sigma_{M1}(E) = \frac{\lambda^2}{2\pi} \frac{1}{1 + \left[ \frac{2(E-E_{M1})}{\Delta E_{nat}} \right]^2} \quad (3.18)$$

mit der natürlichen Linienbreite  $\Delta E_{nat} = \hbar/\tau$ , wobei  $\tau=9.573$  ms die Lebensdauer des angeregten Zustands ist [100]. Allerdings ist die natürliche Linienbreite ( $\approx 16$  Hz) sehr klein im Vergleich zur Dopplerverbreiterung der Ionen (siehe Gleichung (1.58)). Daher läßt sich

### 3.7. Abschätzung der Signalrate

---

der energieabhängige Wirkungsquerschnitt durch eine gaußförmige Verteilung beschreiben [115]:

$$\sigma_{M1}(E) = \frac{\lambda^2}{2\pi} \frac{\Delta E_{nat}}{\Delta E_D} \exp \left[ -(4 \ln 2) \left( \frac{E - E_{M1}}{\Delta E_D} \right)^2 \right]. \quad (3.19)$$

Der energieabhängige Photonenfluß ist gegeben durch

$$\Phi_{Laser}(E) = N_{Laser}(E) \frac{\sqrt{4 \ln(2)}}{\sqrt{\pi} \Delta E_{Laser}} \exp \left[ -(4 \ln 2) \left( \frac{E - E_{M1}}{\Delta E_{Laser}} \right)^2 \right]. \quad (3.20)$$

Die Anzahl der Photonen pro Puls ergibt sich aus der Pulsenergie geteilt durch die Photonenenergie. Die maximale Pulsenergie am Ausgang des Farbstofflasers von 8 mJ wird durch Reflektions- und Transmissionsverluste auf dem Weg in die Fallenregion um 50% auf 4 mJ reduziert, so daß in der Falle  $10^{16}$  Photonen zur Verfügung stehen. Bei einer typischen Iontemperatur von 150 eV mit einer resultierenden Dopplerverbreiterung von 66 pm oder  $4,2 \cdot 10^{-4}$  eV, der Bandbreite des Lasers von  $1,6 \cdot 10^{-5}$  eV fokussiert auf eine Fläche von  $0,2 \text{ mm}^2$  sowie der natürlichen Linienbreite von  $6,8 \cdot 10^{-14}$  eV ergibt sich für alle Ionen im Laserstrahl eine Anregungswahrscheinlichkeit von 25%. Allerdings beträgt der Anteil der Ionen, die im Frequenzbereich des Lasers liegen,  $\Delta E_{Laser}/\Delta E_D \approx 3,8\%$ . Da nur diese Ionen überhaupt angeregt werden können, ist die tatsächliche Rate viel geringer. Die in der vorherigen Abschätzung berechnete Anregungswahrscheinlichkeit hatte nicht berücksichtigt, daß unter den getroffenen Annahmen die Sättigung der Anregung erreicht wird. Da die Dauer eines Laserschusses viel kürzer ist als die mittlere Stoßrate zwischen den Ionen (für die  $\text{Ar}^{13+}$ -Wolke ergibt sich mit Gleichung (2.28) eine Stoßrate von  $25 \text{ s}^{-1}$ ), können während eines Laserschusses keine Ionen durch Stöße in den Frequenzbereich des Lasers kommen. Daher ergibt sich die maximale Anzahl der anregbaren Ionen bei Resonanz zu

$$N_{Ar,ex} = N_{Ar} \frac{1}{2g_i} \frac{\Delta E_{Laser}}{\Delta E_D}, \quad (3.21)$$

wobei  $g_i = 2J + 1 = 2$  das statistische Gewicht des Grundzustands ist. Bei Berücksichtigung einer Laserschußrate  $f_L$  von 98 Hz sowie der Tatsache, daß zwischen zwei Schüssen

$$1 - e^{-(f_L)/\tau} \approx 65\% \quad (3.22)$$

der angeregten Ionen in den Grundzustand übergehen, erhält man als Signalrate

$$R_{Mess} = N_{Ar,ex} \cdot 0,65 \cdot \eta \cdot 98 \text{ Hz} \approx 78 \text{ Hz}. \quad (3.23)$$

### 3.8 Herstellung des Überlapps zwischen Ionenwolke und Laser

In der ersten Messreihe lag das Hauptziel darin, am M1-Übergang in borartigem Argon zu zeigen, daß die direkte Laseranregung unter Detektion der Fluoreszenzphotonen in einem verbotenen Übergang möglich ist. Die Fluoreszenzzählrate aufgrund der Laseranregung ist hierfür prinzipiell ausreichend, allerdings hängt diese empfindlich vom Überlapp zwischen Laser und Ionenwolke ab. Die Ausdehnung und Temperatur des Ionenensembles wird von verschiedenen Parametern bestimmt. Während der Messung wurde kontinuierlich ein ballistischer Argonatombstrahl (99.60%  $^{40}\text{Ar}$ , 0.34%  $^{36}\text{Ar}$  und 0.06%  $^{38}\text{Ar}$ ) bei einem Injektionsdruck in der zweiten differentiell gepumpten Stufe von etwa  $6,4 \cdot 10^{-8}$  mbar in die Falle injiziert. Argonionen wurden mit einem Elektronenstrahl mit  $I_e = 90$  mA erzeugt. Die Beschleunigungsspannung betrug 840 eV, wobei an der Kathode  $-600$  V und an dem Driftröhrenensemble 240 V angelegt waren. Der Elektronenstrahl wurde zyklisch an- und ausgeschaltet, indem die Spannung der Fokuselektrode zwischen  $-1500$  V und  $1200$  V geschaltet wurde. Diese Spannung wurde durch das in Abschnitt 3.6 beschriebene LabView-Programm vom Unterbrecherrad gesteuert, welches auch den Pumplaser mit 98 Hz triggerte. Die Produktionsdauer betrug 100 Schuß bzw 1020 ms, danach wurden die Ionen für 700 Schuß bzw. 715 ms im magnetischen Fallenmodus gehalten, so daß sich eine Zyklusperiode von 1735 ms ergab. Der axiale Einfang der Ionen wurde durch ein Potential von 500 V gewährleistet, daß an die Driftröhren, welche die Fallenmitte direkt umgeben (Driftröhre 4 und 5), angelegt wurde.

Abbildung 3.22 zeigt den zeitlichen Verlauf des Fluoreszenzsignals für einen Schaltzyklus der EBIT für verschiedene angelegte Potentialspannungen. Die Zählrate vor Ausschalten des Strahls ist bei niedrigeren axialen Fallen geringer, weil zum einen weniger Ionen gefangen werden, und zum anderen, weil aufgrund der kleineren Anzahl gefangener positiver Ladungen die resultierende negative Raumladung höher liegt. Damit ist die resultierende Stoßenergie der Elektronen niedriger als das Produktionsmaximum. Viel wesentlicher ist jedoch der Ionenverlust, der sich während des Ausschaltens des Elektronenstrahls ergibt. Durch den Wegfall des Elektronenstrahls reduziert sich das gesamte axiale Potential um den durch die Raumladung der Elektronen nach Gleichung (2.20) verursachten Betrag. Bei niedrigen Potentialspannungen ergeben sich daher hohe Ionenverluste beim Ausschalten des Elektronenstrahls, sichtbar am instantanen Abfall der Zählrate. Ab etwa 500 V ergeben sich kaum noch Verluste. Noch höhere Fallentiefen würden den axialen Einfang geringfügig verbessern, allerdings führt dies auch zu einer unerwünschten höheren Ionentemperatur während der Ionenproduktion.

In Abbildung (3.23) ist eine typische Zerfallskurve bei einer Fallentiefe von 500 V gezeigt. Die Aufnahmedauer betrug 91 Minuten. Die Ansammlung schwerer Elemente, wie Barium oder Wolfram, die von der Kathode verdampfen und in die Falle gelangen können,

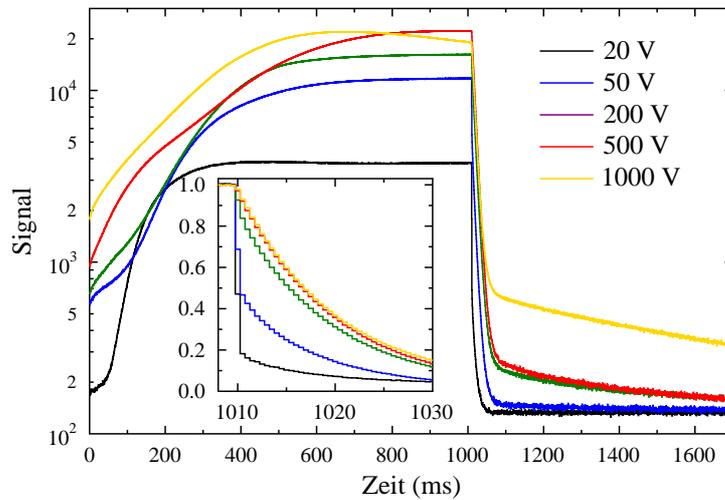


Abbildung 3.22: Fluoreszenzsignal eines Zyklus für verschiedene Fallentiefen. Der Elektronenstrahl wird nach 1010 ms ausgeschaltet. Innenliegend: Ausschnitt der Zerfallskurven normiert auf die Zählraten vor Ausschalten des Elektronenstrahls. Deutlich zu sehen ist der instantane Abfall der Zählrate bei niedrigen Fallentiefen.

wird verhindert, indem alle 30 s die Falle geleert wird. Dafür wird für 100 ms ein positiver Hochspannungspuls mit 1,5 kV auf die mittlere Driftröhre geschaltet, der die Falle invertiert. Die Zerfallskurve der Zählrate weist neben dem erwarteten schnellen Zerfall aufgrund der Abnahme des durch Stoßanregung bevölkerten metastabilen Zustands eine langsamere Zerfallskomponente des Untergrunds auf. Ähnliche Beobachtungen einer solchen langsamen Zerfallskomponente wurden auch bei [116] gemacht und durch eine Wiederanregung der gefangenen Ionen erklärt, wobei die langsame Abnahme den Verlust der gespeicherten Ionen widerspiegelt. Der Mechanismus, welcher zur nochmaligen Anregung der Linien bei bestimmten Bedingungen im magnetischen Fallenmodus führt, ist nicht eindeutig geklärt. Es wird aber vermutet, daß die wiederholte Anregung nach Ausschalten des Elektronenstrahls durch Stöße mit niederenergetischen gefangenen Elektronen erfolgt [117]. Beschreibt man die experimentellen Daten durch die Summe zweier Zerfallskurven mit den Lebensdauern  $\tau_1$  und  $\tau_2$

$$n(t) = n_1 e^{-(t-t_0)/\tau_1} + n_2 e^{-(t-t_0)/\tau_2} + y_0 \quad (3.24)$$

ergeben sich Lebensdauern von  $\tau_1 = 9,614(16)$  ms und  $\tau_2 = 283(11)$  ms. Dabei ist  $t_0$  der Zeitpunkt, an dem der Elektronenstrahl ausgeschaltet wird. Die erhaltenen Fitparameter sind in Tabelle 3.8 aufgelistet. Aufgrund der Werte von  $\chi^2$  ist die exzellente Übereinstimmung der Modellfunktion mit den Daten zu erkennen. Die so erhaltenen Zerfallszeiten er-

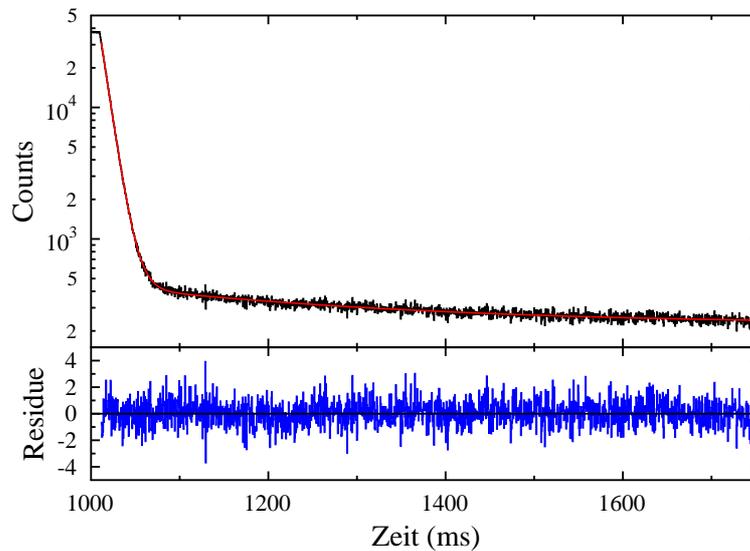


Abbildung 3.23: Typische Zerfallskurve bei einem axial angelegten Fallenpotential von 500 V. An die Kurve wurde ein zweikomponentiger Exponentialzerfall angepaßt. Darunter ist das zugehörige mit  $\sqrt{n}^{-1}$  normierte Residuum gezeigt.

Linie	Wellenlänge
$y_0$	225(2)
$n_1$	36100(76)
$t_1$	9,614(16)
$n_2$	216(2)
$t_2$	283(11)
$\chi^2$	1,0082
$R$	0,9976

Tabelle 3.4: Ergebnisse des Fits der Gleichung (3.8) an die Zerfallskurve in Abbildung (3.23).

halten zwar keine Korrekturen bezüglich eventueller systematischer Effekte, trotzdem ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung der hier erhaltenen Lebensdauer mit dem ebenfalls an der Heidelberger EBIT experimentell bestimmten Wert von 9,573(4) ms [100].

Um die radiale Position der Argonwolke und folglich des Elektronenstrahls relativ zum Fallenzentrum zu bestimmen, wurden mit einer Kamera Aufnahmen der Falle durch den Kollektor gemacht. Der Einblick in die Fallenregion erfolgte über den Einkoppelspiegel im Vakuum und den zwei Justagespiegeln oberhalb des optischen Ports. Für die Aufnahmen wurde eine CCD-Kamera (Andor LUCA), die direkt auf ihrer CCD das aufgenommene Signal elektronisch verstärken kann, mit einem Objektiv mit einer Brennweite von 210 mm und der Blendenzahl 5.6 verwendet. Die Beobachtung der Wolke wird allerdings durch

### 3.8. Herstellung des Überlapps zwischen Ionenwolke und Laser

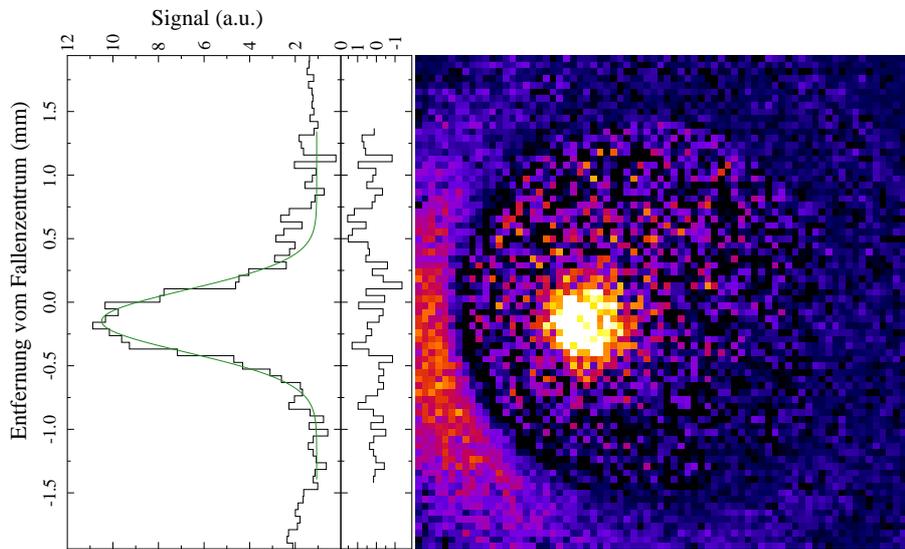


Abbildung 3.24: Wolke aus  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen durch den Kollektor gesehen. Links ist die Projektion auf die y-Achse gezeigt. Das Profil der Wolke kann durch eine Gaußkurve mit einer Breite von  $580 \mu\text{m}$  beschrieben werden.

die Tatsache erschwert, daß man durch die Fallenregion direkt auf die glühende Kathode blickt. Zur Reduzierung des Streulichts der Kathode wurde ein Interferenzfilter mit einer maximalen Transmission von 60 % bei 440 nm und einer Bandbreite von 10 nm eingesetzt. Zusätzlich wurden Hintergrundaufnahmen ohne Injektion von Argongas durchgeführt und von den Aufnahmen mit Injektion abgezogen. Abbildung 3.24 zeigt eine solche Differenz, die aus jeweils 100 Bildern mit und ohne Argoninjektion mit einer Belichtungszeit von drei Sekunden gebildet wurde.

Beschreibt man das Profil der Wolke mit einer Gaußkurve, erhält man eine Halbwertsbreite von  $580 \mu\text{m}$ . Der tatsächliche Wert ist allerdings etwas geringer, da aufgrund der geringen Tiefenschärfe die Ausdehnung der Wolke entlang der Sichtachse zu einer Verbreiterung des Profils führt.

Der Farbstofflaser wurde in das Vakuumsystem eingefädelt und auf die Ionenwolke fokussiert. Die Pulsenergie betrug vor dem Eintritt in das Vakuum 4 mJ. Da der Laser parallel zum Magnetfeld eingekoppelt wird, können nur die vier  $\pi$ -Übergänge angeregt werden (siehe Tabelle 1.3.2), wobei das Licht für den Übergang zirkular polarisiert sein muß. Eine naheliegende Möglichkeit liegt darin, das linear polarisierte Licht mit einer  $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte in zirkular polarisiertes Licht umzuwandeln, wobei je nach Drehrichtung entweder die  $\pi^+$  oder die  $\pi^-$ -Übergänge angeregt werden. Dies hat allerdings den Nachteil, daß man bei einem Frequenzscan die Anzahl der anregbaren Übergänge von vier auf zwei reduziert. Alternativ kann man das Licht linear polarisiert lassen. Da sich linear polarisiertes Licht als Überlagerung von zirkular polarisiertem Licht beider Drehrichtung zusammensetzen läßt,

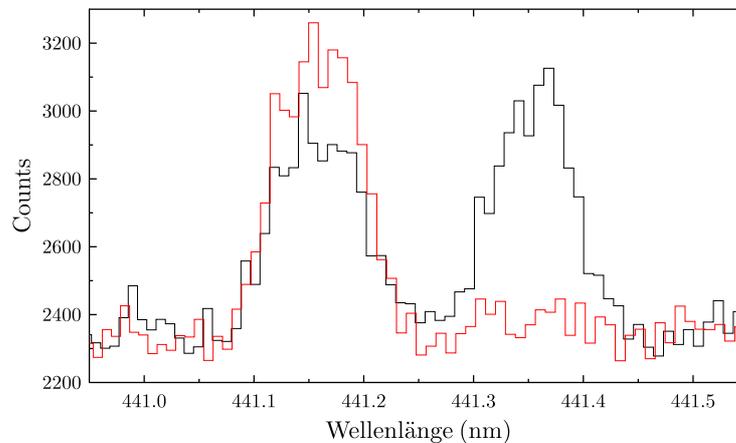


Abbildung 3.25: Zwei Wellenlängenscans, einmal mit und einmal ohne  $\lambda/4$ -Verzögerungsplättchen. Bei Verwendung des letzteren werden nur die  $\pi_{3/2,1/2}^+$ -Übergänge angeregt.

kann man sowohl  $\pi^+$  als auch die  $\pi^-$ -Übergänge anregen, sofern man die richtige Wellenlänge trifft. Da die Abschätzung der Zählrate in Kapitel 3.7 ergeben hat, daß prinzipiell genügend Photonen zu Verfügung stehen, um alle Ionen im Wellenlängenbereich des Lasers anzuregen, wurde die Polarisation des Lasers bei den meisten Messungen linear gelassen.

Für die Herstellung des Überlapps zwischen Laser und Ionenwolke wurde zwischen den Justagespiegeln oberhalb des Vakuumfensters ein planes Glasfenster als Strahlteiler unter einem Winkel von  $45^\circ$  eingesetzt, so daß senkrecht zum Strahlengang des Lasers ein Einblick durch die Fallenregion auf die Kathode gegeben war. Ein Helium-Neon-Laser, dessen Strahl über einen Klappspiegel in den Strahlengang des Farbstofflasers gebracht werden konnte, wurde für die Erstjustage verwendet. Durch die Verwendung von zwei Blenden, positioniert jeweils nach dem ersten und vor dem zweiten Teleskop mit einem Abstand von 4,5 Metern, wurde sichergestellt, daß die Strahlengänge übereinstimmen. Mittels des Strahlteilers wurde mit einer Kamera der Auftreffpunkt des Lasers auf dem Filament der Kanone bestimmt und so einjustiert, daß er der Position der Ionenwolke in der mittleren Driftröhre (vgl. Abbildung 3.24) trifft. Der Farbstofflaser wird in die Falle eingekoppelt, nachdem das Glasfenster aus dem Strahlengang herausgenommen wurde. Anschließend wurden Wellenlängenscans aufgenommen und der Überlapp anhand der Zählrate der laserinduzierten Fluoreszenzphotonen weiter optimiert.

Es zeigt sich allerdings daß ohne die Verwendung einer Verzögerungsplatte wider Erwartens nur die  $\pi^-$ -Übergänge angeregt werden, d.h. der Laser wird auf den Weg ins Vakuum zirkular polarisiert. Messungen mit einem Polarisationsfilter haben ergeben, daß die lineare Polarisation des Lasers bis zum Vakuumfenster erhalten bleibt. Somit ist anzunehmen, daß das Quarz-Vakuumfenster als  $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte wirkt oder die Reflexion unter  $45^\circ$

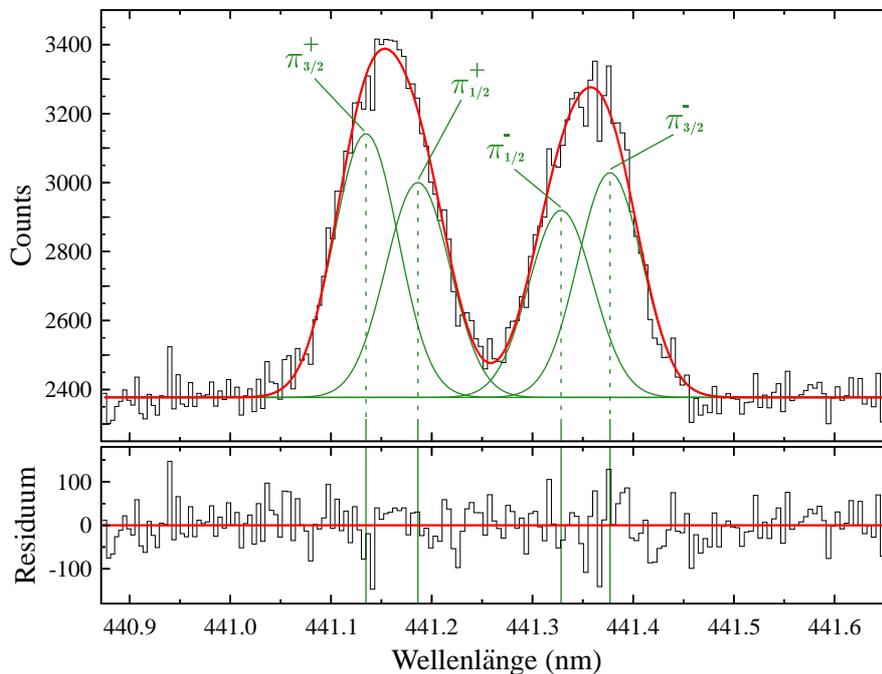


Abbildung 3.26: Projektion der Summe zweier Wellenlängenscans (siehe Text) Man sieht zwei Kurven, die jeweils durch die zwei  $\pi^+$ - und  $\pi^-$ -Übergänge verursacht sind. Aufgrund der Dopplerverbreiterung von  $64(1)$  pm sind die vier  $\pi$ -Komponenten nicht einzeln aufgelöst. Die unterschiedliche Höhe wird durch den hier noch nicht optimierten Einstellungen des  $\lambda/4$ -Plättchens zugeschrieben.

am IN-Vakuum-Spiegel eine zirkulare Komponente der Polarisierung induziert. Um dennoch alle vier  $\pi$ -Übergänge gleichzeitig anzuregen, wurde der Laser kurz vor Eintritt in das Vakuum durch ein  $\lambda/4$ -Verzögerungsplättchen geleitet, wobei die schnelle Achse unter  $45^\circ$  zur Polarisationsrichtung des Lasers eingestellt ist.

Abbildung 3.26 zeigt die Projektion der Summe zweier Wellenlängenscans nach erfolgreicher Optimierung des Überlapps. Die gesamte Aufnahmezeit hierfür betrug 95 Minuten. Jeder Scan wurde von  $440,8$  nm bis  $441,7$  nm in  $1,1$  pm breiten Schritten durchgeführt. Bei jedem Wellenlängenschritt wurden zwei EBIT-Zyklen durchgeführt. Während den einzelnen Scans wurde die Falle nicht geleert, um für jeden Wellenlängenschritt dieselben Bedingungen und somit dieselbe Ionenanzahl zu haben. In Abbildung 3.27 ist die Anzahl der registrierten Photonen 50 ms vor Ausschalten des Strahls gezeigt. Die Zählrate ist innerhalb des statistischen Rauschens konstant. Dies zeigt, daß bei jedem Durchfahren kurz vor Ausschalten des Strahl die gleiche Anzahl Ionen erzeugt und gefangen wird. Aufgrund der Dopplerverbreiterung sind statt der vier einzelnen  $\pi$ -Übergänge nur zwei Maxima sichtbar. Beschreibt man die Maxima in Abbildung 3.26 mit vier Gaußfunktionen, die dieselbe Breite haben, wobei die Wellenlängenaufspaltung aufgrund der Zeemanaufspaltung

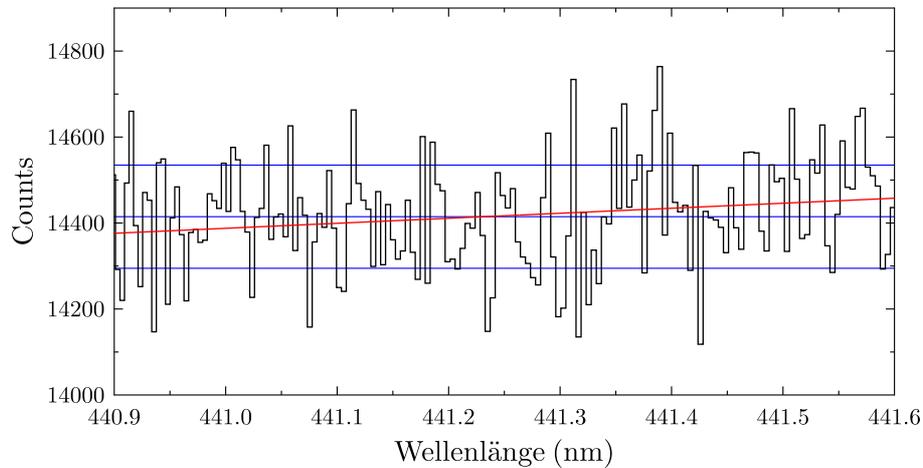


Abbildung 3.27: Registrierte Photonenergebnisse ab 50 ms vor Ausschalten des Elektronenstrahls bis zum Ausschalten des Strahls. Die blauen Linien geben den Mittelwert sowie die  $1\sigma$ -Standardabweichung an, die rote Linie zeigt einen linearen Fit an die Daten. Die relative Abweichung von einer konstanten Zählrate liegt unter  $3 \cdot 10^{-3}$ .

anhand des genau bekannten Magnetfeldes vorgegeben wird, erhält man eine Linienbreite von  $64(1)$  pm. Da die natürliche Linienbreite von 100 Hz sowie die Breite des Lasers von 1,2 pm wesentlich kleiner sind, kann man die gesamte Linienbreite der Dopplerverbreiterung zurechnen. Nimmt man eine maxwellsche Geschwindigkeitsverteilung der Ionen an, erhält man aus (1.59) eine Temperatur von  $150(3)$  eV.

Eine Abschätzung der Anzahl der angeregten Ionen läßt sich anhand der Fluoreszenzzählrate wie folgt durchführen. Setzt man den Laser z.B. auf das Maximum des  $\pi_{-3/2}$ -Übergangs, erhält man eine mittlere Zählrate von 61 Hz. Legt man wieder die Detektionseffizienz von  $\eta = 10^{-4}$  zu Grunde, und daß aufgrund der Abstrahlcharakteristik die Abstrahlwahrscheinlichkeit senkrecht zum Magnetfeld bezüglich einer isotropen Abstrahlung um  $1/3$  reduziert ist, ergibt sich damit die Gesamtrate der Laseranregung zu 925 kHz. Bei einer Schußfrequenz von 98 Hz bedeutet dies, daß durch einen Laserpuls etwa 9000 Ionen angeregt werden. Der Anteil der Ionen, die angeregt werden können, ist zum Einen durch die räumliche Ausdehnung der Ionenwolke und den Überlapp des Lasers begrenzt, zum Anderen reduziert die Dopplerverbreiterung die Anzahl der Ionen, die im Wellenlängenbereich des Lasers liegen. Der Überlappfaktor ergibt sich aus den Verhältnissen der jeweiligen Flächen. Nimmt man die Breite der Ionenwolke aus Abbildung 3.24 zu  $d_w = 1,2$  mm, ergibt sich eine Querschnittsfläche von  $1,1$  mm<sup>2</sup>. Der Laser wird auf eine Fläche von  $0,2$  mm<sup>2</sup> fokussiert. Der Überlappfaktor beträgt somit 0,18. Der Anteil der Ionen, die im Wellenlängenband des Lasers liegen, ergibt sich aus dem Verhältnis der Linienbreite des Lasers zur Dopplerverbreiterung und beträgt 0,019. Nimmt man jetzt an, daß bei jedem Laserpuls die maximale Anzahl

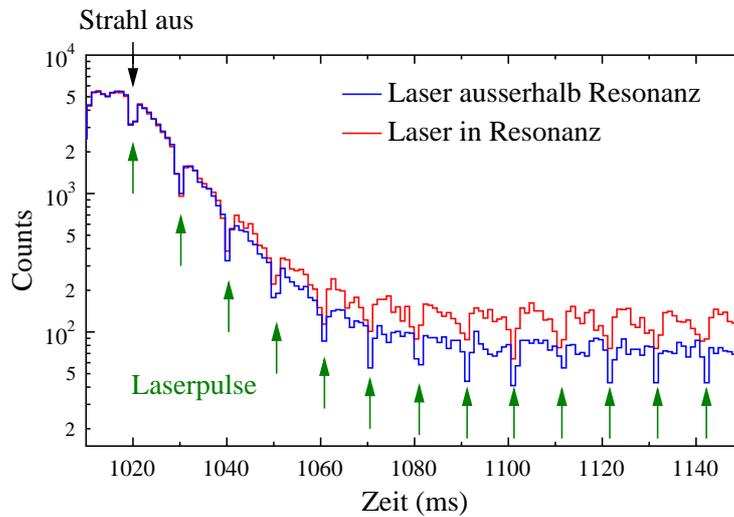


Abbildung 3.28: Zerfallskurven unter Lasereinstrahlung in die EBIT. Die Laserwellenlänge war dabei zuerst resonant auf die Übergangsfrequenz und danach außerhalb von dieser eingestellt. Deutlich zu sehen ist die Erhöhung der Zählrate durch resonante Anregung.

der Ionen angeregt ist (bei einem Zweilevel-Übergang 50 %), ergibt sich eine Gesamtanzahl von  $5,5 \cdot 10^6$   $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen. Dies ist fünfmal mehr, als in Kapitel (3.7) abgeschätzt wurde. Allerdings ist hier auch ein wesentlich höherer Injektionsdruck von  $6,4 \cdot 10^{-8}$  mbar eingestellt worden, so daß mehr Atome als Quelle für hochgeladene Ionen in der Falle zur Verfügung standen.

Die erfolgte Anregung des M1-Übergangs läßt sich auch direkt erkennen, wenn man die Photonenzählraten mit dem Laser in und außerhalb der Übergangswellenlänge vergleicht. Abbildung (3.28) zeigt exemplarisch einen Ausschnitt der Zerfallskurven bei Lasereinstellungen innerhalb sowie außerhalb der Übergangsfrequenz. Die Zerfallskurven wurden aus den Scans ermittelt, indem einmal die Wellenlängenbereiche des Lasers in Resonanz und ein entsprechend großer Bereich außerhalb der Linien auf die Zeitachse projiziert wurde. Nach dem exponentiellen Abfall der Photonenzählrate nach Abschalten des Strahls ist deutlich eine Erhöhung der Zählrate durch den in Resonanz eingestellten Laser zu erkennen. Die regelmäßig auftauchenden Einschnitte in den Zerfallskurven stammen vom Unterbrecherrad, das mit 98 Hz das von den Laserpulsen verursachte Streulicht blockiert.

Der genaue zeitliche Verlauf der Anregung des  $^2P_{3/2}$ -Zustands ist in Abbildung (3.29, linker Graph) dargestellt. Gezeigt wird das auf vier Zyklen der Laseranregung aufsummierte Signal. Das Datenaufnahmesystem wurde so eingestellt, daß alle Photonenergebnisse innerhalb eines Zeitraums von vier Laserschüssen (41 ms) mit hoher Zeitaufösung registriert und synchron zum ersten Laserschuß aufsummiert werden. Die Laserwellenlänge wurde dabei auf die maximale Zählrate der  $\pi^-$ -Übergänge bei 441,15 nm (siehe Abbildung 3.26)

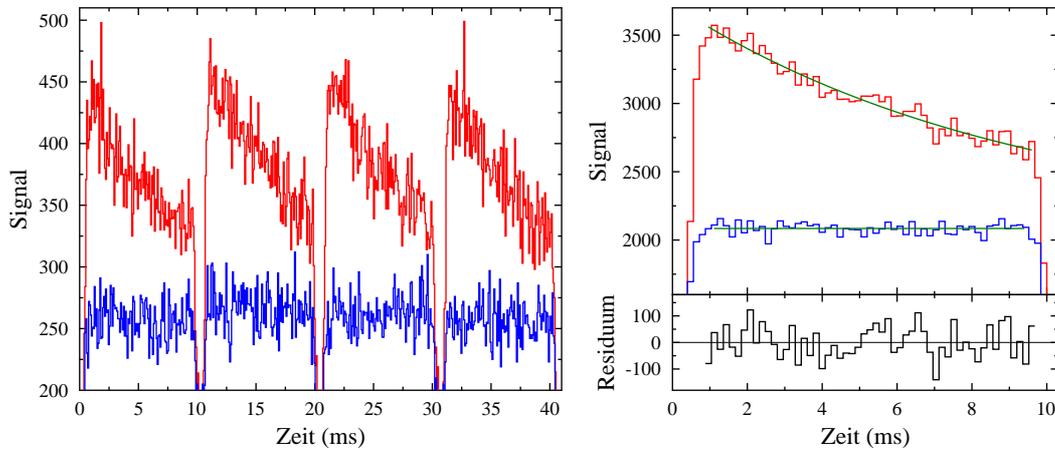


Abbildung 3.29: **Links:** Zeitaufgelöstes Fluoreszenzsignal, integriert über 90 Minuten. Die rote Kurve zeigt die Zählrate, wenn der Laser auf die Übergangsenergie der  $\pi^-$ -Linien bei 441,15 nm eingestellt ist. Bei der blauen Kurve wurde der Laser außerhalb der Resonanz auf 441,7 nm eingestellt. **Rechts:** Nach Aufsummieren und Binnens auf einen einzigen Zyklus ist die exponentielle Zerfallskurve (rot) sichtbar, die durch den Exponentialverlauf in grün beschrieben wird. Die blauen Daten zeigen das entsprechende Fluoreszenzsignal mit dem Laser außerhalb der Resonanz.

eingestellt. Der oben beschriebene EBIT-Zyklus wurde 2700 mal durchfahren und die Ereignisse nach Abschalten des Elektronenstrahls aufsummiert. Eine entsprechende Messung wurde durchgeführt, während der Laser außerhalb der Übergangswellenlänge auf 441,7 nm eingestellt war. Nach jedem Schuß beobachtet man wie erwartet eine Anregung der Ionen und damit verbunden eine Zunahme der Photonenzählrate. Addiert man die Daten der vier einzelnen Schußsequenzen auf (3.29, rechter Graph), ergibt sich die exponentielle Zerfallskurve des metastabilen  $^2P_{3/2}$ -Zustands. Paßt man an die Daten einen exponentiellen Zerfall

$$n(t) = n_0 e^{-t/\tau} + y_0 \quad (3.25)$$

an, wobei man als  $y_0$  den Mittelwert der Zählrate für den Laser außerhalb der Resonanz  $y_0 = 2085(5)$  nimmt, erhält man als Zerfallszeit  $\tau = 9,2(4)$  ms, was mit der Lebensdauer  $\tau = 9,573(4)$  ms des  $^2P_{3/2}$ -Zustands gut übereinstimmt.

Bildet man die Differenz der Zerfallskurven aus 3.28, indem man die gemessenen Photonereignisse mit dem Laser außerhalb der Resonanz als Untergrund von den Ereignissen mit dem Laser in Resonanz abzieht, erhält man die Photonereignisse, die durch die resonante Laseranregung verursacht wurden. Der zeitliche Verlauf der Differenz ist in Abbildung 3.28 dargestellt und zeigt eine exponentielle Abnahme. Beschreibt man diesen Verlauf durch einen exponentiellen Zerfall

$$n(t) = n_0 \exp(-t/\tau_{\text{Überlapp}}), \quad (3.26)$$

### 3.8. Herstellung des Überlapps zwischen Ionenwolke und Laser

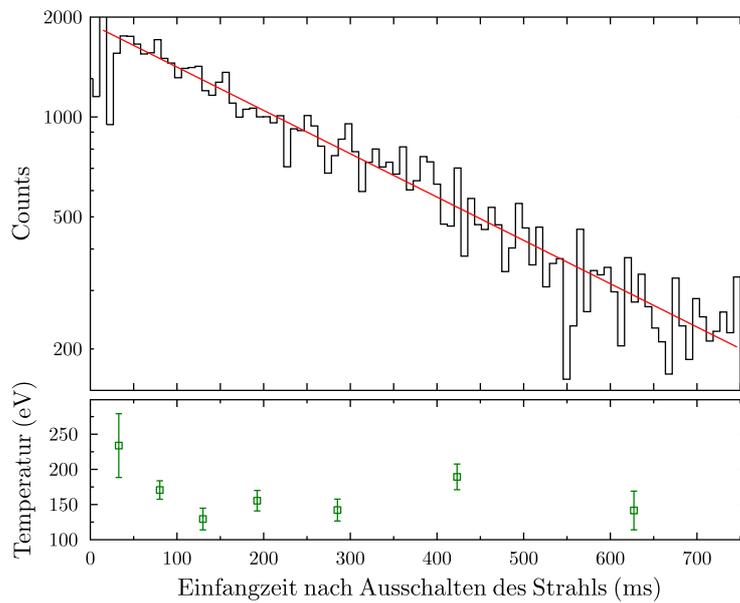


Abbildung 3.30: Abnahme des laserinduzierten Fluoreszenzsignals durch Diffusion der Ionen aus dem Fokusbereich des Lasers nach Ausschalten des Elektronenstrahls. Die mittlere Überlappungszeit beträgt 331(9) ms.

läßt sich die Güte des Ioneneinschlusses im magnetischen Fallenmodus über die Überlappdauer  $\tau_{\text{Überlapp}}$  charakterisieren. Sie gibt die mittlere Lebensdauer an, mit der die Ionen im vom Laser bestrahlten Volumen verweilen.

Man erhält für die vorliegenden Bedingungen eine mittlere Überlappungszeit von 331(8) ms, die der Zerfallsdauer der zweiten Komponente des exponentiellen Zerfalls in Tabelle 3.8 entspricht. Dies läßt darauf schließen, daß die in Abbildung 3.23 sichtbare zweite Zerfallskomponente von Argonionen dieselbe Ursache wie der Zählratenverlust bei der laserinduzierten Fluoreszenz hat. Im vorliegenden Experiment aber werden die im Überlagerungsvolumen gespeicherte Ionen eindeutig durch die Laserpulse angeregt. Die Abnahme der laserinduzierten Fluoreszenzrate wird einerseits durch Ladungsaustausch der  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen mit neutralem Hintergrundgas und andererseits durch eine radiale Ausbreitung der Wolke gegen das Magnetfeld verursacht, die in beiden Fällen die Ionendichte im vom Laser ausgeleuchteten Volumen verringern.



# Kapitel 4

## Messungen

In diesem Kapitel werden die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen zur Laserspektroskopie an borartigem Argon ( $\text{Ar}^{13+}$ ) ausführlich erläutert. Zum ersten Mal ist es gelungen, die direkte Laseranregung von verbotenen Übergängen in Ionen zu vermessen, die in einer EBIT produziert und gespeichert wurden. Detaillierte Messungen zur Bestimmung der Wellenlänge und zur Verdampfungskühlung der gespeicherten Ionen werden im folgenden vorgestellt.

### 4.1 Wellenlängenbestimmung

Zur Bestimmung der Wellenlänge des magnetischen  $1s^2 2s^2 2P^2 P_{3/2} -^2 P_{1/2}$  Dipolübergang (M1) wird, wie in Abschnitt 3.6 beschrieben, die Frequenz des Farbstofflasers schrittweise über den Wellenlängenbereich variiert und für jeden Frequenzschritt ein Ionenproduktions- und Speicherzyklus durchfahren.

Der Elektronenstrahl wird hierbei für 510 ms an- und für 510 ms, bei späteren Scans für 1020 ms ausgeschaltet. Die Stromstärke war stets auf 90 mA eingestellt. Die Beschleunigungsspannung betrug 1020 V und war so optimiert, daß kurz vor Ausschalten des Strahls die Zählrate maximal war. Für den axialen Einfang waren die Driftröhren 4 und 5 wieder auf 500 V gesetzt. Die mittlere Driftröhre befand sich auf einem Potential von 30 V. Um das Ansammeln von Wolfram oder Barium zu verhindern, wurde 100 ms vor Anschalten des Strahls für den nächsten Zyklus die Driftröhren 4 und 5 auf 0 V gesetzt, womit sich die Fallenmitte auf ein positives Potential gegenüber den restlichen Driftröhren befand und somit geleert wurde. Um die Verlustrate der gefangenen Ionen durch Ladungsaustausch mit neutralem Argon zu verringern, wurde der Injektionsdruck auf einen niedrigeren Wert von  $1,0 \cdot 10^{-8}$  mbar in der zweiten differentiell gepumpten Stufe eingestellt. Die Wellenlänge des Lasers wurde von 440,8 nm bis 441,7 nm in Schritten von 1,1 pm verstellt, wo-

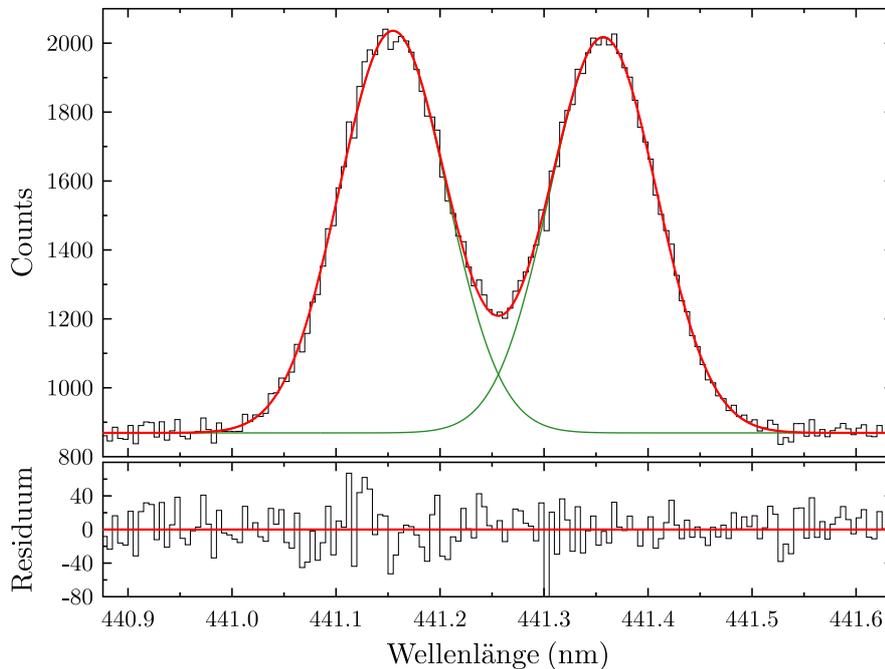


Abbildung 4.1: Summenspektrum aus den 52 einzelnen Scans, das den  $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2} -^2 P_{1/2}$ -Übergang in  $\text{Ar}^{13+}$  zeigt. Aufgrund der Dopplerverbreiterung können die vier  $\pi$ -Übergänge nicht einzeln aufgelöst werden, sondern sind als zwei Maxima sichtbar, die jeweils die  $\pi_{3/2}^+$ - und  $\pi_{1/2}^+$ -Übergänge (linkes Maximum) sowie die  $\pi_{3/2}^-$ - und  $\pi_{1/2}^-$ -Übergänge (rechtes Maximum) enthalten.

bei in jedem Schritt ein EBIT-Zyklus durchfahren wurde. Insgesamt wurden 52 Spektren aufgenommen. Jedes einzelne einzelne Spektrum wurde mit dem dazugehörigen zeitgleich aufgenommenen Neon-Spektrum der Hohlkathodenlampe kalibriert. Die Summe der Wellenlängenprojektionen ist in Abbildung 4.1 zu sehen. Da aufgrund der Dopplerverbreiterung die einzelnen Übergänge nicht aufgelöst sind, erscheinen die vier Zeemankomponenten als zwei Maxima. Die einzelnen Maxima umfassen jeweils die die  $\pi_{3/2}^+$ - und  $\pi_{1/2}^+$ -Übergänge sowie die  $\pi_{3/2}^-$ - und  $\pi_{1/2}^-$ -Übergänge. Wie erwartet sind aufgrund des parallel zum Magnetfeld eingekoppelten Lasers keine  $\sigma$ -Übergänge sichtbar.

Die Wellenlänge des  $1s^2 2s 2p^3 P_2 -^3 P_1$ -Übergangs ergibt sich aus den Schwerpunkt der vier  $\pi$ -Übergänge. Trotz des starken Magnetfelds von 8 T ist die Aufspaltung der magnetischen Energieniveaus im Grundzustand sowie im angeregten Zustand symmetrisch bezüglich der feldfreien Energieniveaus. Theoretische Berechnungen unter der Verwendung der Large Scale CIDFS-Methode [118] zeigen, daß die zu erwartende Verschiebung des Schwerpunktwellenlänge bei  $8 \cdot 10^{-6}$  nm für die  $\pi_{1/2}$ -Übergänge und bei  $4 \cdot 10^{-6}$  nm für die  $\pi_{3/2}$ -Übergänge beträgt [77]. Die Berechnung der Starkverschiebung ergibt, daß bei einer Laserleistung von  $10^{10}$  W/cm<sup>2</sup> die relative Verschiebung der einzelnen Übergänge (auf-

#### 4.1. Wellenlängenbestimmung

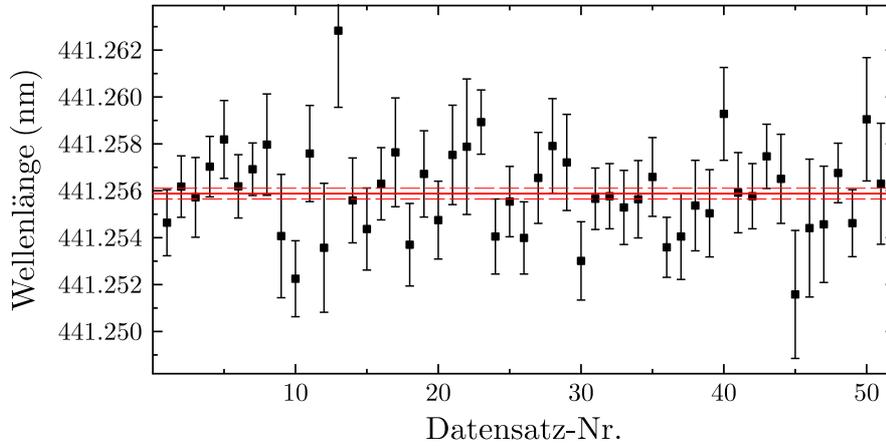


Abbildung 4.2: Wellenlängenergebnisse der einzelnen Scans. In Rot eingetragen sind der Mittelwert und das 68 %-Vertrauensintervall.

Übergang	relative Verschiebung $\frac{\Delta\lambda}{\lambda}$
$\pi_{3/2}^+$	$-4,48 \cdot 10^{-25}$
$\pi_{1/2}^+$	$-2,60 \cdot 10^{-25}$
$\pi_{1/2}^-$	$-2,60 \cdot 10^{-25}$
$\pi_{3/2}^-$	$-4,48 \cdot 10^{-25}$

Tabelle 4.1: Theoretisch berechnete Starkverschiebung für die einzelnen Zeemankomponenten des  $1s^2 2s^2 2P^2 P_{3/2} - 2^2 P_{1/2}$ -Übergangs in  $\text{Ar}^{13+}$  [119] für eine Laserleistung von  $10^{10} \text{ W/cm}^2$ .

geführt in Tabelle 4.1) kleiner als  $10^{-24}$  ist [119]. Diese extrem niedrige Empfindlichkeit gegenüber elektrischen Feldern ergibt sich aus der niedrigen Polarisierbarkeit die hochgeladenen Ionen eigen ist.

Zur Wellenlängenbestimmung wurden die einzelnen Scans mit zwei Gaußfunktionen gefittet. Anschließend wurde der Mittelwert der beiden Wellenlängen gebildet. Die statistischen Fehler des Mittelwerts der einzelnen Scans liegen im Mittel bei 0,0019 nm, während die  $1\sigma$ -Unsicherheiten der einzelnen Kalibrationen mit 0,00007 nm wesentlich kleiner sind. Die einzelnen Wellenlängen sind in Abbildung 4.2 für die einzelnen Scans eingezeichnet, wobei die Fehlerbalken die Summe der vorher genannten Fehler zeigen. Aus den einzelnen Messungen wurde durch Anpassen einer konstanten Funktion ein statistisch gewichteter Mittelwert gebildet. Die resultierende Wellenlänge ergibt 441.25588 nm mit einem statistischen Fehler von 0.00023 nm.

Die Linienbreite ergibt sich aus dem Summenspektrum, wenn man die Fluoreszenzlinien mit vier Gaußfunktionen gleicher Breite beschreibt, wobei die Größe der Zeemanaufspaltung aufgrund des gut bekannten Magnetfelds der EBIT vorgegeben wird (Abbildung 4.3).

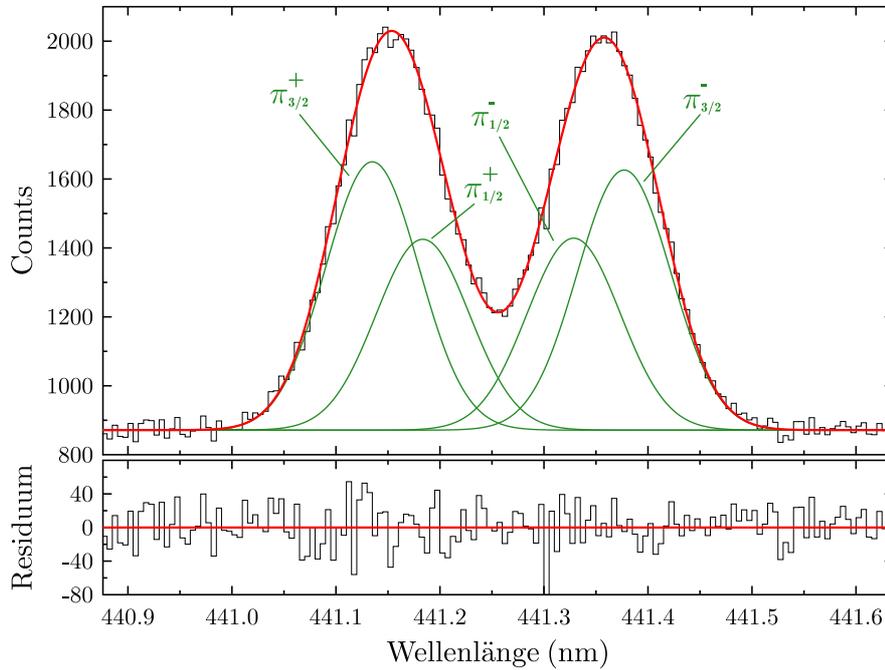


Abbildung 4.3: Summenspektrum aus Abbildung 4.1. Die vier  $\pi$ -Übergänge werden mit Gaußfunktionen gleicher Breite beschrieben. Die Linienbreite von  $89,8(6)$  nm entspricht einer Iontemperatur von  $278(2)$  eV.

Da die erhaltene Linienbreite wesentlich größer ist als die des Lasers ( $1,2$  pm), ist sie praktisch ausschließlich durch die Dopplerverbreiterung gegeben. Man erhält eine Dopplerbreite von  $\lambda_D = 89,8(6)$  pm, was ausgehend von (1.59) mittels

$$T_i = \frac{M_i c^2}{8k_b \ln 2} \left( \frac{\lambda_D}{\lambda_0} \right)^2 \quad (4.1)$$

einer Iontemperatur von  $T_i = 278(2)$  eV entspricht. Dies resultiert bei einer Wellenlänge von  $\lambda_0 = 441$  nm in eine relative experimentelle Auflösung  $\Delta E/E$  von knapp 5000.

#### 4.1.1 Kühlung

Da wie gesehen die experimentelle Auflösung hauptsächlich von der Iontemperatur und der daraus resultierenden Dopplerverbreiterung bestimmt wird, müssen die Ionen gekühlt werden, um die Auflösung zu verbessern. Bei bisher durchgeführten konventionellen spektroskopischen Messungen wurden kontinuierlich durch den Elektronenstrahl Ionen produziert. Dabei werden sie naturgemäß gleichzeitig aufgeheizt. Um dennoch niedrige Iontemperaturen zu erhalten, wurde durch Einstellen eines seichten Potentials an den Fallenelektroden (und bei schweren Ionen durch Zugabe eines Kühlgases) die Verdampfungsküh-

#### 4.1. Wellenlängenbestimmung

---

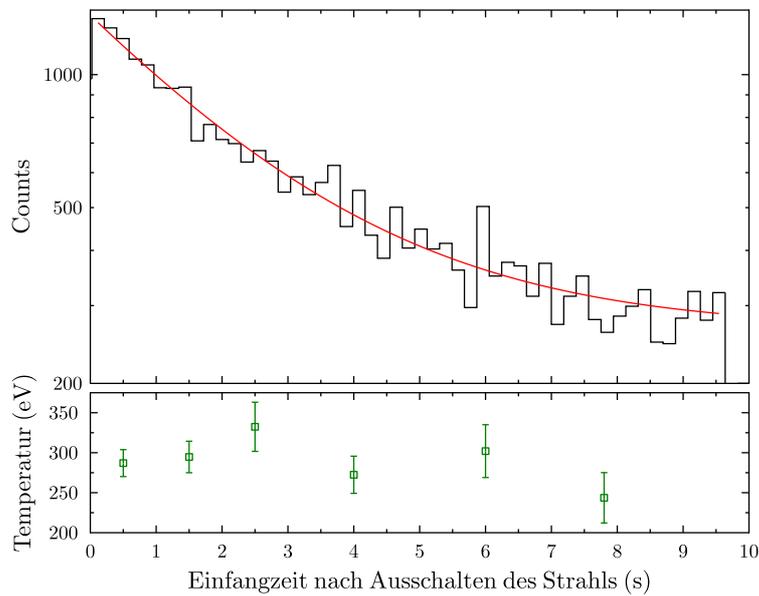


Abbildung 4.4: Zeitliche Entwicklung des Fluoreszenzsignals und der Iontemperatur, ermittelt aus der Linienbreite, bis zu zehn Sekunden nach Ausschalten des Elektronenstrahls. Die grüne Linie beschreibt die Fluoreszenzabnahme mit einem exponentiellen Zerfall und einer mittleren Fangzeit von  $\tau = 2,5(2)$  s.

lung gefördert. Für die hier durchgeführten laserspektroskopischen Messungen ist jedoch die Iontemperatur im magnetischen Fallenmodus ausschlaggebend. Die Abkühlung der Ionen erfolgt daher nach Ausschalten des Elektronenstrahls durch Verdampfungskühlung, die ein langsames Absenken des axialen Potentials beschleunigen kann.

In einem ersten Schritt wurde die Qualität des magnetischen Fallenmodus getestet. Hierfür wurde der Produktions- und Speicherzyklus der EBIT auf 10,2 s verlängert. Argonionen wurden mit einem Strom von 90 mA und einer angelegten Beschleunigungsspannung von 1020 V für 510 ms erzeugt und anschließend im magnetischen Fallenmodus gehalten. Das axiale Fallenpotential war während der Ionenproduktion für die ersten 250 ms invertiert auf  $-30$  V, um das Aufheizen der Ionen durch den Elektronenstrahl zu reduzieren, und wurde dann auf 1470 V gesetzt, um axiale Ionenverluste zu minimieren. Etwa 300 ms vor Ende des Zyklus wurde das axiale Potential wieder auf  $-30$  V invertiert, um schwerere Barium- oder Wolframionen aus der Falle zu entfernen, die von der Kathode in die Fallenregion diffundieren und das leichtere Argon verdrängen können. Der Farbstofflaser wurde in Schritten von 4,4 pm von 440,85 nm bis 441,7 nm durchfahren, wobei bei jedem Wellenlängenschritt ein EBIT-Zyklus durchlaufen wurde. Insgesamt wurden zehn Spektren aufgenommen. Während allen Messungen wurde kontinuierlich Argongas mit einem Injektionsdruck von  $10^{-8}$  mbar in die Falle injiziert.

Abbildung 4.4 zeigt die zeitliche Entwicklung des Fluoreszenzsignals und der Temperatur, die aus der Linienbreite ermittelt wurde. Die Fluoreszenzereignisse wurden gezählt, indem der Bereich, in dem der Laser innerhalb der dopplerverbreiteten Übergangswellenlänge war, aufintegriert und ein entsprechender Bereich mit dem Laser außerhalb der Übergangswellenlänge abgezogen wurde. Setzt man einen exponentiellen Zerfall der Zählrate und somit der Ionenanzahl im vom Laser bestrahlten Volumen an, erhält man eine Halbwertszeit der Falle von  $\tau = 2,5(2)$  s. Diese lange Fallzeit zeigt, daß die EBIT auch als exzellente Penningfalle für hochgeladene Ionen dienen kann. Für eine effektive Verdampfungskühlung ist eine hohe Stoßrate nötig, damit der Gleichgewichtszustand der thermischen Verteilung schnell im Vergleich zur Fallenabsenkung wiederhergestellt und der Anteil der hochenergetischen Ionen wieder bevölkert wird. Die Stoßrate ergibt sich aus Gleichung (2.28) mit einer Ionenzahl von  $10^6$  in einer Wolke von 40 mm Länge und einer Querschnittsfläche von  $1,2 \text{ mm}^2$  sowie einer Temperatur von 300 eV zu  $24 \text{ s}^{-1}$ . Da nach Verlust der hochenergetischen Ionen im Mittel nur 3 Stöße pro Ion nötig sind, um die Wolke wieder zu thermalisieren [120], sollte diese Stoßrate hoch genug sein, um die Ionen über Verdampfungskühlung zu kühlen. Zudem befinden sich zusätzlich neben  $\text{Ar}^{13+}$  auch Ionen mit niedrigeren Ladungszuständen, so daß die effektive Ionenstoßrate höher ist.

Um die Durchführbarkeit der Verdampfungskühlung von hochgeladenen Ionen in der EBIT für die Laserspektroskopie zu untersuchen, wurde synchron zum Produktions- und Speicherzyklus das axiale Fallenpotential variiert. In einer ersten Messung wurden für 80 Schuß bzw 820 ms Argonionen produziert, wobei der Strom des Elektronenstrahls wieder 90 mA betrug und auf 1020 V beschleunigt wurde. Die gesamte Zyklusdauer betrug 2010 ms. Die axialen Fallenpotentiale, angelegt an die Driftröhren 4 und 5, wurden von einem Funktionsgenerator gesteuert. Zu Beginn eines Zyklus betrug das axiale Potential dieser Driftröhren 0 V, um mit einer flachen Falle die Aufheizung der Ionen durch den Elektronenstrahl zu minimieren. Aufgrund der Raumladung des Elektronenstrahls ergibt sich aber weiterhin nach Gleichung (2.20) ein effektives axiales Potential, das die Ionen gefangen hält. Die Spannung an den Driftröhren 4 und 5 wurde 500 ms nach Anschalten des Strahls bzw 320 ms vor Ausschalten zuerst auf 500 V gelegt und dann linear mit einer Geschwindigkeit von  $0,33 \text{ V/ms}$  verringert, so daß beim Ausschalten des Strahls das axiale Potential 350 V und 1050 ms nach Ausschalten 0 V betrug. Die Laserfrequenz wurde wieder schrittweise von 440,8 nm bis 441,7 nm mit einer Schrittgröße von  $2,2 \text{ pm}$  durchgestimmt, wobei bei jedem Wellenlängenschritt ein Zyklus durchlaufen wurde. In einer zweiten Messung wurde die Zyklusdauer auf 300 Schuß bzw. 3060 ms verlängert. Ionen wurden für 510 ms produziert und für 2550 ms im magnetischen Fallenmodus gehalten. Das axiale Potential wurde 250 ms nach Zyklusbeginn auf 500 V gesetzt und linear mit  $0,18 \text{ V/ms}$  auf 0 V heruntergefahren. Die mittlere Driftröhre war wieder auf 30 V gegenüber der Driftröhrenmasse gesetzt. Damit ergab sich beim Ausschalten des Strahls eine Falltiefe von 423 V, die 2325 ms nach

#### 4.1. Wellenlängenbestimmung

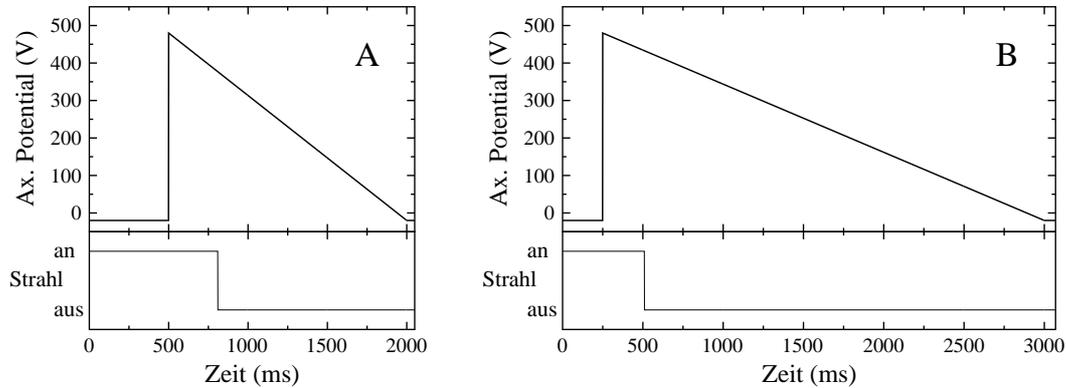


Abbildung 4.5: Schematische Darstellung des Meßschemata zur Ionenkühlung. Links (A) wird das axiale Fallenpotential mit einer Geschwindigkeit von 0,33 V/ms, rechts mit 0,18 V/s abgesenkt. Beim Kühlzyklus A ist Elektronenstrahl für 820 ms zur Ionenproduktion an, während im Kühlzyklus B die Produktionszeit 510 ms beträgt. Bereits vor dem Ausschalten des Elektronenstrahls wird mit der Absenkung des axialen Fallenpotentials begonnen, um die Ionen mit hoher kinetischer Energie entweichen zu lassen.

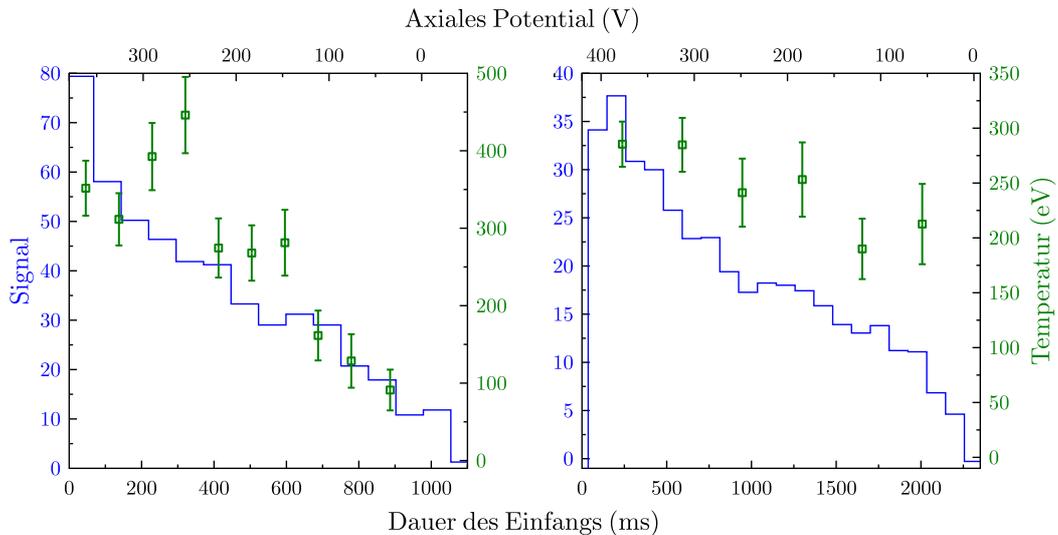


Abbildung 4.6: Abnahme der Iontemperatur (rechte y-Achse in grün) sowie des Fluoreszenzsignals (linke y-Achse in blau) in resonanter Anregung des  $2p^2P_{3/2} - ^2P_{1/2}$  Übergangs bei verschiedenen Kühlgeschwindigkeiten und einem Injektionsdruck von  $1,0 \cdot 10^{-8}$  mbar(siehe Text).

Ausschalten des Strahls 0 V betrug. Die beiden Kühlzyklen sind schematisch in Abbildung 4.5 gezeigt.

Abbildung 4.6 zeigt den Verlauf der Iontemperatur und des Fluoreszenzsignals in Abhängigkeit der axialen Falltiefe. Für verschiedene Zeiten bzw. Falltiefen wurde die Iontemperatur aus der Gaußbreite der einzelnen Linien ermittelt, wobei wieder vier Gaußfunk-

tionen mit vorgegebener Wellenlänge angefittet wurden. Die Signalrate des Fluoreszenzsignals wurde ermittelt, indem der Wellenlängenbereich der dopplerverbreiterten Übergänge zwischen 441,042 – 441,483 nm auf die Zeitachse projiziert wurde und ein entsprechend großer Untergrund außerhalb des Bereichs abgezogen wurde. Im linken Graph ist der Verlauf für die schnellere Fallenabsenkung gezeigt, im rechten Graph der Verlauf der langsameren Fallenabsenkung. Es zeigt sich eine eindeutige Verringerung der Iontemperatur, die bei der schnelleren Fallenabsenkung deutlicher ausgeprägt ist als bei der langsameren Fallenabsenkung. Mit der Fallenabsenkung geht auch eine Verringerung des Fluoreszenzsignals einher, da durch das flacher werdende Fallenpotential fortlaufend Ionen die Falle verlassen können. Die Temperaturabnahme ist allerdings bei dem langsameren Absenken des Fallenpotentials deutlich schwächer ausgeprägt. Dies läßt sich damit erklären, daß die Stöße zwischen den Ionen, die für die Thermalisierung notwendig sind, ebenfalls eine Ausdehnung der Ionenwolke gegen das Magnetfeld (cross field diffusion) verursachen. Dies führt zu einer zusätzlichen Abnahme der Dichte und der Stoßrate. Um dem entgegenzuwirken, kann man zum Einen die Kühldauer verringern, wobei allerdings die Ionen genügend Zeit zum Thermalisieren haben. Zum Anderen kann man die Dichte erhöhen, um nach dem Kühlvorgang noch genügend Ionen in der Falle zu haben.

Daher wurde in einer neuen Meßreihe der Injektionsdruck auf  $2 \cdot 10^{-7}$  mbar erhöht, um die Stoßrate zu erhöhen und so eine effiziente Verdampfungskühlung zu erhalten. Durch die Erhöhung der Argondichte in der Falle werden nicht nur mehr  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen erzeugt, es kommen vermehrt niedrigere Ladungszustände vor, die insbesondere für das Verdampfungskühlen von Vorteil sind, da sie aufgrund ihres schwächeren Bindungspotentials die Falle eher verlassen. Der EBIT-Zyklus bestand aus einer Ionenproduktionszeit für 100 Schuß bzw 1020 ms, danach wurden die Ionen für 200 Schuß bzw 2040 ms im magnetischen Fallenmodus gehalten. Der Strom wurde auf 110 mA optimiert. Die Beschleunigungsspannung betrug 1070 V, wobei das Potential der Kathode  $-700$  V und das des Driftröhrenensembles 370 V betrug. In Gegensatz zu den vorherigen Messungen wurde auf ein regelmäßiges Entleeren der Falle verzichtet, da es sich gezeigt hat, daß mit dem einhergehenden Verlust aller Ionen die Gesamtzählrate wesentlich niedriger gewesen wäre. Die Falltiefe während der Ionenerzeugung wurde auf 200 V gesetzt, um die Anfangstemperatur durch die Stoßaufheizung niedriger zu halten. Nach Ausschalten des Strahls wurde das axiale Potential von 200 V auf 20 V innerhalb einer Sekunde mit einer Geschwindigkeit von 0,18 V/ms gesenkt und danach auf 20 V gehalten.

Abbildung 4.7 zeigt die erfolgte Kühlung bei einer wesentlich höheren Ausgangsdichte. Die Temperatur der Ionenwolke wird hier von 240 eV auf 30 eV abgekühlt. Die Temperatur folgt direkt dem Fallenpotential und beträgt ein Zehntel der axialen Bindungsenergie, entsprechend dem Fall des stationären Zustands [89]. Dies läßt darauf schließen, daß die Stoßrate beim Abkühlen hoch genug ist, um für eine hinreichend schnelle Thermalisierung

#### 4.1. Wellenlängenbestimmung

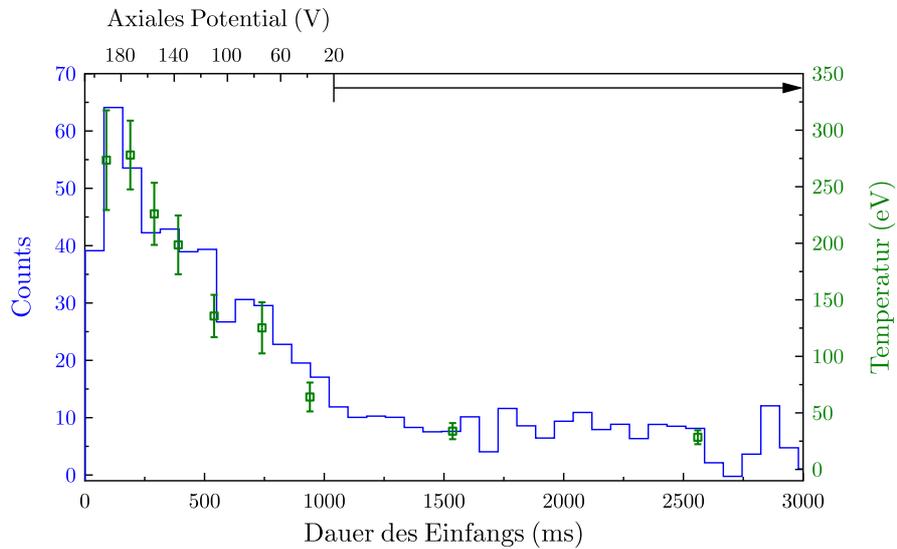


Abbildung 4.7: Abnahme der Iontemperatur (rechte y-Achse in grün) sowie des Fluoreszenzsignals (linke y-Achse in blau) in resonanter Anregung des  $2p^2P_{3/2} - 2^2P_{1/2}$  Übergangs bei einem Injektionsdruck von  $2,0 \cdot 10^{-7}$  mbar (siehe Text).

zu sorgen.

Noch tiefere Temperaturen sollten prinzipiell durch eine weitere Absenkung des axialen Fallenpotentials möglich sein. Allerdings nimmt die Ionendichte ebenfalls weiterhin ab. Eine Absenkung der axialen Fallentiefe auf 10 V führte dazu, daß praktisch kein Fluoreszenzsignal mehr vorhanden war. Allerdings war die erreichte Auflösung mit einer Linienbreite von 30 pm ausreichend, um die einzelnen Zeemankomponenten aufzulösen. Daher wurde in nachfolgenden Messungen die Absenkung der Falle auf 20 V beibehalten. Weitere Messungen haben gezeigt, daß auch bei einem schnelleren Absenken der Falle innerhalb 400 ms die gleiche Endtemperatur erreicht wird. Daher wurde bei den nachfolgenden Messungen zur Wellenlängenbestimmung die kürzere Kühlzeit gewählt, um das Verhältnis Meßzeit zu Zyklusdauer zu erhöhen. Die Wellenlänge des Lasers wurde von 440,8 nm bis 441,55 nm in Schritten von 1,1 pm durchfahren, wobei bei jedem Wellenlängenschritt ein Zyklus durchlaufen wurde. Insgesamt wurden 58 Scans durchgeführt. Bei den ersten 26 Scans betrug die Zyklusdauer 3060 ms. Danach wurde die Zyklusdauer für die nachfolgenden 32 Scans auf 4080 ms erhöht, um eine längere Meßzeit zu erhalten. Abbildung 4.8 zeigt die Summe aller aufgenommenen zweidimensionalen Scatterplots. Gezeigt sind die Fluoreszenzereignisse im magnetischen Fallenmodus nach Ausschalten des Elektronenstrahls für eine Speicherzeit von 2020 ms, wie bei dem kürzeren EBIT-Zyklus eingestellt, gezeigt. Direkt nach Ausschalten des Strahls ist die Temperatur der Ionen noch so hoch, daß die vier  $\pi$ -Übergänge nicht einzeln aufgelöst werden können, sondern als zwei Maxima sichtbar sind. Mit voranschrei-

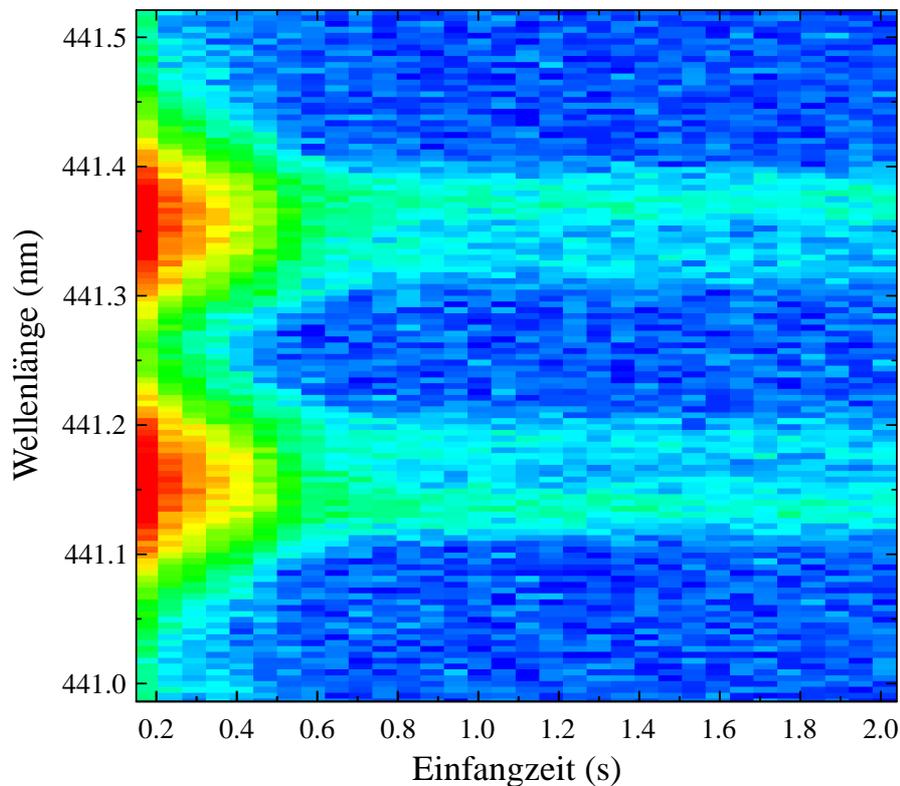


Abbildung 4.8: Summe der 58 aufgenommen zweidimensionalen Scatterplots (siehe Abbildung 3.21). Gezeigt ist der Ausschnitt der Daten direkt nach Ausschalten des Elektronenstrahls, bis zu einer Speicherzeit von 2040 ms. Die y-Achse gibt die Wellenlänge des Farbstofflasers an, die x-Achse die Zeit nach Ausschalten des Strahls.

tender Kühlung verbessert sich die Auflösung, so daß schlußendlich alle vier  $\pi$ -Übergänge sichtbar werden.

Der Temperaturverlauf während und nach der Kühlung ist in Abbildung 4.9 dargestellt. Zur Bestimmung der Temperatur wurde die Summe der Datenmatrizen in vertikale Streifen von 60 ms Breite geteilt und auf die Wellenlängenachse projiziert. Anschließend wurden für jeden Streifen analog zur Temperaturbestimmung in der vorherigen Messung vier Gaußfunktionen mit derselben Breite und vorgegebener Wellenlänge angepaßt und anhand der Breite die Iontemperatur mittels Gleichung (4.1) bestimmt. Die Summe der Flächen der vier Gaußfunktionen ist ebenfalls dargestellt. Sie gibt den Verlauf der Fluoreszenzrate während des Kühlverlaufs wieder. Die Temperatur wird wie beim langsamen Abkühlen (Abbildung 4.7) von 240 eV auf 30 eV reduziert. Projiziert man den Zeitbereich nach erfolgter Kühlung auf die Wellenlängenachse, erhält man das Spektrum in Abbildung 4.10.

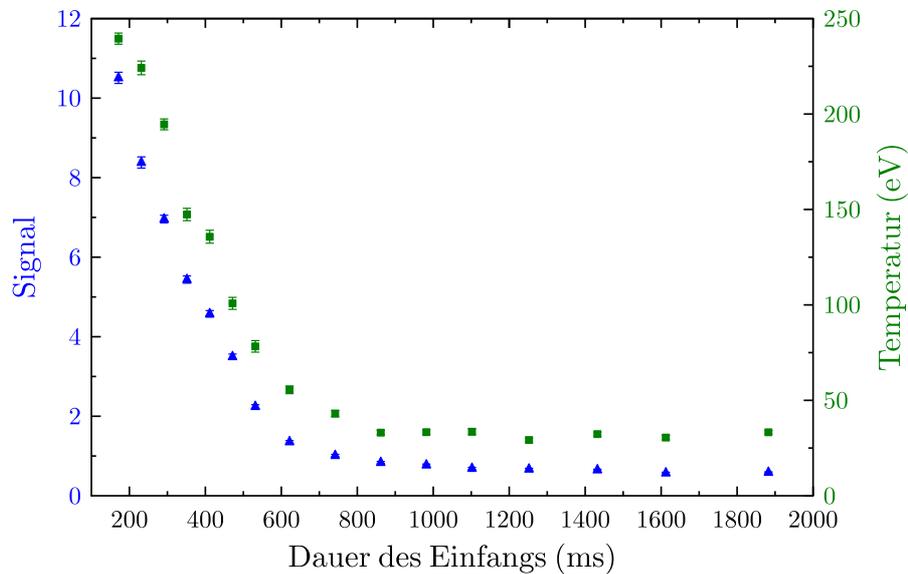


Abbildung 4.9: Zeitlicher Verlauf der Temperatur (schwarz), ermittelt aus der Linienbreite sowie die relative Signalstärke des laserinduzierten Fluoreszenzsignals (blau) der in Abbildung 4.8 dargestellten Messung.

#### 4.1.2 Wellenlängenbestimmung

Zur Wellenlängenbestimmung des M1-Übergangs wurden die Meßdaten in zwei Bereiche geteilt. Der Zeitbereich während des Kühlens, in dem die vier Zeemankomponenten noch nicht auflösbar sind, wird wie bei der ersten Messung ausgewertet. Dieser Bereich wird für jeden einzelnen Scan auf die Wellenlängenachse projiziert und die Daten mit zwei Gaußfunktionen gefittet. Anschließend wurde der Mittelwert der beiden Wellenlängen gebildet. Die so erhaltenen Wellenlängen sind in Abbildung 4.11 für die einzelnen Scans eingezeichnet. Aus den einzelnen Messungen wurde mit dem Anpassen einer konstanten Funktion ein gewichteter Mittelwert gebildet. Die resultierende Wellenlänge ergibt 441.25564(25) nm.

Die Daten nach erfolgter Abkühlung (750 ms nach Ausschalten des Strahls) wurden für jeden einzelnen Scan auf die Wellenlängenachse projiziert. Aufgrund der geringeren Fluoreszenzzählrate wurden jeweils drei dieser Projektionen zu einem Spektrum aufaddiert. An die Spektren wurden jeweils vier Gaußfunktionen mit derselben Breite angepaßt. Aus den Wellenlängen der vier  $\pi$ -Übergänge können zwei unabhängige Ergebnisse zur Wellenlängenbestimmung gewonnen werden. Aufgrund der sehr hohen Auflösung können die Wellenlängen der Übergänge einzeln bestimmt werden. Um die zentrale Übergangswellenlänge zu ermitteln, werden von jedem Linienpaar ( $\pi_{3/2}^+$ ,  $\pi_{3/2}^-$ ) sowie ( $\pi_{1/2}^+$ ,  $\pi_{1/2}^-$ ) die Mittelwerte  $\lambda_{\pi_{3/2}}$  und  $\lambda_{\pi_{1/2}}$  gebildet:

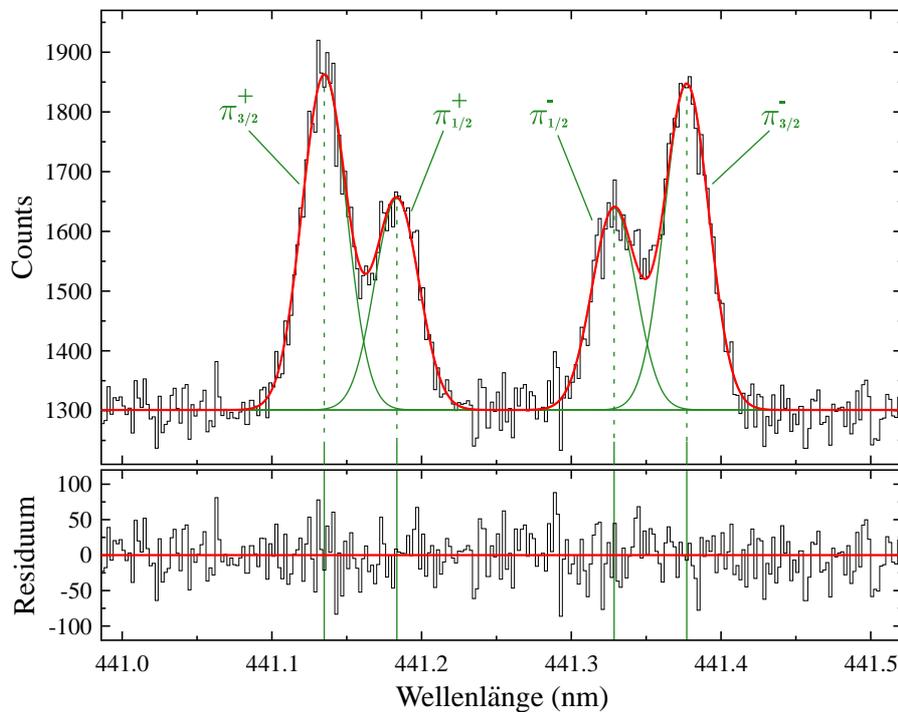


Abbildung 4.10: Summenspektrum des  $1s^2 2s^2 2P^2 P_{3/2} - ^2 P_{1/2}$ -Übergang in  $\text{Ar}^{13+}$  nach erfolgter Kühlung der Ionen. Das Spektrum zeigt die Zeemanaufspaltung des Übergangs aufgrund des Magnetfelds von 8 T in der Falle. Aufgrund der Einkopplung des Lasers parallel zum Magnetfeld wurden nur die  $\pi$ -Übergänge angeregt. Die Linienbreite der Übergänge beträgt  $28,8(4)$  pm, dies entspricht einer Ionentemperatur von  $28,3(8)$  eV.

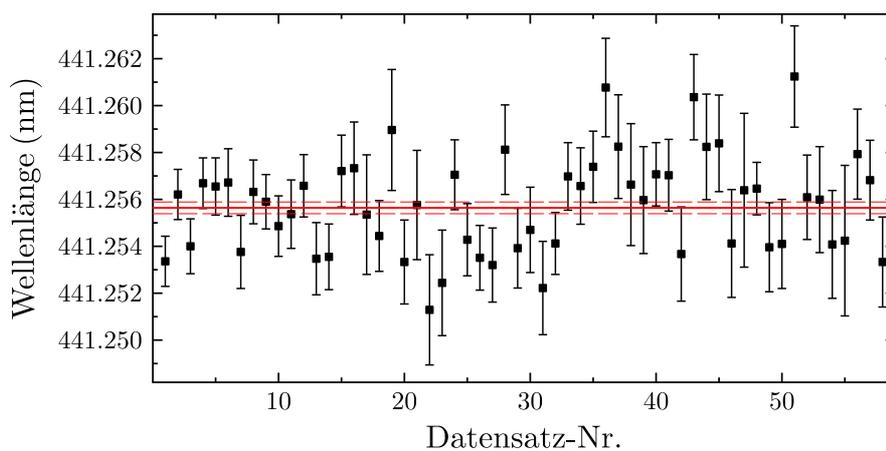


Abbildung 4.11: Wellenlängenergebnisse der einzelnen Projektionen des Fluoreszenzsignals während des Kühlens (vgl. Abbildung 4.8). In Rot eingetragen sind der Mittelwert und das 68%-Vertrauensintervall.

#### 4.1. Wellenlängenbestimmung

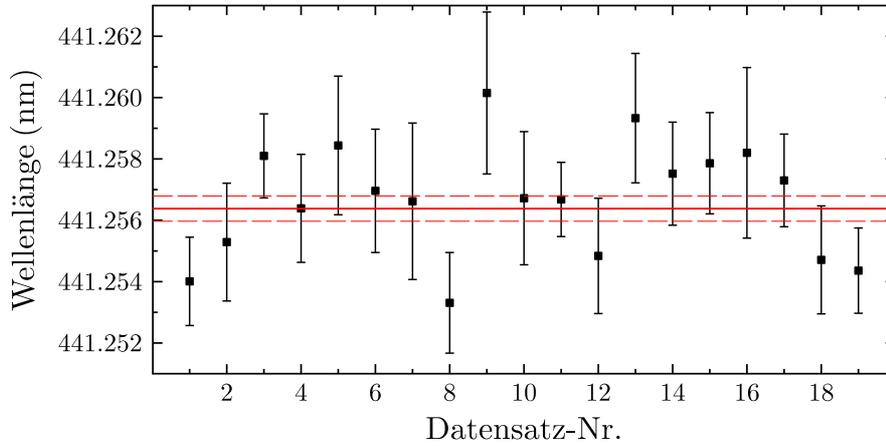


Abbildung 4.12: Wellenlängenergebnisse der einzelnen Spektren des Fluoreszenzsignals nach erfolgter Kühlung der Ionen für die  $\pi_{1/2}$ -Übergänge. In Rot eingetragen sind der Mittelwert und das 68 %-Vertrauensintervall.

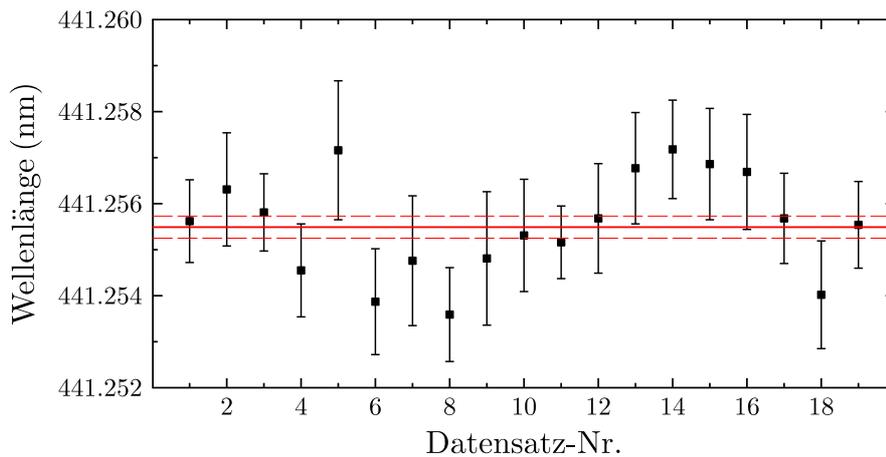


Abbildung 4.13: Wellenlängenergebnisse der einzelnen Spektren des Fluoreszenzsignals nach erfolgter Kühlung der Ionen für die  $\pi_{3/2}$ -Übergänge. In Rot eingetragen sind der Mittelwert und das 68 %-Vertrauensintervall.

$$\lambda_{\pi_{3/2}} = \frac{\pi_{3/2}^+ + \pi_{3/2}^-}{2} \text{ bzw. } \lambda_{\pi_{1/2}} = \frac{\pi_{1/2}^+ + \pi_{1/2}^-}{2}. \quad (4.2)$$

Die so erhaltenen Wellenlängenergebnisse sind in den Abbildungen 4.12 für die  $\pi_{1/2}$ -Übergänge und 4.13 für die  $\pi_{3/2}$ -Übergänge gezeigt.

Da jede einzelne Kalibrierung neun Referenzlinien verwendet, die mit einer Genauigkeit von  $3 \cdot 10^{-5}$  bis  $6 \cdot 10^{-5}$  nm genau bestimmt wurden, ist der Gesamtfehler im Wesentlichen durch den statistischen Fehler der Linienpositionsbestimmung gegeben. Aus den insgesamt

Messung	Wellenlänge $\lambda_c$
erste Messung	441.25588(23) nm
zweite Messung	Während des Kühlvorgangs 441.25564(25) nm
	Nach Kühlvorgang $\lambda_{\pi_{1/2}}$ 441.25638(41) nm
	Nach Kühlvorgang $\lambda_{\pi_{3/2}}$ 441.25549(24) nm
Mittelwert	441,25575(15) nm

Tabelle 4.2: Mittelwerte der Übergangswellenlängen aus den vier Datensätzen.

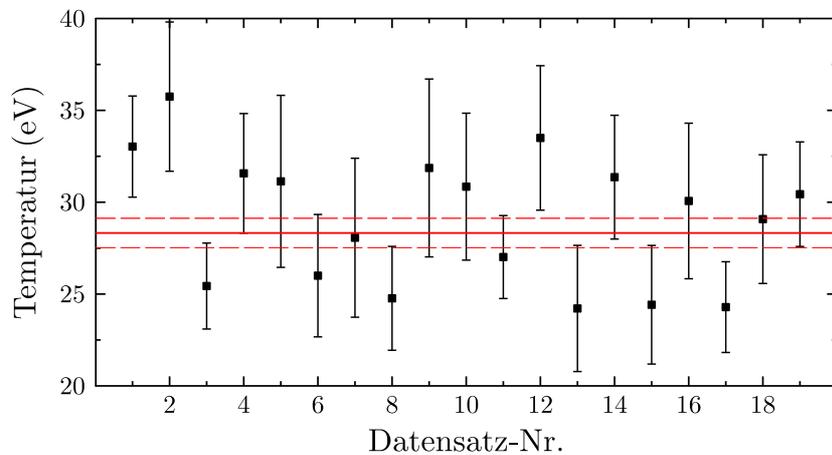


Abbildung 4.14: Temperatur einzelnen Spektren des Fluoreszenzsignals nach erfolgter Kühlung der Ionen. In Rot eingetragen sind der Mittelwert und das 68 %-Vertrauensintervall.

vier Wellenlängen (aufgelistet in Tabelle 4.2) wird der gewichtete Mittelwert gebildet, der sich zu 441,25575(15) nm ergibt. Zusammen mit dem systematischen Fehler der Kalibrationslinien von 0,00002 nm aus 3.3.3 erhält man als Übergangswellenlänge 441,2558(2) nm. In den hier durchgeführten Messungen wurde daher der M1  $1s^2 2s 2p \ ^3P_2 - ^3P_1$ -Übergang in borartigen Argon mit einer Präzision von  $< 0,3$  ppm bestimmt. Somit wurde eine Genauigkeit erreicht, die auf dem Gebiet der Spektroskopie hochgeladener Ionen bisher selten erreicht wurde.

Die Ionentemperatur wurde auf entsprechende Weise ermittelt. Aus der Linienbreite der Gaußfunktionen wurde für jedes Spektrum die Temperatur berechnet. Die einzelnen Werte der Spektren sind in Abbildung 4.14 gezeigt. Als gewichteter Mittelwert ergibt sich eine Ionentemperatur von 28.3(8) eV.

Verbotene Übergänge in hochgeladenem Argon wurden bereits in früheren Arbeiten mit einem konventionellen Gitterspektrometer vermessen. Die bisher genauesten Messungen wurden zum einen von Draganić et al. [121] an der Freiburger EBIT vor ihrem Umzug nach Hei-

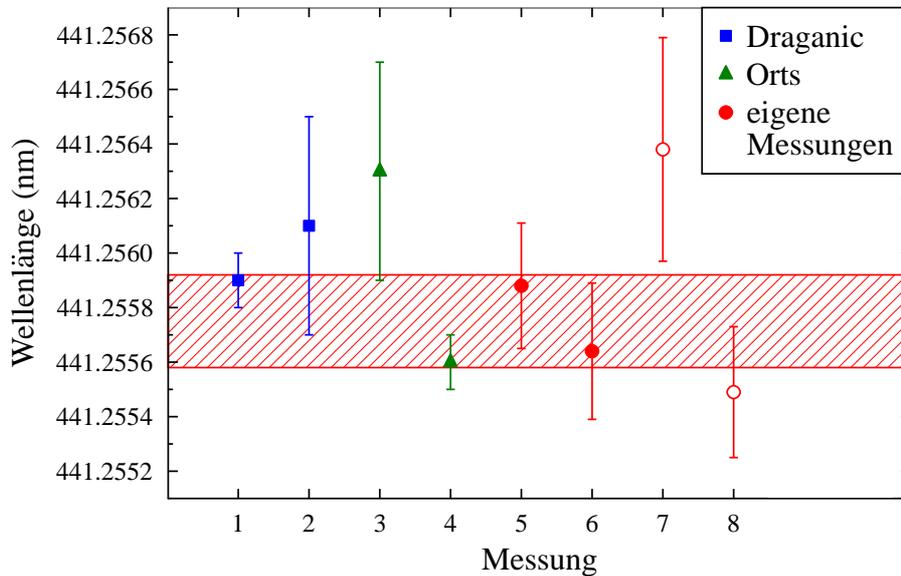


Abbildung 4.15: Vergleich der in dieser Arbeit aus den laserspektroskopischen Messungen gewonnenen Wellenlängen mit früheren Messungen, die mit einem Gitterspektrometer durchgeführt wurden. Die erste Messung (blaues Quadrat) wurde Draganić et al. (Ref. [121]) an der Freiburger EBIT durchgeführt, bevor sie nach Heidelberg gebracht wurde. Die zweite Messung fand an der Heidelberger EBIT statt [122], wobei zur Kalibration Übergänge in  $\text{Ar}^+$  genommen wurden, das zeitgleich in der EBIT erzeugt wurde. Messungen 3 und 4 (grüne Dreiecke) stammen von Orts et al. [77, 94] mit einer Eisen-Hohlkathodenlampe mit Neon als Füllgas als Kalibrationsquelle. Die hier durchgeführten Messungen sind mit roten Kreisen dargestellt. Die gefüllten Kreise (Messungen 5 und 6) sind die Ergebnisse aus den Messungen ohne Verdampfungskühlung. Die leeren Kreise zeigen die Werte nach erfolgter Verdampfungskühlung. Dabei ist der Datenpunkt 7 die Wellenlänge aus den  $\pi_{1/2}$ -Übergängen und der Datenpunkt 8 die Wellenlänge aus den  $\pi_{3/2}$ -Übergängen. Der schraffierte Bereich zeigt das Vertrauensintervall der vier Messungen dieser Arbeit.

delberg durchgeführt. In diesen Messungen wurden verbotene Übergänge in verschiedenen Ladungszuständen von Argon ( $\text{Ar}^{9+,10+,13+,14+}$ ) mit einer mittleren Genauigkeit kleiner 1 ppm bestimmt, wobei für den M1-Übergang in  $\text{Ar}^{13+}$  mit der Wellenlänge 441,2559 nm eine Genauigkeit von 0,0001 nm erreicht wurde. Nach dem Umzug der EBIT wurde eine Vergleichsmessung mit dem Ergebnis von 441,2561(4) nm durchgeführt [122], wobei zur Kalibration Übergänge in gleichzeitig in der EBIT erzeugtem  $\text{Ar}^+$  genommen wurden. Zwei Messungen von Orts et al. [94], die mit dem Spektrum einer Eisen-Hohlkathodenlampe kalibriert wurden, ergaben 441,2561(4) nm und 441,2556(1) nm. Abbildung 4.15 vergleicht die in dieser Arbeit erhaltenen Ergebnisse mit den vorherigen Messungen.

Innerhalb des Fehlers ergibt sich eine exzellente Übereinstimmung mit den in früheren Experimenten ermittelten Werten für die Übergangswellenlänge des  $1s^2 2s^2 2P^2 P_{3/2} -^2 P_{1/2}$ -Übergangs in borartigem Argon. Zwar wurde nicht ganz die in den vorherigen Messungen

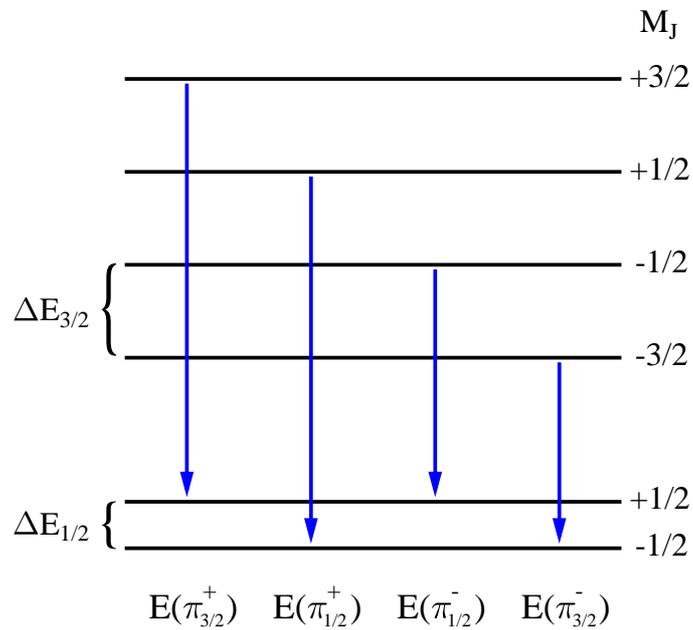


Abbildung 4.16: Schema der Energieaufspaltung zur Bestimmung der g-Faktoren. Statt der Übergangswellenlängen  $\lambda(i)$  sind die entsprechenden Übergangsenergien  $E(i)$  eingezeichnet.

erzielte Genauigkeit erreicht, allerdings wurde in dieser Arbeit erfolgreich der Einsatz einer neuen Methode, der Laserspektroskopie an der EBIT, gezeigt.

## 4.2 Zeemanaufspaltung

Die vier  $\pi$ -Emissionslinien im Zeemanspektrum des  $^2P_{3/2} - ^2P_{1/2}$ -Übergangs in borartigem Argon sind symmetrisch um die mittlere Wellenlänge  $\lambda_c$  angeordnet. Anhand der Wellenlängenaufspaltung lassen sich die  $g_J$ -Faktoren für den Grundzustand ( $J = 1/2$ ) sowie für den angeregten Zustand ( $J = 3/2$ ) bestimmen. Als erster Schritt werden die Wellenlängen der einzelnen Komponenten bestimmt, indem die Spektren nach Abkühlen der Ionen wieder mit vier Gaußfunktionen gleicher Breite angepaßt werden, wobei als zusätzliche Bedingung vorgegeben wird, daß die  $\pi_{3/2}$ - sowie  $\pi_{1/2}$ -Paare dieselbe Zentralwellenlänge haben.

Der Landéfaktor  $g_J$  läßt sich aus der Energieaufspaltung  $\Delta E_J$  zweier magnetischer Unterzustände unter Verwendung der Gleichungen 1.49 und 1.50 bei gegebenem Magnetfeld  $B$  berechnen zu

$$g_J = \frac{\Delta E_J}{\mu_B B \Delta m}, \quad (4.3)$$

## 4.2. Zeemanaufspaltung

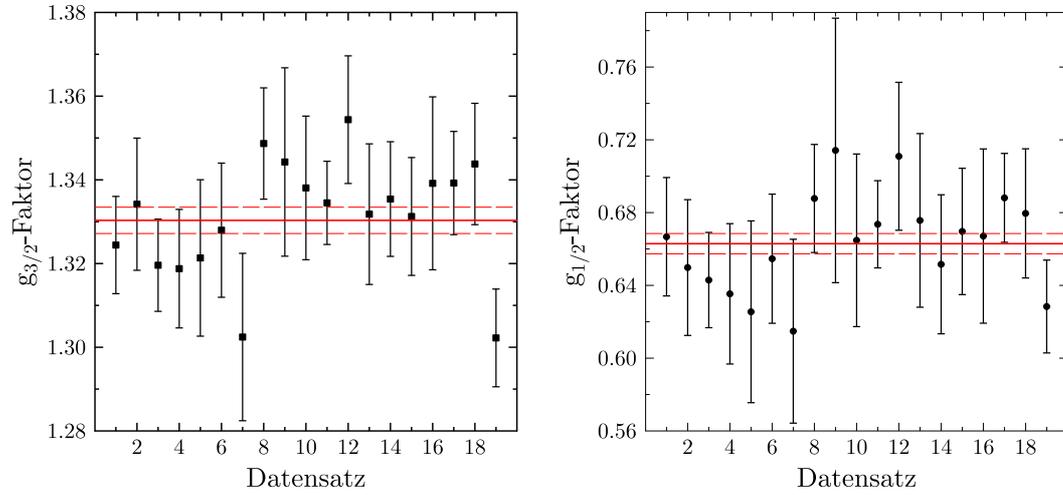


Abbildung 4.17: Experimentell ermittelte Werte der  $g_J$ -Faktoren, die aus den einzelnen Spektren ermittelt wurden. Im linken Graph sind die Werte für  $g_{3/2}$  (Quadrate), im rechten Graph die Werte für  $g_{1/2}$  (Kreise) gezeigt. In Rot eingetragen sind der Mittelwert und das 68 %-Vertrauensintervall.

wobei  $\Delta m$  der Unterschied der magnetischen Quantenzahl der Unterzustände ist. Die Energieaufspaltung  $\Delta E_{3/2}$  zweier benachbarter Unterzustände ( $\Delta m = 1$ .) für  $J = 3/2$  ergibt sich aus den Übergangsenergien zu (siehe Abbildung 4.16)

$$\Delta E_{3/2} = \frac{1}{2} \left( \Delta E(\pi_{3/2}^+) - \Delta E(\pi_{1/2}^-) \right) \text{ bzw.} \quad (4.4)$$

$$\Delta E_{3/2} = \frac{1}{2} \left( \Delta E(\pi_{1/2}^+) - \Delta E(\pi_{3/2}^-) \right). \quad (4.5)$$

Faßt man beide Ergebnisse zusammen und ersetzt die Energien durch die entsprechenden Wellenlängen mittels  $E = hc/\lambda$ , erhält man

$$\Delta E_{3/2} = \frac{hc}{4} \left( \frac{1}{\lambda(\pi_{3/2}^+)} - \frac{1}{\lambda(\pi_{1/2}^-)} + \frac{1}{\lambda(\pi_{1/2}^+)} - \frac{1}{\lambda(\pi_{3/2}^-)} \right). \quad (4.6)$$

Für die Energiedifferenz  $\Delta E_{1/2}$  ergibt sich entsprechend

$$\Delta E_{1/2} = \frac{hc}{4} \left( \frac{3}{\lambda(\pi_{1/2}^+)} - \frac{3}{\lambda(\pi_{1/2}^-)} + \frac{1}{\lambda(\pi_{3/2}^-)} - \frac{1}{\lambda(\pi_{3/2}^+)} \right). \quad (4.7)$$

Für jedes Spektrum wurden aus den Wellenlängen der vier  $\pi$ -Übergänge die Landéfaktoren bestimmt und anschließend der gewichtete Mittelwert gebildet. Die einzelnen Werte für  $g_J = 1/2$  sowie für  $g_J = 3/2$  sind in Abbildung 4.17 dargestellt. Das Magnetfeld in

Zustand	$g_{theor}$	$g_{exp}$ Orts	$g_{exp}$ Diese Arbeit
$^2P_{1/2}$	0,6636908	0,663(7)	0,663(6)
$^2P_{3/2}$	1,3324210	1,333(2)	1,330(3)

Tabelle 4.3: Aus der Zeemanaufspaltung bestimmte  $g$ -Faktoren (rechts). Zum Vergleich sind theoretische Berechnungen mit der CI-HFDS-Methode [94] (links) sowie experimentelle Werte [77] angegeben (mitte), die an der Heidelberger EBIT bei einem Magnetfeld von 6,82 T ermittelt wurden.

der Falle ist auf  $5 \cdot 10^{-4}$  genau bekannt. Diese Unsicherheit wird quadratisch zum Fehler der Mittelwerte addiert. Die Ergebnisse werden in Tabelle 4.3 zusammen mit früheren Messungen [77] und theoretischen Berechnungen basierend auf der Konfigurationswechselwirkungsmethode mit Hartree-Fock-Dirac-Sturm-Wellenfunktionen (CI-HFDS) [94] verglichen.

Die hier erhaltenen Messungen sind in exzellenter Übereinstimmung mit Werten, die ebenfalls an der Heidelberger EBIT von Orts mit einem Gitterspektrometer ermittelt wurden [77]. Allerdings betrug bei dieser Messung das Magnetfeld 6,82 T im gegensatz zu den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen Die hier erreichte experimentellen Genauigkeit ist allerdings ebenfalls noch nicht hinreichend hoch, um einen detaillierten Bereich mit theoretischen Vorhersagen durchzuführen, da Abweichungen von der nichtrelativistischen Landéformel (1.51) kleiner als die experimentellen Fehler sind.

### 4.3 Magnetischer Fallenmodus

Bei den hier durchgeführten Messungen wurden zyklisch Ionen erzeugt und anschließend im magnetischen Fallenmodus gehalten. Der Einsatz des magnetischen Fallenmodus war notwendig, um die Ionen in einer Umgebung zu halten, in der sie ausschließlich durch den Laser und nicht durch den Elektronenstrahl angeregt werden. Dieser Fallenmodus wurde insbesondere für Lebensdauermessungen von metastabilen Zuständen in hochgeladenen Ionen genutzt [99, 100].

Bisherige Messungen zu Einfangzeiten der Ionen im magnetischen Fallenmodus erfolgten mit Hilfe des Ladungsaustauschs mit neutralem Gas in der Fallenregion. Dabei wird die Röntgenstrahlung, die beim Übergang des eingefangenen Elektrons in den Grundzustand von den Ionen abgestrahlt wird, registriert. Solche Messungen wurden z.B. an der Livermore-EBIT untersucht [97]. Nacktes und wasserstoffartiges Krypton ( $Kr^{35,36+}$ ) wurde magnetischen Fallenmodus gehalten und die  $K\alpha$ -Übergänge nach erfolgten Ladungsaustausch registriert. Es wurde eine exponentielle Abnahme der Signalrate festgestellt, wobei Zerfallskonstanten zwischen 1 s und 5 s bestimmt wurden. Es wurde eine deutliche Abnahme der Zerfallskonstanten mit zunehmenden Injektionsdruck gesehen, was den Erwartun-

gen entspricht, da mit einer höheren Dichte an neutralem Gas die Ladungsaustauschrate und somit der Verlust der gespeicherten Ionen zunimmt. Eine frühere Messung an derselben EBIT, bei der die Ionen mittels Ionen-Zyklotronresonanzspektroskopie nachgewiesen wurden, ergab eine untere Grenze für die Zerfallskonstanten von 1,5 s [123]. Bei dieser Methode wird über in die Falle eingebrachte Sonden die Zyklotronfrequenz der im Magnetfeld der EBIT gyrierenden Ionen angeregt und die Anregung nach einer variablen zeitlichen Verzögerung wieder detektiert. Anhand der Signalstärke kann die Anzahl der gespeicherten Ionen bestimmt werden. Allerdings führt die Anregung der Zyklotronfrequenz auch zu einer Aufheizung der Ionen, die wiederum zu einer Vergrößerung der Zyklotronradien führt, wodurch die Dichte der Ionenwolke reduziert wird. Im Gegensatz zu dem Ionennachweis über Ladungsaustausch ist die resonante Laseranregung nicht verlustbehaftet, so daß der Inhalt der Falle nicht durch die Messung beeinflusst wird. Der Einsatz der direkten Laseranregung von metastabilen Übergängen ermöglicht neben hochgenauen spektroskopischen Untersuchungen eine Diagnose des in der EBIT gespeicherten Plasmas im magnetischen Fallenmodus. So kann ausgehend von der Fluoreszenzzählrate auf die Ionendichte rückgeschlossen werden. Zudem können wichtige Plasmamparameter wie die Iontemperatur anhand der Dopplerverbreiterung der Übergangslinie oder die Stärke des Magnetfelds anhand der Zeemanaufspaltung bestimmt werden.

#### 4.3.1 Verlustkanäle

Während den hier vorgestellten Messungen wurden mit drei verschiedenen EBIT-Betriebsparametern Argonionen im magnetischen Fallenmodus gehalten. Abbildung 3.30 zeigt die Fluoreszenzabnahme bei einer axialen Falltiefe von 500 V, wobei kontinuierlich Argongas mit einem Injektionsdruck von  $6,8 \cdot 10^{-8}$  mbar in der ersten differentiell gepumpten Stufe injiziert wurde. In 4.4 betrug das axiale Potential 1470 V bei einem Injektionsdruck von  $1,0 \cdot 10^{-8}$  mbar. Der zeitliche Verlauf des Fluoreszenzsignals, nachdem die Ionen durch Verdampfungskühlung abgekühlt wurden, ist in Abbildung 4.18 gezeigt. Die axiale Falltiefe 20 V betrug, der Injektionsdruck  $2 \cdot 10^{-7}$  mbar. Tabelle 4.4 listet die Injektionsdrücke und axialen Falltiefen für die drei Signalverläufe auf. Die Iontemperaturen wurden direkt aus der Linienbreite bestimmt. Die Ionendichten wurde anhand der Zählrate bei der Laseranregung des  $\pi_{3/2}$ -Übergangs analog zur Abschätzung in Kapitel 3.8 ermittelt.

Bei allen drei Signalverläufen wurde eine zeitliche Abnahme des Fluoreszenzsignals festgestellt, wobei die Geschwindigkeit der Abnahme bei allen drei Messungen verschieden war. Um die Signalgeschwindigkeit zu charakterisieren, werden die Zerfallskurven mit exponentiellen Testfunktionen  $n(t) = y_0 + n_0 \exp(-t/\tau_{\text{Überlapp}})$  beschrieben.

Der zeitliche Abfall der Signalrate wird dadurch verursacht, daß Ionen das vom Laser ausgestrahlte Volumen in der Falle verlassen. Neben der radialen Ausdehnung der Wolke, die zu

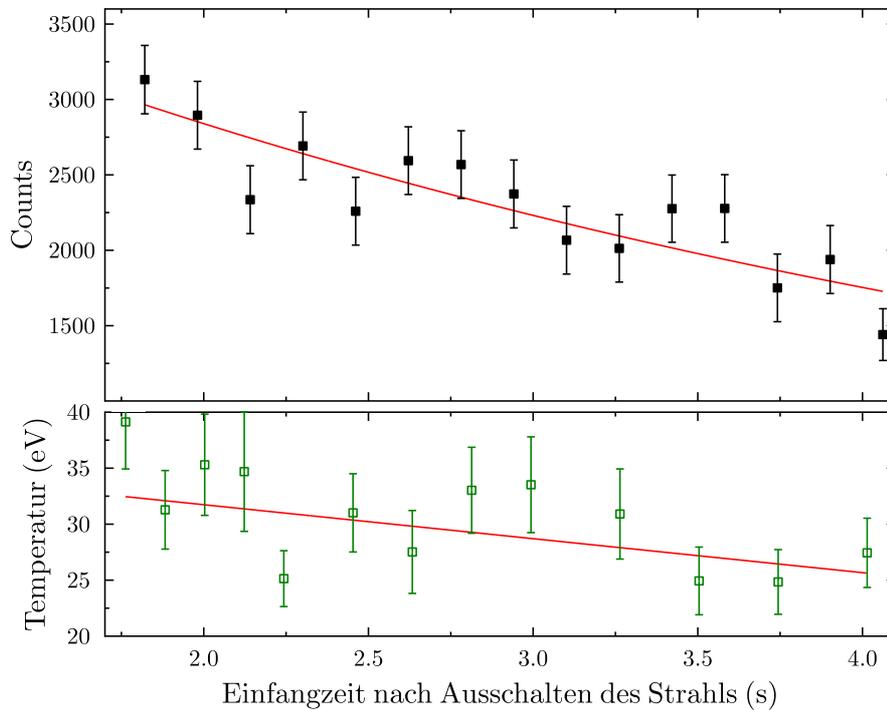


Abbildung 4.18: Zeitlicher Verlauf des Fluoreszenzsignals nach erfolgter Verdampfungskühlung (oben). Die x-Achse gibt die Zeit nach ausschalten des Elektronenstrahls an. Die rote Linie ist eine exponentielle Testfunktion zur Ermittlung der mittleren Überlappzeit. Ebenfalls gezeigt ist der Temperaturverlauf der Ionen (unten). Die rote Linie ist ein linearer Fit an den Temperaturverlauf.

einer Verringerung der Ionendichte führt und schlußendlich auch zu Ionenverlusten, wenn die Ionen den Driftröhrenrand erreichen, können die Ionen die Falle axial verlassen, sofern ihre kinetische Energie höher ist als ihre axiale Bindungsenergie. Ebenso führt die Kollision mit niedrig geladenen und neutralen Atomen zum Ladungsaustausch und zu einer Verringerung der in der Falle gehaltenen Ionen.

### Axialer Verlust

Für die axiale Verlustrate ist das Verhältnis der axialen Bindungsenergie zur kinetischen Energie der Ionen ausschlaggebend (siehe Gleichung (2.32)). Mithilfe Gleichung (2.30) lassen sich die axialen Fluchraten berechnen, die in Tabelle 4.4 aufgeführt sind. Für die ersten beiden Messungen sind diese Fluchraten aufgrund des hohen Fallenpotentials vernachlässigbar klein. Dagegen ist die Verlustrate bei der dritten Messung aufgrund der flachen Falle wesentlich größer. Jedoch würde sie als alleiniger Verlustkanal zu einer mittleren Überlappzeit von  $\tau_{\text{überlapp}} = 5000$  führen und ist daher nicht ausreichend hoch genug, um die Abnahme der Signalrate zu erklären. Allerdings führt der axiale Ionenverlust zu ei-

### 4.3. Magnetischer Fallenmodus

	Messung 1	Messung 2	Messung 3
Axiale Fallentiefe	500 V	1470 V	20 V
Injektionsdruck	$6,4 \cdot 10^{-8}$ mbar	$1,0 \cdot 10^{-8}$ mbar	$2,0 \cdot 10^{-7}$ mbar
Temperatur	150(3) eV	287(8) eV	28,3(8) eV
$\tau_{\text{Überlapp}}$	331(9) ms	2,5(2) s	4,1(6) s
Ionendichte	$1,3 \cdot 10^8$ cm <sup>-3</sup>	$2,9 \cdot 10^7$ cm <sup>-3</sup>	$5,9 \cdot 10^6$ cm <sup>-3</sup>
Stoßrate	310 s <sup>-1</sup>	28 s <sup>-1</sup>	180 s <sup>-1</sup>
axiale Verlustrate $dn/dt$	$2 \cdot 10^{-10}$ cm <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup>	$2 \cdot 10^{-22}$ cm <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup>	$1,2 \cdot 10^4$ cm <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup>

Tabelle 4.4: Axiale Fallentiefe sowie Injektionsdruck für die drei verschiedenen Messungen der Fluoreszenzabnahme im magnetischen Fallenmodus. Zusätzlich angegeben sind die aus den Meßdaten gewonnene Informationen über die Ionenwolke. Die Ionendichten sind anhand der Fluoreszenzzählraten bestimmt worden. Die Stoßraten wurden anhand (2.28) ermittelt. Da diese mit  $T^{3/2}$  skaliert, ergibt sich bei der dritten Messung trotz der geringeren Dichte aufgrund der um Faktor zehn geringeren Temperatur eine wesentlich höhere Stoßrate als bei der zweiten Messung. Die axialen Verlustraten sind anhand (2.30) aus den Verhältnissen der jeweiligen Temperaturen und Fallentiefen sowie der Stoßrate berechnet.

ner weiteren Verdampfungskühlung. In der Tat läßt sich eine weitere, wenn auch geringe Temperaturabnahme erkennen.

#### Verlust durch Ladungsaustausch

Schreibt man die Abnahme der Ionendichte im vom Laser bestrahlten Volumen vollständig dem Ladungsaustausch zu, läßt sich über die exponentielle Zerfallkonstante die Dichte des neutralen Gases in der Falle berechnen. Die Ladungsaustauschrate zwischen den Argonionen und neutralem Gas ist durch die Beziehung [124]

$$R_{cx} = N_i n_n \sigma_{cx} v_i \quad (4.8)$$

gegeben, wobei  $N_i$  die Anzahl der gefangenen Ionen,  $n_n$  die Teilchendichte des neutralen Gases,  $\sigma_{cx}$  der Wirkungsquerschnitt für den Ladungsaustausch und  $v_i$  die Geschwindigkeit der Ionen ist. Unter der Annahme, daß der Verlust der Ionen ausschließlich durch Ladungsaustausch exponentiell mit der Lebensdauer  $\tau_{cx}$  verursacht wird, läßt sich die Dichte des neutralen Gases in der Falle bestimmen. Dies sei hier anhand der Abnahme der Zählrate in Abbildung 4.4 vorgeführt. Mit der exponentiellen Zerfallskonstante  $\tau$  läßt sich über den Zusammenhang  $R_{cx} = N_i/\tau_{cx}$  die Dichte des neutralen Gases bestimmen:

$$n_n = \frac{1}{\sigma_{cx} \tau v_i}. \quad (4.9)$$

Injektionsdruck	Teilchendichte neutrales Argon
$1,0 \cdot 10^{-8}$ mbar	$6,7 \cdot 10^6$ cm <sup>-3</sup>
$6,4 \cdot 10^{-8}$ mbar	$6,5 \cdot 10^7$ cm <sup>-3</sup>
$2,0 \cdot 10^{-7}$ mbar	$1,2 \cdot 10^7$ cm <sup>-3</sup>

Tabelle 4.5: Anhand der Überlappkonstanten  $\tau_{\text{Überlapp}}$  bestimmte Teilchendichte von neutralem Argon unter der Annahme, daß die Dichteabnahme der Ionen ausschließlich durch Ladungsaustausch verursacht wird (rechte Spalte). In der linken Spalte ist der jeweilig eingestellte Injektionsdruck in der zweiten Differentialstufe angegeben. Es ist keine Korrelation zwischen den zwei Parametern erkennbar.

Der Wirkungsquerschnitt für den Elektroneneinfang  $\sigma_{cx}$  läßt sich mit Gleichung (2.10) zu  $1,41 \cdot 10^{-14}$  cm<sup>2</sup> berechnen. Die Geschwindigkeit  $v_i$  der Ionen ergibt sich aus der Temperatur zu  $4,2 \cdot 10^4$  m/s. Mit der Lebensdauer  $\tau = 2,5(2)$  s erhält man somit eine Dichte neutraler Gasatome von  $6,7(5) \cdot 10^6$  cm<sup>-3</sup>. Dementsprechend lassen sich auch für die anderen Messungen die Teilchendichten für neutrales Argon berechnen.

Vergleicht man die Dichten mit den eingestellten Injektionsdrücken der ersten Differentialstufe, stellt man fest, daß die aus den Zerfallskonstanten berechnete Dichte des neutralen Argons nicht wie erwartet mit dem Injektionsdruck steigt. Zudem sind die so erhaltenen Dichten um Größenordnungen höher, als in dem kryogen gepumpten Fallenzentrum der EBIT zu erwarten wäre. So wurden zum Beispiel an der Livermore-EBIT mittels Ladungsaustauschexperimente mit wasserstoffähnlichen Uran die neutrale Gasdichten auf  $10^3 - 10^5$  cm<sup>-3</sup> bestimmt worden [125]. Dies läßt vermuten, daß die Abnahme des laserinduzierten Fluoreszenzsignals bzw. der Ionendichte im Volumen des Laserstrahls nur zu einem sehr kleinem Anteil dem Ladungsaustausch zuzuschreiben ist.

### Cross field diffusion

Zusätzlich zum axialen Verlust sowie Verluste durch Ladungsaustausch erfolgt eine Verringerung der Ionendichte durch Diffusion der Wolke quer zu den Magnetfeldlinien. Diese Diffusion wird durch Stöße der Ionen untereinander verursacht. Ob und wie ein radialer Ionentransport stattfinden kann, hängt davon ab, was für Ionen miteinander stoßen:

Ein Ion  $a$  mit der Ladung  $q_a$  und der Masse  $m_a$  bewegt sich im Magnetfeld der EBIT auf einer Lamorkreisbahn mit dem Radius  $r_a$  und der Geschwindigkeit  $v_a$  um den Mittelpunkt  $\mathbf{p}_a$ , das auch als Führungszentrum bezeichnet wird. Stößt das Ion  $a$  am Ort  $\mathbf{x}$  mit einem Ion  $b$ , gilt

$$\mathbf{x} = \mathbf{p}_a + \mathbf{r}_a = \mathbf{p}_a + \frac{m_a}{q_a B} \mathbf{v}_a \times \mathbf{b} \text{ bzw.} \quad (4.10)$$

$$\mathbf{x} = \mathbf{p}_b + \mathbf{r}_b = \mathbf{p}_b + \frac{m_b}{q_b B} \mathbf{v}_b \times \mathbf{b} \quad (4.11)$$

wobei  $\mathbf{n}_B$  der Einheitsvektor des Magnetfelds  $\mathbf{B}$  ist. Aufgrund des Stoßes ändern sich die Führungszentren und die Geschwindigkeiten zu  $\mathbf{v}'_a$  und  $\mathbf{p}'_a$  und entsprechend zu  $\mathbf{v}'_b$  und  $\mathbf{p}'_b$

$$\mathbf{x} = \mathbf{p}'_a + \frac{m_a}{q_a B} \mathbf{v}'_a \times \mathbf{n}_B \text{ bzw.} \quad (4.12)$$

$$\mathbf{x} = \mathbf{p}'_b + \frac{m_b}{q_b B} \mathbf{v}'_b \times \mathbf{n}_B. \quad (4.13)$$

Die Verschiebung der Führungszentren  $\Delta \mathbf{p}_a$  und  $\Delta \mathbf{p}_b$  durch den Stoß beträgt

$$\Delta \mathbf{p}_a = \mathbf{p}'_a - \mathbf{p}_a = \frac{m_a}{q_a B} \Delta \mathbf{v}_a \times \mathbf{n}_B \quad (4.14)$$

$$\Delta \mathbf{p}_b = \frac{m_b}{q_b B} \Delta \mathbf{v}_b \times \mathbf{n}_B, \quad (4.15)$$

mit  $\delta \mathbf{v} = \mathbf{v}' - \mathbf{v}$ . Unter Annahme eines instantanen Stoßes bleibt der Gesamtimpuls erhalten

$$m_a \Delta \mathbf{v}_a + m_b \Delta \mathbf{v}_b = 0. \quad (4.16)$$

Damit ergibt sich für die Verschiebung der Führungszentren

$$q_a \Delta \mathbf{p}_a = -q_b \Delta \mathbf{p}_b. \quad (4.17)$$

Stoßen zwei Ionen gleicher Ladung, verschieben sich ihre Führungszentren um gleiche Beträge, aber in entgegengesetzter Richtung, so daß kein Nettotransport stattfindet. Sind die Ionen allerdings unterschiedlich geladen, ergibt sich eine Verschiebung des Schwerpunkts der Ionen. Insbesondere werden bei Stößen zwischen Elektronen und Ionen die Führungszentren in dieselbe Richtung verschoben. Die Geschwindigkeit, mit der sich die Ionenwolke radial ausdehnt, hängt somit neben der Stoßrate auch davon ab, ob und wieviele Ionen anderer Ladungszustände in der Falle vorhanden sind. Hiermit lassen sich qualitativ die verschiedenen mittleren Überlappzeiten  $\tau_{\text{Überlapp}}$  erklären. Bei der ersten Messung wurde bei einer tiefen axialen Falle  $V_{ax} = 500 \text{ V}$  bei einem vergleichsweise hohem Druck von  $6,8 \cdot 10^{-8} \text{ mbar}$  für eine Sekunde Ionen erzeugt, bevor sie im magnetischen Fallenmodus

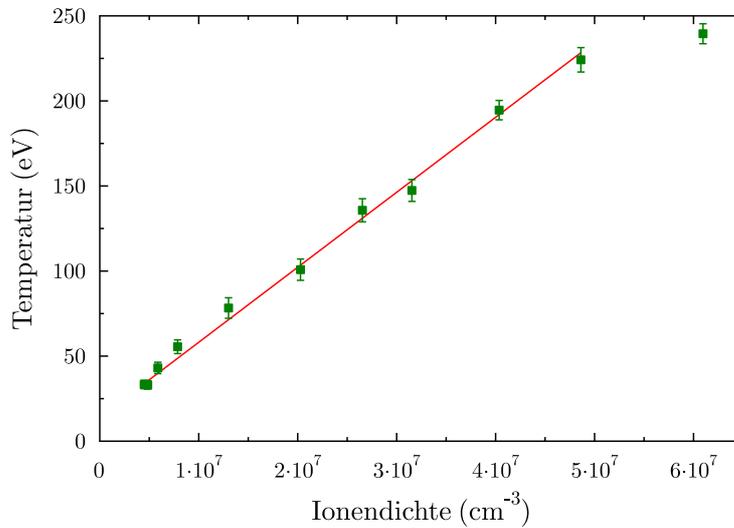


Abbildung 4.19: Temperatur der Ionen in Abhängigkeit der Ionendichte.

gehalten wurden. Neben  $Ar^{13+}$ -Ionen befinden sich auch niedriggeladene Zustände in der Falle, die durch Stöße mit den  $Ar^{13+}$ -Ionen die Wolke radial diffundieren lassen. Ähnliche Verhältnisse finden sich bei der dritten Messung, nur daß hier der Injektionsdruck noch höher war und somit ein höherer Anteil an niedriger geladenen Ionen in der Falle sein sollte. Allerdings wird direkt nach Ausschalten das axiale Fallenpotential linear gesenkt, um die Verdampfungskühlung zu unterstützen. Hierbei verlassen bevorzugt die niedrigeren Ladungszustände die Falle, da sie aufgrund ihrer niedrigeren Ladung  $q$  eine geringere Potentialbarriere  $qV_{ax}$  sehen. Nach erfolgter Abkühlung bleiben die Ionen mit dem höchsten Ladungszustand, in diesem Fall  $Ar^{13+}$  in der Falle zurück. So ergibt sich trotz der relativ hohen Stoßrate eine um Faktor zehn geringere Abnahmegeschwindigkeit der verbleibenden Ionendichte. Bei der zweiten Messung war der Injektionsdruck mit  $1,0 \cdot 10^{-8}$  mbar wesentlich geringer eingestellt, so daß die Gesamtzahl der Ionen und damit die Stoßrate der Ionen untereinander wesentlich geringer war (siehe Tabelle 4.4).

### 4.3.2 Verdampfungskühlung

Anhand der Fluoreszenzrate sowie der Dopplerverbreiterung kann direkt das Verhalten der gespeicherten Ionen während des Abkühlvorgangs untersucht werden. In Abbildung 4.19 ist die Iontemperatur gegen die Dichte der gespeicherten Argonionen aufgetragen. Beim Abkühlen sinkt die Iontemperatur linear mit der Dichte. Das für die axiale Fluchrate ausschlaggebende Verhältnis  $\omega = qeV_{ax}/(kT)$  bleibt während des Abkühlvorgangs konstant. Die Stoßrate (Gleichung 2.28) allerdings skaliert mit  $n/T^{3/2}$ , und somit in diesem Fall mit  $1/T^{1/2}$ . Mit zunehmender Kühlung nimmt somit die Stoßrate und damit die Termali-

sierungsgeschwindigkeit zu. Im Prinzip sollten durch eine weitere Absenkung noch kältere Temperaturen möglich sein. Eine weitere Absenkung der Iontemperatur führt zudem zu einer längeren Haltezeit der Ionen im magnetischen Fallmodus. Zum einen hängt die Diffusionskonstante (Gleichung (2.34)) mit  $T^{1/2}$  von der Temperatur ab, d.h. die Diffusion der Ionen ist bei niedrigeren Temperaturen geringer. Ebenso wird die Ladungsaustauschrate (4.8) reduziert, da sie linear mit der Ionengeschwindigkeit zusammenhängt, die ebenfalls mit  $T^{1/2}$  skaliert.

Bei hinreichend kalten Temperaturen kann das Ionenplasma in den Bereich der starken Kopplung kommen. Die Kopplungsstärke  $\Gamma$  ist charakterisiert über das Verhältnis der Coulombenergie zwischen Ionen und der termischen Energie

$$\Gamma = \frac{q^2 e^2}{4\pi\epsilon_0 a T_i}. \quad (4.18)$$

Dabei ist  $\epsilon_0$  die Permittivität des Vakuums. Der Ionenabstand  $a$  ist gegeben durch  $a = (3/4\pi n_i)^{1/3}$ . Plasmen mit  $\Gamma > 1$  werden als stark gekoppelt bezeichnet. Bei  $\Gamma \approx 2$  zeigen Plasmen ein flüssigkeitsähnliches Verhalten und kristallisieren ab  $\Gamma \approx 170$  [126]. Hochgeladene Ionen bieten hier den Vorteil, daß die Kopplungskonstante mit der quadrierten Ladung  $q^2$  skaliert. In dem hier vorliegenden Fall erhält man ausgehend von der Temperatur und Dichte der  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen nach erfolgter Verdampfungskühlung für die Kopplungsstärke  $\Gamma = 2,5 \cdot 10^{-5}$ , so daß das gespeicherte Plasma sich im schwach gekoppelten Regime aufhält. Um bei konstanter Dichte in den Bereich der starken Kopplung zu gelangen, müßte man die Temperatur auf  $80\text{K}$  reduzieren. Plasmen aus hochgeladenen Ionen mit starker Kopplung wurden allerdings schon außerhalb der EBIT erzeugt. So wurden in einer kryogenen Penningfalle  $\text{Xe}^{44+}$ -Ionen, die zuvor aus einer EBIT extrahiert wurden, sympathetisch gekühlt und Kopplungsstärken von  $\Gamma \approx 1000$  erreicht [96].



# Zusammenfassung und Ausblick

Das Ziel dieser Arbeit war die Realisierung resonanter Laserspektroskopie verbotener optischer Übergänge in einer Elektronenstrahl-Ionenfalle (EBIT). In diesem Rahmen wurde zum ersten Mal erfolgreich die resonante Anregung eines verbotenen Übergangs in hochgeladenen Ionen in einer EBIT unter direktem Nachweis der Fluoreszenzphotonen demonstriert. Die Hauptschwierigkeit in der Durchführung solcher Experimente liegt in dem geringen Anregungsquerschnitt sowie der niedrigen Dichte der Ionen, die zur Untersuchung solcher Zustände notwendig ist, um die Stoßabregung der angeregten metastabilen Zustände zu unterbinden, und in der daraus resultierenden geringen Rate des Fluoreszenzsignals. Diese Schwierigkeiten wurden erfolgreich überwunden.

Das Prinzip der durchgeführten Messungen bestand darin, den verbotenen M1  $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2} - ^2 P_{1/2}$ -Übergang in borartigem Argon ( $\text{Ar}^{13+}$ ) resonant mit kurzen Laserpulsen anzuregen und die Fluoreszenzphotonen, die bei dem Übergang in den Grundzustand ausgesandt werden, nachzuweisen. Die hier untersuchte M1-Linie hat aufgrund der geringen Übergangswahrscheinlichkeit von nur  $100 \text{ s}^{-1}$  eine lange Lebensdauer von 9,6 ms, die im Rahmen dieser Experimente zum ersten Mal durch Laseranregung bestimmt werden konnte. Nachdem gezeigt wurde, daß eine direkte Laseranregung in einer EBIT möglich ist, wurde in einem ersten Schritt die Wellenlänge des Übergangs mit hoher Präzision bestimmt. Hierfür wurden zyklisch mit der EBIT Ionen erzeugt und anschließend im magnetischen Fallenmodus gefangen gehalten, während sie von dem Farbstofflaser bestrahlt wurden. Die Wellenlänge des Lasers wurde schrittweise durchstimmt und die Fluoreszenzählrate in Abhängigkeit der Laserfrequenz gemessen, womit die Übergangswellenlänge auf 0,4 ppm genau bestimmt werden konnte. Die erreichte relative experimentelle Auflösung von  $\Delta E/E = 5000$  war dabei praktisch ausschließlich durch die Dopplerverbreiterung aufgrund der Ionentemperatur von 280 eV vorgegeben. Daher wurde in einem weiteren Experiment Verdampfungskühlung eingesetzt, um die Temperatur der Ionen zu reduzieren. Deren Wert konnte dadurch auf unter 30 eV abgesenkt werden, wodurch die relative experimentelle Auflösung auf  $\Delta E/E = 15000$  erhöht wurde. Somit war es möglich, die Zeemanaufspaltung, die von dem Magnetfeld der EBIT verursacht wird, aufzulösen, und die  $g$ -Faktoren des  $^2 P_{3/2}$  sowie  $^2 P_{1/2}$  Zustands des mit etwa 700 eV gebundenen optischen

Elektrons zu bestimmen.

Die bei diesem Pionierexperiment erzielte Genauigkeit der Wellenlängenbestimmung hat zwar den Bereich der Präzision der genauesten konventionellen Messungen mit Gitterspektrometern noch nicht überschritten, jedoch zeigt sie das prinzipielle Potential der Methode auf. Gerade gegenüber Gitterspektrometern bieten selbst relativ breitbandige Farbstofflaser, so wie der in dieser Arbeit eingesetzte, ein wesentlich höheres Auflösungsvermögen. Die aktuelle Begrenzung der experimentellen Auflösung ist daher praktisch ausschließlich durch die Dopplerverbreiterung aufgrund der Iontemperatur gegeben. Allerdings wurde hier in der Arbeit erfolgreich die Realisierbarkeit sowie das Potential der Verdampfungskühlung aufgezeigt, mit der die Iontemperatur um knapp um den Faktor zehn reduziert werden konnte. Prinzipiell sollten noch wesentlich geringere Temperaturen möglich sein. Ein weiterer Schritt liegt in dem Aufbau der Zweiphotonenspektroskopie, wodurch wesentlich höhere Genauigkeiten erzielt werden können.

Der Einsatz laserpektroskopischer Methoden an hochgeladenen Ionen in einer EBIT ermöglicht den Zugang zu neuen, bisher nicht durchführbaren Hochpräzisionsexperimenten. So ist es jetzt möglich, mit dem Laser einzelne angeregte Zustände in der EBIT gezielt zu bevölkern. Dies ermöglicht zum einen die genaue Bestimmung von Lebensdauern angeregter Zustände, ohne daß systematische Störquellen wie die Wiederbevölkerung durch Übergänge von höheren metastabilen Niveaus vorhanden sind. Zum anderen sind Experimente mit Zweinivauanregungen möglich. So ist in naher Zukunft geplant, in zukünftigen Messungen die Zeemanaufspaltung des angeregten  $^2P_{3/2}$ -Zustands in borartigem Argon mittels Mikrowellenstrahlung zu vermessen. Dazu wird mit dem Laser z.B. der  $\pi_{3/2}^-$ -Übergang angeregt und der  $M_J = 3/2$ -Zustand bevölkert. Von diesem Zustand aus können die Elektronen nur durch einen  $\pi_{3/2}^-$ -Übergang wieder in den Grundzustand übergehen (siehe Abbildung 1.3). Vom  $M_J = 3/2$ -Zustand aus können dann durch Mikrowellenanregung die Elektronen in höhere  $M_J$ -Niveaus angeregt werden, von wo sie auch über  $\sigma$ -Übergänge in den Grundzustand gelangen können. Diese Übergänge können von den  $\pi$ -Übergängen direkt anhand ihrer Polarisationsrichtung unterschieden werden. Aufgrund der großen Wellenlänge der benötigten Mikrowellenstrahlung im Vergleich zur Ausdehnung der Ionenwolke sollte so die dopplerfreie Bestimmung der Zeemanaufspaltung und somit des  $g_J$ -Faktors möglich sein.

Hochgeladene Ionen besitzen eine Reihe niederenergetischer Anregungen der Grundzustandskonfiguration, die Ursprung für verbotene optische Übergänge sind. Besondere Merkmale solcher M1-Übergänge sind die starke relativistische Feinstrukturaufspaltung und die extrem niedrige Polarisierbarkeit des optischen Elektrons sowohl im angeregten als auch im Grundzustand. Daraus resultiert eine verschwindende Empfindlichkeit gegenüber externen Feldern, und somit auch gegen Frequenzverschiebungen, die sich unter anderem aus dem AC-Stark-Effekt in Laserfeldern ergeben. Solche Übergänge in hochgeladenen Io-

nen bieten daher ideale Voraussetzungen, um störungsunempfindliche Laserübergänge für Ultrapräzisions-Frequenzstandards zu finden. Ein erster Schritt zur Reduzierung der Dopplerbite durch Verdampfungskühlung wurde erfolgreich bei einem großen Ionenensemble demonstriert. Somit wird ein gangbarer Weg zur weiteren Kühlung gezeigt, dessen Ziel es ist, durch Speicherung einiger weniger oder gar eines einzelnen Ions in einem kalten translatorischen Zustand die Möglichkeit zur Anwendung sympathetischer Kühlverfahren bis zu den Grenzen der heute technisch möglichen Auflösung laserspektroskopischer Verfahren zu eröffnen. Die Kombination dieser Techniken birgt in sich das Potential, bereits bekannte, ultimative Grenzen der Stabilität atomarer Wellenlängenstandards um mehrere Größenordnungen zu verbessern. Anwendungen solcher extremen Genauigkeiten auf die Untersuchung der zeitlichen Variation fundamentaler Konstanten existieren bereits. Andere Gebiete könnten auch in Zukunft von der inhärenten Stabilität solcher verbesserten Frequenzstandards, die durch die Verwendung hochgeladener Ionen als Referenz realisiert werden, profitieren.

Wesentliche Aspekte solch zukünftiger Experimente sind die Dynamik des gefangenen Ionenensembles und dessen Langzeitverhalten. Durch den Einsatz verschiedener Abbildungsverfahren konnte trotz der extremen schwachen Lichtintensitäten die zeitliche Entwicklung solcher Ensembles verfolgt und mit Modellen verglichen werden. Hierbei sind die Expansion der Ionenwolke und die Temperaturentwicklung zum ersten Mal aufgezeichnet worden. Generell ergeben sich hier interessante Einsichten, die nicht nur der Physik in EBITs gefangener Ionen betreffen, sondern auch auf das weite Feld der Penningfallen anwendbar sind.



# Literaturverzeichnis

- [1] G. Kirchhoff, R. Bunsen. *Chemische Analyse durch Spectralbeobachtungen* (H. Deutsch, 1996).
- [2] N. Bohr. On the Constitution of Atoms and Molecules. *Philosophical Magazine* **6**, 1 (1913).
- [3] P. A. M. Dirac. The Quantum Theory of the Electron. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character* **117**, 610 (1928).
- [4] W. E. Lamb, R. C. Retherford. Fine Structure of the Hydrogen Atom by a Microwave Method. *Phys. Rev.* **72**, 241 (1947).
- [5] T. H. Maiman. Stimulated Optical Radiation in Ruby. *Nature* **187**, 493 (1960).
- [6] T. W. Hänsch, H. Walther. Laser spectroscopy and quantum optics. *Rev. Mod. Phys.* **71**, S242 (1999).
- [7] S. PP, J. Lankard. Stimulated Emission observed from an organic dye chloroaluminum phthalocyanine. *IBM Journal of Research and Development* **10**, 162 (1966).
- [8] A. Szöke, A. Javan. Isotope Shift and Saturation Behavior of the  $1.15 - \mu$  Transition of Ne. *Phys. Rev. Lett.* **10**, 521 (1963).
- [9] T. Hänsch, A. Schawlow. Cooling of gases by laser radiation. *Optics Communications* **13**, 68 (1975).
- [10] D. J. Wineland, W. M. Itano. Laser cooling of atoms. *Phys. Rev. A* **20**, 1521 (1979).
- [11] M. H. Anderson, J. R. Ensher, M. R. Matthews, C. E. Wieman, E. A. Cornell. Observation of Bose-Einstein Condensation in a Dilute Atomic Vapor. *Science* **269**, 198 (1995).

- [12] T. W. Hänsch. Nobel Lecture: Passion for precision. *Rev. Mod. Phys.* **78**, 1297 (2006).
- [13] M. Niering, *et al.*. Measurement of the Hydrogen  $1S$ -  $2S$  Transition Frequency by Phase Coherent Comparison with a Microwave Cesium Fountain Clock. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5496 (2000).
- [14] M. Fischer, *et al.*. New limits on the drift of fundamental constants from laboratory measurements. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 230802 (2004).
- [15] T. Rosenband, *et al.*. Frequency Ratio of  $\text{Al}^+$  and  $\text{Hg}^+$  Single-Ion Optical Clocks; Metrology at the 17th Decimal Place. *Science* **319**, 1808 (2008).
- [16] T. Fang, C. R. Canizares. Probing Cosmology with the X-Ray Forest. *The Astrophysical Journal* **539**, 532 (2000).
- [17] J. D. Gillaspay. Highly Charged Ions. *J. Phys. B* **34**, R39 (2001).
- [18] B. Edlén. Die Deutung der Emissionslinien im Spektrum der Sonnenkorona. Mit 6 Abbildungen.. *Zeitschrift für Astrophysik* **22**, 30 (1943).
- [19] A. N. Artemyev, V. M. Shabaev, I. I. Tupitsyn, G. Plunien, V. A. Yerokhin. QED Calculation of the  $2P_{3/2}$ - $2P_{1/2}$  Transition Energy in Boronlike Argon. *Physical Review Letters* **98**, 173004 (2007).
- [20] E. Rutherford. The scattering of alpha and beta particles by matter and the structure of the atom. *Philosophical Magazine* **21**, 669 (1911).
- [21] A. Sommerfeld, A. Unsöld. Über das Spektrum des Wasserstoffs. *Zeitschrift für Physik* **36**, 259 (1926).
- [22] E. Schrödinger. An Undulatory Theory of the Mechanics of Atoms and Molecules. *Phys. Rev.* **28**, 1049 (1926).
- [23] W. Gerlach, O. Stern. Das magnetische Moment des Silberatoms. *Zeitschrift für Physik* **9**, 353 (1922).
- [24] J. R. Sapirstein, D. R. Yennie. *Quantum Electrodynamics*. vol. 7 (World Scientific, Singapur, 1990).
- [25] W. Heisenberg. Über quantenmechanische Umdeutung kinematischer und mechanischer Beziehungen. *Zeitschrift für Physik* **33**, 879 (1925).
- [26] W. Heisenberg. Über den anschaulichen Inhalt der quantentheoretischen Kinematik und Mechanik. *Zeitschrift für Physik* **43**, 172 (1927).

- [27] P. J. Mohr, G. Soff. Nuclear size correction to the electron self-energy. *Phys. Rev. Lett.* **70**, 158 (1993).
- [28] E. A. Uehling. Polarization Effects in the Positron Theory. *Phys. Rev.* **48**, 55 (1935).
- [29] E. H. Wichmann, N. M. Kroll. Vacuum Polarization in a Strong Coulomb Field. *Phys. Rev.* **101**, 843 (1956).
- [30] W. R. Johnson, G. Soff. The lamb shift in hydrogen-like atoms,  $1 \leq Z \leq 110$ . *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **33**, 405 (1985).
- [31] H. I. Ewan, E. M. Purcell. Observation of a line in the galactic radio spectrum. *Nature* **168**, 356 (1951).
- [32] D. R. Hartree. The Wave Mechanics of an Atom with a Non-Coulomb Central Field. Part I. Theory and Methods. *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society* **24**, 89 (1928).
- [33] V. Fock. Selfconsistent field mit Austausch für Natrium. *Zeitschrift für Physik* **62**, 795 (1930).
- [34] J. P. Desclaux. A multiconfiguration relativistic DIRAC-FOCK program. *Computer Physics Communications* **9**, 31 (1975).
- [35] I. P. Grant, B. J. McKenzie, P. H. Norrington, D. F. Mayers, N. C. Pyper. An atomic multiconfigurational Dirac-Fock package. *Computer Physics Communications* **21**, 207 (1980).
- [36] T. Beier, P. J. Mohr, H. Persson, G. Soff. Influence of nuclear size on QED corrections in hydrogenlike heavy ions. *Phys. Rev. A* **58**, 954 (1998).
- [37] J. J. Sakurai. *Advanced Quantum Mechanics* (Addison-Wesley, 1967). ISBN13: 9780201067101.
- [38] I. I. Sobelman. *Atomic spectra and radiative transitions / Igor I. Sobelman* (Springer-Verlag, Berlin ; New York :, 1979).
- [39] B. Odom, D. Hanneke, B. D'Urso, G. Gabrielse. New Measurement of the Electron Magnetic Moment Using a One-Electron Quantum Cyclotron. *Phys. Rev. Lett.* **97**, 030801 (2006).
- [40] P. Zeeman. On the Influence of Magnetism on the Nature of the Light Emitted by a Substance.. *Astrophysical Journal* **5**, 332 (1897).

- [41] E. B. F. Paschen. Normale und anomale Zeemaneffekte. *Annalen der Physik* **344**, 897 (1912).
- [42] H. A. Bethe, E. E. Salpeter. *Handbuch der Physik XXXV* (Springer, 1957).
- [43] E. G. Myers. *Laser Spectroscopy of Hydrogen-Like and Helium-Like Ions - The Hydrogen Atom* (Springer Berlin / Heidelberg, 2001).
- [44] H. W. Kugel, M. Leventhal, D. E. Murnick, C. K. N. Patel, O. R. Wood. Infrared-X-Ray Double-Resonance Study of  $2P_{3/2} - 2S_{1/2}$  Splitting in Hydrogenic Fluorine. *Phys. Rev. Lett.* **35**, 647 (1975).
- [45] P. Pellegrin, Y. E. Masri, L. Palffy, R. Prieels. Lamb-Shift Measurement in Hydrogenic Phosphorus. *Phys. Rev. Lett.* **49**, 1762 (1982).
- [46] H.-J. Pross, *et al.*. Lamb-shift measurement in hydrogenic phosphorus. *Phys. Rev. A* **48**, 1875 (1993).
- [47] H. D. Sträter, *et al.*. Resonance measurement of the Lamb shift in hydrogenic sulfur. *Phys. Rev. A* **29**, 1596 (1984).
- [48] A. P. Georgiadis, *et al.*. Measurement of the Lamb shift in hydrogenic sulfur by laser spectroscopy. *Physics Letters A* **115**, 108 (1986).
- [49] O. R. Wood, *et al.*. Measurement of the Lamb Shift in Hydrogenic  $\text{Cl}^{16+}$ . *Phys. Rev. Lett.* **48**, 398 (1982).
- [50] A. Carrington, D. R. J. Milverton, P. J. Sarre. Electronic absorption spectrum of CO in an ion beam – Analysis of the carbon nuclear hyperfine structure in  $^{13}\text{CO}^+$ . *Molecular Physics: An International Journal at the Interface Between Chemistry and Physics* **35**, 1505 (1978).
- [51] R. A. Holt, S. D. Rosner, T. D. Gaily, A. G. Adam. Lamb-shift and fine-structure measurements in  $^7\text{Li}^+$ . *Phys. Rev. A* **22**, 1563 (1980).
- [52] T. R. DeVore, D. N. Crosby, E. G. Myers. Improved Measurement of the  $1s2s^1S_0 - 1s2p^3P_1$  Interval in Heliumlike Silicon. *Physical Review Letters* **100**, 243001 (2008).
- [53] M. Redshaw, E. G. Myers. Measurement of the  $1s2s^1S_0 - 1s2p^3P_1$  Intercombination Interval in Helium-like Silicon. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 023002 (2002).
- [54] I. Klaft, *et al.*. Precision Laser Spectroscopy of the Ground State Hyperfine Splitting of Hydrogenlike  $^{209}\text{Bi}^{82+}$ . *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2425 (1994).

- [55] B. Franzke. The heavy ion storage and cooler ring project ESR at GSI. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **24-25**, 18 (1987).
- [56] B. E. Sorensen, A.H.. Electron cooling. *Nuclear Instruments and Methods In Physics Research* **215**, 24 (1983).
- [57] P. Seelig, *et al.*. Ground State Hyperfine Splitting of Hydrogenlike  $207\text{Pb}^{81+}$  by Laser Excitation of a Bunched Ion Beam in the GSI Experimental Storage Ring. *Phys. Rev. Lett.* **81**, 4824 (1998).
- [58] F. Herfurth, *et al.*. Precision measurements with highly charged ions at rest: The HITRAP project at GSI. *International Journal of Mass Spectrometry* **251**, 266 (2006).
- [59] S. Koszudowski. Developments for the HITRAP Cooler Trap and mass measurements around  $A = 96$  at SHIPTRAP. Ph.D. thesis. Universität Heidelberg (2009).
- [60] J. D. Silver, *et al.*. The Oxford electron-beam ion trap: A device for spectroscopy of highly charged ions. *Proceedings of the 5th international conference on ion sources* **65**, 1072 (1994).
- [61] T. Back, H. S. Margolis, P. K. Oxley, J. D. Silver, E. G. Myers. Laser spectroscopy of the  $1s^2 2s2p^3 P_2 - ^3 P_1$  transition in beryllium-like argon using the Oxford EBIT. *Hyperfine Interactions* **114**, 203 (1998).
- [62] A. Klein, *et al.*. Laser Spectroscopy of the 2S Lamb Shift in Hydrogenic Silicon. *Lecture Notes in Physics - The Hydrogen Atom* **570**, 664 (2001). Laser spectroscopy EBIT.
- [63] K. Hosaka, *et al.*. Laser spectroscopy of hydrogenlike nitrogen in an electron beam ion trap. *Phys. Rev. A* **69**, 011802 (2004).
- [64] S. W. Epp, *et al.*. Soft X-Ray Laser Spectroscopy on Trapped Highly Charged Ions at FLASH. *Physical Review Letters* **98**, 183001 (2007).
- [65] E. D. Donets, V. I. Ilushchenko, V. A. Alpert. *Proc. Premiere Conf. sur les sources d'Ions* **1**, 625 (1969).
- [66] M. A. Levine, R. E. Marrs, J. R. Henderson, D. A. Knapp, M. B. Schneider. The Electron Beam Ion Trap: A New Instrument for Atomic Physics Measurements. *Physica Scripta* **T22**, 157 (1988).
- [67] M. Levine, *et al.*. The use of an electron beam ion trap in the study of highly charged ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **43**, 431 (1989).

- [68] D. Knapp, R. Marrs, S. Elliott, E. Magee, R. Zasadzinski. A high-energy electron beam ion trap for production of high-charge high-Z ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **334**, 305 (1993).
- [69] R. E. Marrs. Self-cooling of highly charged ions during extraction from electron beam ion sources and traps. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **149**, 182 (1999).
- [70] J. R. Crespo López-Urrutia, A. Dorn, R. Moshhammer, J. Ullrich. The Freiburg Electron Beam Ion Trap/Source Project FreEBIT. *Physica Scripta* **T80B**, 502 (1999).
- [71] M. Trinczek, *et al.*. A laser ion source for an electron beam ion trap. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **251**, 289 (2006).
- [72] M. Binder. Spektroskopie an hochgeladenen Ionen aus der EBIT im Sichtbaren und im nahen Ultraviolett. Master's thesis. Universität Heidelberg (2008).
- [73] L. Brillouin. A Theorem of Larmor and Its Importance for Electrons in Magnetic Fields. *Phys. Rev.* **67**, 260 (1945).
- [74] G. Herrmann. Optical Theory of Thermal Velocity Effects in Cylindrical Electron Beams. *Journal of Applied Physics* **29**, 127 (1958).
- [75] H. Kuramoto, *et al.*. Thomson scattering system at the Tokyo electron beam ion trap. *Review of Scientific Instruments* **73**, 42 (2002).
- [76] J. R. Crespo López-Urrutia, P. Beiersdorfer, K. Widmann, V. Decaux. Visible spectrum of highly charged ions: The forbidden optical lines of Kr, Xe, and Ba ions in the Ar I to Kr I isoelectronic sequence. *Can. J. Phys.* **80**, 1687 (2002).
- [77] R. S. Orts. Isotopic effect in B-like and Be-like argon ions. Ph.D. thesis. Universität Frankfurt (2005).
- [78] A. J. G. Martínez. Quantum interference in the dielectronic recombination of heavy highly charged ions. Ph.D. thesis. Universität Heidelberg (2005).
- [79] V. Mäckel. Spektroskopische Untersuchung dielektronischer Resonanzen von hochgeladenen Ionen. Master's thesis. Universität Heidelberg (2006).
- [80] A. Müller, E. Salzborn. Scaling of cross sections for multiple electron transfer to highly charged ions colliding with atoms and molecules. *Physics Letters A* **62**, 391 (1977).

- [81] X. Lu, H. Watanabe, F. J. Currell. Numerical simulation of the charge balance in an EBIT. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **205**, 234 (2003). 11th International Conference on the Physics of Highly Charged Ions.
- [82] W. Lotz. Electron-impact ionization cross-sections and ionization rate coefficients for atoms and ions from hydrogen to calcium. *Zeitschrift für Physik* **216**, 241 (1968).
- [83] Y. S. Kim, R. H. Pratt. Direct radiative recombination of electrons with atomic ions: Cross sections and rate coefficients. *Phys. Rev. A* **27**, 2913 (1983).
- [84] H. Bruhns, J. Braun, K. Kubicek, J. R. Crespo López-Urrutia, J. Ullrich. Testing QED Screening and Two-Loop Contributions with He-Like Ions. *Physical Review Letters* **99**, 113001 (2007).
- [85] F. Currell, G. Fussmann. Physics of electron beam ion traps and sources. *Plasma Science, IEEE Transactions on* **33**, 1763 (2005).
- [86] X. Lu, F. J. Currell. Numerical simulation of the charge balance and temperature evolution in an electron beam ion trap. *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **12**, 014401 (2009).
- [87] I. P. Shkarofsky. *The Particle Kinetics of Plasmas* (Addison-Wesley, 1966).
- [88] J. Huba. *NRL Plasma Formulary* (Naval Research Laboratory, 2009).
- [89] B. M. Penetrante, J. N. Bardsley, D. DeWitt, M. Clark, D. Schneider. Evolution of ion-charge-state distributions in an electron-beam ion trap. *Phys. Rev. A* **43**, 4861 (1991).
- [90] B. M. Penetrante, J. N. Bardsley, M. A. Levine, D. A. Knapp, R. E. Marrs. Evaporative cooling of highly charged dysprosium ions in an enhanced electron-beam ion trap. *Phys. Rev. A* **43**, 4873 (1991).
- [91] M. B. Schneider, *et al.* (AIP, 1989). vol. 188. pp. 158–165.
- [92] C. Beilmann, *et al.*. Intershell trielectronic recombination with  $K$ -shell excitation in  $Kr^{30+}$ . *Phys. Rev. A* **80**, 050702 (2009).
- [93] P. Beiersdorfer, A. L. Osterheld, V. Decaux, K. Widmann. Observation of Lifetime-Limited X-Ray Linewidths in Cold Highly Charged Ions. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 5353 (1996).
- [94] R. S. Orts, *et al.*. Zeeman splitting and g factor of the  $1s^2 2s^2 2p^2 P_{3/2}$  and  $^2P_{1/2}$  levels in  $Ar^{13+}$ . *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)* **76**, 052501 (2007).

- [95] T. Kinugawa, F. J. Currell, S. Ohtani. Pulsed Evaporative Cooling of Ion Cloud in an Electron Beam Ion Trap. *Physica Scripta* **T92**, 102 (2001).
- [96] L. Gruber, *et al.*. Evidence for Highly Charged Ion Coulomb Crystallization in Multicomponent Strongly Coupled Plasmas. *Phys. Rev. Lett.* **86**, 636 (2001).
- [97] P. Beiersdorfer, L. Schweikhard, J. C. López-Urrutia, K. Widmann. The magnetic trapping mode of an electron beam ion trap: New opportunities for highly charged ion research. *Rev. Sci. Instrum.* **67**, 3818 (1996).
- [98] J. H. Malmberg, C. F. Driscoll. Long-Time Containment of a Pure Electron Plasma. *Phys. Rev. Lett.* **44**, 654 (1980).
- [99] G. Brenner, J. R. C. López-Urrutia, Z. Harman, P. H. Mokler, J. Ullrich. Lifetime determination of the Fe XIV  $3s^23p^2P_{3/2}^o$  metastable level. *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)* **75**, 032504 (2007).
- [100] A. Lapiere, *et al.*. Lifetime measurement of the Ar XIV  $1s^22s^22p^2P_{3/2}^o$  metastable level at the Heidelberg electron-beam ion trap. *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)* **73**, 052507 (2006).
- [101] F. G. Serpa, *et al.*. Measurement of a magnetic-dipole transition probability in  $Xe^{32+}$  using an electron-beam ion trap. *Phys. Rev. A* **55**, 4196 (1997).
- [102] F. Chen. *Introduction to Plasma Physics and Controlled Fusion* (Plenum Press, 1984).
- [103] F. J. Currell. *Trapping highly charged ions : fundamentals and applications* (Nova Science, 2001).
- [104] D. S. King, P. K. Schenck, K. C. Smyth, J. C. Travis. Direct calibration of laser wavelength and bandwidth using the optogalvanic effect in hollow cathode lamps. *Appl. Opt.* **16**, 2617 (1977).
- [105] E. B. Saloman, C. J. Sansonetti. Wavelengths, Energy Level Classifications, and Energy Levels for the Spectrum of Neutral Neon. *Journal of Physical and Chemical Reference Data* **33**, 1113 (2004).
- [106] W. Demtröder. *Experimentalphysik 3: Atome, Moleküle und Festkörper* (Springer, Berlin, 2000).
- [107] K. W. Meissner. Interference spectroscopy. Part I. *J. Opt. Soc. Am.* **31**, 405 (1941).
- [108] F. Paschen. Das Spektrum des Neon. *Annalen der Physik* **365**, 405 (1919).

- [109] H. M. Crosswhite. *Journal of research of the National Bureau of Standards A* **79a**, 17 (1975).
- [110] www.nist.gov (2010).
- [111] K. D. Möller, V. P. Tomaselli, L. R. Skube, B. K. McKenna. Far-Infrared Vacuum Grating Spectrometer. *J. Opt. Soc. Am.* **55**, 1233 (1965).
- [112] H. Schmidt-Kloiber, H. Schoeffmann. Metallic hollow cones as light concentrators. *Appl. Opt.* **25**, 252 (1986).
- [113] J. Winston, J. C. Minano, P. G. Benitez. *Nonimaging Optics* (Elsevier Academic Press, 2005).
- [114] D. H. Sampson, G. M. Weaver, S. J. Goett, H. Zhang, R. E. H. Clark. Collision strengths and line strengths for all transitions among the levels of the  $1s^22s^22p$ ,  $1s^22s^2p^2$ , and  $1s^22p^3$  configurations of boron-like ions. *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **35**, 223 (1986).
- [115] A. E. Siegman. *Lasers* (University Science Books, 1986).
- [116] G. Brenner. Quantenelektrodynamische Einflüsse auf die Lebensdauer metastabiler Zustände. Ph.D. thesis. Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg (2007).
- [117] A. Lapierre, *et al.*. Do Electrons and Ions Coexist in an EBIT?. *PHYSICS WITH ULTRA SLOW ANTIPROTON BEAMS* **793**, 361 (2005).
- [118] I. I. Tupitsyn. Persönliche Mitteilung (2006).
- [119] O. Postavaru. Persönliche Mitteilung (2010).
- [120] U. Schumacher. *Basics of Plasma Physics* (Springer Berlin / Heidelberg, 2005).
- [121] I. Draganić, *et al.*. High Precision Wavelength Measurements of QED-Sensitive Forbidden Transitions in Highly Charged Argon Ions. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 183001 (2003).
- [122] I. Draganić, *et al.*. Emission Spectroscopy of Highly Charged Ions in Plasma of an Electron Beam Ion Trap. *THE PHYSICS OF IONIZED GASES: 22nd Summer School and International Symposium on the Physics of Ionized Gases; Invited Lectures, Topical Invited Lectures and Progress Reports* **740**, 364 (2004).
- [123] P. Beiersdorfer, B. Beck, S. Becker, L. Schweikhard. FTICR analysis of the magnetic trapping mode of the electron beam ion trap. *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes* **157-158**, 149 (1996).

- [124] P. B. B. J. Wargelin, G. V. Brown. EBIT charge-exchange measurements and astrophysical applications. *Can. J. Phys.* **86**, 151 (2008).
- [125] L. Schweikhard, *et al.*. Pulsed gas injection for X-ray spectroscopy of highly charged ions stored in the magnetic trapping mode of an electron beam ion trap. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **142**, 245 (1998).
- [126] D. H. E. Dubin, T. M. O'Neil. Trapped nonneutral plasmas, liquids, and crystals (the thermal equilibrium states). *Rev. Mod. Phys.* **71**, 87 (1999).

# **Erklärung**

Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbständig verfaßt und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Heidelberg, den 19. April 2010

Volkhard Mäckel

