

INAUGURAL - DISSERTATION

zur

Erlangung der Doktorwürde

der

Naturwissenschaftlichen - Mathematischen

Gesamtfakultät

der Ruprecht-Karls-Universität

Heidelberg

Vorgelegt von

Dipl.-Phys. Maria Schwarz

aus Eberswalde-Finow

Tag der mündlichen Prüfung: 05.07.2012



**Lasermanipulation  
von  
rotationsgekühlten Molekülen  
in einer neuen  
kryogenen Paul-Falle**

Gutachter:

PD Dr. José Ramón Crespo López-Urrutia

PD Dr. Andrey Surzhykov



## **Lasermanipulation von rotationsgekühlten Molekülionen in einer neuen kryogenen Paul-Falle**

Eine neue kryogene lineare Paul-Falle für atomare, molekulare und hochgeladene Ionen wurde am MPIK entworfen und aufgebaut. Durch Experimente mit lasergekühlten  $\text{Mg}^+$ -Ionen im mK-Bereich sowie mit sympathetisch gekühlten  $\text{MgH}^+$ -Molekülionen wurde ein hervorragendes Vakuum sowie ein stark reduzierter Einfluss der Schwarzkörperstrahlung im Fallenzentrum demonstriert. Messungen zeigten, dass sich ein Anteil der  $\text{MgH}^+$ -Ionen von mehr als 90 % in den drei niedrigsten Rotationszuständen befindet. Durch Laseranregung gelang es, den Hauptteil der Ionen in den absoluten rovibronischen Grundzustand zu transferieren. Die Übergangsraten zwischen den vier niedrigsten Rotationsniveaus im Grundzustand des  $\text{MgH}^+$ -Ions wurden bestimmt, sowie zum ersten Mal die Zerfallskonstante eines deterministisch präparierten rovibronischen Zustands ermittelt. Für den radiativen Zerfall des  $|\nu = 1, J = 1\rangle$ -Zustands in den Grundzustand wurde eine Zerfallsrate von  $\Gamma = (7,02 \pm 1,26)$  Hz ermittelt.

## **Laser manipulation of rotationally cooled molecular ions in a novel cryogenic Paul trap**

A new cryogenic linear Paul trap for atomic, molecular and highly charged ions was designed and constructed at MPIK. Experiments with laser-cooled  $\text{Mg}^+$  ions in the mK-regime and with sympathetically cooled  $\text{MgH}^+$  molecular ions provided evidence for an excellent vacuum as well as a strongly reduced influence of the black body radiation at the trap center. Measurements proved that more than 90 % of the population of the  $\text{MgH}^+$  ions can be found in the lowest three rotational states. By laser excitation it was possible to transfer the main part of the ions into the absolute ground state. The population transfer rates for the lowest four rotational states were investigated, additionally to measuring for the first time the decay constant of a deterministically prepared rovibronic state of the  $\text{MgH}^+$  ion. A decay constant  $\Gamma = (7,02 \pm 1,26)$  Hz was determined for the radiative decay of the  $|\nu = 1, J = 1\rangle$  state to the ground state.

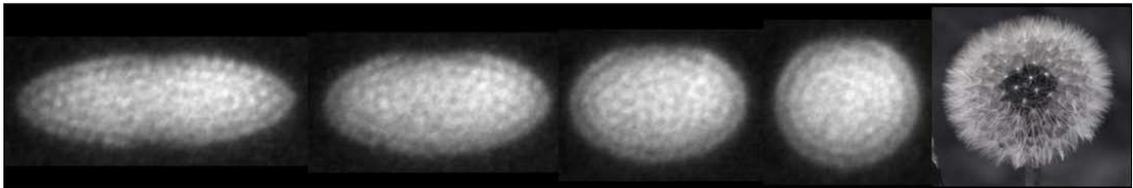


# Inhaltsverzeichnis

<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>1 Physikalische Grundlagen</b>	<b>7</b>
1.1 Die lineare Paul-Falle . . . . .	7
1.2 Absorption und Emission von Photonen . . . . .	13
1.2.1 Übergangswahrscheinlichkeiten . . . . .	13
1.2.2 Die Lebensdauer eines angeregten Zustands . . . . .	15
1.3 Doppler-Kühlung in einer Paul-Falle . . . . .	16
1.3.1 Theoretische Beschreibung von Atomen in Laserfeldern . . . . .	17
1.3.2 Impulsübertrag durch Laserphotonen . . . . .	19
1.3.3 Einfluss des Potentials der Paul-Falle . . . . .	21
1.4 Coulomb-Kristalle . . . . .	21
1.5 Sympathetisches Kühlen . . . . .	24
1.6 Theoretische Beschreibung eines zweiatomigen Moleküls . . . . .	24
1.6.1 Struktur eines zweiatomigen Moleküls . . . . .	24
1.6.2 Besetzung der Energieniveaus . . . . .	26
1.6.3 Franck-Condon-Prinzip . . . . .	28
1.7 Das $\text{MgH}^+$ -Molekül . . . . .	28
<b>2 Die kryogene Paul-Falle</b>	<b>31</b>
2.1 Die Paul-Falle . . . . .	32
2.2 Der kryogene Aufbau . . . . .	36
2.3 Hochfrequenzversorgung und -steuerung . . . . .	43
2.4 Inbetriebnahme als Massenfilter . . . . .	45
2.5 Externe Quellen für Atome und Moleküle . . . . .	50
2.6 Optischer Aufbau . . . . .	51
2.7 Lasersystem . . . . .	53

<b>3</b>	<b>Molekülionen in einer 4K-Umgebung</b>	<b>57</b>
3.1	Produktion von $^{24}\text{Mg}^+$ -Ionen . . . . .	57
3.2	Herstellung und Abbildung eines $^{24}\text{Mg}^+$ Ionenkristalls . . . . .	59
3.3	Erzeugung und Einfangen von $\text{MgH}^+$ -Ionen . . . . .	60
3.4	Energieniveaus und Übergänge des $\text{MgH}^+$ -Moleküls . . . . .	62
3.5	Beeinflussung der Rotationsniveaubesetzung $ \nu = 0, J\rangle_X$ . . . . .	64
3.5.1	Änderung der Umgebungstemperatur . . . . .	64
3.5.2	Manipulation durch kryogene Umgebung und Laser . . . . .	67
3.6	Messung der Besetzung der Rotationsniveaus . . . . .	69
3.7	Bestimmung des Kristallvolumens . . . . .	74
3.8	Korrektur der CCD-Aufnahmen . . . . .	77
3.9	Berücksichtigung des 266 nm-Beitrags . . . . .	78
3.10	Fehlerrechnung der Dissoziationsmessungen . . . . .	79
3.11	Bestimmung des Drucks in CryPTE <sub>x</sub> . . . . .	81
<b>4</b>	<b><math>\text{MgH}^+</math>-Ionen in einer kryogenen Paul-Falle</b>	<b>83</b>
4.1	Bestimmung einer Temperatur für den Fallenbereich von CryPTE <sub>x</sub> . . . . .	83
4.2	Rotationskühlung durch kryogene BBR und Laser . . . . .	86
4.3	Einflüsse auf Ionen in Haupt- und Vorfalle . . . . .	87
4.4	Wechselwirkung zwischen den niedrigsten Rotationsniveaus . . . . .	90
<b>5</b>	<b>Bestimmung einer Zerfallsrate</b>	<b>101</b>
5.1	Ablauf der Messungen . . . . .	101
5.2	Die Zerfallskonstante von $ \nu = 1, J = 1\rangle$ . . . . .	102
5.3	P(2)-Messung . . . . .	107
5.4	R(0)-Messung . . . . .	109
5.5	Vergleich von P(2)- und R(0)-Messung . . . . .	110
	<b>Zusammenfassung</b>	<b>113</b>
	<b>Anhang</b>	<b>117</b>

# Einleitung



Das Tor zum Verständnis des Universums öffnet sich umso weiter, je besser wir durch präzise Daten die Welt um uns herum erfassen. Am genauesten werden zur Zeit in der gesamten Wissenschaft die spektroskopischen Eigenschaften von gespeicherten Ionen gemessen. Dazu werden sie in Fallen eingesperrt, um mit verfeinerten Methoden experimentelle Ergebnisse bei immer höherer Präzision zu erhalten. Somit können die Grundlagen der theoretischen Modelle bis ins Detail geprüft werden. Eine Reihe von Anwendungsmöglichkeiten, die von Atomuhren bis zu den Ansätzen von zukunftssträchtigen Quantencomputern reichen, sind damit demonstriert worden.

Diese Entwicklung fing in der zweiten Hälfte des 20. Jahrhunderts an. Im Jahre 1989 wurden W. Paul, H. Dehmelt und N. Ramsey gemeinsam für ihre Erfindungen im Bereich der Fallen für geladene Teilchen mit dem Nobelpreis für Physik ausgezeichnet. Das Grundprinzip der linearen Paul-Falle, das Massenspektrometer, war bereits 1953 von Wolfgang Paul zum Patent angemeldet und in verschiedenen Arbeiten ausgeführt worden [1–3]. Die lineare Paul-Falle, eine naheliegende Methode um mittels elektrischer Felder größere Ionenmengen zu speichern, wurde erst etwa 40 Jahre später entwickelt. Es waren Prestige et. al [4], die diese 1989 realisierten und den feldfreien Punkt im Zentrum einer klassischen hyperbolischen Paul-Falle [5–7] zu einer feldfreien Linie entlang der Fallenachse erweiterten.

Seit ihrer Erfindung werden (lineare) Paul-Fallen für das Speichern von einzelnen Ionen oder größeren Ensembles genutzt, um diese möglichst störungsfrei zu untersuchen [8]. Sie

bieten lange stoßfreie Speicherzeiten, und erhalten dabei eine sehr gute zeitliche Kohärenz der Quantenzustände. Mit ihnen wurde gezeigt, dass es nicht nur möglich ist, einige wenige Ionen entlang der feldfreien Linie zu speichern, sondern auch Ensembles darin gebunden werden können, die aus mehr als  $10^5$  Ionen bestehen [9]. Die verschiedenen Arten von gespeicherten Ionen werden für die Forschung im Bereich der Atom- und Molekülphysik [10, 11], der Quantencomputer [12–14] und der Frequenz-Metrologie [15, 16] verwendet. Darüber hinaus wird mittels Paul-Fallen das Feld der Wechselwirkung zwischen Ionen mit in einer optischen Kavität (*engl.: cavity QED*) gespeicherten Photonen [17–20] sowie das Feld der kalten Molekülionen [21, 22] untersucht.

Die Kombination von Laserkühlung, die zuerst in Penning-Fallen erfolgreich angewendet wurde [23–25], mit Paul-Fallen hat es zudem ermöglicht die Bewegung der Ionen im harmonischen Fallenpotential bis hin zum Nullpunkt zu bringen [26–31]. Hochauflösende Laserspektroskopie führte dann aufgrund der reduzierten Dopplerverbreiterung zu den bisher genauesten Bestimmungen und Vergleichen von optischen Frequenzen [16, 32]. Diese Art von Kühlung kann zur Bildung sogenannter Coulombkristalle führen, bei denen sich die Ensembles gespeicherter Ionen in regelmäßigen Strukturen anordnen [9, 33–35]. Es wird davon ausgegangen, dass sich solche Strukturen analog dazu im Inneren von weißen Zwergen als Zweikomponentenkristall, bestehend aus Kohlenstoff- und Sauerstoffkernen in einem degenerierten Elektronengas eingebettet [36], befinden.

Eine effektive Laser-Doppler-Kühlung ist nur bei Ionen mit einer einfachen elektronischen Struktur möglich, in der ein geschlossenes, durch schnelle Übergänge gekoppeltes System gefunden werden kann. Dies bedeutet leider, dass die meisten Ionensorten sowie hochgeladene Ionen (HCI, *engl.: highly charged ions*) und auch Molekülionen nicht durch Laser dopplergekühlt werden können. Da die Paul-Falle es erlaubt, mehrere Spezies von Ionen gleichzeitig zu speichern, kann hier jedoch das Prinzip des sympathetischen Kühlens erfolgreich angewendet werden. Hierbei übertragen die verschiedenen Ionensorten kinetische Energie untereinander aufgrund ihrer Coulombwechselwirkung.

Für ein lasergekühltes Ion und ein nicht für den Laser zugängliches Ion gilt, dass sie gleichzeitig in einer Paul-Falle gespeichert werden können, wenn sich ihre Masse-zu-Ladungsverhältnisse  $\frac{m}{Q}$  höchstens um einen - empirisch bestimmten - Faktor drei unterscheiden [37, 38]. Diese Limitierung beruht auf der Tiefe des Pseudopotentials der Paul-Falle, die vom  $\frac{m}{Q}$ -Verhältnis der Ionen abhängt, und der daraus resultierenden größeren räumlichen Trennung der beiden Ionensorten. Ionen mit einem niedrigen  $\frac{m}{Q}$ -Verhältnis erfahren ein tieferes Potential, während Ionen mit hohen Werten sich daher außen am Kristall ansammeln, so dass bei zu großen Unterschieden der Verhältnisse die beiden Gruppen nicht mehr ausreichend stark miteinander wechselwirken können [39].

Vom Jahr 1980 an wird die sympathetische Kühlung für verschiedene Ionen und Molekülionen verwendet [40–43]. Zusätzlich zur direkten Untersuchung der sympathetisch

---

gekühlten Ionen mittels Spektroskopie [30, 44, 45] eröffnet das sympathetische Kühlen die Möglichkeit der Anwendung der Quantenlogik auf diese Objekte. Bei nur zwei gespeicherten Ionen, nämlich einem Kühl-Ion und einem Spektroskopie-Ion können zum Beispiel die Energiezustände des sympathetisch gekühlten Ions untersucht werden, indem diese auf Zustände der kohärenten Bewegung beider gespeicherter Ionen mittels Laserpulsen projiziert werden. Somit ist es möglich einen verbotenen Übergang in dem zu untersuchenden Ion zu bestimmen, indem die damit verschränkten Anregungszustände des Kühl-Ions sehr häufig abgefragt werden [46, 47].

Das sympathetische Kühlen von Molekülionen, um sie in Paul-Fallen zu untersuchen, ist ein Feld, das derzeit stark expandiert. Durch die damit neu zugänglichen Ionensorten wird die Zahl der Anwendungen der Paul-Fallen noch erweitert. Als interessantes Beispiel sei die Vorbereitung der Molekülionen in örtlich lokalisierten und definierten internen Zuständen erwähnt. Diese dient der kontrollierten Auslösung deterministischer chemischer Reaktionen (zum Beispiel unimolekularer Reaktionen mit Photonen) [48], den Untersuchungen bimolekularer Reaktionen [10] sowie solcher der Astrochemie [49]. Die in dieser Arbeit angewendete Methode der Rotationskühlung von  $\text{MgH}^+$  stellt einen weiteren Schritt in Richtung zustandsspezifische Reaktionen dar [50] und verspricht es den Wissenschaftlern, in Zukunft die internen Zustände der Molekülionen vollständig kontrollieren zu können [51]. Insbesondere können die Rotationszustände polarer Moleküle auch als eine Art Thermometer für extrem kleine Volumina genutzt werden [52]. Trotz dieser vielfältigen Anwendungen, wurden interne Übergangsraten bisher noch nie an kalten, räumlich sehr gut lokalisierten Molekülen durch zustandsselektive Dissoziation, wie es in der vorliegenden Arbeit vorgestellt wird, gemessen. Frühere Methoden, Übergangsraten zum Beispiel in Speicherring-Experimenten durch Coulomb-Explosion [53] oder mittels FT-ICR (*engl.: fourier transform ion cyclotron resonance*) an Molekülionen in Ionen-Fallen zu bestimmen, erreichen nicht die Zustandsselektivität des von uns angewendeten und verbesserten Verfahrens. Eine Übersicht über diese früheren Methoden ist in [54] zu finden.

Eine der noch ungelösten Aufgaben der Atomphysik ist das sympathetische Kühlen von HCIs bis hin zu Temperaturen, bei denen hochauflösende Spektroskopie bis zur natürlichen Linienbreite verbotener Übergänge durchgeführt werden kann [55, 56]. Der vollständige Nachweis für das sympathetische Kühlen von HCIs steht noch aus, aber erste Schritte in diese Richtung wurden bereits in Penning-Fallen und Paul-Fallen unternommen [56–58]. HCIs kommen im Weltall überall vor. Der Hauptanteil aller Atome mit Atomzahlen jenseits des Heliums liegt im sichtbaren Universum im hochgeladenen Zustand vor [59]. HCIs bieten aufgrund ihrer besonderen Eigenschaften die Möglichkeit, quantenelektrodynamische Effekte in starken Feldern [60, 61], die Theorie der Atomstruktur, Effekte, die von der Atomkerngröße abhängen, sowie die Parität verletzende Effekte [62–64] zu untersuchen. Des Weiteren ist die Verwendung von HCIs als optischer Frequenzstandard vorgeschlagen

worden, da ihre elektronische Struktur eine große, mit hohen Potenzen des Ladungszustands skalierende Abhängigkeit von der Feinstrukturkonstante  $\alpha$  sowie von anderen fundamentalen Konstanten aufweist. Zudem ist sie unempfindlich auf äußere Störungen und Felder, da die hohe Elektronendichte nahe am Kern (diese steigt mit  $Z^3$ ) eine sehr schwache Polarisierbarkeit der HCIs bedingt [65]. Fast alle fundamentalen Effekte der Atomphysik skalieren mit hohen Potenzen der Kernladungszahl  $Z$ , und sind daher im Fall von HCIs einfacher zu messen. Mit ihrer sinkenden Anzahl an Elektronen sind die HCIs außerdem einfacher durch die Theorie zu behandeln. Relativistische und quantenelektrodynamische Effekte wachsen mit  $Z^4$  an. Die Auswirkungen des Stark-Effekts sinken in erster Ordnung mit  $Z^{-1}$  und in zweiter Ordnung mit  $Z^{-4}$ , während die der Paritätsverletzung mit  $Z^5$  skalieren. Die Energien der Hyperfeinstrukturübergänge skalieren mit  $Z^3$  und verschieben sich somit in den sichtbaren Bereich des Spektrums, so dass sie leichter mit Lasern untersucht werden können. Zudem wird für HCIs eine erhöhte Empfindlichkeit auf die zeitliche Variation von Naturkonstanten vorhergesagt, was sie zum Beispiel durch die große Feinstrukturaufspaltung zu einem Kandidaten für die Untersuchung der Variation der Feinstrukturkonstante  $\alpha$  macht [66, 67]. Die Untersuchung von HCIs fördert aber nicht nur dieses Grundlagenwissen, sondern unterstützt auch das Verständnis von laborerzeugten Plasmen zum Beispiel für die Fusionsforschung [68].

HCIs können auf verschiedene Weise hergestellt werden [69, 70]. Ihre Speicherung profitiert erheblich von einem kryogenen Aufbau des Experiments. Ein solcher empfiehlt sich wenn es darum geht das Vakuum um mehrere Größenordnungen zu verbessern. Durch die Verringerung der Kollisionsrate mit Restgasteilchen wird die Speicherdauer der Ionen erhöht, da Kollisionen kinetische Energie übertragen oder zum Austausch von Elektronen führen können, wobei es zu einem Verlust des betrachteten Ions (aus der Falle) kommen kann. Zusätzlich ist eine Reduktion der Schwarzkörperstrahlung (BBR, *engl.: black body radiation*) wünschenswert. Dadurch wird sowohl eine Verminderung der Potentialfluktuationen auf den Elektroden der Ionenfalle [71] als auch eine Unterdrückung der Aufheizung interner Zustände der gespeicherten Ionen erzielt.

Um die Präzision der Messungen in einer linearen Paul-Falle zu verbessern und letztendlich das Speichern von HCI in ihnen zu ermöglichen, sollen also die Paul-Fallen-Elektroden in einer kryogenen Umgebung ( $\approx 4$  K) betrieben werden. Solch ein experimenteller Aufbau wurde bisher nur von wenigen Gruppen realisiert. Seit den 90er Jahren wird durch die *Ion Storage Group* am NIST (The National Institute of Standards and Technology) eine kryogene lineare Paul-Falle für das Speichern von  $^{199}\text{Hg}^+$ -Ion verwendet, die als Prototyp für einen Frequenzstandard mit höchster Genauigkeit entworfen wurde [72, 73]. Die Gruppe am CUA (Center for Ultracold Atoms) vom Massachusetts Institute of Technology betreibt seit Anfang des 21. Jahrhunderts Forschung mit mikroskopischen zweidimensionalen Paul-Fallen auf einer Leiteroberfläche, bei der alle Fallenelektroden auf einer kryogenen Ebene

liegen (*engl.: surface electrode traps*) [74, 75].

In der vorliegenden Arbeit wird der Aufbau und die ersten Experimente einer neuen kryogenen linearen Paul-Falle (CryPTE<sub>x</sub>, *engl.: Cryogenic linear Paul Trap Experiment*) vorgestellt, die im Rahmen dieser Arbeit in der *EBIT-Gruppe* am Max-Planck-Institut für Kernphysik (MPIK) in Heidelberg speziell für das Speichern von HCIs entwickelt wurde. Dabei wurde eine Elektrodengeometrie nach dem Vorbild einer Falle der *Ion Trap Group* der Aarhus Universität (AU) [76] an die Erfordernisse einer kryogenen Umgebung angepasst. Das System verwendet einen Kältekopf mit geschlossenem Heliumkreislauf zur Erzeugung der tiefen Temperaturen von bis zu 4 K, und folgt einigen der Ideen, die bei dem Bau von Elektronenstrahl-Ionenfallen (EBIT *engl.: electron beam ion trap*) [77] erprobt worden sind. Die kryogene Umgebung erzeugt ein Ultrahochvakuum im Bereich weit unter  $10^{-12}$  mbar, so dass der Verlust von gespeicherten Ionen durch Kollisionen oder Ladungsaustauschprozessen mit Restgasteilchen unterdrückt wird [78]. Die niedrige Temperatur gestattet außerdem polaren Molekülen (zum Beispiel  $\text{MgH}^+$ ), welche mit der Hintergrundstrahlung des Raums, in dem sie sich befinden, wechselwirken, in niedrige Rotationszustände überzugehen. Zahlreiche optische Zugänge zur Fallenmitte bieten sich für den Einsatz von Lasern zur Doppler-Kühlung und für weitere experimentelle Zwecke an. Des Weiteren gibt es bei CryPTE<sub>x</sub> die Möglichkeit, Ionen aus externen Quellen durch elektrostatische Linsen entlang der  $z$ -Achse in die Fallenregion zu transportieren. Somit öffnet sich ein weites Feld von Möglichkeiten für Ionen, die in CryPTE<sub>x</sub> untersucht werden können. Die Hauptidee hinter diesem Design ist nach der Extraktion von HCIs aus einer EBIT und deren Injektion in die kryogene Paul-Falle diese dort sympathetisch zu kühlen, um verschiedene Experimente durchzuführen. Geplant sind solche zur hochpräzisen Laserspektroskopie mit einer Auflösung bis an die natürliche Linienbreite verbotener Übergänge. Darüber hinaus wurde im Rahmen dieser Arbeit CryPTE<sub>x</sub> für Experimenten mit  $\text{Mg}^+$ -Ionen und  $\text{MgH}^+$ -Molekülonen eingesetzt. Dafür wurde das System zu unserer Partnergruppe an der Aarhus Universität gebracht und mit dem dort für solche Experimente vorhandenen Lasersystem kombiniert. Dies erlaubte sowohl das Doppler-Kühlen von  $\text{Mg}^+$ -Ionen als auch das sympathetische Kühlen von  $\text{MgH}^+$ -Molekülonen nach dem Prinzip, welches bereits erfolgreich in den Raumtemperatur-Paul-Fallen der dortigen *Ion Trap Group* demonstriert wurde [44]. Des Weiteren wurde das Kühlen interner Zustände der  $\text{MgH}^+$ -Molekülonen durch die kryogene Umgebung von CryPTE<sub>x</sub> untersucht. Die Abtastung der Besetzung von Rotationsniveaus polarer Moleküle, nachdem diese das thermische Gleichgewicht mit der Fallenumgebung erreicht haben, erlaubte eine direkte Temperaturmessung im Zentrum der Falle. In den ersten Messungen waren die  $\text{MgH}^+$ -Ionen im thermischen Gleichgewicht mit der kryogenen Umgebung. Danach wurden die Messungen mit denen, die parallel in einer baugleichen Paul-Falle bei Raumtemperatur durchgeführt wurden, verglichen. Der Effekt, den die kryogene Fallenumgebung auf die polaren Molekülonen hat ist

direkt an der Besetzungsverteilung der Rotationszustände im elektronischen Grundzustand und im Schwingungsgrundzustand der  $\text{MgH}^+$ -Moleküle ablesbar. Mit dieser Methode wurde die Wechselwirkung zwischen den verschiedenen Rotationsniveaus des  $\text{MgH}^+$ -Ions im Grundzustand untersucht. Abschließend wurde zum ersten Mal die Rate des radiativen Zerfalls eines deterministisch präparierten internen Zustands eines Molekülions gemessen. Der daraus gewonnene Wert von  $(7,02 \pm 1,26)$  Hz gestattete eine Überprüfung der betreffenden Vorhersagen und ihrer Eignung, die Vorgänge bei der Präparation von Molekülen in wohldefinierten rovibronischen Zuständen korrekt zu beschreiben.

Mit diesen experimentellen Ergebnissen wurden die besonderen Stärken des neuen Aufbaus klar demonstriert. Allem voran wurde die Fähigkeit, ein komplexes Quantensystem in einer von Stößen und BBR ungestörten Umgebung so lange zu speichern, dass die Entwicklung der Wellenfunktion auf einer Zeitskala von Sekunden detailliert untersucht werden kann, deutlich herausgestellt.

# Physikalische Grundlagen

In diesem Kapitel werden die Grundlagen des Speicherns von Ionen in linearen Paul-Fallen behandelt. Es wird auf die Wechselwirkung von Ionen mit elektromagnetischer Strahlung eingegangen. Im Zusammenhang mit der Doppler-Kühlung werden die Themen Übergangswahrscheinlichkeiten und Lebensdauern angeregter Zustände behandelt. Zudem werden die Eigenschaften von Coulomb-Kristallen erläutert. Eine kurze Darstellung der Grundlagen der Molekülspektroskopie schließt das Kapitel ab.

## 1.1 Die lineare Paul-Falle

Die lineare Paul-Falle ist ein Spezialfall der klassischen hyperbolischen Paul-Falle, welche mit nur drei Elektroden, zwei Endkappenelektroden und einer Ringelektrode, ein hochfrequentes elektrisches Quadrupolfeld erzeugt, in dem geladene Teilchen gespeichert werden. Die hier wiedergegebene theoretische Beschreibung von linearen Paul-Fallen orientiert sich an [3] und [79].

Um die Feldgeometrie einer linearen Paul-Falle zu beschreiben, bietet es sich an mit der Beschreibung eines linearen Quadrupols zu beginnen und zuerst das Verhalten eines Ions in dessen zweidimensionalem elektrischen Feld zu verstehen. Das Potential eines Quadrupols lässt sich im allgemeinen durch

$$\Phi = \frac{\Phi_0}{2r_0^2} (\alpha x^2 + \beta y^2 + \gamma z^2) \quad (1.1)$$

beschreiben. Hierbei steht  $\Phi_0$  für das am Quadrupol angelegte elektrische Potential, die Koeffizienten  $\alpha, \beta, \gamma$  sind Konstanten, die von der Beschaffenheit des Feldes abhängen und  $r_0$  ist der Abstand zwischen der  $z$ -Achse der Falle und den Oberflächen des Quadrupols. Für das elektrische Potential muss die Laplace-Gleichung  $\Delta\Phi = 0$  erfüllt sein, so dass sich für die Koeffizienten  $\alpha + \beta + \gamma = 0$  ergibt. Im Falle des zweidimensionalen Quadrupolfeldes

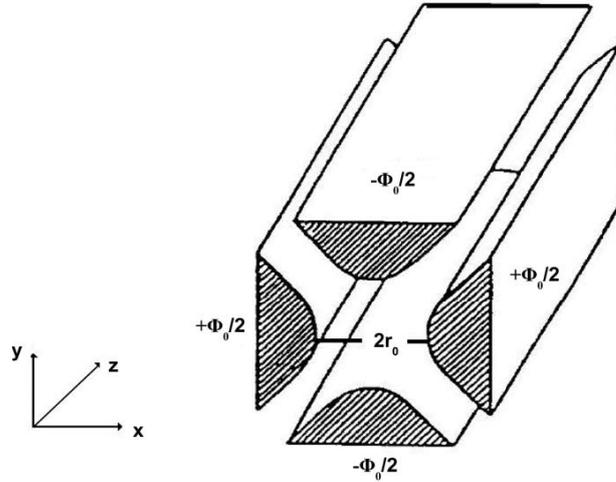


Abbildung 1.1: Quadrupol mit hyperbolischen Elektrodenoberflächen [2]. An jeder Elektrode ist das Potential  $\frac{\Phi_0}{2}$  angelegt und der Abstand der Elektrodenoberflächen beträgt  $2r_0$ .

gilt  $\gamma = 0$  und durch die Wahl von  $\alpha = -\beta = 1$  ergibt sich dessen Potential zu

$$\Phi = \Phi_0 \frac{x^2 - y^2}{2r_0^2}. \quad (1.2)$$

Solch ein Feld kann durch eine Elektrodenstruktur bestehend aus vier Stabelektroden mit hyperbolischen Oberflächen (vergleiche Abbildung 1.1) erzeugt werden, wobei  $\pm\Phi_0/2$  das Potential auf der Elektrodenoberfläche ist. Der Einfachheit halber werden jedoch oft Elektroden mit einem kreisförmigen Querschnitt mit dem Radius  $r_e$  genutzt. Für den Fall, in dem das Radienverhältnis einen Wert von  $r_e/r_0 = 1,147$  aufweist entspricht das Potential, dass durch einen Quadrupol mit kreisförmigen Elektroden erzeugt wird, dem eines hyperbolischen Quadrupols in ausreichender Näherung [80].

Zwischen den Elektroden wird, wie in Abbildung 1.2 dargestellt, eine Spannung angelegt, die aus einem Gleichspannungsanteil  $U_{DC}$  und einem Wechselspannungsanteil  $U_{RF}$  mit einer Radiofrequenz (RF) besteht. Die gegenüberliegenden Elektroden sind dabei jeweils in Phase. Somit ergibt sich mit der Radiofrequenz  $\omega_{RF}$  für das an den Elektroden anliegende Potential

$$\pm \frac{\Phi_0}{2} = \pm \frac{U_{DC} - U_{RF} \cos(\omega_{RF}t)}{2}. \quad (1.3)$$

Daraus folgt das zeitabhängige Potential, welches in Abbildung 1.3 schematisch dargestellt ist, zwischen den Quadrupolelektroden zu

$$\Phi(x, y, t) = (U_{DC} - U_{RF} \cos(\omega_{RF}t)) \frac{x^2 - y^2}{2r_0^2}. \quad (1.4)$$

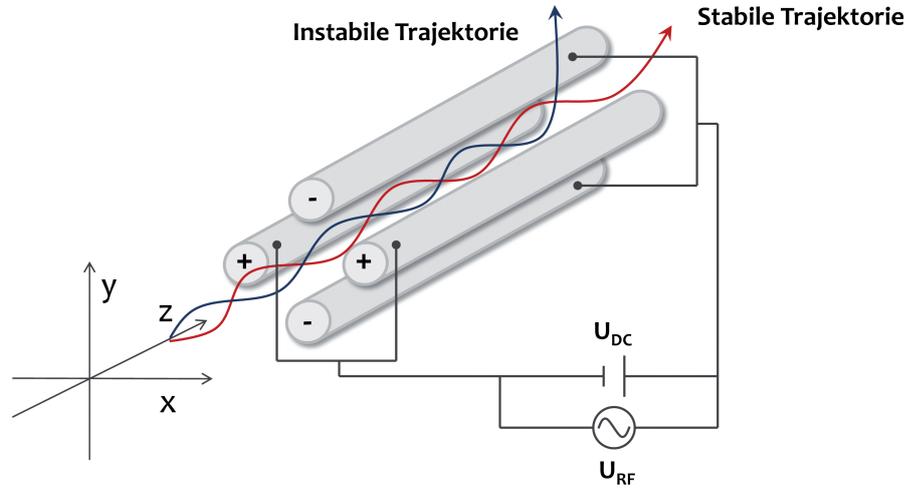


Abbildung 1.2: Schema eines Quadrupols als Massenfilter. Abhängig von den Eigenschaften (Ladung und Masse) des Ions kann dieses den Massenfilter passieren (stabile Trajektorie in rot) oder verlässt die Quadrupolanordnung vor dessen Ende (instabile Trajektorie in blau).

Die Bewegung eines geladenen Teilchens (welches im folgenden nur noch als Ion bezeichnet wird) in solch einem Potential lässt sich durch

$$\ddot{x} + \frac{Q}{mr_0^2} (U_{DC} - U_{RF} \cos(\omega_{RF}t)) x = 0 \quad (1.5)$$

$$\ddot{y} - \frac{Q}{mr_0^2} (U_{DC} - U_{RF} \cos(\omega_{RF}t)) y = 0 \quad (1.6)$$

$$\ddot{z} = 0 \quad (1.7)$$

beschreiben. Hierbei steht  $Q$  für die Ladung und  $m$  für die Masse des Ions. Da keine Kraft in  $z$ -Richtung wirkt kann sich das Ion frei entlang dieser Raumrichtung bewegen. Mit den Substitutionen

$$a = \frac{4QU_{DC}}{mr_0^2\omega_{RF}^2}, \quad q = \frac{2QU_{RF}}{mr_0^2\omega_{RF}^2}, \quad \omega_{RF}t = 2\zeta \quad (1.8)$$

erhält man aus den Bewegungsgleichungen die sogenannten Mathieu-Gleichungen [81]:

$$\frac{d^2\vartheta}{d\zeta^2} + (a - 2q \cos(2\zeta)) \vartheta = 0 \quad \vartheta = x, y. \quad (1.9)$$

Diese Gleichungen haben, abhängig von den Parametern  $a$  und  $q$ , Lösungen, welche stabile oder instabile Bahnen von Ionen im Quadrupolfeld beschreiben. Für eine stabile Bahn durch das Quadrupolfeld (entlang der  $z$ -Richtung) müssen für die  $x$ -Richtung und die  $y$ -Richtung stabile Lösungen gefunden werden. Die Bereiche in denen ein Wertepaar  $(q, a)$  zu einer stabilen Trajektorie führt sind in Abbildung 1.4 graphisch dargestellt. In den

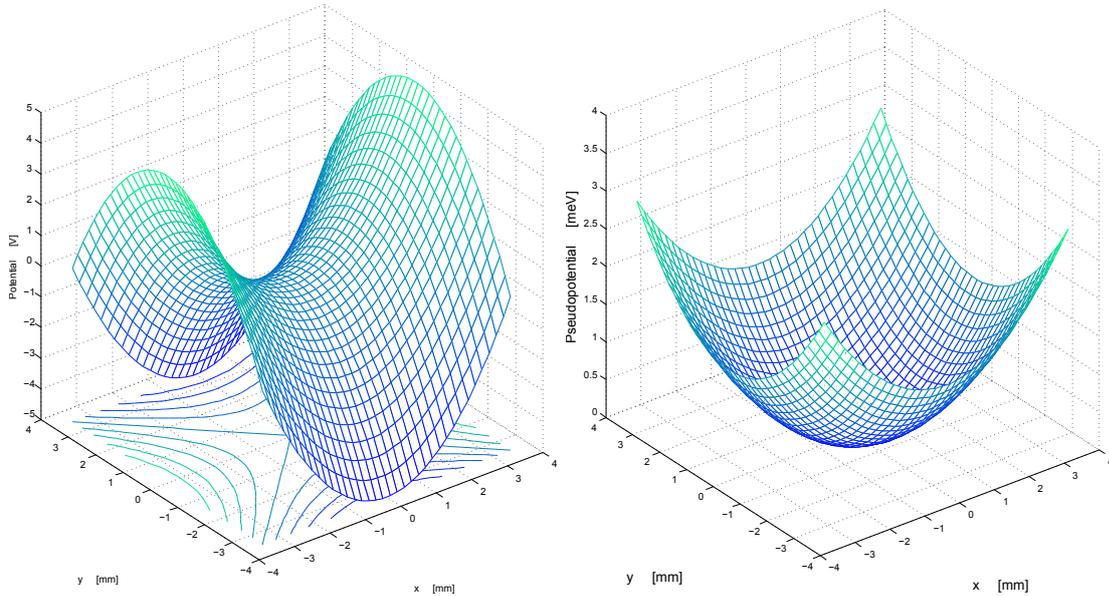


Abbildung 1.3: Links: Potentialschema eines Quadrupols. Rechts: Pseudopotential eines Quadrupols, das sich durch Mittelung über die Mikrobewegung der Ionen im Potential des Quadrupols ergibt.

hier vorgestellten Experimenten wird der erste Stabilitätsbereich, in dem  $q < 0,908$  gilt, gewählt.

Zu betonen ist, dass die Stabilität der Ionentrajektorien (bei einem unendlich langen Quadrupol) nicht von den Anfangsparametern der Ionenbewegung, zum Beispiel von ihrer Geschwindigkeit, abhängt. Vielmehr bestimmt das Masse-zu-Ladungs-Verhältnis  $\frac{m}{Q}$  der Ionen, bei festen Werten für die Quadrupolparameter ( $r_0$ ,  $\omega_{RF}$ ,  $U_{RF}$  und  $U_{DC}$ ), ob diese den Quadrupol durchqueren können. Aufgrund dieser Eigenschaft wird diese Elektrodengeometrie auch als Massenfilter bezeichnet.

Die Lösung der Bewegungsgleichungen für Ionen in solch einem Massenfilter führt zu zwei Frequenzen, welche die Ionenbewegung charakterisieren. Die langsame Säkularbewegung wird durch die Säkularfrequenz  $\omega_r$  beschrieben und die schnelle Mikrobewegung wird durch die RF-Frequenz  $\omega_{RF}$  bestimmt. Eine nähere Beschreibung dieser Frequenzen erfolgt im Rahmen der Theorie der linearen Paul-Falle. Für den Massenfilter ist es von Bedeutung, dass diese beiden Frequenzen in dem Verhältnis

$$\omega_r = \frac{\beta \cdot \omega_{RF}}{2} \quad (1.10)$$

zueinander stehen. Geraden, auf denen der Parameter  $\beta$  einen konstanten Wert hat sind in Abbildung 1.5 aufgetragen. Sie markieren die Bereiche in denen ein Ionenstrahl den Massenfilter innerhalb des stabilen  $(q,a)$ -Bereichs parallel verlässt. Dieser Effekt wird näher in Kapitel 2.4 untersucht.

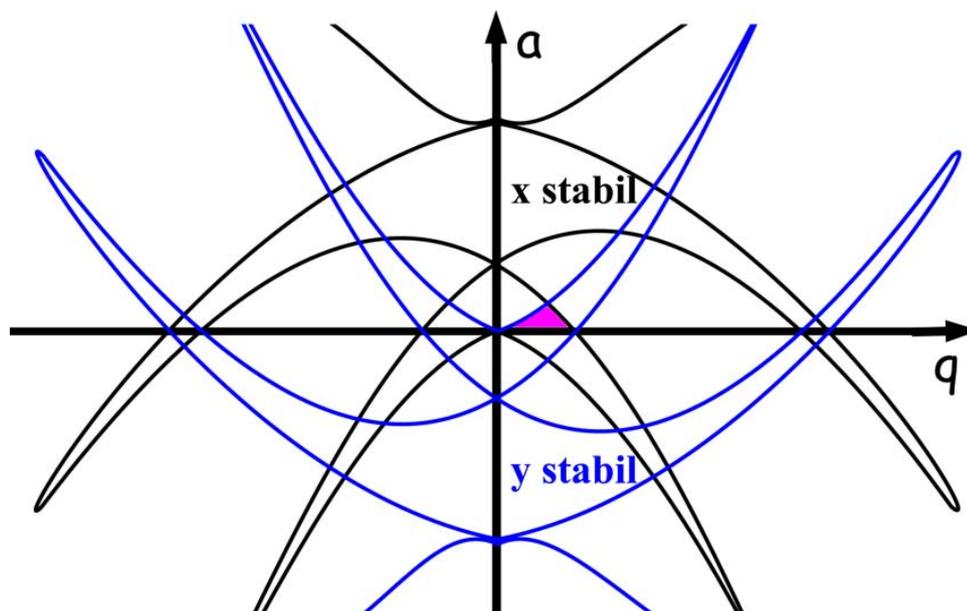


Abbildung 1.4: Stabilitätsdiagramm (entnommen aus [82]) für die  $x$ -Richtung (Bereich innerhalb der schwarzen Linien) und  $y$ -Richtung (Bereich innerhalb der blauen Linien) in einem zweidimensionalen Quadrupolfeld. In den Bereichen, in denen sich die Stabilitätsbereiche für die  $x$ - und  $y$ -Richtung überlappen hat das Ion eine stabile Trajektorie. Der erste  $x$ - $y$ -Stabilitätsbereich ist pink markiert.

Um nun zusätzlich eine Beschränkung der Ionenbewegung entlang der  $z$ -Achse einzuführen wird entlang dieser Achse ein Potential  $\Phi(z)$  überlagert. Dieses kann erzeugt werden indem die Quadrupolelektroden entlang der  $z$ -Achse in jeweils drei Elektroden segmentiert werden und eine Gleichspannung  $U_{EC}$  an die Endkappenelektroden angelegt wird, wie in Abbildung 1.6 skizziert. Dies führt, im Fall einer kurzen Mittelelektrode (im Vergleich mit den Längen der Endkappenelektroden) mit der Länge  $z_0$ , zu einem statischen harmonischen Potential entlang der  $z$ -Achse des Quadrupols:

$$\Phi(z) = \eta U_{EC} \frac{z^2}{z_0^2}. \quad (1.11)$$

Das Potential beinhaltet den geometrischen Faktor  $\eta$ , der empirisch bestimmt wird. In diesem Fall folgt mit der Poissongleichung und dem Ansatz  $\alpha = \beta$  (Rotationssymmetrie um die  $z$ -Achse) für das radiale Potential des segmentierten Quadrupols, also einer linearen Paul-Falle:

$$\Phi(x, y, t) = -U_{RF} \cos(\omega_{RF}t) \frac{x^2 - y^2}{2r_0^2} - \eta U_{EC} \frac{x^2 + y^2}{2z_0^2}. \quad (1.12)$$

Die Substitutionsparameter  $a$  und  $q$  ergeben sich für die lineare Paul-Falle zu

$$a = -\frac{4\eta Q U_{EC}}{m z_0^2 \omega_{RF}^2}, \quad q = q_x = -q_y = \frac{2Q U_{RF}}{m r_0^2 \omega_{RF}^2}. \quad (1.13)$$

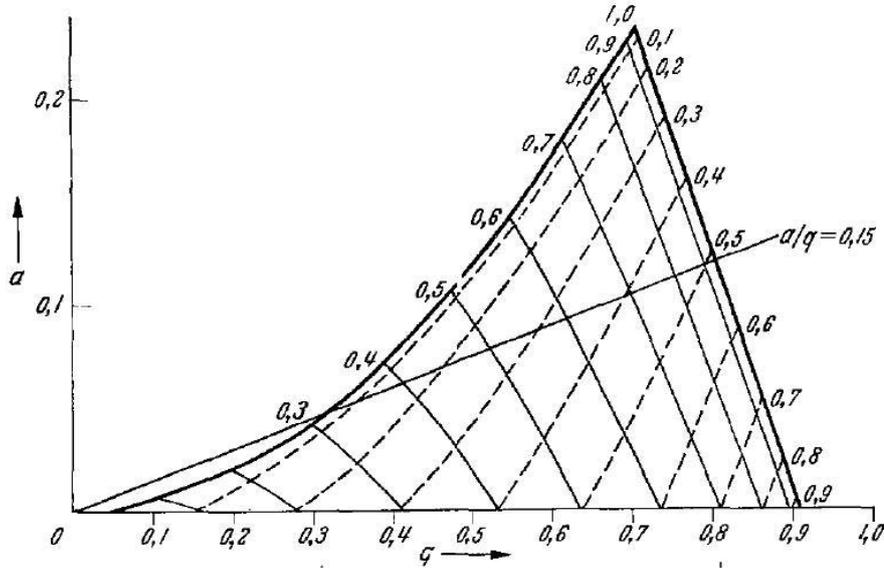


Abbildung 1.5: Der erste Stabilitätsbereich im  $a$ - $q$ -Diagramm eines Quadrupols, der in Abbildung 1.4 pink markiert ist, ist hier vergrößert dargestellt [2].

Bei einer linearen Paul-Falle bedeutet eine stabile Ionentrajektorie, dass das Ion im Potential gefangen bleibt. Auch hier hängt diese Stabilität für feste Fallenparameter nur von  $\frac{m}{Q}$  ab. Somit können verschiedene Ionensorten, deren Werte für  $\frac{m}{Q}$  gleich oder sehr ähnlich sind gleichzeitig im Fallenpotential gespeichert werden.

Die Lösung der Mathieu-Gleichungen ist dann durch

$$\vartheta(t) = \vartheta_0(1 - q_\vartheta \cos(\omega_{RF}t)) \cos(\omega_r t) \quad (1.14)$$

gegeben. Hier ist die Säkularfrequenz  $\omega_r$  durch

$$\omega_r = \frac{1}{2}\omega_{RF}\sqrt{\frac{q^2}{2} + a} \quad (1.15)$$

gegeben. Die Bewegung der Ionen lässt sich also in eine langsame Säkularbewegung (bestimmt durch die Säkularfrequenz  $\omega_r$ ) um das Fallenzentrum und eine schnelle, sogenannte Mikrobewegung mit der Frequenz  $\omega_{RF}$  unterteilen. Die Mikrobewegung hat eine nur sehr kleine Amplitude und überlagert sich als eine Art Rauschen die Säkularbewegung.

Wenn über die Mikrobewegung gemittelt wird, erhält man das sogenannte Pseudopotential (schematisch dargestellt in Abbildung 1.3), welches für das Fangen und Speichern der Ionen verantwortlich ist. Für die linearen Paul-Falle ergibt sich dies in Zylinderkoordinaten ( $x^2 + y^2 = r^2$ ) zu:

$$\Phi_{PS}(r, z) = \frac{m}{2}(\omega_r r^2 + \omega_z z^2), \quad (1.16)$$

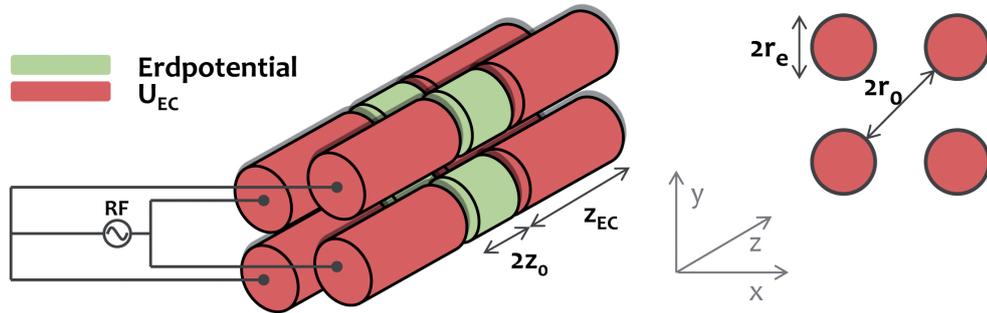


Abbildung 1.6: Skizze der linearen Paul-Falle. An die diagonal gegenüberliegenden Elektrodenreihen wird jeweils die gleiche Phase einer Radiofrequenzspannung angelegt. An die Endkappenelektroden wird eine Gleichspannung  $U_{EC}$  angelegt. Die Längen der Elektroden ( $z_0$  und  $z_{EC}$ ) sowie deren Radien ( $r_0$  und  $r_e$ ) sind angegeben.

mit der axialen Fallenfrequenz

$$\omega_z = \sqrt{\frac{-a}{2}} \omega_{RF}. \quad (1.17)$$

Hierbei ist zu beachten, dass das Pseudopotential nur in die radiale Richtung eine Abhängigkeit von der Masse des in der Falle gespeicherten Ions aufweist. Das bedeutet, dass Ionen mit unterschiedliche Masse-zu-Ladungsverhältnis ein Potential unterschiedlicher Tiefe wahrnehmen. Das heißt, dass jene Ionen mit größerem  $\frac{m}{Q}$  schlechter radial an das Fallenzentrum gebunden sind. Experimentell führt dieser Effekt dazu, dass solche Ionen weiter entfernt von der  $z$ -Achse zu finden sind. Somit kommt es zu einer räumlichen Trennung von verschiedenen Ionensorten, die gleichzeitig gespeichert werden. Dieser Effekt ist an den hier vorgestellten Zwei-Komponenten-Kristallen (vergleiche Kapitel 3) zu beobachten.

## 1.2 Absorption und Emission von Photonen

Für das Verständnis des Prinzips der Laserkühlung sowie der allgemeinen Möglichkeiten für die Kontrolle der Besetzung elektronischer Zustände ist eine kurze Diskussion quantenmechanischer Grundlagen der Wechselwirkung zwischen Photonen und gebundenen Elektronen notwendig.

### 1.2.1 Übergangswahrscheinlichkeiten

Den Ausführungen in [83] folgend soll hier kurz die theoretische Beschreibung der Übergangswahrscheinlichkeiten von induzierten und spontanen Übergängen erfolgen. Betrachtet wird ein Atom (die Beschreibung gilt analog für Ionen und Moleküle) mit dem Aus-

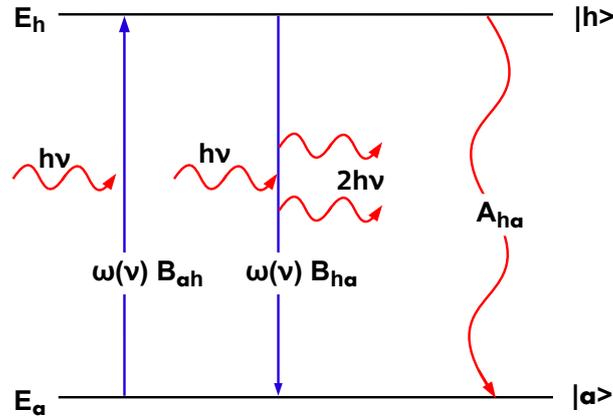


Abbildung 1.7: Schematische Darstellung der Absorption, induzierten Emission und der spontanen Emission in einem System, das aus zwei Energieniveaus besteht.

gangszustand  $|a\rangle$  und dem angeregten Zustand  $|h\rangle$ , sowie den korrespondierenden Energieniveaus  $E_a$  und  $E_h$ , wie in Abbildung 1.7 schematisch dargestellt. Übergänge zwischen diesen zwei Niveaus können durch Absorption, spontane Emission oder stimulierte Emission eines Photons stattfinden. Das Strahlungsfeld, aus dem die Photonen stammen, ist durch die Strahlungsdichte  $\omega(\nu) = n(\nu)h\nu$  gegeben, mit der Anzahl der Photonen  $n(\nu)$  im Einheitsintervall  $\Delta\nu = 1/s$ . Die Besetzungszahlen der Energieniveaus werden mit  $N_h$  und  $N_a$  bezeichnet. Diese Übergänge können durch folgende Differentialgleichungen beschrieben werden:

$$dN_{ah}^{ab} = B_{ah} \omega(\nu) N_a t \quad \text{Absorption} \quad (1.18)$$

$$dN_{ha}^{em} = B_{ha} \omega(\nu) N_h t \quad \text{induzierte Emission} \quad (1.19)$$

$$dN_{ha} = A_{ha} N_h t \quad \text{spontane Emission.} \quad (1.20)$$

Hier sind  $B_{ah}$ ,  $B_{ha}$  und  $A_{ha}$  die Einstein-Koeffizienten für die Absorption, induzierte Emission und die spontane Emission eines Photons der Energie  $h\nu = E_h - E_a$ . Sie messen die Wahrscheinlichkeiten der jeweiligen Prozesse pro Zeit- und Strahlungsdichteinheit.

Für ein Ensemble im Gleichgewicht gilt der Zusammenhang

$$dN_{ah} = dN_{ha}^{ab} + dN_{ha}^{em} \quad (1.21)$$

zwischen den Besetzungszahlen. Aus den obigen Differentialgleichungen erhält man außerdem das Verhältnis der Besetzungszahlen:

$$\frac{N_h}{N_a} = \frac{B_{ah} \omega(\nu)}{A_{ha} + B_{ha} \omega(\nu)}. \quad (1.22)$$

Da im thermischen Gleichgewicht die Boltzmann-Verteilung gilt, lässt sich das Besetzungszahlverhältnis auch durch

$$\frac{N_h}{N_a} = \frac{g_h}{g_a} e^{-\frac{h\nu}{k_B T}} \quad (1.23)$$

beschreiben. Hierbei werden die Faktoren  $g_i$  verwendet, welche das statistische Gewicht eines Zustands mit Quantenzahl  $J$  repräsentieren und somit der Entartung der Energieniveaus Rechnung tragen. Sie sind durch  $g = 2J + 1$  gegeben, mit der Quantenzahl  $J$ , die ganzzahlige positive Werte annehmen kann.

Für die Einstein-Koeffizienten lassen sich durch Gleichsetzen der beiden Gleichungen 1.22 und 1.23 die Zusammenhänge

$$B_{ha} = \frac{g_h}{g_a} B_{ah} \quad (1.24)$$

$$A_{ha} = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3} B_{ah} \quad (1.25)$$

herleiten.

### 1.2.2 Die Lebensdauer eines angeregten Zustands

Ein Ausdruck für die Lebensdauer eines angeregten Zustands lässt sich folgendermaßen herleiten. Durch Emission eines Photons der Energie  $h\nu$ , kann das Atom vom angeregten in einen tieferen Zustand, der nicht dem Ausgangszustand entsprechen muss, übergehen. Die Wahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit, dass das Atom spontan vom Zustand  $|h\rangle$  in einen tieferen Zustand  $|a\rangle$  übergeht ist durch den Einstein-Koeffizienten  $A_{ha}$  gegeben. Somit ist die Anzahl der Atome, die innerhalb eines Zeitintervalls  $dt$  diesen Übergang vollziehen durch die Differentialgleichung

$$dN_h = -A_{ha} N_h dt \quad (1.26)$$

gegeben. Für den Fall, dass es mehrere Möglichkeiten für die Endzustände gibt, wird die Wahrscheinlichkeit über diese Endzustände summiert:

$$A_h = \sum_a A_{ha}. \quad (1.27)$$

Durch Integration von

$$dN_h = -A_h N_h dt \quad (1.28)$$

folgt die zeitabhängige Besetzungszahl des angeregten Zustands

$$N_a(t) = N_a(0) e^{-A_h t}. \quad (1.29)$$

Der Kehrwert der Übergangswahrscheinlichkeit

$$\tau_h = \frac{1}{A_h} \quad (1.30)$$

gibt die mittlere Lebensdauer des angeregten Zustands  $|h\rangle$  an. Durch Messung dieser Lebensdauer kann die Summe aller Einstein-Koeffizienten  $A_h = \sum_a P_{ha}$  für den angeregten Zustand  $|h\rangle$  berechnet werden.

Zusätzlich zur Emission eines Photons gibt es noch weitere Prozesse, die zu einer Verringerung der Besetzungszahl des angeregten Zustands führen können. Um die Lebensdauerermessungen, die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden und die in Kapitel 4 beschrieben werden zu verstehen, müssen diese berücksichtigt werden. Dazu gehören die Kopplung der verschiedenen Rotationszustände eines Moleküls untereinander durch Wechselwirkung mit der Schwarzkörperstrahlung (BBR, *engl.: black body radiation*) der Molekülumgebung, sowie die Absorption, und die damit einhergehende induzierte Emission von Laserphotonen und Stöße mit massiven Partnern, zum Beispiel Restgasteilchen.

Die Kopplung durch die BBR soll mit der Wahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit für die Entvölkerung des Zustands  $|h\rangle$  durch  $M_{ha}$  beziehungsweise für dessen Bevölkerung durch  $M_{ah}$  beschrieben werden. Der Einfluss von gezielt eingesetzten Laserphotonen, um Moleküle von einem niedrigeren Zustand  $|a\rangle$  in den angeregten Zustand  $|h\rangle$  zu pumpen, ist durch den Koeffizienten  $W_{ah}$  und die induzierte Emission durch  $W_{ha}$  gegeben. Diese Koeffizienten müssen beim Aufstellen von Gleichung 1.28 berücksichtigt werden.

### 1.3 Doppler-Kühlung in einer Paul-Falle

Die Laserkühlung ist wahrscheinlich das wichtigste Werkzeug der modernen Atomphysik. Sie hat zu bahnbrechenden Entwicklungen wie zum Beispiel der Erzeugung von Bose-Einstein-Kondensaten geführt. Die Doppler-Kühlung ist die einfachste Form der Laserkühlung. Das Prinzip ist schematisch in Abbildung 1.8 erläutert. Durch die Absorption von Photonen aus einem rotverschobenen Laserstrahl wird ein Übergang in einem sich bewegenden Atom (das gleiche gilt für Ionen) angeregt. Durch den damit einhergehenden Impulsübertrag wird die Geschwindigkeit dieses Atoms verringert [83, 84]. Dieser Effekt wurde bereits 1933 durch R. Frisch nachgewiesen [85]. Daraufhin folgte die Entwicklung des Kühlens von Atomen durch Laserstrahlung gleichzeitig durch Hänsch und Schawlow [86] aber auch Wineland und Dehmelt [23].

### 1.3.1 Theoretische Beschreibung von Atomen in Laserfeldern

Die zeitliche Entwicklung eines Zustands, zum Beispiel der eines Atoms in einem Strahlungsfeld, lässt sich durch die zeitabhängige Schrödingergleichung

$$\hat{H}\Psi(\vec{r}, t) = i\hbar \frac{\delta\Psi(\vec{r}, t)}{\delta t} \quad (1.31)$$

beschreiben. Darin ist  $\hat{H}$  der Hamiltonoperator des Atoms im Strahlungsfeld. Das Atom wird hier mit nur einem Hüllenelektron betrachtet, obwohl die folgende Beschreibung auch für komplexere Atome gültig ist. Des Weiteren steht  $\Psi$  für die Wellenfunktion des Zustands mit der Koordinate des Elektrons  $\vec{r}$  und der Zeit  $t$ . Der Hamiltonoperator ist durch  $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}^A$  gegeben. Dabei ist  $\hat{H}_0$  der zeitunabhängige Hamiltonoperator, der mit den Eigenwerten,  $\hat{E}_N = \hbar\omega_N$ , und den Eigenfunktionen,  $\Phi_N(\vec{r})$ , die Zustände des Atoms (des Elektrons im Potential des Atomkerns) im feldfreien Bereich beschreibt, und  $\hat{H}^A$  ist eine zeitabhängige Störung. Hierbei wird das Strahlungsfeld als klassisches elektromagnetisches Feld angesetzt. Diese Betrachtung ist auch für die theoretische Behandlung der Laserkühlung gültig. Durch die Vollständigkeit von  $\Phi_N(\vec{r})$  lässt sich  $\Psi(\vec{r}, t)$  durch

$$\Psi(\vec{r}, t) = \sum_k c_k(t) \Phi_k(\vec{r}) e^{-i\omega_k t}, \quad (1.32)$$

mit den zeitabhängigen Koeffizienten  $c_k(t)$ , beschreiben. Daraus folgt für die Schrödingergleichung

$$i\hbar \frac{dc_j(t)}{dt} = \sum_k c_k(t) \hat{H}_{jk}^A(t) e^{i\omega_{jk} t}, \quad (1.33)$$

mit  $\hat{H}_{jk}^A(t) = \langle \Phi_j | \hat{H}^A(t) | \Phi_k \rangle$  und  $\omega_{jk} = (\omega_j - \omega_k)$ . Das Atom wird nun als Zweizustandssystem betrachtet. Die zwei Zustände entsprechen einem bestimmten Übergang im Atom, zum Beispiel dem eines Hüllenelektrons zwischen zwei Energieniveaus. Durch die Absorption eines Laserphotons kann dieses Atom nun aus dem Ausgangszustand  $|a\rangle$  in einen höheren, angeregten Zustand  $|h\rangle$  gehoben werden. Um diese Anregung durch ein Laserfeld theoretisch zu beschreiben wird diese Summe in Gleichung 1.33 nach zwei Termen, dem des Ausgangszustands  $|a\rangle$  und dem des angeregten Zustands  $|h\rangle$ , mit der Frequenz  $\omega_{ah}$  des atomaren Übergangs, abgebrochen. Somit erhält man zwei gekoppelte Differenzialgleichungen

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{dc_a(t)}{dt} &= c_h(t) \hat{H}_{ah}^A(t) e^{-\omega_{ah} t}, \\ i\hbar \frac{dc_h(t)}{dt} &= c_a(t) \hat{H}_{ha}^A(t) e^{-\omega_{ah} t}, \end{aligned} \quad (1.34)$$

die es nun zu lösen gilt.

Die Störung  $\hat{H}^A$  des Hamiltonoperators  $H$  wird nun explizit angegeben

$$\hat{H}^A(t) = -e \hat{E}(\vec{r}, t) \cdot \vec{r}, \quad (1.35)$$

wobei der Operator der elektrischen Feldkomponente der Strahlung als

$$\hat{E}(\vec{r}, t) = E_0 \hat{e} \cos(kz - \omega_l t) \quad (1.36)$$

geschrieben wird. Dies gilt für das elektrische Feld einer ebenen Welle, die sich in  $z$ -Richtung ausbreitet, mit der Polarisation  $\hat{e}$ , der Amplitude  $E_0$ , dem Wellenvektor  $k$  und der Laserfrequenz  $\omega_l$ . Mit Hilfe der Dipolnäherung  $e^{i\vec{k}\vec{r}} \approx 1$  und unter Vernachlässigung schnell oszillierender Terme erhält man für den Hamiltonoperator

$$\hat{H}_{ha}^A(t) = \hbar \Omega \cos kz - \omega_l t. \quad (1.37)$$

In dem somit erhaltenen Ausdruck ist die Rabi-Frequenz  $\Omega$  enthalten, die durch

$$\Omega = \frac{-eE_0}{\hbar} \langle h | \vec{r} | a \rangle \quad (1.38)$$

gegeben ist, mit der Ortskoordinate  $\vec{r}$  für das Elektron. Die Verstimmung zwischen Laserfrequenz und der Frequenz des atomaren Übergangs ist durch  $\delta = \omega_l - \omega_{ah}$  gegeben.

Mit den Anfangsbedingungen  $c_a(0) = 1$  und  $c_h(t) = 0$  (das heißt, das Elektron befindet sich zu Beginn im Anfangszustand  $|a\rangle$ ) folgt aus den Gleichungen 1.34 für die Wahrscheinlichkeitsamplituden

$$c_a(t) = \left( \cos\left(\frac{\tilde{\Omega}t}{2}\right) - i \frac{\delta}{\tilde{\Omega}} \sin\left(\frac{\tilde{\Omega}t}{2}\right) \right) e^{+i\delta t/2} \quad (1.39)$$

und

$$c_h(t) = -i \frac{\Omega}{\tilde{\Omega}} \sin\left(\frac{\tilde{\Omega}t}{2}\right) e^{-i\delta t/2}, \quad (1.40)$$

mit

$$\tilde{\Omega} = \sqrt{\Omega^2 + \delta^2}. \quad (1.41)$$

Die Wahrscheinlichkeiten das Atom im Anfangszustand  $|a\rangle$  beziehungsweise in einem angeregten Zustand  $|h\rangle$  anzutreffen sind nun durch  $|c_a(t)|^2$  und  $|c_h(t)|^2$  gegeben. Die Wahrscheinlichkeiten oszillieren mit der Frequenz  $\tilde{\Omega}$  die von der Verstimmung  $\delta$  der Laserfrequenz relativ zur Frequenz des atomaren Übergangs abhängt.

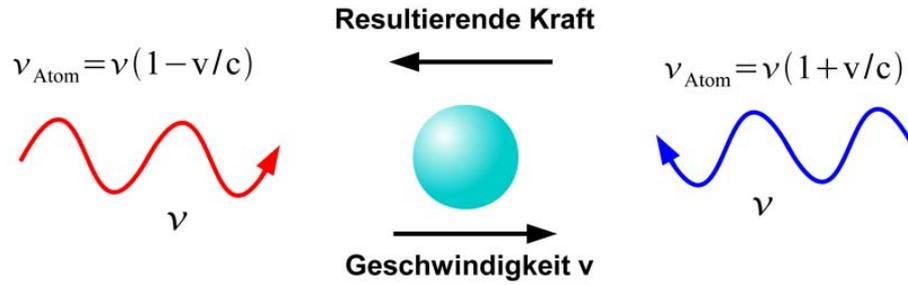


Abbildung 1.8: Prinzip der Doppler-Kühlung. Die Geschwindigkeit des Atoms ist durch  $v$  gegeben,  $\nu$  stellt die Photonenfrequenz im Labor-Bezugssystem und  $\nu_{\text{Atom}}$  die Photonenfrequenz im Bezugssystem des Atoms (türkis) dar.

### 1.3.2 Impulsübertrag durch Laserphotonen

Das Atom kann nun von dem angeregten Zustand entweder durch Emission eines Photons entlang der Ausbreitungsrichtung des absorbierten Photons (stimulierte Emission) oder durch Emission eines Photons in jede beliebige Raumrichtung (spontane Emission) wieder in den Anfangszustand zurück gelangen. Nur im zweiten Fall findet ein Gesamtimpulsübertrag vom Laserlicht auf das Atom, der ungleich Null ist, statt.

Die Gesamtrate  $\gamma$  für die Streuung von Laserphotonen ist durch

$$\gamma = \Gamma \frac{|\Omega|^2 4}{\delta^2 + |\Omega|^2/2 + \Gamma^2/4} = \frac{\Gamma}{2} \frac{s}{1 + s + (2\delta/\Gamma)^2} \quad (1.42)$$

gegeben, mit dem Sättigungsparameter  $s = 2|\Omega|^2/\Gamma^2$  für den Fall der Resonanz und der natürlichen Linienbreite  $\Gamma$  des Übergangs, der für die Doppler-Kühlung verwendet wird. Der Verlauf der Streurrate  $\gamma$  in Abhängigkeit von der Verstimmung  $\delta$  des Lasers ist in Abbildung 1.9 dargestellt. Es ist zu erkennen, dass die Rate und somit die Wechselwirkungsrate des Atoms mit den Laserphotonen für den Fall  $\delta \rightarrow 0$  steigt.

Um den Effekt der Kühlung, also die Verringerung der kinetischen Energie der Atome, hervorzurufen wird ausgenutzt, dass die Absorption richtungsabhängig ist. Denn je nach dem in welche Richtung relativ zum Wellenvektor  $\vec{k}$  des Laser-Lichtes sich die Atome mit der Geschwindigkeit  $\vec{v}$  bewegen, sehen sie aufgrund der Dopplerverschiebung  $-\vec{k}\vec{v}$  eine andere Wellenlänge, und somit eine andere Energie der Photonen. Diesem Umstand kann in Gleichung 1.42 durch die Substitution  $\delta \rightarrow \delta - kv_z$  (für ein Atom, das sich entgegengesetzt der Ausbreitungsrichtung des Laserlichts entlang der  $z$ -Achse bewegt) Rechnung getragen werden. Diese Richtungsabhängigkeit wird in Abbildung 1.9 verdeutlicht, auf der der Verlauf der Kraft in Abhängigkeit von der Geschwindigkeit aufgetragen ist. Die Energie der Photonen wird nun so eingestellt, dass sie etwas kleiner als die benötigte Energie für den Übergang  $|a\rangle \rightarrow |h\rangle$  ist. Nur Atome, die sich entgegengesetzt zur Ausbreitungsrichtung der Photonen bewegen, sehen eine blauverschobene Frequenz ( $\delta$  ist also negativ),

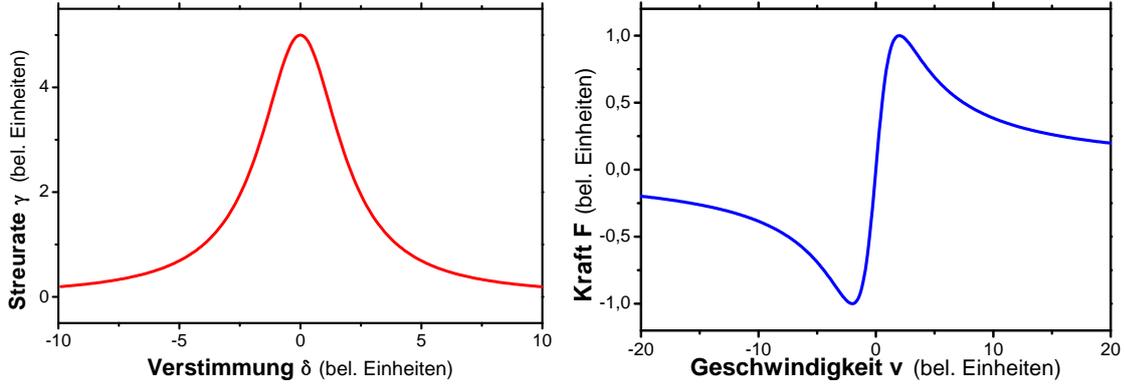


Abbildung 1.9: Links: Verlauf der Streureate  $\gamma$  in Abhängigkeit von der Verstimmung  $\delta$  des Lasers. Rechts: Richtungsabhängigkeit der Kraft  $F$ , die durch Absorption eines Photons auf das Atom wirkt.

die somit der Frequenz des atomaren Übergangs entspricht. Der Wirkungsquerschnitt für die Absorption dieser Photonen steigt, so dass diese vorzugsweise absorbiert werden. Die Richtung in die Photonen bei der spontanen Emission ausgesendet werden entspricht, gemittelt über viele Absorptions-Emissions-Ereignisse, der einer symmetrischen Winkelverteilung. Somit ergibt sich der Gesamtimpulsübertrag der Emission zu Null. Die Effizienz dieses Prozesses steigt wenn die Rate für Absorptions-Emissions-Ereignisse pro Atom sehr hoch ist. Das heißt, eine der Grundvoraussetzungen für effektives Kühlen ist eine hohe Übergangswahrscheinlichkeit zwischen den beiden beteiligten Zuständen des Atoms.

Die Kraft entlang der  $z$ -Richtung ist nun durch den reinen Impulsübertrag, der bei der Absorption des Photons entsteht, durch

$$F = \hbar k \gamma(v_z, k) = F_0 - \beta v_z \quad (1.43)$$

gegeben, mit dem Photonenimpuls  $\hbar k$ . Der erste Term

$$F_0 = \frac{\Gamma}{2} \frac{s}{1 + s + (2\delta/\Gamma)^2} \quad (1.44)$$

beschreibt den konstanten Lichtdruck, der unabhängig von der Geschwindigkeit des Atoms ist. Der zweite Term beinhaltet den Parameter

$$\beta = -4\hbar k^2 \frac{s}{[1 + s + (2\delta/\Gamma)^2]^2} \frac{\delta}{\Gamma} \quad (1.45)$$

und beschreibt den geschwindigkeitsabhängigen Teil der Kraft. Dieser kann zu einer Kompression der Geschwindigkeitsverteilung (für den Anteil der Atombewegung entlang der  $z$ -Richtung) eines Ensembles von Atomen und somit zu einer Verringerung der Temperatur dieses Ensembles führen. Um die Geschwindigkeitsverteilung in alle drei Raumrichtungen

durch Doppler-Kühlung zu komprimieren bedarf es insgesamt drei Paaren von Strahlen mit entgegengesetzter Ausbreitungsrichtung.

Die Grenze der Doppler-Kühlung ist durch die permanente Wechselwirkung mit den Photonen bestimmt. Ab einem bestimmten Punkt ist die Geschwindigkeitsabnahme durch Absorption eines Photons genauso groß wie die Geschwindigkeitszunahme durch Emission. Dies führt zu einem endlichen Wert für die Geschwindigkeit des Atoms und somit zu einer endlichen kinetischen Energie, welche durch das Laserkühlen nicht unterschritten werden kann. Diese minimale kinetische Energie lässt sich durch die Dopplertemperatur beschreiben. Sie ist durch

$$T_{Doppler} = \frac{\hbar}{\tau 2 k_B} \quad (1.46)$$

gegeben, mit der Boltzmannkonstante  $k_B$  und der Lebensdauer  $\tau$  des angeregten Zustands.

### 1.3.3 Einfluss des Potentials der Paul-Falle

Um die Geschwindigkeit von Ionen, die in einer Paul-Falle gefangen sind, durch Doppler-Kühlung zu verringern, reicht im Prinzip ein einzelner Laserstrahl aus, der nur eine Richtungskomponente der Ionenbewegung kühlt. Denn dadurch, dass die Ionen durch das elektrische Potential der Falle auf einen bestimmten Raumbereich eingegrenzt sind wechselwirken sie in hohem Maße miteinander. Durch diese Coulombwechselwirkung findet ein Impulsübertrag zwischen den Ionen statt, der zu einer Umverteilung der kinetischen Energie innerhalb des Ionenensembles sowie innerhalb der Geschwindigkeitsverteilungen entlang der drei Raumrichtungen  $x$ ,  $y$ , und  $z$  führt. Aus Symmetriegründen wird allerdings häufig ein zweiter zum ersten gegenläufiger Laserstrahl für die Doppler-Kühlung eingesetzt. Auf diesem Wege ist es möglich die Ionen im Potentialminimum der Falle zu kühlen. Sie werden nicht durch den einseitigen Lichtdruck, den ein einzelner Laserstrahl auf das Ensemble ausüben würde, auf eine Seite des Fallenpotentials verschoben.

Für kleinere Ionenensembles (zum Beispiel eine Linie von Ionen), bei denen die Umverteilung der kinetischen Energie unter den verschiedenen Freiheitsgraden nicht effektiv genug ist, wird eine andere Anordnung der zwei Laserstrahlen oder ein zusätzlicher Laserstrahl benötigt. Das heißt, entweder wird der Kühllaser nicht parallel zur  $z$ -Achse in die Falle eingebracht, oder es wird ein zusätzlicher Laserstrahl verwendet, der radial zur Fallennachse verläuft um somit die Zylindersymmetrie zu brechen und auch die radiale Komponente der Ionenbewegung zu kühlen.

## 1.4 Coulomb-Kristalle

Ionen in einer Paul-Falle sind nicht nur den elektrischen Feldern der Elektroden ausgesetzt, sondern auch den Feldern der anderen Ionen. Aus diesem Grund werden die eingefangenen

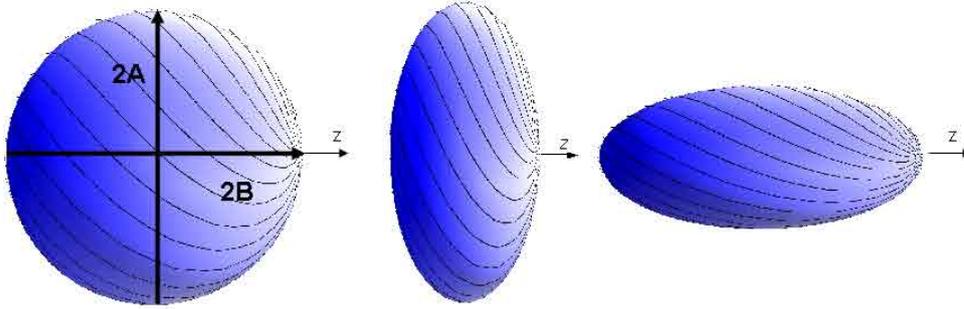


Abbildung 1.10: Verschiedene Formen von möglichen Ionenkristallen in einer linearen Paul-Falle mit unterschiedlichen Verhältnissen der Hauptachse  $\alpha = 2A/2B$ . Von links nach rechts: sphärischer Kristall  $\alpha = 1$ , oblater Kristall  $\alpha > 1$  und prolater Kristall  $\alpha < 1$ .

Ionen gemeinsam als ein nicht neutrales Plasma betrachtet, dessen Eigenschaften durch thermodynamische Parameter ausgedrückt werden. Eine davon ist der Kopplungsparameter  $\Gamma_P$ . Dieser ist ein Maß dafür, wie stark Ionen in einem Plasma miteinander wechselwirken. Er ist als Quotient der Coulombenergie zum nächsten Nachbarn und der kinetischen Energie der Ionen, bei einer Temperatur  $T$ , definiert:

$$\Gamma_P = \frac{E_{Coul}}{k_B T} = \frac{Q^2}{4\pi\epsilon_0 a_{WS}} \frac{1}{k_B T}. \quad (1.47)$$

Dabei steht  $a_{WS}$  für den Wigner-Seitz-Radius und  $T$  für die Temperatur des Ionenensembles. Der Wigner-Seitz-Radius ist der Radius einer Sphäre, deren Volumen dem mittleren Volumen einer von einem Ion eingenommenen Einheitszelle entspricht. Er wird durch

$$a_{WS} = \left( \frac{3M}{4\pi\rho N_A} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (1.48)$$

beschrieben, mit der molaren Masse  $M$ , der Dichte  $\rho$  und der Avogadro-Konstante  $N_A$ . Wenn der Kopplungsparameter  $\Gamma_P$  einen Wert von 172 übersteigt, dann wird durch die Thermodynamik ein Phasenübergang von einem flüssigen Zustand zu einem Festkörperzustand mit geordneter Struktur (bcc-Zustand für unendlich ausgedehnte Plasmen) vorhergesagt [87]. Solche Zustände werden als Ionenkristall oder auch als Coulomb-Kristall bezeichnet. Ein solcher Kristall kann nur in einem Potentialkasten existieren, weil unter den Ionen nur abstoßende Kräfte herrschen.

Abhängig von der Größe des Kristalls, von der die Randbedingungen des elektrischen Feldes abhängen, können in einer Paul-Falle Strukturen wie Linien, Zick-Zack- oder Helix-Anordnungen entstehen. In dreidimensionalen harmonischen Potentialen wird oft die Form eines Rotationsellipsoiden realisiert [88]. Diese wird hauptsächlich für die in dieser Arbeit

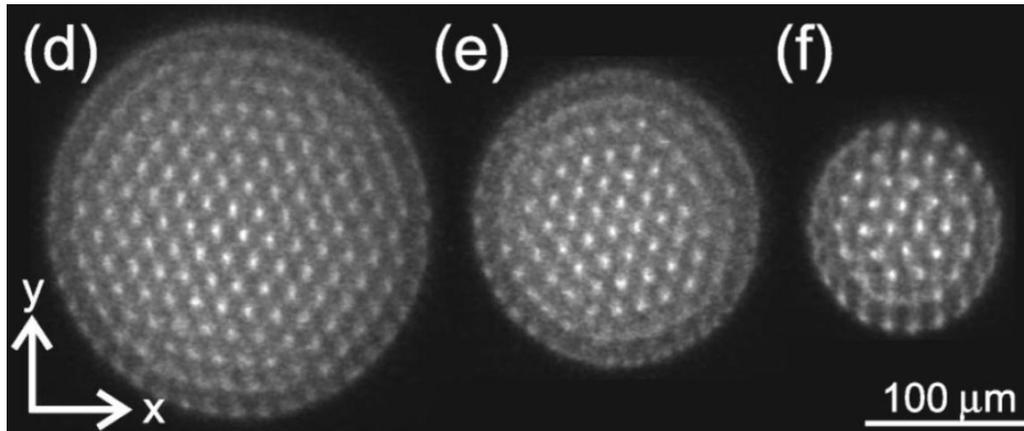


Abbildung 1.11: CCD-Kameraaufnahmen von Ionenkristallen, die einen Schnitt durch die  $x$ - $y$ -Ebene der Paul-Falle zeigen. Die Anzahl der Schalen sinkt von rechts nach links. Die bcc-Struktur des Kristalls ist gut zu erkennen. d) 8 Schalen, e) 6 Schalen, f) 4 Schalen. Entnommen aus [89].

besprochenen Experimente verwendet. Das Verhältnis der Spannungsamplituden  $U_{RF}$ ,  $U_{EC}$  bestimmt den Quotienten der beiden Hauptachsen des Kristalls  $\alpha = 2A/2B$ . Es lassen sich prolate  $\alpha < 1$ , sphärische  $\alpha = 1$  oder oblate  $\alpha > 1$  Kristallformen erzeugen (siehe Abbildung 1.10).

Die Struktur eines solchen Kristalls besteht aus konzentrischen Schalen, in denen sich die Ionen anordnen. Zur Verdeutlichung der speziellen Schalenstruktur der Ionenkristalle sind in Abbildung 1.11 Querschnitte parallel zur  $x$ - $y$ -Ebene einer Paul-Falle durch Kristalle unterschiedlicher Größe dargestellt (entnommen aus [89]). Es sind Kristalle abgebildet, die 4, 6 und 8 Schalen beinhalten. Diese haben unterschiedliche Radien, die sich innerhalb des Kristalls ändern. Die von der Zahl  $N$  der Ionen abhängige Anzahl der Schalen  $M_{Schalen}$  kann für große  $N$  durch

$$M_{Schalen} = \left(\frac{3}{10}N\right)^{\frac{1}{3}} - \frac{1}{2} \quad (1.49)$$

bestimmt werden [90].

Es lässt sich eine Ionendichte  $n$  definieren, über die der Abstand der Schalen voneinander gefunden werden kann. Aus der Kraft, die durch das Fallenpotential auf die Ionen wirkt lässt sich die Ionendichte herleiten [91]:

$$n = \frac{\epsilon_0 U_{RF}^2}{m r_0^4 \omega_{RF}^2}. \quad (1.50)$$

Die Dichte des Ionenkristalls ist unabhängig von der Anzahl der Ionen im Kristall, deren Abstand auch unabhängig von der Gleichspannung der Endkappenelektroden ist. Somit verändert eine Änderung der Potentialtiefe entlang der  $z$ -Achse die Ionendichte nicht.

## 1.5 Sympathetisches Kühlen

Die elektronische Struktur vieler Ionen und Molekülionen enthält oft keine passenden Übergänge für die Doppler-Kühlung. Dies gilt zum Beispiel für alle hochgeladene Ionen (HCl, *engl.: highly charged ions*) und aber auch für das in dieser Arbeit verwendete Molekülion  $\text{MgH}^+$ . Molekülionen sind aufgrund der rovibronischen Struktur sehr komplex. Somit ist es schwierig, eine Kombination von Niveaus zu finden, die genutzt werden kann um einen geschlossenen Kreislauf von Photonenabsorption und -emission zu bilden. Das bedeutet, dass Molekülionen im Allgemeinen und  $\text{MgH}^+$  im Speziellen nicht direkt dopplergekühlt werden können. Um die translatorischen Freiheitsgrade der Ionen dennoch zu kühlen und sie zur Kristallisation zu zwingen, wird das Prinzip des sympathetischen Kühlens angewendet. Dies ermöglicht es in den hier beschriebenen Experimenten die  $\text{MgH}^+$ -Ionen soweit zu kühlen, dass  $\Gamma_P$  ebenfalls über 172 steigt und die Ionen sich in kristalliner Struktur im Fallenzentrum anordnen.

Diese Methode wurde zuerst in Penning-Fallen mit atomaren Ionen [40] realisiert und später auf Ionen [43] in Paul-Fallen angewendet. Sympathetisches Kühlen basiert auf der Coulombwechselwirkung zwischen einer lasergekühlten Ionensorte und einer weiteren Ionensorte, die nicht direkt lasergekühlt werden kann. Sie ist am wirkungsvollsten für den Fall, dass beide Ionensorten ähnliche Masse-zu-Ladungs-Verhältnisse  $\frac{m}{Q}$  haben. Dies begünstigt zudem, dass beide Ionensorten sich auf stabilen Trajektorien im Potential der Paul-Falle befinden.

Auf diese Weise kommt es zur Bildung von Zweikomponenten-Kristallen, wobei sich die schwerere Komponente (vergleiche Gleichung 1.16) im äußeren Bereich des Ellipsoiden anordnet. Auf die Struktur solcher Zweikomponenten-Kristalle wird in Kapitel 3.7 näher eingegangen.

## 1.6 Theoretische Beschreibung eines zweiatomigen Moleküls

### 1.6.1 Struktur eines zweiatomigen Moleküls

Das  $\text{MgH}^+$ -Ion lässt sich als rotierendes zweiatomiges Molekül durch das Modell des starren Rotators beschreiben. Die hier vorgestellte theoretische Beschreibung orientiert sich hauptsächlich an [92] und [93]. Da die Größenordnungen der Energien für die verschiedenen Arten von Übergängen in einem zweiatomigen Molekül sehr unterschiedlich sind, lassen diese sich in guter Näherung getrennt betrachten.

Mit dem Kernabstand  $R_e$  der beiden Atome mit den Massen  $m_{Mg}$  und  $m_H$  kann das Trägheitsmoment des Moleküls durch

$$I = \mu R_e^2; \quad \mu = \frac{m_{Mg} \cdot m_H}{m_{Mg} + m_H} \quad (1.51)$$

ausgedrückt werden, wobei  $\mu$  die reduzierte Masse darstellt. Durch eine quantenmechanische Betrachtung des Systems ergeben sich diskrete Energieniveaus für die Rotationszustände:

$$E_J = \frac{\hbar^2}{2I} J(J+1). \quad (1.52)$$

Dabei ist  $J$  die Rotationsquantenzahl, die nur positive, ganze Zahlenwerte ( $J = 0, 1, 2, 3, \dots$ ) annehmen kann.

Die Bewegung der Atomkerne entlang der Verbindungslinie kann ebenfalls durch eine quantenmechanische Betrachtung beschrieben werden, die zu diskreten Schwingungsenergien eines harmonischen Oszillators führt

$$E_\nu = \left(\nu + \frac{1}{2}\right)\hbar\omega. \quad (1.53)$$

Hierbei ist  $\omega$  durch die Kraftkonstante  $k$  in Form von  $\omega = \sqrt{k/\mu}$  gegeben. Die Schwingungsquantenzahl  $\nu$  ist durch  $\frac{1}{2\pi}\sqrt{k/\mu}$  gegeben und kann wie die Rotationsquantenzahl nur ganzzahlige positive Werte annehmen. Im Gegensatz zu den Rotationsenergieniveaus verschwindet dieser Wert der Schwingungsenergie am Nullpunkt ( $\nu = 0$ ) allerdings nicht, sondern hat den Wert  $E_{\nu=0} = \frac{1}{2}\hbar\omega$ , die Nullpunktsenergie.

Die Energie des MgH-Moleküls im elektronischen Grundzustand lässt sich somit durch

$$E_{\nu,J} = \left(\nu + \frac{1}{2}\right)\hbar\omega + \frac{\hbar^2}{2I} J(J+1) \quad (1.54)$$

angegeben.

Das Modell des starren Rotators ist zur Beschreibung der Rotationsniveaus nicht ausreichend. Es muss beachtet werden, dass sich mit steigender Rotationsenergie, also für größere  $J$ , der Abstand  $R_e$  der Atome im Molekül vergrößert. Die in Gleichung 1.52 angegebene Rotationsenergie in Wellenzahlen ist

$$\bar{E}_J = \frac{E_J}{hc} = \frac{h}{8\pi^2 I c} \cdot J(J+1) = \bar{B}J(J+1), \quad (1.55)$$

mit der Rotationskonstante  $\bar{B} = h/8\pi^2 I c$ . Das Ansteigen des Atomabstands im Molekül wird durch einen zusätzlichen Energieterm mit der Konstante der Zentrifugalaufweitung  $\bar{D}$  berücksichtigt. Mit

$$\bar{D} = \frac{\hbar}{4\pi k I^2 R_e^2 c} \quad (1.56)$$

ergibt sich die Rotationsenergie des nicht-starren Rotators zu

$$\bar{E}_J = \bar{B}J(J+1) - \bar{D}J^2(J+1)^2. \quad (1.57)$$

Bei kleinen Schwingungsquantenzahlen  $\nu$  reicht die Betrachtung des Moleküls als starrer Rotator und damit als harmonischer Oszillator aus. Im Zusammenhang mit größeren Quantenzahlen ist es ebenfalls notwendig die Anharmonizität des Potentials durch die Streckung des Moleküls zu berücksichtigen.

Die potentielle Energie des Moleküls in Abhängigkeit vom Kernabstand hat in diesem Fall die Form eines sogenannten Morse-Potentials:

$$V(r) = D_e \left(1 - e^{-a(r-R_e)}\right)^2. \quad (1.58)$$

Hierbei ist  $r$  der Abstand zwischen den Atomen,  $D_e$  die Dissoziationsenergie,  $R_e$  der Kernabstand bei dem die potentielle Energie ihr Minimum hat und  $a$  eine molekülspezifische Konstante. Die Lösung der Schrödingergleichung ergibt in diesem Fall die Schwingungsenergien

$$E_\nu = \left(\nu + \frac{1}{2}\right) \hbar\omega_0 + \frac{\hbar^2\omega_0^2}{4D_e} \left(\nu + \frac{1}{2}\right) \quad (1.59)$$

mit der Frequenz  $\omega_0 = \frac{a}{2\pi} \sqrt{2D_e/m}$ . Der Verlauf des Morse-Potentials ist in Abbildung 1.13 mit dem eines entsprechenden harmonischen Potentials verglichen. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Näherung des harmonischen Oszillators nur für kleine  $\nu$  zutreffend ist, und dass sich die Lage der Schwingungsniveaus für größer werdende  $\nu$  immer stärker verschiebt.

### 1.6.2 Besetzung der Energieniveaus

Die quantenmechanischen Auswahlregeln für Übergänge im Molekül erlauben nur die Änderungen

$$\Delta\nu = \pm 1, \quad \Delta J = \pm 1 \quad (1.60)$$

der jeweiligen Quantenzahl. Die möglichen Übergänge werden, wie in Abbildung 1.12 schematisch dargestellt, nochmals in zwei verschiedene Zweige unterteilt. Innerhalb eines Übergangs wird bei einer Erhöhung des Schwingungszustands  $\nu = 0 \rightarrow \nu = 1$  unterschieden, ob sich der Rotationszustand erhöht oder erniedrigt. Hierbei werden Linien, für die  $\Delta J = +1$  gilt, dem R-Zweig zugeordnet, und Linien, für die  $\Delta J = -1$  gilt, dem P-Zweig zugeordnet. Im R-Zweig ist der Beitrag der Rotationsenergie zur Übergangsenergie positiv, im P-Zweig ist er negativ. Der laut Auswahlregel verbotenen Übergang mit  $\Delta J = 0$  wird als Q-Zweig bezeichnet.

Die Besetzung der verschiedenen Energieniveaus in einem thermischen Ensemble von Molekülen folgt dem Maxwell-Boltzmann-Gesetz. In Abbildung 1.12 sind die Verläufe der Besetzungszahlen von Rotations- und Schwingungsniveaus qualitativ dargestellt. Für die

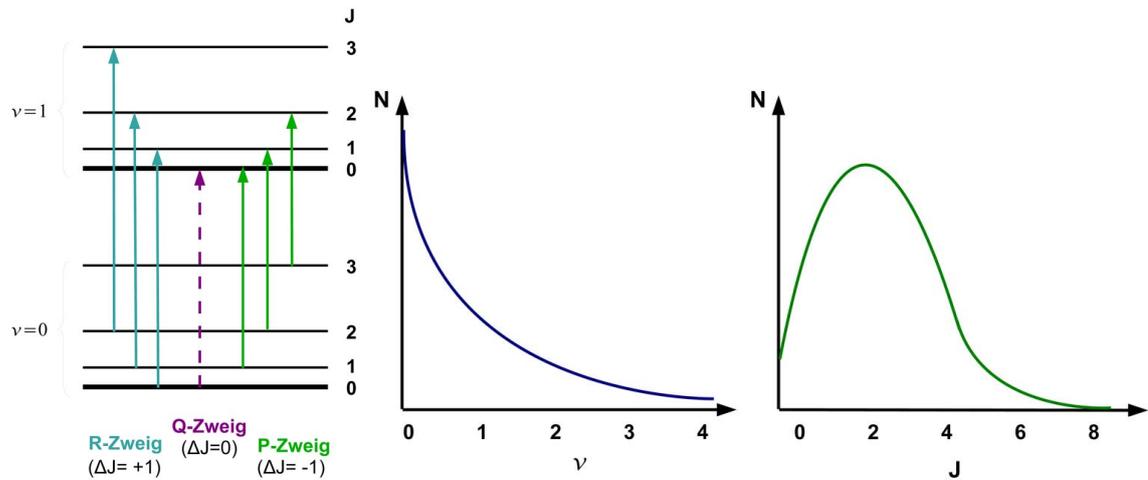


Abbildung 1.12: Links: Schwingungs-Rotationsniveaus eines Moleküls. Die erlaubten Übergänge (R- und P-Zweig), sowie der verbotene Übergang des Q-Zweiges (gestrichelte Linie) sind angezeigt. Rechts: Schema der thermischen Besetzung der Schwingungsniveaus (linker Graph) und der Rotationsniveaus (rechter Graph).

Schwingungsniveaus  $E_\nu$  erhält man

$$N_\nu = N_0 e^{\frac{-\Delta E}{k_B T}} = N_0 e^{-\frac{\nu h \omega}{k_B T}}, \quad (1.61)$$

mit der Anzahl  $N_\nu$  der Ionen im Zustand  $\nu$  und  $\Delta E = \nu h \omega$ . Die Besetzungsdichte nimmt exponentiell ab. Setzt man für die Temperatur  $T$  die Raumtemperatur ( $T = 297 \text{ K}$ ) ein, so ist bei den meisten diatomischen Molekülen im thermischen Gleichgewicht die Besetzung von höheren Schwingungsniveaus als  $\nu = 0$  sehr gering.

Für die Bestimmung der Besetzung der Rotationsniveaus muss berücksichtigt werden, dass diese entartet sind. Die verschiedenen Zustände, die sich dadurch ergeben, werden durch die sogenannte magnetische Quantenzahl  $m_J$  unterschieden. Erlaubt sind die Werte  $m_J = -J, J-1, \dots, +J$ . Aufgrund der  $(2J+1)$ -fachen Entartung folgt die Besetzung der Energieniveaus zu

$$N_J = N_0 (2J+1) e^{\frac{(\hbar^2 J(J+1)/2I)}{k_B T}}. \quad (1.62)$$

Im Gegensatz zu den Schwingungsniveaus steigt die Besetzungszahl der Rotationsniveaus erst mit steigendem  $J$  und fällt dann ab. Dies ist auf die steigende Anzahl der Zustände durch die Entartung zurückzuführen, welche für kleine  $J$  den Kurvenverlauf dominiert. Durch Anlegen eines äußeren Magnetfeldes kann die Entartung aufgehoben werden. Im Fall der hier vorgestellten Experimente mit  $\text{MgH}^+$ -Ionen kann auch das Magnetfeld eines Lasers zu solch einer Aufhebung der Entartung führen. Zudem hängt auch die Besetzung der Rotationsniveaus von der Temperatur ab. Für polare Moleküle steht sie in direktem Zusammenhang mit der Temperatur der BBR, da durch diese Übergänge zwischen den

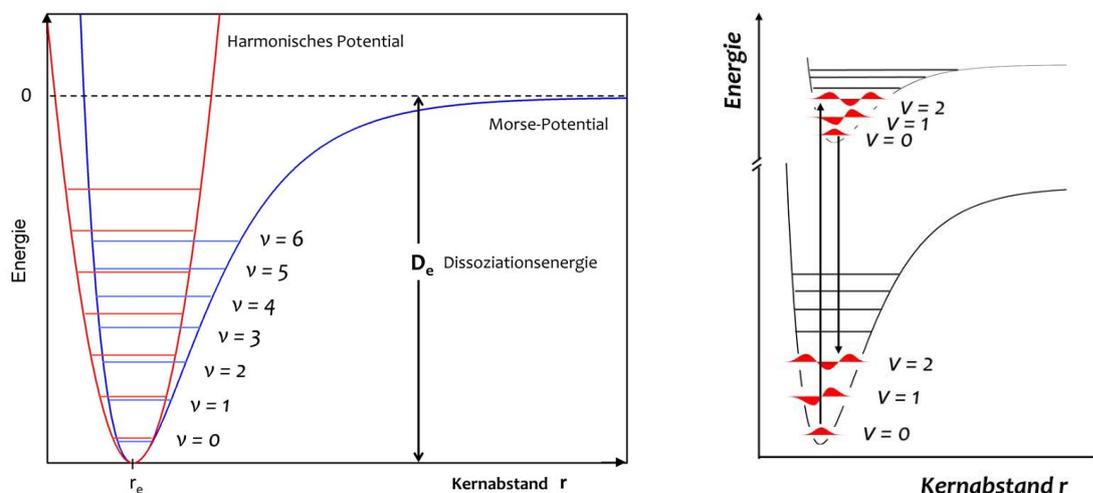


Abbildung 1.13: Links: Vergleich des Morse-Potentials mit dem harmonischen Potential bei einem zweiatomigen Molekül. Es ist zu erkennen, dass sich die Lage der Schwingungsenergieniveaus  $\nu$  für höhere Werte deutlich unterscheiden. Rechts: Schema des Franck-Condon-Prinzips.

Rotationsniveaus innerhalb eines Schwingungszustands induziert werden können.

### 1.6.3 Franck-Condon-Prinzip

Dieses Prinzip beschreibt die Wahrscheinlichkeit nach denen erlaubte Schwingungsübergänge im Molekül stattfinden [94]. Die Born-Oppenheimer-Näherung besagt, dass sich bei einem elektronischen Übergang der Abstand zwischen den Atomkernen eines Moleküls nicht ändert. Dies ist darauf zurückzuführen, dass solch ein elektronischer Übergang auf einer Skala von atomaren Zeiteinheiten stattfindet. Diese ist, verglichen mit der Schwingungsperiode der Kerne,  $10^{-13}$  s, sehr klein. Das heißt, der Kernabstand kann während des Übergangs als konstant angenommen werden, so dass Übergänge in einem Energieniveauschema senkrecht gezeichnet werden können (siehe Abbildung 1.13).

Zudem hängt die Wahrscheinlichkeit eines Übergangs von den Wellenfunktionen der beteiligten Energieniveaus ab, deren Quadrate ein Maß für die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten bei den jeweiligen Kernabständen sind. So findet ein Übergang bevorzugt bei den Kernabständen statt, bei denen die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten des Anfangs- und des Endzustands maximal sind.

## 1.7 Das $\text{MgH}^+$ -Molekül

In Abbildung 1.14 sind die Potentialkurven der niedrigsten elektronischen Singulett-Zustände dieses Moleküls dargestellt. Bei diesem Graphen handelt es sich um die theoretisch gerechneten und experimentell bestimmten Verläufe der Potentialkurven für die elektroni-

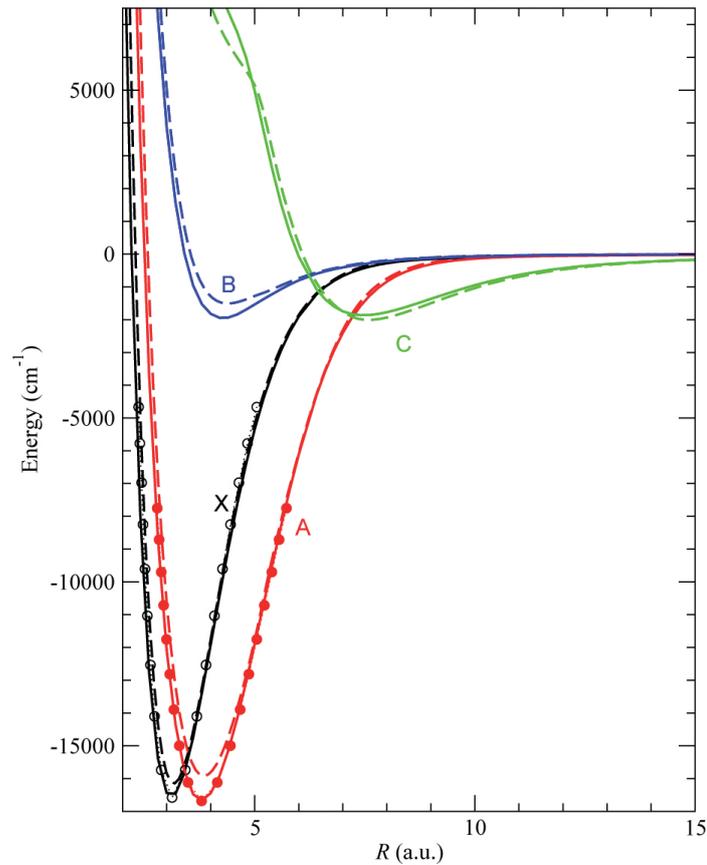


Abbildung 1.14: Potentialkurven der vier niedrigsten Singulett-Zustände des  $\text{MgH}^+$ -Molekülions. Theoretische Daten sind mit durchgehenden Linien dargestellt. Experimentelle Daten sind mit Kreisen markiert. Entnommen aus [95]

schen Terme  $X^1\Sigma^+$ ,  $A^1\Sigma^+$ ,  $B^1\Pi^+$ ,  $C^1\Sigma^+$ . Die Energieniveaus der elektronischen Zustände sind wiederum in Schwingungsniveaus  $\nu$  und Rotationsniveaus  $J$  aufgespalten. Die Bezeichnung der Zustände erfolgt in der ket-Schreibweise  $|\nu, J\rangle_X$  mit der Angabe des elektronischen Zustands als Index.

Da es sich beim  $\text{MgH}^+$ -Moleküliion um ein polares Molekül handelt können Rotationsübergänge innerhalb eines Schwingungszustands stattfinden. Typische Energien für die Übergänge [96] zwischen den Niveaus sind:

$$\begin{array}{ll} \Delta E_J = 1 - 10 \text{ meV} & \text{Rotationsübergänge,} \\ \Delta E_\nu = \text{einige } 100 \text{ meV} & \text{Schwingungsübergänge,} \\ \Delta E_{el} = \text{einige } 1 \text{ eV} & \text{elektronische Übergänge.} \end{array}$$

Eine ausführlichere Beschreibung des Bereichs der Energieniveaustuktur, der in den Experimenten verwendet wird, ist in den jeweiligen Kapiteln zum Experiment gegeben.

## Die kryogene Paul-Falle

In diesem Kapitel wird der experimentelle Aufbau der kryogenen linearen Paul-Falle, welche im Rahmen dieser Doktorarbeit entworfen, aufgebaut und in Betrieb genommen wurde, beschrieben. Ein Manuskript zu diesem Aufbau wurde bereits bei *Review of Scientific Instruments* eingereicht [97]. Dabei soll auf die Vorteile und Möglichkeiten, die sich durch die kryogene Bauweise ergeben sowie auf die Details dieser Bauweise eingegangen werden. Für eine weiterführende Beschreibung des Fallenaufbaus, Ergebnisse von Dimensionierungsstudien der Elektroden und ionenoptische Simulationen, sowie für eine detaillierte Darstellung der verwendeten Elektronik sei hier auf die Diplomarbeit von Franziska R. Brunner [82] und die Masterarbeit von Tim Ballance [98] verwiesen, die im Rahmen der vorliegenden Doktorarbeit betreut wurden.

Das Speichern von HCIs und Molekülonen über einen langen Zeitraum stellt hohe Anforderungen an die Qualität des Vakuums im Fallenbereich. Die in diesem Bereich eingefangenen Ionen können bei Kollisionen mit Teilchen aus dem Restgas durch Ladungsaustausch (besonders kritisch bei der Speicherung von HCI) oder durch den Gewinn von kinetischer Energie (Aufheizen) verloren gehen sowie ihren Zustand ändern. Um die Kollisionsrate von gefangenen Ionen mit Restgasteilchen niedrig zu halten muss ein Druck im Bereich  $< 10^{-10}$  mbar in der Falle vorliegen. Ein Vakuum mit dieser Qualität kann technisch realisiert werden, indem man die Umgebungstemperatur im Fallenbereich auf kryogene Temperaturen, in diesem Fall auf 4 K, absenkt. Bei diesen niedrigen Temperaturen kondensieren die meisten Restgasteilchen auf den kryogenen Oberflächen des Aufbaus sehr effektiv. Solche Temperaturen gestatten es außerdem, wie in der Einleitung erwähnt, die Rotations- und Schwingungszustände polarer Molekülonen bis zum Grundzustand zu reduzieren.

Als Fallenart wurde die lineare Paul-Falle gewählt, da sie entlang der zentralen Achse, der  $z$ -Achse, einen feldfreien Bereich ohne Mikrobewegung der gespeicherten Ionen zur

Verfügung stellt. Die Kombination dieser Falle mit der Laserkühlung von Ionen ermöglicht es einzelne oder wenige Ionen aber auch große Ionenmengen ( $> 10^5$  Ionen [9]) mit kinetischen Energien im mK-Bereich zu fangen und über große Zeiträume zu speichern.

Um ein sehr gutes Vakuum im Bereich der Fallenkonstruktion zu erzeugen wurde der Aufbau einer linearen Paul-Falle mit einem kryogenen Aufbau, bestehend aus Strahlungsschilden und einem Pulsröhrenkühler, kombiniert. Für das Design der Elektrodengeometrie sowie der benötigten Elektronik wurde eine bereits erprobte Falle aus der *Ion Trap Group* von Michael Drewsen zum Vorbild genommen [76], [91]. Der kryogene Aufbau dieser Paul-Falle orientiert sich an dem der Elektronenstrahl-Ionenfallen (EBIT, *engl.: electron beam ion trap*) der *EBIT-Gruppe* (MPIK Heidelberg), welche genutzt werden um HCIs zu erzeugen und zu untersuchen.

Die Anforderungen an das Design der neuen Paul-Falle wurden durch deren geplante Anwendung als Falle für HCI vorgegeben. So soll das Herunterkühlen der Fallenkonstruktion (auf 4 K) zusammen mit den angelegten RF-Spannungen (im Bereich 1 MHz bis 10 MHz und bis 1000 V Spitze-Spitze-Spannung) mit einer maximalen Wärmelast von 1 W ermöglicht werden. Zudem soll die Fallenregion durch viele optische Zugänge zum einen für Laser, aber auch für ein achromatisches Abbildungssystem (mit der Fähigkeit einzelne Ionen aufzulösen) und für atomare Quellen zugänglich sein. Zusätzlich sollen Ionenoptiken das Einbringen von Ionen aus externen Quellen in die Falle ermöglichen, welches durch ein System aus Vorfalle und Hauptfalle unterstützt werden soll.

Tabelle 2.1: Dimensionen der kryogenen linearen Paul-Falle

Parameter	Bezeichnung	Abmessung
Länge Endkappenelektroden	$z_{EC}$	20,0 mm
Länge Mittelelektroden	$2z_0$	5,4 mm
Radius Elektroden	$r_e$	4,0 mm
Elektrodenabstand zum Zentrum	$r_0$	3,5 mm
Geometriefaktor	$\eta$	0,259

## 2.1 Die Paul-Falle

Das ionenspeichernde Potential einer linearen Paul-Falle besteht im Allgemeinen aus einem elektrischen Wechselfeld in der  $x$ - $y$ -Ebene der Fallenanordnung und einem statischen elektrischen Feld in  $z$ -Richtung. Bei der hier vorgestellten kryogenen linearen Paul-Falle werden diese elektrischen Felder durch vier zylindrische Stabelektroden, die in  $z$ -Richtung segmentiert sind, erzeugt. Auf diese Weise erhält man zwölf Elektroden ( $E_1$  bis  $E_{12}$ ), welche die Hauptfalle darstellen. Hier sind die mittleren Elektroden kürzer als die Endkappenelektroden, um ein harmonisches Potential entlang der  $z$ -Richtung zu erzeugen.

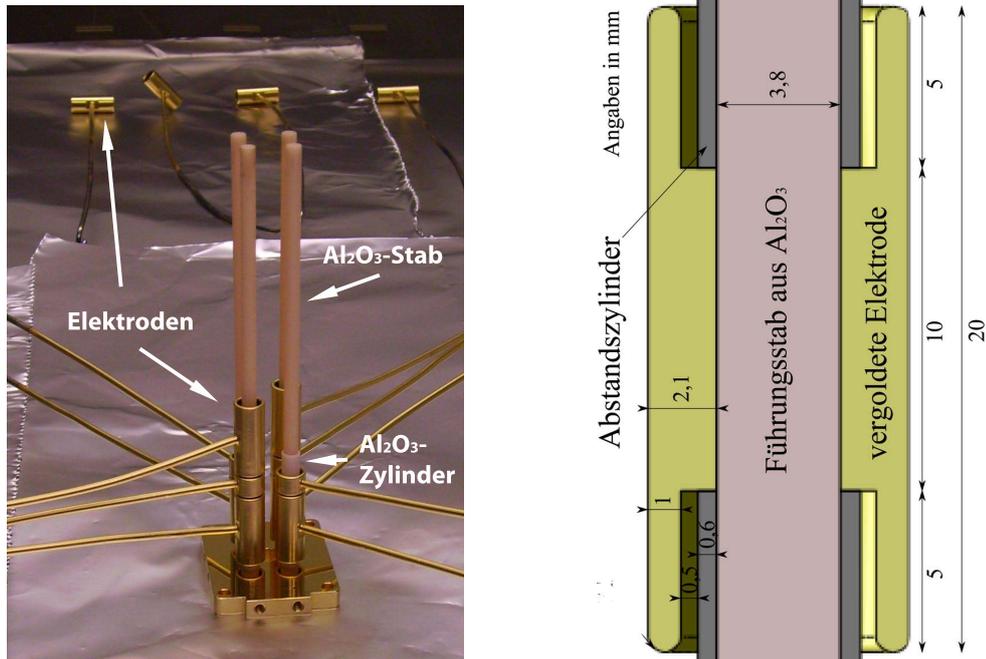


Abbildung 2.1: Links: Foto von einigen vergoldeten Kupferelektroden der Hauptfalle, die auf die Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Stäbe aufgefädelt werden und durch Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Zylinder fixiert sind. Die Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Stäbe stecken bereits in einem der goldbeschichteten Halter. Rechts: Querschnitt durch die Designansicht einer Fallenelektrode auf einem Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Stab zusammen mit einem Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Zylinder als Abstandshalter zur nächsten Elektrode.

Zusätzlich dienen zwölf weitere Elektroden ( $E_{13}$  bis  $E_{24}$ ) als Vorfalle, um weitere Ionen zu fangen und zu speichern. Sie können auch genutzt werden um alternative Fallengeometrien, zum Beispiel eine längeres Fallenpotential entlang der  $z$ -Richtung, zu realisieren. In Abbildung 2.1 sind einige der insgesamt 24 Elektroden, als vergoldete Kupferzylinder mit einem Außendurchmesser von 8 mm ausgeführt, zu sehen. Diese werden abwechselnd mit dünnwandigen Aluminiumoxidzylindern (Aluminiumoxid: Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) auf insgesamt vier Aluminiumoxidstäben aufgefädelt. Die Abstände zwischen den Elektroden werden durch die Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Zylinder bestimmt und betragen etwa 500  $\mu\text{m}$ . Durch die im Längsschnitt doppelt-T-förmigen Elektroden ist das isolierende Material (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) größtenteils von den Elektroden bedeckt und weiter von dem Fallenzentrum entfernt. Somit wird ein elektrisches Aufladen der Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Zylinder durch Ionen aus der Falle oder dem versehentlichen Beschuss durch Laserstrahlen unterbunden. Darüber hinaus führt diese Form der Elektroden zu einer langen Kriechstrecke, so dass Kriechströme zwischen den Elektroden unterbunden werden können. In Tabelle 2.1 sind die Dimensionen der Falle aufgeführt. Für die Werte der Elektrodenradien  $r_e$ , der Elektrodenabstände zum Fallenzentrum  $r_0$  und der Elektrodenlängen  $z_{EC}$  und  $z_0$  wurde auf die Werte einer der Paul-Fallen aus der Gruppe von Michael Drewsen zurückgegriffen [76], [91]. Für einen Teil der hier beschriebenen Experimente war diese Kompatibilität erwünscht. Numerische Simulationen haben gezeigt,

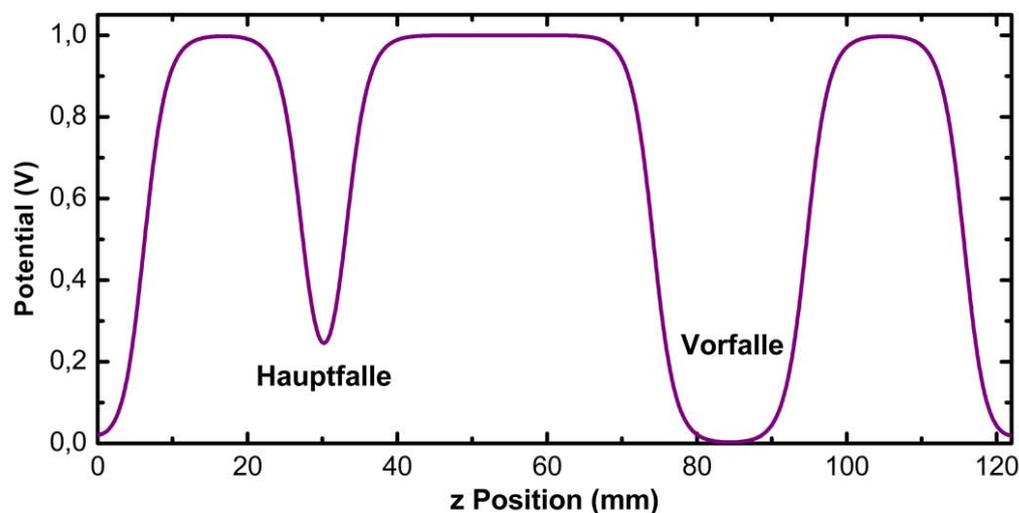


Abbildung 2.2: SIMION-Simulation des Potentialverlaufs der Paul-Falle entlang der  $z$ -Achse. Als Endkappenelektrodenpotential ist eine positive Spannung von 1 V gewählt, die Fallenelektroden von Hauptfalle und Vorfalle sind geerdet (0 V).

dass die Wahl dieser Dimensionen für die einzelnen Parameter zu dem Wert  $\eta = 0,259$  für den geometrischen Faktor aus Formel 1.11 führt. Durch die verkürzte Mittelelektrode der Hauptfalle erhält man einen harmonischen Potentialverlauf in  $z$ -Richtung. Dadurch sind gefangene Ionen mit niedrigen kinetischen Energien besser entlang der  $z$ -Achse der Paul-Falle lokalisiert, als sie es zum Beispiel in der Vorfalle wären. Dort sinkt das Potential entlang der Mittelelektrode vergleichsweise langsamer ab und bietet somit einen größeren Bereich entlang der  $z$ -Achse in dem sich die Ionen aufhalten können. In Abbildung 2.2 ist der Potentialverlauf entlang der  $z$ -Achse der Falle abgebildet der mit dem Simulationsprogramm SIMION 8 [99] simuliert wurde. Für die Simulation wird 1 V als Spannung für die Endkappenelektroden verwendet und die Mittelelektroden geerdet.

Die  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Stäbe sind in zwei goldbeschichteten Haltern aus OFHC-Kupfer (OFHC, *engl.: oxygen-free high conductivity*) fixiert. Die Halter sind zusammen mit einem Edelstahlrahmen auf einer OFHC-Kupferplatte, die Basis der 4 K-Region, befestigt und haben Öffnungen mit 7 mm Durchmesser entlang der  $z$ -Achse. Durch diese können die Ionen in die Falle hinein und wieder hinaus gelangen. Ein zweiter Edelstahlrahmen ist auf den Kupferhaltern befestigt und verhindert die Scherung der Fallenkonstruktion. Abbildung 2.4 zeigt die vollständig montierte Falle.

Die Fallenelektroden bestehen aus massiven OFHC-Kupferhohlzylindern und sind über 2 mm dicke Kupferdrähte, die an die Elektroden gelötet sind, an die 4 K-Stufe des Pulsröhrenkühlers thermisch angebunden. Die Kupferdrähte sind, wie in Abbildung 2.3 dargestellt, in Sechsergruppen durch eine Edelstahlschelle mit 8 mm dicken Saphirplättchen als Isolator auf die kupferne Bodenplatte der 4 K-Stufe gepresst, und werden durch eine

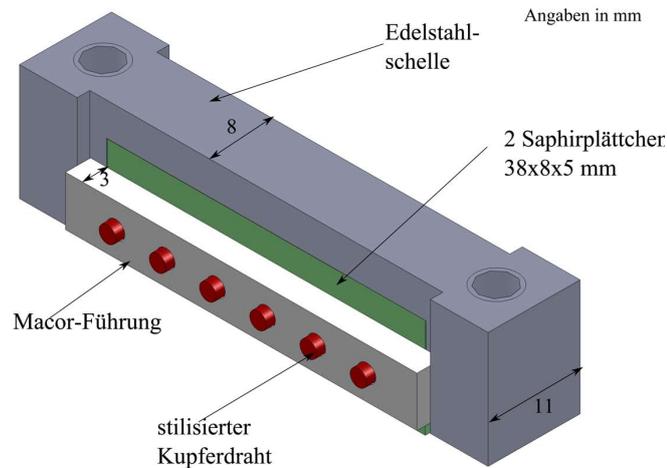


Abbildung 2.3: Detailansicht der Kälteklemme, die mittels Saphirplättchen die Kupferdrähte, für die Spannungsversorgung der Elektroden, an die 4 K-Bodenplatte thermisch anbindet [82].

Führungsschiene aus Macor räumlich voneinander isoliert. Weil Saphir ein guter Isolator ist und sowohl eine hohe Durchschlagfestigkeit als auch eine hohe Wärmeleitfähigkeit besitzt [100], sind die Elektroden elektrisch vom restlichen Experiment isoliert, aber thermisch sehr gut mit der 4 K-Stufe verbunden. Somit ist es möglich mit nur einer Zuleitung die Elektroden gleichzeitig mit Radiofrequenz, Gleichspannung und Kälte zu versorgen. Diese Vorrichtung gestattet es zudem einen ausreichend hohen Anpressdruck auf die Kupferdrähte auszuüben um die Wärmeleitung zu verbessern, wobei die Elektroden und die  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Stäbe selbst frei von mechanischer Spannung bleiben. Solche mechanischen Spannungen können langfristig aufgrund von häufigen Temperaturzyklen zu Defekten im Aufbau oder Rissen auf den Isolatoren führen. Die Kupferdrähte sind direkt hinter den Saphirklemmen mit den einzelnen Enden von insgesamt zwei Flachbandkabeln verbunden. Dieses Kabel und die Anbindung an die Spannungsquellen werden ausführlich in dem Kapitel 2.3 beschrieben.

Die Oberfläche der Elektroden ist mit  $10\ \mu\text{m}$  Silber und dann mit  $5\ \mu\text{m}$  Gold beschichtet. Die Silberschicht verhindert, dass die Goldatome ins Innere der Kupferelektrode diffundieren. Die Goldschicht wird zum Stromtransport und als Schutz gegen Oxidation genutzt, wobei letzteres zum Aufbau von unerwünschten Oberflächenpotentialen führen kann. Da an den Elektroden eine Wechselspannung mit einer Frequenz von ungefähr 4 MHz anliegt, begrenzt der Skin-Effekt die elektrische Leitfähigkeit. Bei diesem Effekt wird bei der hier verwendeten Frequenz nur die Oberfläche des Materials bis zu einer Tiefe von wenigen  $\mu\text{m}$  vom Strom durchdrungen. Dieser fließt hauptsächlich auf der Oberfläche der Elektroden, also in der sehr gut leitenden Goldschicht [101].

Abbildung 2.4 zeigt ein Foto des gesamten Fallenaufbaus auf der 4 K-Kupferplatte.

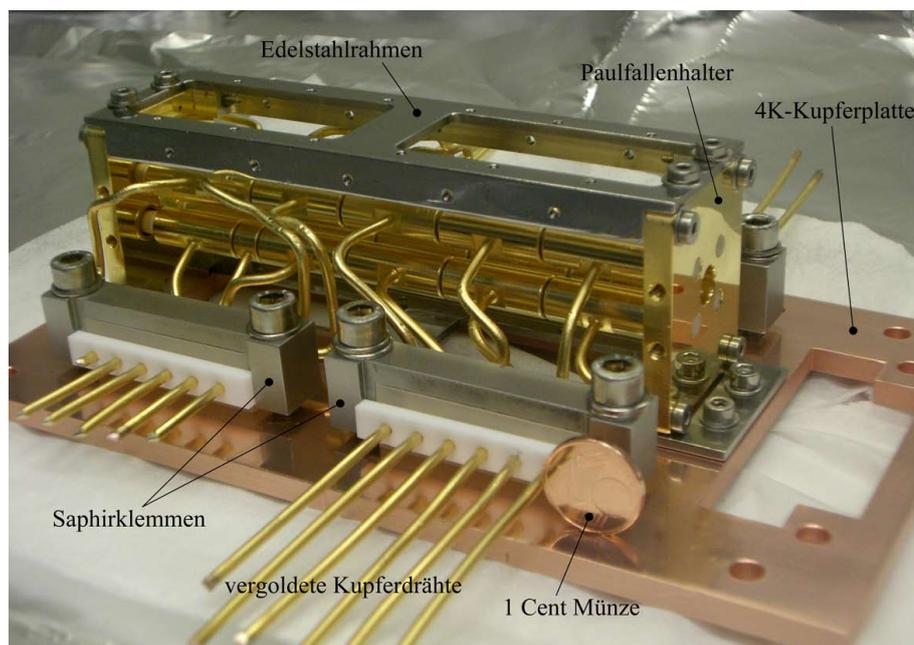


Abbildung 2.4: Foto des gesamten Fallenaufbaus auf der Bodenplatte der 4K-Stufe. Zu erkennen sind die vergoldeten Elektroden mit den angelöteten vergoldeten Kupferdrähten. Diese sind durch die Saphirklemmen mit der 4K-Bodenplatte verbunden. Als Maßstab ist eine 1 Cent-Münze mit abgebildet.

## 2.2 Der kryogene Aufbau

Die Erzeugung einer Temperatur von 4 K in der Fallenregion des Experiments geschieht stufenweise. Dabei wurde besonders darauf geachtet, dass trotz der Minimierung des Wärmeeintrags durch Wärmeleitung zwischen den einzelnen Temperaturstufen eine hohe mechanische Stabilität erreicht wird. Abbildung 2.5 zeigt das Prinzip der Montage durch Speichen schematisch sowie ein Foto der mittels Speichen aufgebauten Edelstahlkonstruktionen der jeweiligen Temperaturbereiche. Zuerst wird ein Raumvolumen innerhalb der elektropolierten Vakuumkammer durch sogenannte Kälteschilde von der thermischen Strahlung der Umgebung mit Raumtemperatur (die hier als eine Temperatur von 25 °C, also 297 K angenommen wird) isoliert und auf 40 K gekühlt. Innerhalb dieses Volumens befindet sich die Fallenregion, welche ebenfalls von einem Kälteschild umgeben ist und auf 4 K gekühlt wird. Zu jeder Temperaturstufe gehört ein Gehäuse, bestehend aus einem Edelstahlgerüst, innerhalb dessen der Gehäuse mit der niedrigeren Temperatur montiert ist. Die Gerüste bilden sogenannte Käfige und bestehen aus je zwei drahterodierten massiven rechteckigen Rahmen, die durch daran verschraubte 3 mm dicke Edelstahlplatten verbunden werden. Die Oberflächen der Edelstahlteile sind poliert um auch hier die Reflektivität zu erhöhen und damit die Wärmelast durch thermische Strahlung zu reduzieren. Diese Käfige sind mittels auf Zug belasteten Fahrradspeichen aus Edelstahl ineinander montiert. Diese Methode gestattet ein kompaktes Design, das gleichzeitig eine hohe Festigkeit

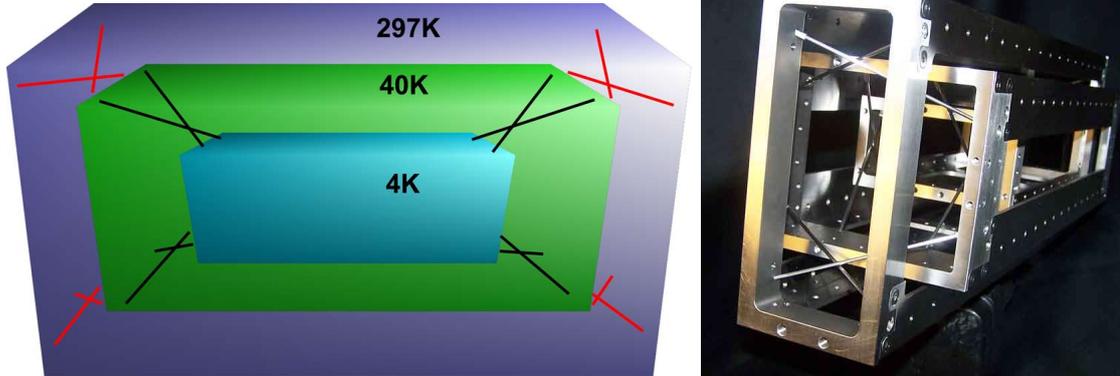


Abbildung 2.5: Links: Schematische Darstellung der Montage der Edelstahlkäfige mittels Speichen. Die farbigen Boxen stellen die Edelstahlkäfige der drei Temperaturstufen dar (297 K in blau, 40 K in grün, 4 K in türkis). Die acht Speichen zwischen dem 297 K- und dem 40 K-Käfig sind in rot sowie zwischen dem 40 K- und dem 4 K-Käfig in schwarz dargestellt. Rechts: Die drei Edelstahlrahmen für die drei Temperaturbereiche sind durch die Speichen ineinander montiert, ohne Falle und Kälteschilder.

hat. Die Länge der Speichen ist optimiert, so dass der zur Verfügung stehende Platz in der Vakuumkammer bestmöglich ausgenutzt wird. Somit bieten die Speichen mit nur 2 mm Durchmesser und einer Länge von etwa 100 mm den Vorteil hoher Stabilität bei gleichzeitiger Minimierung der Wärmeleitung zwischen den Käfigen der verschiedenen Temperaturstufen. Dies ist zurückzuführen auf den Zusammenhang zwischen Energietransport  $\dot{Q}$  und der Länge  $l$  des verbindenden Elements mit der Querschnittsfläche  $A$  zwischen zwei Orten, die einen Temperaturunterschied  $\Delta T$  aufweisen

$$\dot{Q} = -\kappa A \frac{\Delta T}{\Delta l} [W]. \quad (2.1)$$

Der Koeffizient  $\kappa$  beschreibt die Wärmeleitfähigkeit eines Stoffes und ist stoff- sowie temperaturabhängig. Anhand dieses Zusammenhangs wird der Wärmeeintrag von Raumtemperatur auf die 40 K-Stufe durch Wärmeleitung entlang der Speichen auf 0,8 W abgeschätzt. Für den Wärmeeintrag auf die 4 K-Stufe wird ein Wert von 0,05 W errechnet.

An den Außenseiten der Käfige sind die Kälteschilder befestigt welche aus silberbeschichteten, 1 mm dicken OFHC-Kupferplatten bestehen und durch ihren direkten Kontakt zu dem Pulsröhrenkühler den Abtransport der Wärme des Experiments übernehmen. Durch den Gebrauch von OFHC-Kupfer (hier wurde zu 99,98 % reines Kupfer verwendet) wird zum einen eine hohe Wärmeleitung erreicht, so dass der gesamte Aufbau innerhalb von etwa 15 Stunden auf Temperaturen von 40 K beziehungsweise 4 K heruntergekühlt wird. Zum anderen führt die Silberbeschichtung auf der Außenseite der Schilde, aufgrund ihres hohen Reflexionskoeffizienten zu einer sehr geringen Absorption von Wärmestrahlung. Sie reduzieren somit die thermische Last der zwei kalten Temperaturstufen.

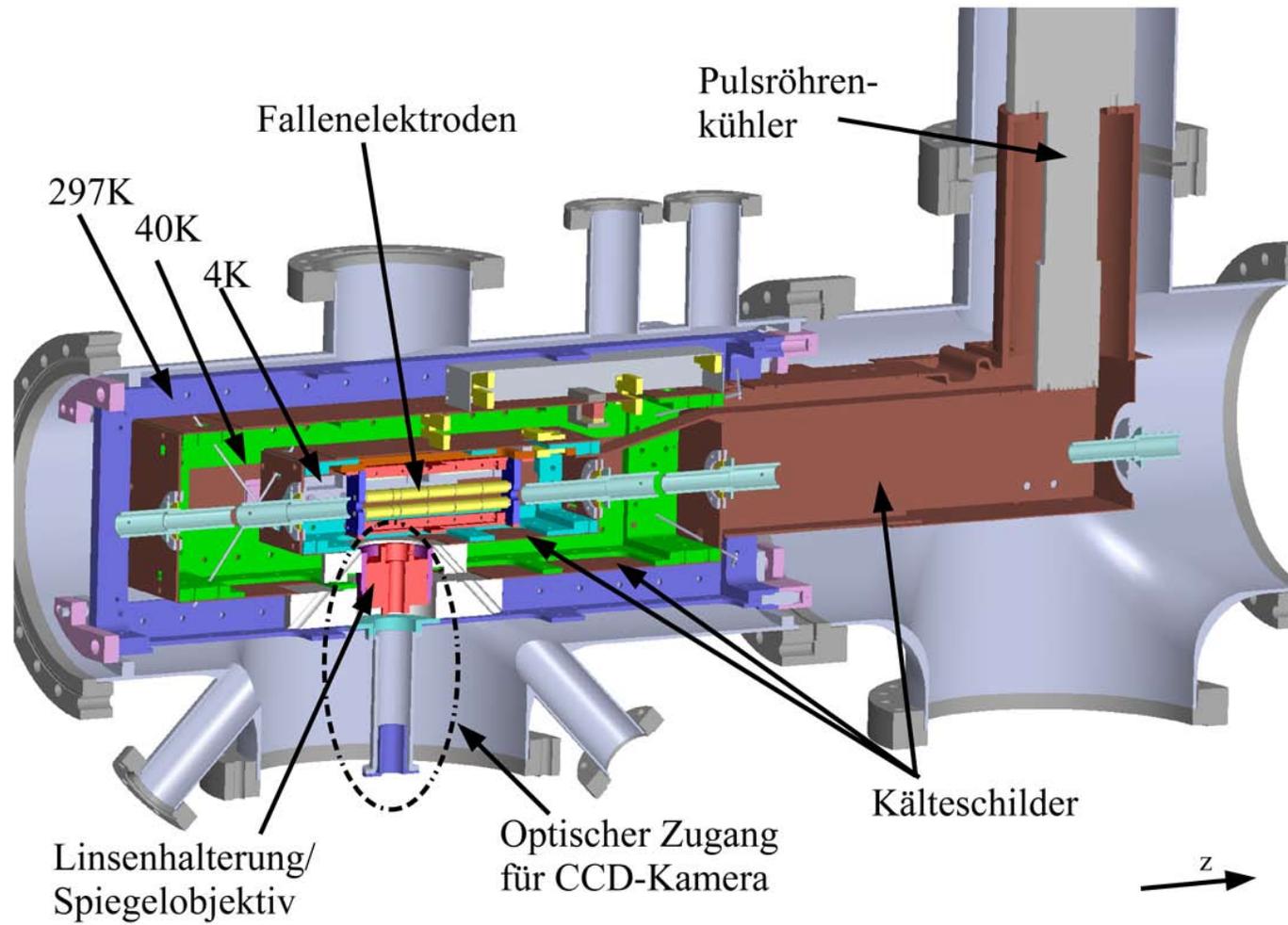


Abbildung 2.6: Querschnitt durch eine SolidWorks-Ansicht des gesamten Aufbaus der Paul-Falle.

Die Kälteschilde der 40 K- und der 4 K-Stufe sind mit den zwei entsprechenden Temperaturstufen eines Pulsröhrenkühlers (Model SRP-082B-F20H der Firma *Sumitomo Heavy Industries, Ltd.*) verbunden. Dieser ist an einem Sechsfach-Kreuz angebracht, welches an der Hauptkammer, in der sich die Falle befindet, angebracht ist. Der Kältekopf wurde nicht direkt an der Hauptkammer der Falle befestigt, um die direkten Sichtachsen zur Falle frei zu halten. Der Pulsröhrenkühler bietet den Vorteil von extrem niedrigen Vibrationen ( $7\ \mu\text{m}$  bis  $9\ \mu\text{m}$ ) und versorgt die 40 K-Stufe mit 40 W sowie die 4 K-Stufe mit 1 W Kühlleistung [102].

Da alle Materialien, die für den Aufbau verwendet werden, ähnliche thermische Expansionskoeffizienten haben, kommt es während des Abkühlens auf 4 K nur zu kleinen Deformationen oder Verschiebungen im Bereich von  $50\text{-}100\ \mu\text{m}$ . Insgesamt sind im Aufbau vier Temperatursensoren installiert, deren Signale digital aufgezeichnet werden [103]. Es handelt sich um kalibrierte Cernox Sensoren, von denen drei Stück auf der 4 K-Stufe befestigt sind. Zwei davon sind direkt im 4 K-Fallenbereich und einer an der 4 K-Stufe des Pulsröhrenkühlers angebracht. Ein vierter Sensor befindet sich am Edelstahlrahmen der 40 K-Stufe.

In Abbildung 2.6 ist ein Querschnitt des gesamten experimentellen Aufbaus dargestellt, in dem die verschiedenen Temperaturstufen zu erkennen sind. Die Kammer (in grau dargestellt) selbst und der äußerste Edelstahlrahmen (in blau), der mit massiven Haltevorrichtungen (in rosa) direkt in der Kammer befestigt ist, liegen bei Raumtemperatur. Die Kammer und der Edelstahlrahmen stellen die 297 K-Stufe oder Raumtemperaturstufe dar. Der Edelstahlrahmen wird mit Hilfe von Kegelstiften in der Kammer positioniert und fest daran verschraubt. Da der gesamte Fallenaufbau innerhalb dieses Rahmens befestigt ist, kann bei Bedarf die gesamte Fallenkonstruktion als eine Komponente aus der Kammer herausgenommen werden. Dies bietet den Vorteil, dass zum Beispiel die ionenoptischen Elemente bequem außerhalb der Vakuumkammer auf die Fallenregion ausgerichtet werden können.

Innerhalb des 297 K-Rahmens ist über acht Speichen der 40 K-Edelstahlrahmen (in grün abgebildet) befestigt. Das diesen Rahmen umgebende Kälteschild (in braun) ist über ein 2 mm dickes OFHC-Kupferblech und ein OFHC-Verbindungsrohr mit der 40 K-Stufe des Kältekopfes verbunden. Dieser Teil ist auf einer Teilstrecke mehrfach gebogen um Vibrationen vom Pulsröhrenkühler zu dämpfen. Innerhalb des 40 K-Rahmens ist wiederum mit acht Speichen der 4 K-Edelstahlrahmen (in türkis) montiert. Dessen 5 mm dicke OFHC-Kupferbodenplatte (welche aus zu 99,99 % reinem Kupfer besteht) versorgt die auf ihr montierte Fallenkonstruktion mit 4 K und erlaubt es eine gleichmäßige Temperaturverteilung aufzubauen. Die Bodenplatte ist durch eine 2 mm dicke OFHC-Kupferplatte mit der entsprechenden Temperaturstufe des Pulsröhrenkühlers verbunden. Wie im vorangegangenen Kapitel beschrieben sind die Fallenelektroden (in gelb) thermisch mit dieser Platte

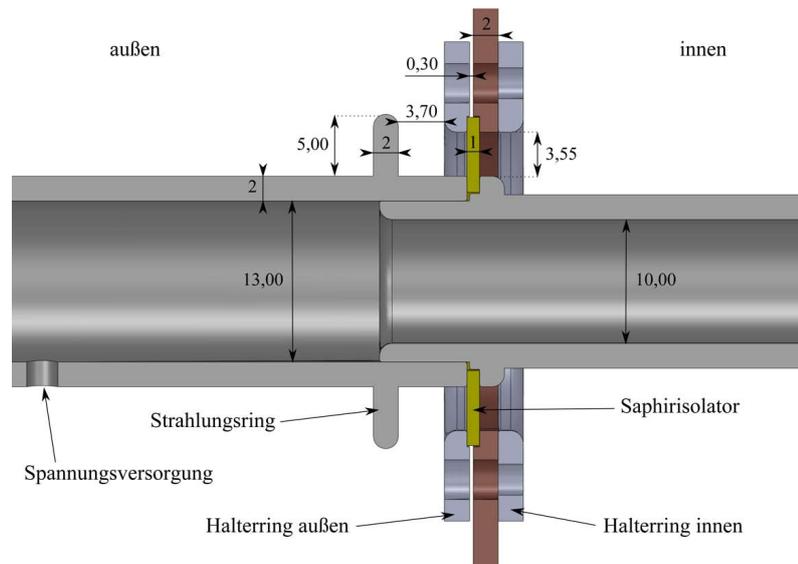


Abbildung 2.7: Schnittansicht der Edelstahlrohre, die entlang der  $z$ -Achse an den Kälteschildern angebracht sind. Angaben in mm [82].

verbunden.

Eine besondere Herausforderung war es möglichst viele optische Zugänge zum Fallenzentrum zur Verfügung zu stellen und gleichzeitig den Wärmeeintrag an diesem Ort so klein wie möglich zu halten. In Abbildung 2.16 ist zu erkennen, dass es unter den Winkeln von  $90^\circ$ ,  $68^\circ$  und  $45^\circ$  in der horizontalen Fallenebene zur  $z$ -Achse insgesamt zehn optische Zugänge gibt. Zusätzlich gibt es entlang der  $z$ -Achse der Falle und senkrecht zu dieser Achse sowie unter  $45^\circ$  weitere optische Zugänge. Um vor allem die thermische Strahlung auf den 4 K-Bereich zu reduzieren, wurde jede Öffnung in den Kälteschildern mit einer Röhre versehen. Gleichzeitig wird dadurch der Leitwert für Restgasteilchen, die in den Fallenbereich strömen, verringert. Somit wird die Effizienz des differentiellen Pumpens zwischen den verschiedenen Temperaturstufen erhöht. Durch die Verwendung solcher Röhren beträgt der Raumwinkelanteil der Schwarzkörperstrahlung, die von den 297 K-Oberflächen stammt, im Zentrum der Falle nur etwa  $(2 \pm 1)\%$ .  $(98 \pm 1)\%$  des Raumwinkels werden durch Strahlung bestimmt, die von den 4 K-Oberflächen emittiert wird. Die Unsicherheiten sind anhand der Designzeichnungen abgeschätzt. Entlang der  $z$ -Achse dienen insgesamt fünf Edelstahlrohre, wie in Abbildung 2.7 gezeigt, der thermischen Abschirmung. Hierbei handelt es sich um etwa 10 cm lange Röhren mit einem Innendurchmesser von 10 mm. Diese sind an Isolatorringen aus Saphir befestigt, welche wiederum auf den Kälteschildern montiert sind, so dass die Röhren elektrisch isoliert sind und gleichzeitig effizient gekühlt werden. An ihnen können Spannungen von bis zu 2 kV angelegt werden wodurch ein Einzellinseneffekt entsteht, der es ermöglicht Ionen entlang der Fallenachse zu transportieren. Die anderen optischen Zugänge im 40 K- und 4 K-Schild sind mit Aluminiumplatten ver-

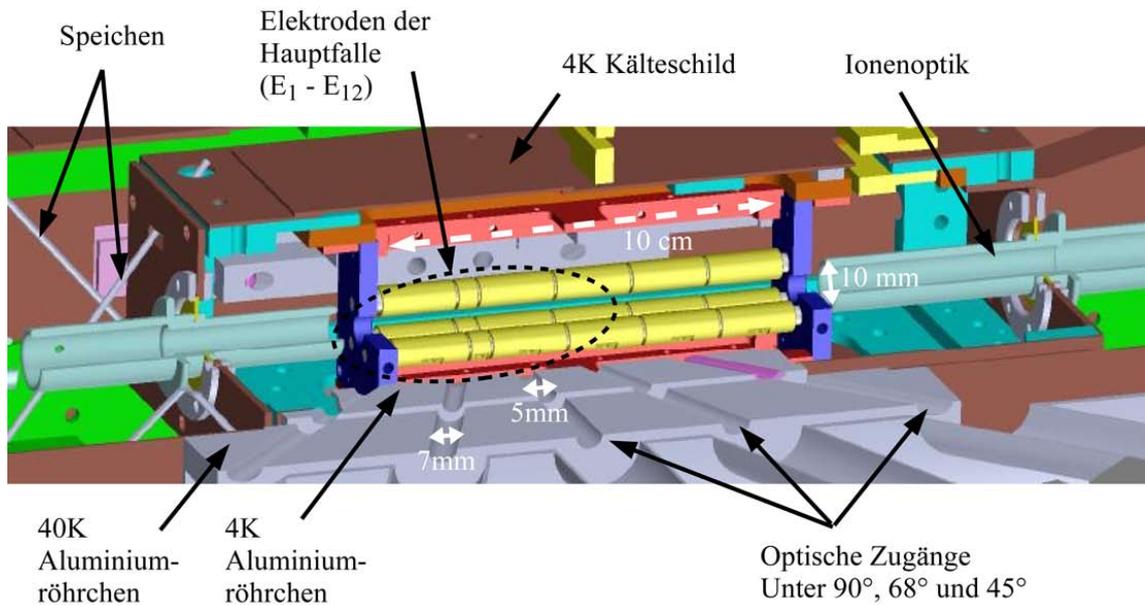


Abbildung 2.8: Detailansicht des 4 K-Fallenbereichs.

sehen, in denen einige Zentimeter lange Öffnungen mit Durchmessern von 7 mm, für den 40 K-Bereich, sowie 5 mm Durchmesser, für den 4 K-Bereich, sind. Der 4 K-Bereich ist vergrößert in Abbildung 2.8 dargestellt, die einen Schnitt durch diesen Bereich darstellt. In dieser Abbildung sind der Aufbau der Falle, die optischen Zugänge und die Ionenoptik (in grau) zu dem 4 K-Bereich, dessen Kälteschild und einige der Speichen abgebildet.

Die Zugänge der Kammer sind mit CF40 (CF, *engl.: con-flat*) Quarz-Fenstern oder mit Kalzium-Fluorid-Fenstern ( $\text{CaF}_2$ ) versehen. Die Quarz-Fenster sind zudem beidseitig mit einer Anti-Reflexions-Schicht für den Bereich von 260 nm bis 313 nm versehen, da sie für das verlustfreie Einbringen des Laserlichts im Bereich von 266 nm bis 285 nm (Experimente mit  $\text{MgH}^+$ -Ionen) und des 313 nm-Lasers (Experimente mit  $\text{Be}^+$ -Ionen, siehe Ausblick), beziehungsweise für das Abbilden der Fluoreszenz der Ionen genutzt werden. Entlang der  $z$ -Achse wurden  $\text{CaF}_2$ -Fenster verwendet um das Einkoppeln eines Infrarotlasers zu ermöglichen.

Die beiden Vakuumkammern (die Hauptkammer mit der Falle und das Sechsfach-Kreuz mit dem Kältekopf) werden jeweils mit einer 300 l/s Turbomolekularpumpe gepumpt. Diese sind gemeinsam mit einer 70 l/s Turbomolekularpumpe verbunden, die wiederum von einer Scrollpumpe gepumpt wird. Da einige Komponenten des Aufbaus, wie das Flachbandkabel und die goldbeschichteten Elektroden, keinen hohen Temperaturen ausgesetzt werden dürfen, kann die Vakuumkammer nur bis 60 °C ausgeheizt werden. Somit kann aufgrund der großen Anzahl von Oberflächen im Aufbau durch reines Pumpen nur ein Druck von  $10^{-8}$  mbar erreicht werden. Wenn der Pulsröhrenkühler jedoch in Betrieb ge-

nommen wird, und der gesamte Aufbau seine Endtemperatur erreicht hat, sinkt der Druck an den Wänden der Vakuumkammern in den  $10^{-9}$  mbar-Bereich. Der Enddruck innerhalb des 4 K-Bereichs ist allerdings aufgrund der Kryosorption viel niedriger, denn an den 4 K- und 40 K-Oberflächen wird das Restgas durch diesen Effekt sehr effizient adsorbiert. Der tatsächliche Druck kann in diesem Bereich nicht direkt gemessen werden.

Um einen Eindruck von der Teilchendichte zu erhalten, die durch den eingeschränkten Zugang zum Zentrum der Falle gelangen, soll diese kurz abgeschätzt werden. Der Druck an den Wänden der Paul-Falle wird durch eine Drucksonde zu etwa  $p = 10^{-9}$  mbar gemessen. Da durch die kryogenen Oberflächen des Aufbaus das Restgas, bis auf Wasserstoff, sehr effektiv gebunden wird, kann dieser Gesamtdruck gleich dem Partialdruck von Wasserstoff gesetzt werden. Dies ist die vorherrschende Restgaskomponente, da sie erstens eine niedrige Adsorption erfährt und zweitens für die Herstellung der Molekülonen regelmäßig neu in die Vakuumkammer injiziert wird. Die Wasserstoffmoleküle werden unter Vernachlässigung derjenigen, die erst nach mehreren Stößen auf kryogenen Oberflächen den inneren 4 K-Bereich erreichen, und daher eine sehr geringe Transmission durch die Öffnungen erfahren, als ballistische Teilchen betrachtet.

Für die Abschätzung werden die zwei horizontalen Zugänge zur Falle entlang der  $z$ -Achse, die zehn radialen Zugänge unter den Winkeln  $90^\circ$ ,  $68^\circ$  und  $45^\circ$  und die zwei Zugänge senkrecht zur Fallenebene unter  $45^\circ$  berücksichtigt. Jedem Zugang wird eine kreisförmige Öffnung mit einem Durchmesser  $d_1$  und einer Fläche  $A_1$  im 40 K-Schild und eine Öffnung mit dem Durchmesser  $d_2$  und einer Fläche  $A_2$  im 4 K-Schild zugeordnet, mit dem Abstand  $L$  zwischen den beiden Öffnungen.

Für ein Maxwell-Boltzmann verteiltes Gas ergibt sich die mittlere Geschwindigkeit der  $H_2$ -Moleküle zu

$$v_{\bar{H}_2} = \sqrt{\frac{8R_{H_2}T_{H_2}}{\pi}} = 1,77 \times 10^3 \text{ m/s}, \quad (2.2)$$

mit der spezifischen Gaskonstante  $R_{H_2} = 4124 \text{ J/mol K}$  und der Temperatur  $T_{H_2} = 297 \text{ K}$ . Unter Verwendung des idealen Gasgesetzes erhält man mit der Teilchenanzahl  $N$ , dem Volumen  $V$ , dem Druck  $p$  und der Boltzmannkonstante  $k_B$  die Teilchendichte

$$n_{H_2} = \frac{N}{V} = \frac{p}{k_B T} = 2,4 \times 10^{13} \text{ Teilchen/m}^3. \quad (2.3)$$

Der Teilchenfluss, der durch beide Öffnungen in das Fallenzentrum gelangt, ist durch das Produkt aus dem Teilchenfluss  $\Phi_1$ , der die erste Blende passieren kann, und dem Raumwinkelelement  $\Omega$  der zweiten Öffnung durch

$$\Phi = \Phi_1 \cdot \Omega = \Phi_1 \cdot \frac{A_2}{2\pi L^2} \quad (2.4)$$

Tabelle 2.2: Übersicht der Durchmesser der Öffnungen  $d_1$ ,  $d_2$ , der Abstände zwischen den Öffnungen  $L$  sowie der daraus abgeschätzten Teilchenflüsse durch die Summe der jeweiligen Zugänge.

Zugang	radial (90°, 68° und 45°)	axial	diagonal
$d_1$ (mm)	7	13	7
$d_2$ (mm)	5	10	5
$L$ (mm)	51	174 (496)	72
$\Phi$ (Teilchen/s)	$3,8 \cdot 10^9$	$6,5 \cdot 10^8$ ( $7,1 \cdot 10^7$ )	$5 \cdot 10^8$

gegeben. Dabei gilt  $\Phi_1 = j \cdot A_1 = \frac{1}{4} n_{H_2} \bar{v}_{H_2} A_1$ . Die Teilchenflüsse für die verschiedenen Zugänge sind in Tabelle 2.2 aufgelistet. Daraus folgt eine Teilchendichte von  $H_2$ -Molekülen, die ballistisch in den 4 K-Bereich einströmen von

$$n_{4K} = 1,3 \times 10^{11} \text{ Teilchen/m}^3, \quad (2.5)$$

entsprechend einem Druck bei Raumtemperatur von  $5 \times 10^{-12}$  mbar. Diese abgeschätzte Teilchendichte tritt trotz des eingeschränkten Zugangs zur Fallenmitte auf. Wie in den Messungen in Kapitel 4 zu sehen, haben diese Teilchen durchaus einen Einfluss auf in der Falle gespeicherte Ionen, der in Zukunft noch weiter reduziert werden soll. Dafür werden als nächstes alle Öffnungen des 40 K-Kälteschildes zur Fallenmitte hin, mit Ausnahme des für die Ioneninjektion unerlässlichen axialen Fallenzugangs, mit  $CaF_2$ -Fenstern versehen [104].

Eine weitere Möglichkeit zur Abschätzung ergibt sich aus der Lebensdauer der gefangenen Ionen. Diese wird in Kapitel 3.11 beschrieben und deutet auf einen noch niedrigeren Druck von ungefähr  $1 \times 10^{-13}$  mbar hin.

## 2.3 Hochfrequenzversorgung und -steuerung

Tabelle 2.3: Daten der Betriebsparameter der Hochfrequenz-Einspeisung an den Elektroden der kryogenen linearen Paul-Falle. Angegeben sind die typischen Spannungs- und Frequenzwerte sowie die Höchstwerte, für die die Elektronik und der Fallenaufbau ausgelegt sind.

Parameter	Bezeichnung	typ. Wert	Höchstwert
Radiofrequenz	$f_{RF}$	3,912 MHz	5 MHz
Spitze-Spitze-Spannung	$U_{RF}$	240 V	1000 V
Gleichspannung (an Endkappen)	$U_{EC}$	<4 V	100 V

Für die hier vorgestellten Experimente wird zur Speicherung von Ionen an die Elektroden der kryogenen Paul-Falle eine Radiofrequenz von 3,912 MHz angelegt, die eine Spitze-Spitze-Spannung von bis zu 240 V aufweist. Positive Gleichspannungen (DC, *engl.: direct*

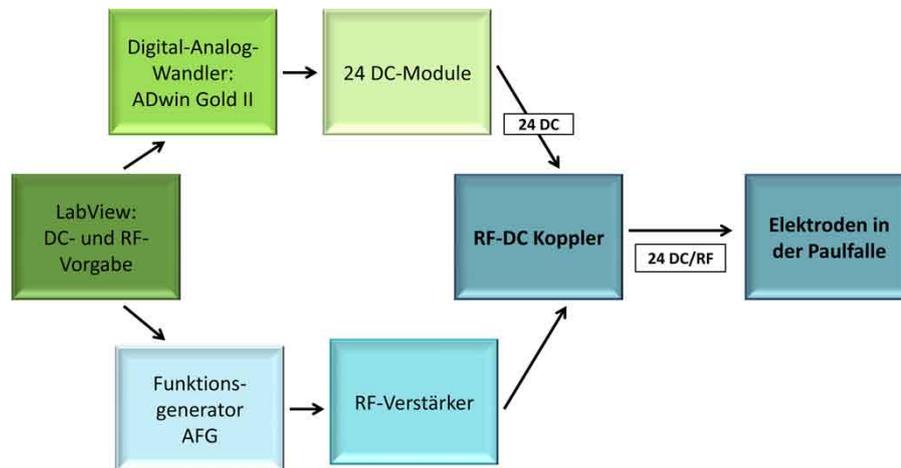


Abbildung 2.9: Schema der Versorgung der Fallenelektroden mit Radiofrequenz und Gleichspannung.

*current*) von bis zu 4 V werden an die Endkappenelektroden der Hauptfalle angelegt. Die mittleren Elektroden der Hauptfalle werden dabei geerdet. Um Ionen zwischen Hauptfalle und Vorfalle zu verschieben wird auch an die Mittelelektroden und die Elektroden der Vorfalle eine entsprechende Gleichspannungen angelegt. In Tabelle 2.3 sind zusätzlich zu den verwendeten Werten die maximal möglichen Werte der einzelnen elektronischen Parameter aufgelistet, für die die Falle und die Elektronik ausgelegt sind. In Abbildung 2.9 ist die Versorgung der Elektroden mit Radiofrequenz (RF) und Gleichspannung (DC) schematisch dargestellt. Die Werte für die Spannung der Radiofrequenz und die Gleichspannungen werden über ein LabView-Programm vorgegeben. Für den Frequenzwert  $f_{RF}$  der Radiofrequenz wird am Funktionsgenerator (AFG, engl.: *arbitrary function generator*), Model 33210A der Firma *agilent*, ein fester Wert eingestellt, welcher der Resonanzfrequenz des RF-DC-Kopplers entspricht. Der Spannungswert der Radiofrequenz lässt sich über die Amplitudenmodulation des, vom AFG vorgegebenen, Sinus variieren. Dieser Wert wird vom Radiofrequenzverstärker, Model AG1020 der Firma *AD Analog Digital Elektronik GmbH*, auf die notwendige Spitze-Spitze-Spannung verstärkt und dann in den RF-DC-Koppler eingespeist.

Die Gleichspannungswerte für die einzelnen Elektroden werden an den Digital-Analog-Wandler, Model ADwin Gold II der Firma *Jäger Computergesteuerte Messtechnik GmbH*, gesendet. Dieses Echtzeitsystem, das eine schnelle Ansteuerung der Elektroden (im  $\mu s$ -Bereich) ermöglicht, hat acht analoge Ausgänge. Davon sind sechs Ausgänge mit den 24 DC-Modulen verbunden um Steuerspannungssignale an diese zu senden. Die 24 Gleichspannung der DC-Module, Werte von  $\pm 100$  V sind möglich, werden an den RF-DC-Koppler gesendet.

Der Koppler besteht aus einem Aluminiumgehäuse, das die notwendige Elektronik beinhaltet und direkt auf einen CF-100 Flansch mit elektrischen Durchführungen befestigt

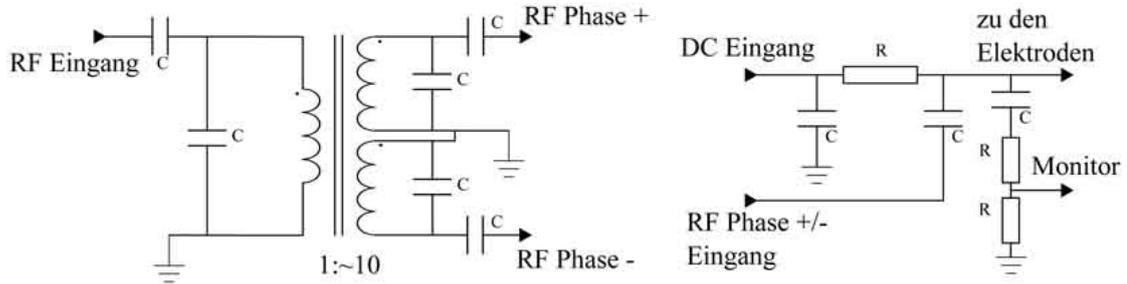


Abbildung 2.10: Vereinfachter Schaltplan des RC-DC-Kopplers. Links: Transformator zur Herstellung der zwei RF-Phasen. Rechts: DC-RF-Kopplungsschaltung. Es gibt 24 dieser Schaltungen in dem RF-DC-Koppler, die jeweils eine Elektrode mit einer Kombination aus RF-Spannung und DC-Spannung versorgen.

ist. Es ist an dem Sechsfach-Kreuz befestigt, das zur Montage des Pulsröhrenkühlers verwendet wird. Die Funktionsweise des RF-DC-Kopplers ist in Abbildung 2.10 vereinfacht dargestellt. Die eingespeiste RF-Spannung wird zuerst mittels eines Transformators, der aus einem Ferritkern besteht, in zwei Phasen aufgeteilt die um  $180^\circ$  verschoben sind. Die RF-Spannungen für die einzelnen Elektroden werden dann mit der entsprechenden DC-Spannung überlagert. Die Summe beider Spannungen wird an 24 elektrischen Durchführungen der Vakuumkammer angelegt, zudem kann der Wechselspannungsanteil über einen Monitorausgang beobachtet werden.

Von dem RC-DC-Koppler aus werden die Spannungen über zwei sogenannte Flachbandkabel, die nach unseren Spezifikationen von der Firma *andus Electronic* hergestellt wurden, im Vakuum zu den Fallenelektroden geleitet. Jedes der Kabel leitet eine Phase der RF. Die Flachbandkabel haben eine Gesamtlänge von etwa 1,5 m und sind auf einer Strecke von 0,5 m in mehreren Windungen, mit optimierten Längen zwischen den thermischen Ankerpunkten, durch die einzelnen Temperaturstufen geführt um den Wärmeeintrag auf die 4 K-Stufe zu minimieren. Die Flachbänder bestehen aus einem Träger aus etwa  $50 \mu\text{m}$  dickem Polyimid (Kapton), auf dem je 14 Kupferleiterbahnen (jede 0,4 mm breit und  $70 \mu\text{m}$  dick) aufgebracht sind.

## 2.4 Inbetriebnahme als Massenfilter

Die neue kryogene Paul-Falle wurde zuerst im Modus eines Massenfilters [1] betrieben, um ihre Betriebseigenschaften ohne ein Lasersystem zu testen, da solch ein System für die Doppler-Kühlung von Ionen erst zum Ende dieser Arbeit in Heidelberg aufgebaut wurde. Diese Tests wurden im Rahmen der Masterarbeit von T. Ballance durchgeführt [98]. Die kryogene Paul-Falle ist mit elektrostatischen Linsen entlang der  $z$ -Achse ausgestattet um den Transport von HCIs in die Falle zu ermöglichen. Dieser Umstand bietet die Möglichkeit, Ionen aus einer kleinen Ionenquelle (SITrap [105], *small ion trap*), deren Auf-

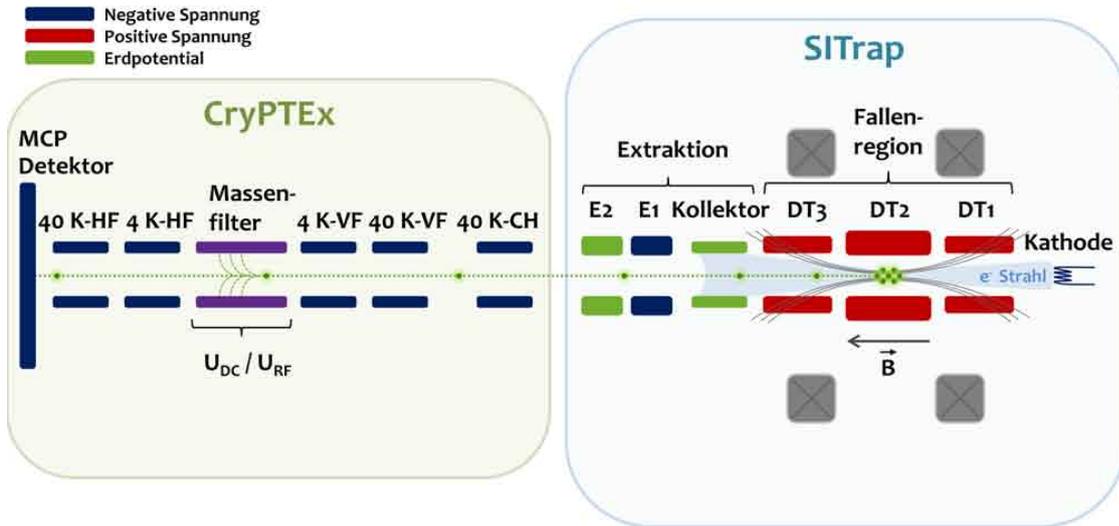


Abbildung 2.11: Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus für die ersten Tests von CryPTEx als Massenfilter. Aus der SITrap (rechter Bereich) werden einfach geladene Ionen (grün) über die Elektroden (E1 und E2) extrahiert. Durch die ionenoptischen Elemente (40K-CH, 40K-VF, 40K-HF, 4K-HF und 4K-VF) werden die Ionen in den Massenfilter und aus diesem heraus transportiert. Ionen die den Filter passieren können werden auf dem MCP Detektor nachgewiesen.

bau auf dem Prinzip einer EBIT beruht, entlang der gemeinsamen  $z$ -Achse in die Falle einzubringen. Informationen zu einer EBIT der neusten Generation finden sich zum Beispiel in [77]. Dieser Testaufbau ist schematisch in Abbildung 2.11 dargestellt. Auf diese Weise war es möglich die Funktion des Elektrodensystems und der Elektronik zu testen, Fehler zu beheben, sowie die Betriebsparameter zu kalibrieren.

In der SITrap werden Elektronen aus einer Kathode emittiert und durch eine Anordnung von Driftröhren zu einer Elektrode, dem Kollektor, geleitet. Mittels eines Helmholtzspulenpaares wird ein Magnetfeld von bis zu 14 mT erzeugt, das den Elektronenstrahl führt und leicht komprimiert. In die Fallenregion, die aus drei zylindrischen Elektroden (DT1, DT2, DT3) mit unterschiedlichen positiven Potentialen besteht, wird neutrales Gas injiziert. Aus diesem werden durch Elektronenstoßionisation einfach geladene Ionen hergestellt. Diese werden mit einer negativen Elektrode (E1) aus der SITrap extrahiert und haben kinetische Energien zwischen 40 eV und 100 eV. Mit Hilfe der Edelstahlröhrchen in den Kälteschildern (40K-HF, 4K-HF, 4K-VF, 40K-VF, 40K-CH), an denen negative Spannungen von bis zu  $-1$  kV angelegt sind, wird der Ionenstrahl zum Massenfilter und aus diesem wieder heraus geleitet.

Für die Tests wird ein *microchannel plate* (MCP) Detektor am anderen Ende der Fallenkammer montiert, mit dem die Transmission der Ionen durch den Massenfilter gemessen wird. Der MCP Detektor gibt einen Spannungspuls für jedes Ion, das seine Oberfläche trifft aus, so dass mit Hilfe eines Zählers der Ionenfluss hinter dem Massenfilter ermit-

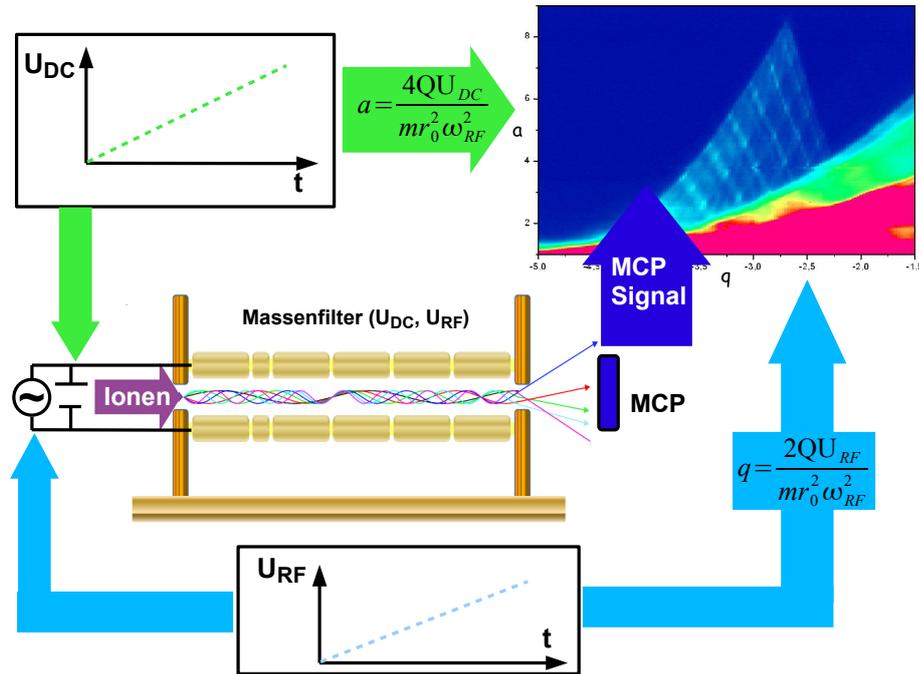


Abbildung 2.12: Schema für die Messung der Transmissinseffizienz in Abhängigkeit der Spannungen des Massenfilters:  $U_{RF}$  und  $U_{DC}$ . Die Transmission des Massenfilters bei den jeweiligen Werten für die Spannungen  $U_{RF}$  und  $U_{DC}$  wird am MCP-Detektor gemessen. Dieses Signal wird in Abhängigkeit der  $a$ - und  $q$ -Parameter aufgetragen, so dass sich der charakteristische Stabilitätsbereich (Intensitätsdiagramm, rechts oben) mit den Linien für konstante  $\beta$ -Werte ergibt.

telt werden kann. Wie im Schema für die Messung in Abbildung 2.12 dargestellt, wird die Transmission in Abhängigkeit der angelegten RF- und DC-Spannungen ( $U_{RF}$ ,  $U_{DC}$ ) an den Elektroden bestimmt. Da diese Spannungen wie in Gleichungen 1.8 angegeben in direktem Zusammenhang mit den  $a$ - und  $q$ -Parametern stehen, lässt sich die Transmissionsrate in einem Stabilitätsdiagramm ( $a$ - $q$ -Diagramm) auftragen. Die Werte für  $U_{RF}$  und  $U_{DC}$  werden automatisch erstellt und die Transmission bei jedem Wertepaar bestimmt. Die ersten Messungen wurden mit einfach geladenen Heliumionen ( $\text{He}^+$ ) durchgeführt. Das Ergebnis dieser Transmissionsmessungen für  $\text{He}^+$ -Ionen mit kinetischen Energien von 47 eV und 100 eV ist anhand der Graphen (a) und (c) in Abbildung 2.14 dargestellt. Bei den Transmissionsgraphen fällt sofort die charakteristische Struktur innerhalb des stabilen Bereichs auf, der als Dreieck aus der Theorie des Massenfilters bekannt ist (vergleiche Abbildung 1.4). Diese Strukturen beschreiben Intensitätsmaxima in der Ionen­transmission und sind auf das Pseudopotential des Massenfilters zurückzuführen. Sie treten entlang der Geraden auf, entlang derer  $\beta$  (vergleiche Formel 1.10) einen konstanten Wert hat, und sind rechts in Abbildung 1.4 innerhalb des ersten Stabilitätsbereichs des Massenfilters markiert. Dies bedeutet, dass die Ionen durch den periodisch refokussierenden Effekt des Pseudopotentials eine diskrete Anzahl von Oszillationen im Massenfilter vollführen. Solche Os-

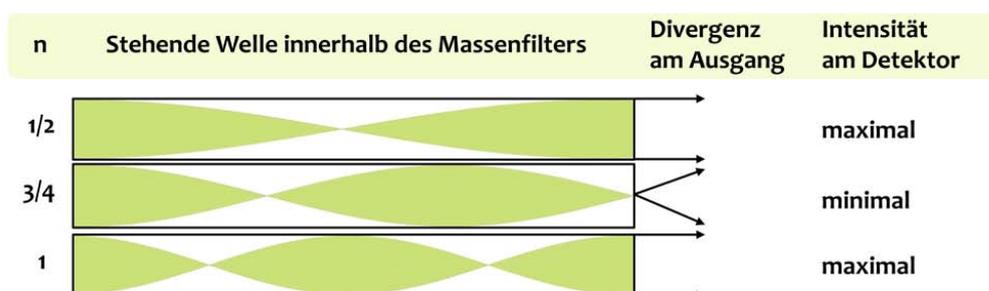


Abbildung 2.13: SIMION-Simulation des Transmissionsvorgangs eines Ionenstrahls durch den Massenfilter. Abhängig von der Anzahl  $n$  der stehenden Wellen des Ionenstrahls im Massenfilter führt dieser zu einer maximalen oder minimalen Ionenintensität auf dem MCP-Detektor.

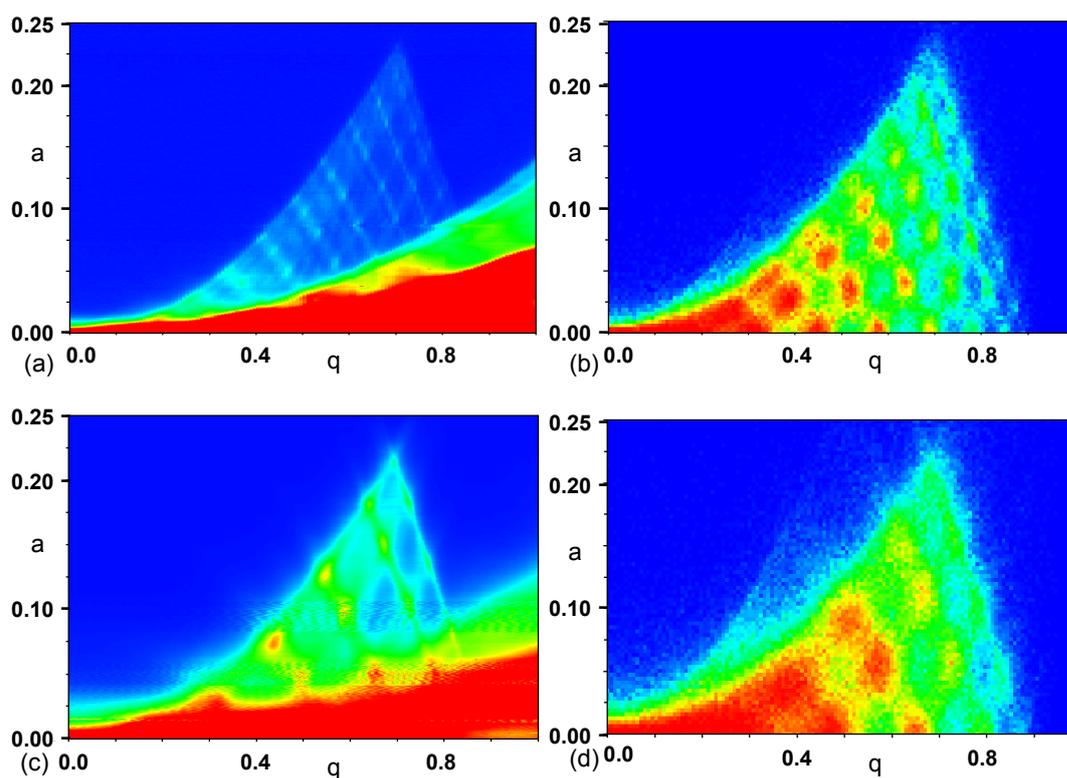


Abbildung 2.14: Transmissionseffizienz der Fallenelektroden im Massenfilterbetrieb. (a) Experiment:  $\text{He}^+$  Ionen mit 47 eV kinetischer Energie und zusätzliche Daten durch  $\text{N}^+$ ,  $\text{N}_2^+$ ,  $\text{O}^+$ ,  $\text{O}_2^+$  aus dem Restgas; (b) Simulation:  $\text{He}^+$  Ionen mit 47 eV kinetischer Energie; (c) Experiment:  $\text{He}^+$  Ionen mit 100 eV kinetischer Energie und zusätzliche Daten durch  $\text{N}^+$ ,  $\text{N}_2^+$ ,  $\text{O}^+$ ,  $\text{O}_2^+$  aus dem Restgas; (d) Simulation:  $\text{He}^+$  Ionen mit 100 eV kinetischer Energie. Entnommen aus [98].

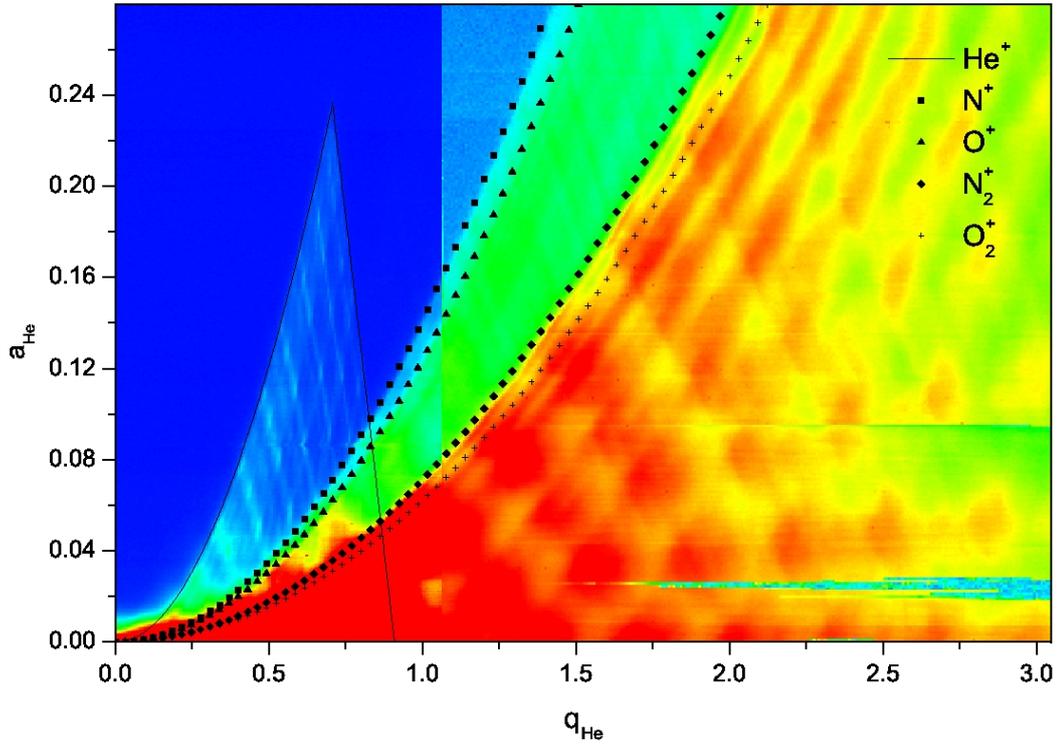


Abbildung 2.15: Mit der linearen Paul-Falle im Modus eines Massenfilters gemessenes a-q-Diagramm

zillationen sind beispielhaft in Abbildung 2.13 dargestellt. Der Ionenstrahl tritt parallel in den Massenfilter ein und abhängig von der Anzahl  $n$  der Oszillationsperioden tritt der Strahl mit einer hohen Divergenz oder parallel wieder aus dem Filter aus. Je nachdem ob die Divergenz der Ionen beim Austritt aus dem Massenfilter groß oder gering ist, können diese nicht mehr (Transmissionsminima) oder wieder (Transmissionsmaxima) durch die Ionenoptik auf den MCP Detektor refokussiert werden. Zusätzlich wurden Simulationen mit der SIMION Software [99] durchgeführt um die beobachteten Eigenschaften der Transmission nachzustellen. Diese sind den experimentellen Daten auf den Graphen (b) und (d) der Abbildung 2.14 gegenübergestellt. Die Simulationen reproduzieren die beobachteten Strukturen der Intensitätsvariation der Transmission und zeigen eine gute Übereinstimmung mit dem Experiment.

Anhand der Lage der Spitze des dreieckigen Transmissionsbereichs werden außerdem Kalibrierungswerte für DC- und RF-Spannungen ermittelt. Diese geben die Faktoren zur Umrechnung zwischen der Spannungsquellen-Spannung ( $U_{DC}^{PS}$ ,  $U_{RF}^{PS}$ ) und der tatsächlichen Spannung an, die an den Elektroden anliegt ( $U_{DC}$ ,  $U_{RF}$ ). Durch diese Kalibrierung [98] ergaben sich die Faktoren

$$U_{DC} = (1,070 \pm 0,043) U_{DC}^{PS} \quad (2.6)$$

und

$$U_{RF} = (23, 32 \pm 0, 99) U_{RF}^{PS} \quad (2.7)$$

für die Umrechnung der RF- und der DC-Spannungen. Diese sind in dem Labview-Programm integriert, das zur Ansteuerung der Elektroden als Paul-Falle benutzt wird.

Darüber hinaus lassen sich Massenspektren mit verschiedenen einfachgeladenen Ionen aufnehmen, die eine sehr gute Auflösung zeigen. Ein Beispiel für die Transmission von  $\text{He}^+$ -Ionen und Ionen aus dem Restgas der Ionenquelle ( $\text{N}^+$ ,  $\text{N}_2^+$ ,  $\text{O}^+$ ,  $\text{O}_2^+$ ) sind in Abbildung 2.15 dargestellt. Hier wurde der zur Verfügung stehende RF-Spannungsbereich ( $\pm 500 \text{ V}$ ) vollständig ausgenutzt um einen möglichst großen Teil der Stabilitätsbereiche der verschiedenen Ionensorten auszumessen. Der Stabilitätsbereich der  $\text{He}^+$ -Ionen ist vollständig und mit den Intensitätsmaxima für konstante Werte für  $\beta$  abgebildet. Hin zu höheren  $q$ -Werten sind die beiden linken Flanken der Stabilitätsbereiche der einfach geladenen Ionen  $\text{N}^+$  und  $\text{O}^+$  zu sehen. Da der Massenunterschied dieser Ionen sehr gering ist überdecken sich deren Stabilitätsbereiche. Am rechten Rand des Graphen sind die linken Flanken der einfach geladenen Molekülionen  $\text{N}_2^+$  und  $\text{O}_2^+$  zu sehen, die sich aufgrund ihres geringen Massenunterschieds ebenfalls überdecken.

Zusammenfassend ließ sich die Paul-Falle durch den Betrieb im Massenfiltermodus zuverlässig testen und konnte für ihren Betrieb als Falle kalibriert werden. Die Ergebnisse des Massenfilters waren dabei mehr als zufriedenstellend, da eine hervorragende Auflösung der Massen und der Unterstruktur des Stabilitätsbereichs vorgefunden wurde.

## 2.5 Externe Quellen für Atome und Moleküle

Für die in Kapitel 3 bis 5 beschriebenen Experimente wird atomares Magnesium ( $\text{Mg}$ ) sowie molekularer Wasserstoff ( $\text{H}_2$ ) in die Falle injiziert. Dies geschieht mit Hilfe von zusätzlichen Vakuumkammern, den sogenannten Quellen, die an zwei gegenüberliegenden  $45^\circ$ -Zugängen zur Hauptkammer in der horizontalen Ebene montiert sind. Um die Bildung von Schichten von Gaskondensaten auf den kalten Elektrodenoberflächen zu verhindern, sind in den entsprechenden Aluminiumröhren der 4 K-Stufe je ein Zylinder (rosa in Abbildung 2.16) montiert, der die Öffnung der Röhre direkt vor der Falle auf einen Durchmesser von 1 mm verringert. Dies führt zu einer guten Kollimation der Teilchenstrahlen, die in die Falle injiziert werden und verhindert gleichzeitig die Ablagerung dieser Teilchen auf den Fallenelektroden.

Die Quelle für Magnesium ist eine *Alvasource*, Model AS-3-Mg-50V, der Firma *alvatec*. Diese besteht aus einem Edelstahlzylinder mit einem Durchmesser von 3 mm und einer Länge von 1,5 cm, der mit Magnesium gefüllt ist. Durch den Zylinder fließen Ströme von 6 A, die die Quelle auf Temperaturen von etwa  $450^\circ \text{C}$  heizen. Dabei verdampfen Magne-

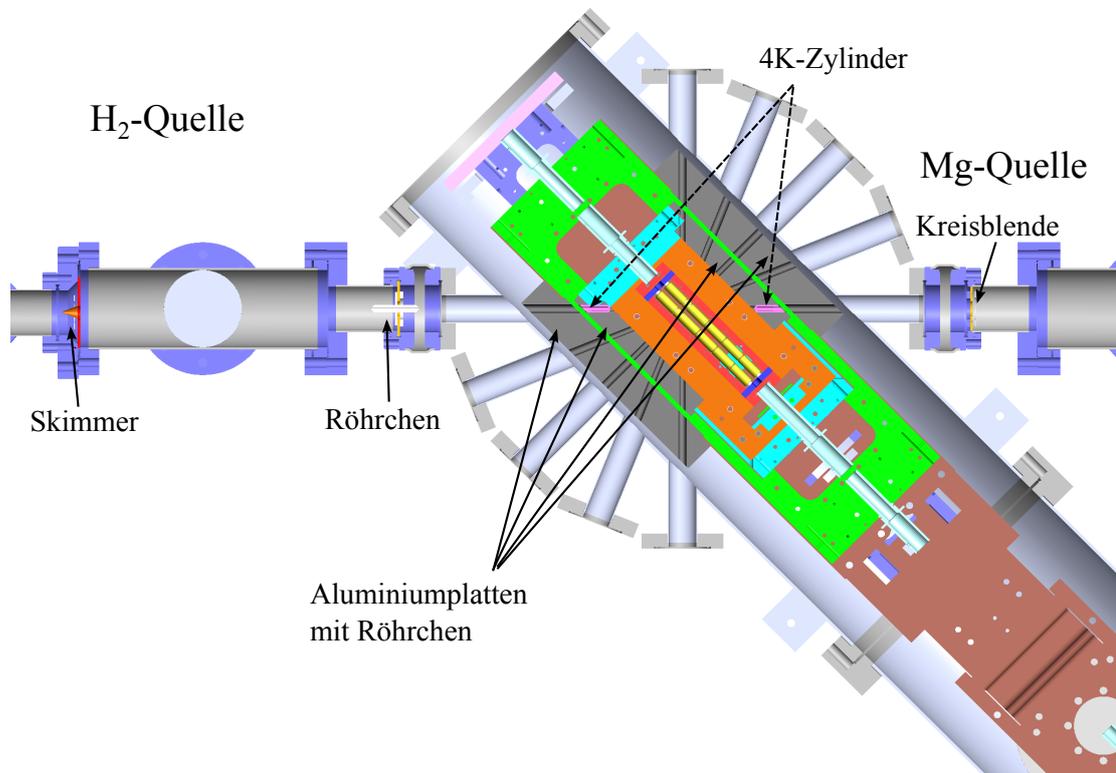


Abbildung 2.16: Schnitte durch die horizontale Ebene des Fallenbereichs. Zu erkennen sind das Röhrchen, die Blende und der Skimmer der beiden Quellen. Zudem zeigt der Schnitt die Aluminiumröhren im 40 K- und im 4 K-Schild, sowie die zwei Zylinder (rosa) im 4 K-Bereich der Röhren (mit einem Innendurchmesser von 1 mm), die für die Kollimation der Quellenemissionen verwendet werden.

siumatome aus dem Zylinder in Richtung der Falle. Zwischen Quelle und Hauptkammer befindet sich eine Kreisblende mit 1 mm Durchmesser, so dass zusammen mit dem Zylinder im 4 K-Schild ein Strahl aus Magnesiumatomen entsteht, der durch das Zentrum der Hauptfalle verläuft.

Die Quelle für die Wasserstoffmoleküle besteht aus zwei Kammern, welche von der Hauptkammer durch ein Röhrchen mit einem Durchmesser von 2 mm getrennt sind. Zwischen den Kammern befindet sich ein Skimmer, mit einem Öffnungsdurchmesser von 0,41 mm. Eine Gasflasche, die an der ersten Kammer angebracht ist, liefert die Wasserstoffmoleküle. Durch diese Konstruktion wird ein Strahl aus Wasserstoffmolekülen erzeugt, der ebenfalls das Zentrum der Hauptfalle kreuzt.

## 2.6 Optischer Aufbau

Der optische Aufbau der kryogenen Paul-Falle, in Abbildung 2.17 schematisch dargestellt, besteht aus einem Objektiv, das sich im Vakuum befindet, einem Bildverstärker und einer

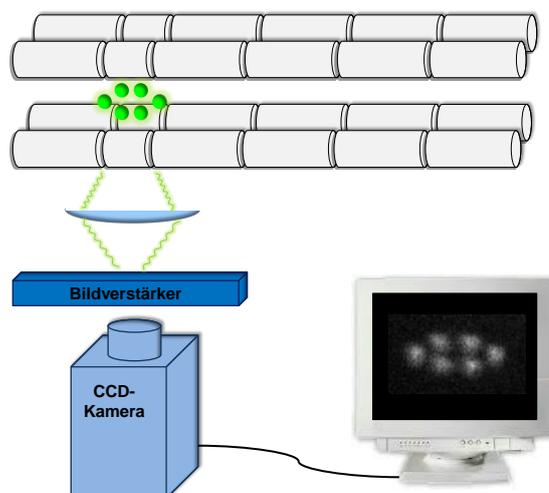


Abbildung 2.17: Schema des optischen Aufbaus (nicht maßstabsgetreu) zur Abbildung von Ionen (in grün dargestellt), die sich im Zentrum der Hauptfalle (Fallenelektroden in grau) befinden. Die Fluoreszenz der Ionen wird durch eine Linse (in hellblau) auf einen Bildverstärker fokussiert, der mittels einer CCD-Kamera abgebildet wird.

CCD-Kamera (CCD, *engl.: charged coupled device*). Unterhalb des Fallenaufbaus befindet sich direkt auf der 4K-Stufe eine Haltevorrichtung für ein Objektiv, das in Abbildung 2.6 in rot dargestellt ist. Mit diesem kann die Fluoreszenz der in der Falle gefangenen Ionen gesammelt und aus der Vakuumkammer heraus auf dem Bildverstärker abgebildet werden. Dieser ist wiederum mit einer CCD-Kamera verbunden. Edelstahl- und Aluminiumröhren auf den Öffnungen in den zwei Temperaturstufen reduzieren den Eintrag von Wärmestrahlung. In die Haltevorrichtung kann entweder ein Spiegelobjektiv, das den Vorteil der nicht vorhandenen chromatischen Aberration hat, oder eine Linse eingebracht werden. Für erste Tests zur Herstellung von Ionenkristallen wurde das Schwarzschild-Spiegelobjektiv TECHSPEC<sup>®</sup> ReflX der Firma *Edmund Optics* verwendet. Dieses hat eine Brennweite von 13 mm, eine numerische Apertur von 0,28, einen Arbeitsabstand von 23 mm und ermöglicht eine bis zu 15-fache Vergrößerung. Für die folgenden Messungen wurde eine Linse aus Quarzglas mit einer Brennweite von  $f = 40$  mm und eine Blende mit einem Durchmesser von 6 mm anstatt des Objektivs verwendet.

Die Fluoreszenz, die entsteht wenn die Ionen mit dem Kühllaser wechselwirken wird durch das Spiegelobjektiv oder die Linse auf den Bildverstärker fokussiert, so dass dort ein reelles Bild des Ionenkristalls entsteht. Der Bildverstärker ist empfindlich im ultravioletten (UV) Bereich und befindet sich zusammen mit einem Linsensystem (dem Objektiv der Kamera) und der CCD-Kamera etwa 20 cm außerhalb der Vakuumkammer. Als Kamera wurde hier eine Sensicam CCD Kamera der Firma *PCO imaging* mit dem Objektiv NIKKOR 60 mm : 2,8 D verwendet. Der CCD-chip der Kamera hat eine Größe von 1376 pixel



Abbildung 2.18: CCD-Kameraaufnahme der Glasfaser im Fallenzentrum. An solch einer Aufnahme wird die Vergrößerung des optischen Systems bestimmt. Vibrationen der Glasfaserhalterung begrenzen hier die Auflösung.

$\times 1040$  pixel (horizontal  $\times$  vertikal).

Um die Vergrößerung des optischen Systems zu erhalten wird eine Aufnahme der in der Mitte der Falle positionierten Glasfaser, die einen Durchmesser von  $100 \mu\text{m}$  hat, verwendet (siehe Abbildung 2.18). Ihre Abbildung auf dem CCD-Chip hat einen Durchmesser von etwa  $(77 \pm 2)$  pixel, wobei die Pixel je eine Fläche von  $6,45 \mu\text{m} \times 6,45 \mu\text{m}$  haben. Zusammen mit der Verkleinerung um einen Faktor zwei zwischen Bildverstärker und CCD-Kamera führt dies zu einem Vergrößerungsfaktor des gesamten optischen Systems der kryogenen Paul-Falle von  $M = 9,09 \pm 0,24$ .

## 2.7 Lasersystem

Da am MPIK in Heidelberg bis zum Dezember 2011 noch kein Lasersystem für die kryogene Paul-Falle zur Verfügung stand, wurde auf das System der *Ion Trap Group* von M. Drewsen (AU) zurückgegriffen. Dieses System wird verwendet um Experimente mit  $\text{Mg}^+$ -Ionen und  $\text{MgH}^+$ -Molekülonen durchzuführen und wird in diesem Kapitel beschrieben. Um die  $\text{Mg}^+$ -Ionen in der Paul-Falle zu fangen, zu kühlen sowie um  $\text{MgH}^+$ -Ionen herzustellen und deren Rotationszustände zu untersuchen sind nicht weniger als fünf verschiedene Wellenlängen und sechs Laserstrahlen notwendig, die in das Zentrum der Paul-Falle eingebracht und dort überlagert werden müssen.

Insgesamt vier optische Breadboards wurden auf einer Ebene rund um die Vakuumkammern befestigt. Auf diesen wurden optische Elemente arrangiert, um die Laserstrahlen in die Vakuumkammer zu führen. Eine Übersicht über die Verteilung der Laserstrahlen auf die verschiedenen optischen Zugänge der Paul-Falle ist in Abbildung 2.19 schematisch dargestellt.

Um die  $\text{Mg}^+$ -Ionen in der Falle zu erzeugen wird der sogenannten Photoionisationslaser (in

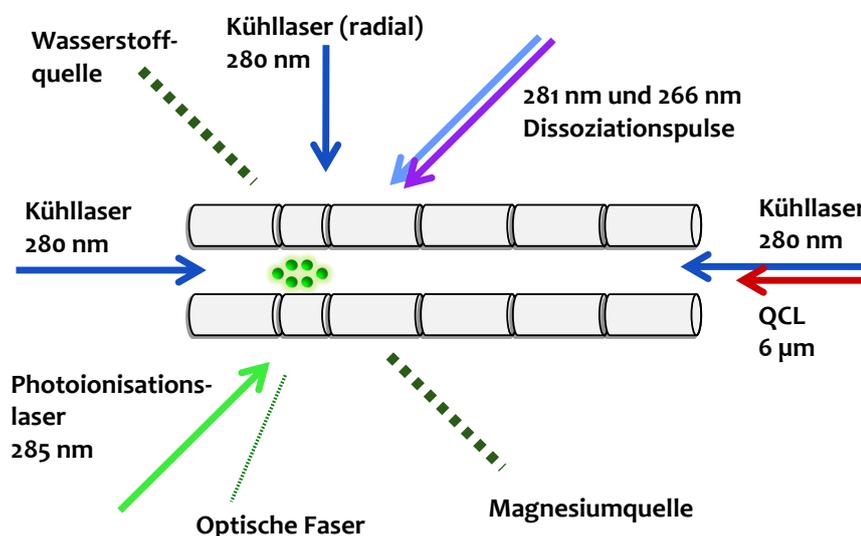


Abbildung 2.19: Schematische Übersicht der im Experiment verwendeten Anordnung der Laserstrahlen, der Glasfaser und der Quellen auf die zehn optischen Ports in der horizontalen Ebene.

grün gekennzeichnet), mit einer Wellenlänge von  $\lambda = 285 \text{ nm}$  genutzt. Dieser Laser (cw-Laser, engl.: *continuous-wave*) ist ein Monomode-, Dauerstrich-Farbstofflaser (Coherent 699), der durch einen Argon-Ionen-Laser (Spectra-Physics) gepumpt wird. Als Farbstoff wird Rhodamin 6G benutzt, so dass eine Wellenlänge von  $570 \text{ nm}$  erzeugt wird. Durch Frequenzverdopplung mittels eines Beta-Bariumborat-Kristalls (BBO), der in einer sogenannten *bow-tie cavity* montiert ist, wird bei einer Leistung von  $10\text{-}30 \text{ mW}$  eine Wellenlänge von  $285 \text{ nm}$  erzeugt, die einer Photonenenergie von  $E = 4,43 \text{ eV}$  entspricht.

Die  $\text{Mg}^+$ -Ionen werden durch zwei Strahlen des linear polarisierten Kühllasers (dargestellt in dunkelblau) mit der Wellenlänge  $\lambda = 280 \text{ nm}$ , die entlang der  $z$ -Achse verlaufen gekühlt. Die Wellenlänge des Kühllasers wird durch Frequenzvervierfachung des Lichts eines Faserlasers (NKT-Photonics/Koheras) erzeugt. Dieser erzeugt bis zu  $2,4 \text{ W}$  Leistung bei einer Wellenlänge von  $1118 \text{ nm}$ . Durch Frequenzverdopplung in einer *bow-tie cavity* mittels eines Lithiumtriborat-Kristalls (LBO) wird erst die zweite Harmonische bei einer Wellenlänge von  $559 \text{ nm}$  generiert. Eine erneute Frequenzverdopplung findet in einer weiteren *bow-tie cavity* mittels eines BBO Kristalls statt. Laserleistungen von bis zu  $100 \text{ mW}$  bei  $280 \text{ nm}$  können bei Linienbreiten unter  $1 \text{ MHz}$  erreicht werden. Dieser Laserstrahl wird in zwei Strahlen aufgeteilt, die gegenläufig und linear polarisiert entlang der  $z$ -Achse in die Falle eingebracht werden.

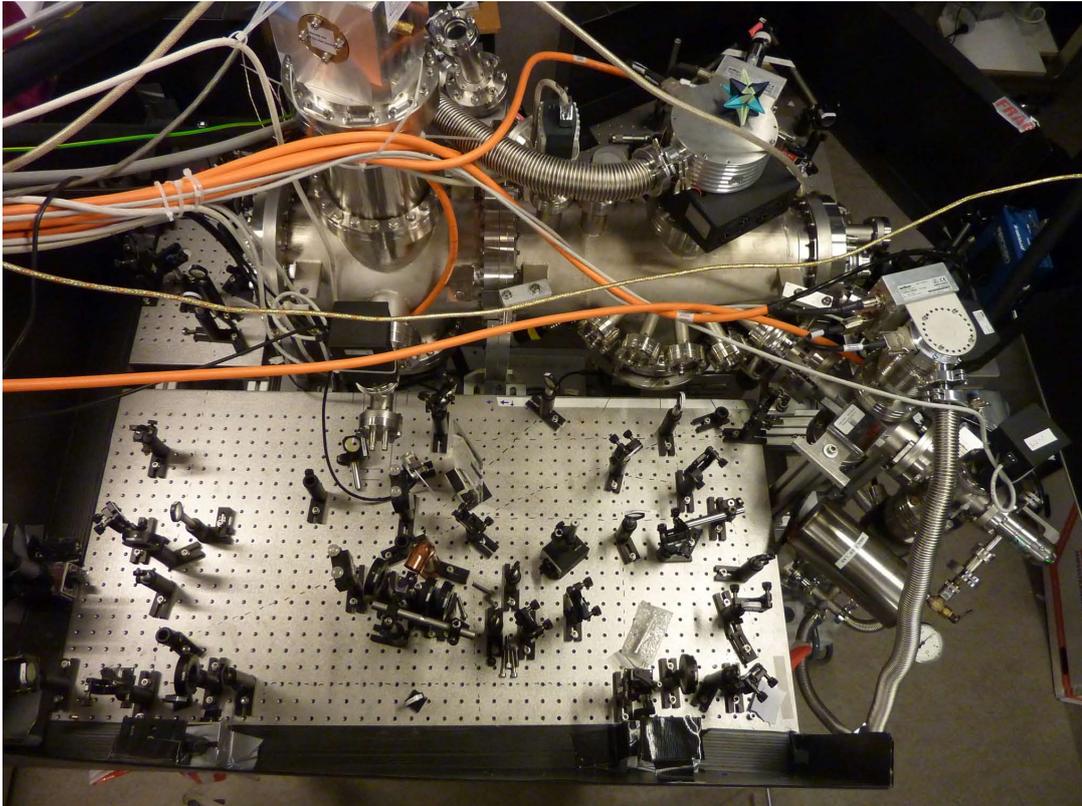


Abbildung 2.20: Foto des experimentellen Aufbaus, bestehend aus CryPTEx und den optischen Elementen für Experimente mit  $\text{Mg}^+$  und  $\text{MgH}^+$  in Aarhus.

Da die Ionen durch elektrische Felder in einem harmonischen Potential gefangen sind, kann eine Umverteilung der kinetischen Energie durch Stöße der Ionen untereinander stattfinden. Somit ist für größere Ionenmengen ein Laserstrahl für die Doppler-Kühlung ausreichend, aus Symmetriegründen werden hier jedoch zwei Strahlen in entgegengesetzter Richtung verwendet. Dies ist vor allem für Experimente mit Kristallen, die aus zwei Ionensorten bestehen von Vorteil. Denn dadurch wird verhindert, dass die lasergekühlten Ionen durch den Strahlungsdruck auf eine Seite des Kristalls verlagert werden. Die Intensität beider Strahlen wird mittels eines Strahlteilers und eines  $\lambda/2$ -Plättchens ausballanciert. Somit stehen Laserleistungen von 1-10 mW pro Strahl, welche auf einen Durchmesser von etwa 0,5 mm fokussiert werden, am Fallenort zur Verfügung. Für kleinere Ionenmengen kann zusätzlich ein weiterer Strahl des Kühllasers unter  $90^\circ$  eingebracht werden. Die  $\text{Mg}^+$ -Ionen können somit auf einige 10 mK heruntergekühlt werden.

Die Kühlung der Rotationsniveaus von  $\text{MgH}^+$ -Ionen wird mit dem Quantenkaskadenlaser (in rot) (QCL, engl.: *quantum cascade laser*) beschleunigt, welcher unter  $68^\circ$  (später entlang der  $z$ -Achse) eingekoppelt wird. Ein QCL ist ein besonderer Typ von Halbleitern, der als einziger darunter den Wellenlängenbereich zwischen  $3,5 \mu\text{m}$  und  $141 \mu\text{m}$

Tabelle 2.4: Übersicht der verwendeten Laser.

Bezeichnung	$\lambda$ (nm)	Energie (eV)	cw/gepulst	Leistung
280 nm Doppler-Kühlungslaser	279,64	4,43	cw	1mW
285 nm Photoionisationslaser	285,29	4,35	cw	20mW
6,2 $\mu\text{m}$ QCL	6,2 $\mu\text{m}$	0,2	cw	30mW
281 nm Dissoziationslaser	281	4,41	gepulst	2-8,5 $\mu\text{J}$
266 nm Dissoziationslaser	266	4,66	gepulst	1-1,2 mJ

erreicht [106]. Der hier verwendete QCL wird bei einer Wellenlänge von 6,2  $\mu\text{m}$  betrieben. Die Frequenz des Lasers wird durch Absorptionsspektroskopie unter Verwendung eines Quecksilber-Kadmium-Tellurid-Detektors zu einer Ammoniak-Dampf-Zelle referenziert [96]. Die Leistung des Lasers beträgt etwa 30 mW und wird im Fallenzentrum auf eine Fläche von 1 mm<sup>2</sup> fokussiert.

Um die Besetzung der Rotationsniveaus der MgH<sup>+</sup>-Ionen im Vibrationsgrundzustand mittels Dissoziation zu untersuchen, wird ein Paar von zwei verschiedenen Laserpulsen benutzt. Die Laser dieses sogenannten Dissoziationspulses haben eine Wellenlänge von  $\lambda = 266$  nm (in violett) und  $\lambda = 281$  nm (in hellblau) und werden mit einer Verzögerung von 0 ns bis 3,46 ns zueinander unter 45° in die Falle eingekoppelt. Die Pulsdauer beider Laser beträgt in etwa 9 ns. Die Strahlen des QCLs und der Dissoziationslaser können mittels mechanischer Blenden blockiert werden um die verschiedenen Einflüsse, die diese Laser auf die gespeicherten Molekülonen haben zeitlich zu steuern. Die wichtigsten Parameter der verwendeten Laserstrahlen sind in Tabelle 2.4 aufgelistet.

Einer der optischen Zugänge (68° zur  $z$ -Achse) wird genutzt um ein etwa 2 cm langes Stück einer optischen Faser, deren Durchmesser 100  $\mu\text{m}$  beträgt, bei Bedarf in das Fallenzentrum einzubringen. Die Faser ist zwischen eine Edelstahlplatte geklemmt und mittels eines Edelstahlstabes auf einem  $x$ - $y$ - $z$ -Manipulator befestigt, der an dem optischen Zugang angebracht ist. Somit ist es möglich, den Mittelpunkt der Falle, also den Ort an dem ein Ionenkristall erzeugt und gehalten werden soll, mit der Spitze der Faser zu markieren und die Laserstrahlen auf diesen Punkt auszurichten. An dem Ionenkristall kann die Position der Laserstrahlen nachjustiert werden und die Position der Glasfaser an diese neue Position der Laserstrahlen angepasst werden, so dass sie schnell wiedergefunden werden kann. Das Abbildungssystem wird zudem so eingestellt, dass es auf die Spitze der Glasfaser fokussiert. Wenn die Strahlen ausgerichtet sind kann die Faser aus dem 4 K-Bereich bis in den 40 K-Bereich zurückgezogen werden.

## Molekülionen in einer 4 K-Umgebung

Dieses Kapitel beschreibt die ersten Experimente mit  $\text{Mg}^+$  und  $\text{MgH}^+$ -Ionen, die in der kryogenen Paul-Falle durchgeführt worden sind. Das verwendete Verfahren orientiert sich an dem, welches von der Gruppe von M. Drewsen erfolgreich zur direkten Rotationskühlung von  $\text{MgH}^+$ -Ionen kürzlich verwendet wurde [21, 107].

Die Produktion und das Kühlen der  $\text{MgH}^+$ -Molekülionen, deren Besetzung der Rotationszustände untersucht werden soll, beginnt mit der Herstellung von  $^{24}\text{Mg}^+$  durch Photoionisation, und dem Fangen dieser Ionen in der Paul-Falle. Die Translationsfreiheitsgrade der Ionen werden dann dopplergekühlt. Durch das Hinzufügen von Wasserstoff wird über eine photochemische Reaktion  $\text{MgH}^+$  hergestellt, dessen Translation sympathetisch gekühlt wird. Bei dem Kühlen von  $\text{MgH}^+$  muss berücksichtigt werden, dass nicht nur die Translationsfreiheitsgrade sondern auch die Besetzung der Schwingungs- und der Rotationsniveaus der Moleküle eine Rolle spielen. Da diese Ionen aber bereits im Schwingungsgrundzustand vorliegen, werden nur die Rotationsfreiheitsgrade gekühlt und deren Besetzung durch eine destruktive Methode untersucht. Die Photonen, welche die  $\text{Mg}^+$ -Ionen bei der Dopplerkühlung emittieren, werden mittels des optischen Aufbaus detektiert. Da die Dopplerkühlung während des gesamten Experiments angewendet wird, können die  $\text{Mg}^+$ -Ionen zu jeder Zeit abgebildet werden. Die Beobachtung der gespeicherten Ionen erfolgt somit in Echtzeit.

### 3.1 Produktion von $^{24}\text{Mg}^+$ -Ionen

Die benötigten  $^{24}\text{Mg}^+$ -Ionen werden durch einen zustandsselektiven, zweistufigen Photoionisationsprozess aus Magnesiumatomen hergestellt, deren Ionisationsenergie 7,6462 eV beträgt [108]. Dieser Prozess ist in Abbildung 3.2 skizziert. Die Atome stammen aus einem thermischen Strahl, der wie in Kapitel 2.5 beschrieben durch Evaporation aus einem Ofen

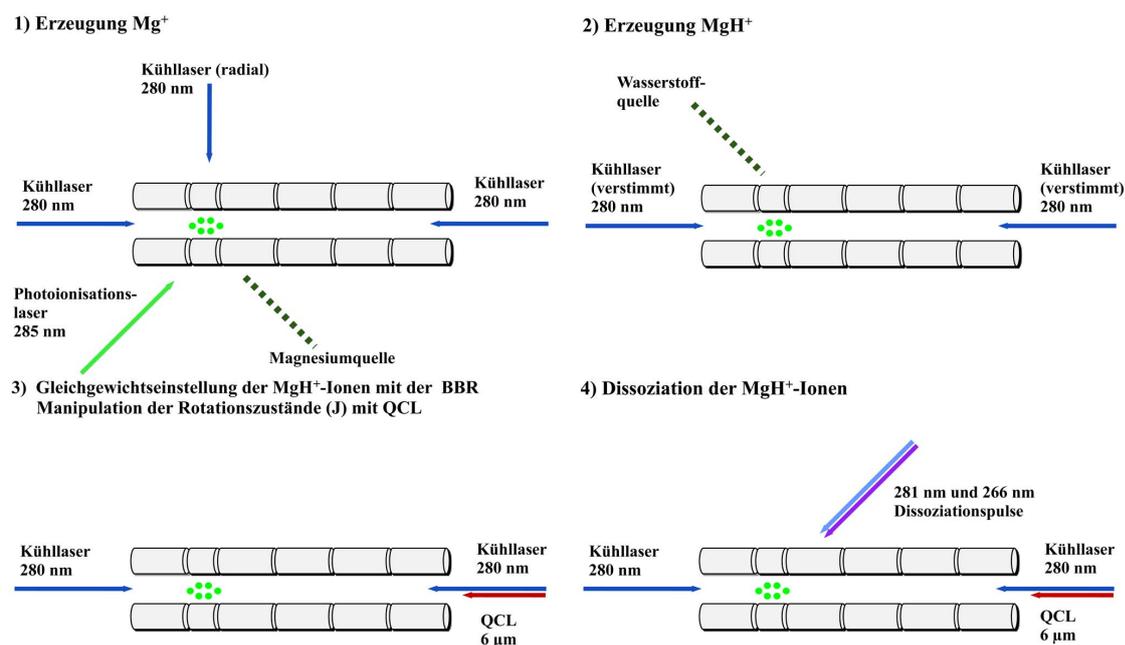


Abbildung 3.1: Schematischer Ablauf (1) der Herstellung eines  $Mg^+$ -Ionenkristalls, (2) der Herstellung von  $MgH^+$ -Ionen, (3) der Manipulation der Besetzungszahlen der Rotationszustände des  $MgH^+$ -Ions und der (4) Messung dieser Besetzungen.

erzeugt wird. Wenn die Atome das Zentrum der Falle erreicht haben können sie dort als erstes ein Photon des Photoionisationslasers (285 nm) absorbieren. Dieses Photon regt mit einer Energie von 4,435 eV die Magnesiumatome vom  $2p^63s^2\ ^1S_0$ -Niveau in das  $3s3p\ ^1P_1$ -Niveau an. Die genaue Wellenlänge des Übergangs ist 285,2127 nm [109]. Damit die Dopplerverbreiterung des atomaren Übergangs unterdrückt wird, treffen der Magnesiumstrahl und der schmalbandige Photoionisationslaserstrahl im Fallenzentrum unter einem Winkel von  $90^\circ$  aufeinander. Weil der Isotopenshift dieses ersten Übergangs 0,73 GHz für  $^{25}Mg$  und 1,41 GHz für  $^{26}Mg$  [110] beträgt ist es möglich, dass das Magnesium isotopenselektiv ionisiert wird. Dadurch wird die Photoionisation von  $^{25}Mg$  und  $^{26}Mg$ , mit jeweils einer Isotopenhäufigkeit von 10 % und 11 %, unterdrückt.

Von dem  $3s3p\ ^1P_1$ -Niveau kann das angeregte Elektron des Magnesiumatoms mit einem zweiten Photon aus dem 285 nm-Laser oder mit einem Photon des Kühllasers ins Kontinuum gebracht werden. Letzterer Laserstrahl hat eine Wellenlänge von 280 nm und eine Energie von 4,428 eV. Die Falle wird somit mit  $Mg^+$ -Ionen gefüllt, bis ein ausreichend großer Kristall mit typischerweise mehreren 1000 Ionen entstanden ist. Das Wachstum des Ensembles wird gestoppt, indem der Photoionisationslaser blockiert und der Heizstrom der Magnesiumquelle abgeschaltet wird.

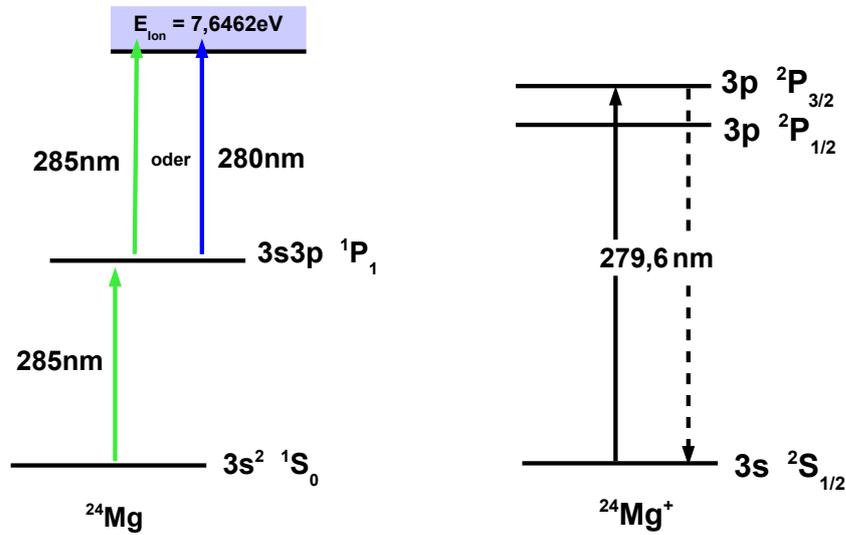


Abbildung 3.2: Links: Energieniveauschema der Photoionisation von  $^{24}\text{Mg}$ . Die Ionisationsenergie beträgt  $E_{\text{Ion}} = 7,6462\text{eV}$ . Rechts: Energieniveauschema für die Doppler-Kühlung von  $^{24}\text{Mg}^+$ . Der dargestellte Übergang mit der Wellenlänge 279,6 nm wird mit Photonen der Wellenlänge 280 nm angesprochen.

### 3.2 Herstellung und Abbildung eines $^{24}\text{Mg}^+$ Ionenkristalls

Unmittelbar nach ihrer Erzeugung haben die  $\text{Mg}^+$ -Ionen eine kinetische Energie im meV-Bereich, so dass sie direkt in dem Potential der Paul-Falle gefangen werden können. Dafür bleibt die Gleichspannungen an den Endkappenelektroden und die Radiofrequenz an allen Fallenelektroden während des gesamten Experimentablaufs eingeschaltet. Als positive Endkappenspannung  $U_{EC}$  werden 4 V angelegt; die Spitze-Spitze-Spannung der Radiofrequenz  $U_{RF}$  beträgt 240 V. Dies entspricht den Werten  $a = 0,01$  und  $q = 0,26$ , die im ersten Bereich des Stabilitätsdiagramms liegen (vergleiche Abbildung 1.4).

Die in den Translationsfreiheitsgraden der  $\text{Mg}^+$ -Ionen enthaltene thermische Energie wird nun durch Doppler-Kühlung reduziert. In Abbildung 3.2 ist dieser Prozess anhand des Termschemas von  $^{24}\text{Mg}^+$  skizziert. Die Elektronenkonfiguration des  $\text{Mg}^+$ -Ions im Grundzustand entspricht dem von Neon mit einem zusätzlichen  $3s$ -Elektron außerhalb der ersten zwei geschlossenen Schalen, und wird mit  $3s \ ^2S_{1/2}$  bezeichnet. Das  $3s$  Elektron kann in eine der  $p$  Unterschalen angeregt werden. Für die hier beschriebenen Experimente wird der geschlossene Übergang  $^2S_{1/2} \leftrightarrow ^2P_{3/2}$  genutzt. Dieser hat eine Wellenlänge von 279,6 nm und wird durch den entsprechenden Kühllaser angesprochen. Angeregte Atome können bei diesem Prozess nur zurück in den Grundzustand  $^2S_{1/2}$  zerfallen. Deshalb entspricht dieser Übergang einem geschlossenen Zwei-Niveau-System. Dies ist eine notwendige Voraussetzung um effektives Laserkühlen zu betreiben, denn nur auf diese Weise kann eine

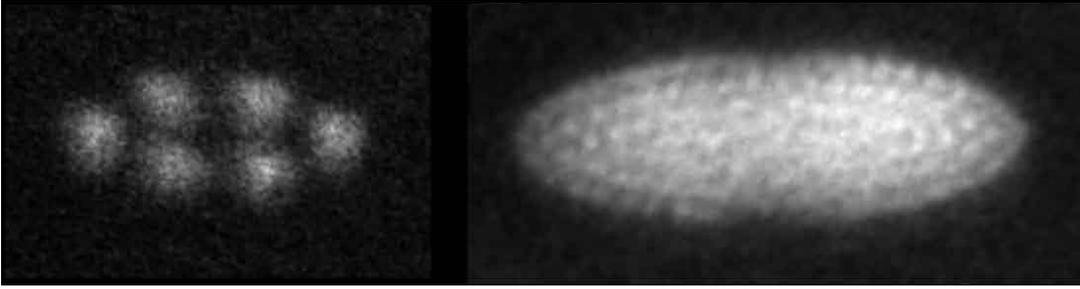


Abbildung 3.3: Links: Aufnahme eines Ionenkristall durch das Spiegelobjektiv. Es haben sich sechs dopplergekühlte  $\text{Mg}^+$ -Ionen in einer symmetrischen Form angeordnet. Rechts: etwa 100  $\text{Mg}^+$ -Ionen, die sich in einem größeren Kristall angeordnet haben. Diese Aufnahme wurde mit einer Quarzlinse (Vergrößerung etwa  $\times 9$ ) erzeugt.

hohe Rate von Absorptions-Zerfall-Zyklen eingestellt werden. Somit werden die Ionen auf einige mK heruntergekühlt [76]. Bei diesen niedrigen Temperaturen bleiben die Ionen an dem niedrigsten Punkt des harmonischen Potentials in der Paul-Falle. Ihre Temperatur kann aber weiter verringert werden, so dass ein Wert  $\geq 172$  [43] für den Kopplungsparameter  $\Gamma_P$  erreicht wird. Auf diese Weise kommt es zur Bildung eines Ionenkristalls, indem sich die  $\text{Mg}^+$ -Ionen anordnen, wie in Abbildung 3.3 zu sehen.

Typische Abstände zwischen den Ionen in solch einem Kristall sind einige  $\mu\text{m}$ . Im Potential der linearen Paul-Falle bilden sich Ensembles deren Form der eines Rotationsellipsoids entspricht. Bei den hier verwendeten Spannungen und der eingefangenen Zahl von  $\text{Mg}^+$ -Ionen bildet sich ein gestrecktes Rotationsellipsoid, dessen große Halbachse parallel zur  $z$ -Achse der Falle liegt. Eine typische Zahl von Ionen für die in den Messungen verwendeten Kristallen ist etwa 18 000 Ionen. Aus Gleichung 1.49 ist der Zusammenhang zwischen der Zahl der Ionen und der Anzahl der Schalen in einem Kristall bekannt. Somit lässt sich abschätzen, dass die Kristalle aus etwa 17 Schalen bestehen. Das abbildende System ist so eingestellt, dass es auf die mittlere Ebene des Ionenkristalls fokussiert. Somit wird ein Schnitt durch diese Ebene des Rotationsellipsoids von der CCD Kamera aufgenommen. Im besten Fall wird eine einzige Lage von Ionen abgebildet, die es erlaubt die Schalen oder sogar die Ionen in dieser Schicht zu zählen.

### 3.3 Erzeugung und Einfangen von $\text{MgH}^+$ -Ionen

In das Zentrum der Paul-Falle wird nun molekularer Wasserstoff ( $\text{H}_2$ ) eingebracht, um  $\text{MgH}^+$ -Ionen durch eine photochemische Reaktion herzustellen. Dazu wird ein Strahl aus gasförmigen  $\text{H}_2$  in die Falle eingebracht. In dieser befindet sich bereits ein Ensemble aus  $\text{Mg}^+$ -Ionen. Es findet bei den sich ergebenden Stößen die folgende Reaktion statt:



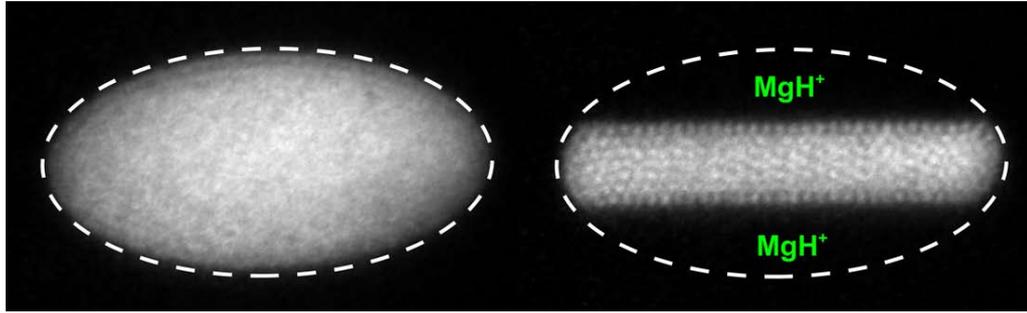


Abbildung 3.4: Links: CCD-Kamerabild eines  $\text{Mg}^+$ -Ionenkristalls. Rechts: Bild eines Zweikomponentenkristalls, der aus  $\text{Mg}^+$ - und  $\text{MgH}^+$ -Ionen besteht. Die weiße Ellipse verdeutlicht die Gesamtausdehnung der Ionenkristalle, die bei der Produktion von  $\text{MgH}^+$  konstant bleibt.

Diese findet mit einer besonders hohen Rate statt, wenn das  $\text{Mg}^+$ -Ion in dem angeregten Zustand  $3p^2P_{3/2}$  vorliegt. Praktischerweise ist dieser Zustand der angeregte Doppler-Kühlungszustand. Somit kann die Herstellung von  $\text{MgH}^+$  unterstützt werden, indem die Wellenlänge des Kühllasers um einige 100 MHz möglichst nahe an die Resonanz verschoben wird. Auf diese Weise liegen mehr  $\text{Mg}^+$ -Ionen im angeregten Zustand vor als im Normalfall, bei dem eine optimale Kühlung mit geringeren Streuraten angestrebt wird. Dies kann im Experiment direkt beobachtet werden, da die Fluoreszenz des Ionenkristalls auf der CCD-Kamera sehr stark ansteigt.

Das Wasserstoffatom, welches bei der Reaktion entsteht, ist neutral und verlässt deshalb die Falle. Abhängig von der zur Verfügung stehenden Intensität des Kühllasers und von der Dichte des injizierten  $\text{H}_2$ -Molekülstrahls dauert es wenige Minuten bis genügend  $\text{MgH}^+$ -Ionen hergestellt wurden, das heißt, bis ungefähr  $3/4$  aller  $\text{Mg}^+$ -Ionen des Kristalls in  $\text{MgH}^+$ -Ionen umgewandelt wurden. Die Reaktion wird gestoppt, indem der Kühllaser wieder in den rotverschobenen Bereich, also weg von der Resonanz, verstimmt wird und das Ventil zur Wasserstoffquelle geschlossen wird. Die Molekülonen bleiben gefangen, weil ihre kinetische Energie, die sie während ihrer Herstellung erhalten, nicht ausreicht, um aus dem Fallenpotential zu entkommen.

Das Termschema von  $\text{MgH}^+$ -Ionen beinhaltet keinen geschlossenen Kühlzyklus. Somit können diese Molekülonen nicht direkt dopplergekühlt werden. Daher wird hier auf die sympathetische Kühlung zurückgegriffen, die es erlaubt die  $\text{MgH}^+$ -Ionen auf einige 100 mK herunter zu kühlen [107]. Dabei finden zwischen den zwei verschiedenen Ionensorten in der Falle ( $\text{Mg}^+$ -Ionen und  $\text{MgH}^+$ -Ionen) Coulombwechselwirkungen statt. Deshalb wird kinetische Energie von den Molekülonen an die  $\text{Mg}^+$ -Ionen transferiert, die weiterhin vom Kühllaser abgekühlt werden. Da die  $\text{MgH}^+$ -Ionen etwa 4% schwerer sind als die  $\text{Mg}^+$ -Ionen, sehen diese ein kleineres effektives Fallenpotential. Sie bleiben dennoch mit den Falleneinstellungen, die für  $\text{Mg}^+$ -Ionen verwendet werden, gefangen, befinden sich aber weiter von der  $z$ -Achse entfernt als die  $\text{Mg}^+$ -Ionen. Auf diese Weise entsteht ein Zwei-

komponentenkristall (ein Beispiel ist in Abbildung 3.4 gegeben) in der Paul-Falle. Bei diesem Kristall liegt innen ein nahezu zylindrisches Ensemble von  $\text{Mg}^+$ -Ionen vor, die von einer Außenhülle aus  $\text{MgH}^+$ -Ionen umgeben ist. Da die Molekülionen nicht mit den Photonen des Kühllasers wechselwirken, können sie auch nicht durch Fluoreszenz mit der CCD-Kamera detektiert werden. Jedoch können sie indirekt als dunkler Außenbereich im, insgesamt weiterhin die Form eines Rotationsellipsoids einnehmenden, Ionenkristall identifiziert werden.

Zusätzlich zur Speicherung von Ionen in der Hauptfalle ist es möglich durch eine Folge von sich ändernden DC-Spannungen an den Elektroden den Kristall in den Bereich der Vorfalle zu verschieben. Dort kann er aufgrund der sehr ähnlichen Kühllaserbedingungen, wie sie in der Hauptfalle herrschen, gespeichert bleiben. Der Nutzen dieses Verfahrens für die Experimente mit  $\text{MgH}^+$ -Ionen liegt darin, dass die Ionen in der Vorfalle einer stark reduzierten BBR und Stoßrate durch Restgasteilchen, die aus Bereichen bei Raumtemperatur kommen, ausgesetzt sind. Dies soll den Vorteil bieten, dass die Rotationszustände der Ionen noch weniger durch nicht-kryogene BBR und Stöße mit Restgasteilchen gestört werden. Zur Untersuchung der Besetzung der Rotationsniveaus muss der Kristall wieder in die Hauptfalle verschoben werden, da nur dieser Bereich mit den notwendigen Lasern und der CCD-Kamera zur Diagnostik zugänglich ist.

### 3.4 Energieniveaus und Übergänge des $\text{MgH}^+$ -Moleküls

In Abbildung 3.5 ist ein, für die hier beschriebenen Experimente vereinfachtes, Energieschema des  $\text{MgH}^+$ -Moleküls dargestellt. Es enthält die verschiedenen elektronischen Zustände ( $X^1\Sigma^+$ ,  $A^1\Sigma^+$ ,  $B^1\Pi^+$ ,  $C^1\Sigma^+$ ), sowie die im Experiment verwendeten Schwingungsniveaus. Außerdem sind die Rotationsniveaus angedeutet, in die sich die Schwingungsniveaus unterteilen.

Abbildung 3.6 zeigt eine Simulation der Besetzungswahrscheinlichkeiten der Rotationsniveaus und deren zeitliche Entwicklung nach ihrer Erzeugung. Diese wurde im Rahmen der Masterarbeit von Simon B. Kristensen angefertigt [111]. Direkt nach ihrer Produktion (zum Zeitpunkt  $t = 0$ ) befinden sich die  $\text{MgH}^+$ -Ionen in verschiedenen Schwingungs- und Rotationszuständen der elektronischen Energieniveaus. Wie im oberen Graphen von Abbildung 3.6 zu erkennen ist, sind die Ionen bereits nach 200 ms, in den Schwingungsgrundzustand  $|\nu = 0, J\rangle_X$  des elektronischen Grundzustands  $X^1\Sigma^+$  übergegangen. Dort sind sie über die verschiedenen Rotationsniveaus verteilt. Dabei wurde angenommen, dass zu Beginn die Wahrscheinlichkeit für die Besetzung der magnetischen Unterzustände  $m_J$  für alle Rotationszustände  $J$  gleich groß ist. Aufgrund der  $(2J + 1)$ -fachen Entartung der Rotationszustände sind die höheren Niveaus somit deutlich häufiger besetzt.

An dieser Stelle ist zu beachten, dass das  $\text{MgH}^+$ -Molekülion ein polares Molekül ist und

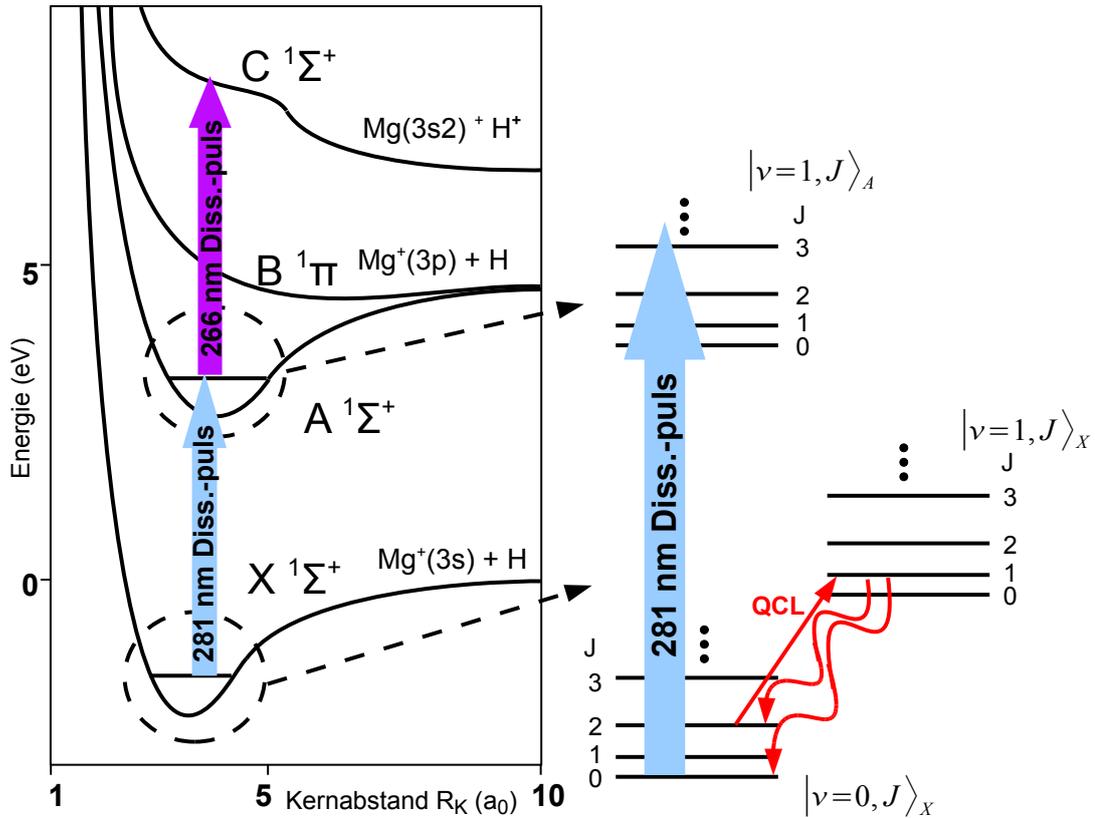


Abbildung 3.5: Schematische Übersicht der Energieniveaus von  $\text{MgH}^+$ , welche für die hier vorgestellten Experimente von Bedeutung sind.

somit ein permanentes Dipolmoment hat, durch welches es mit einem äußeren elektromagnetischen Feld wechselwirken kann [112]. Dies führt zur zusätzlich möglichen Übergängen mit  $\Delta\nu = 0$ , so dass beim  $\text{MgH}^+$ -Molekül durch Absorption oder Emission eines Photons Übergänge zwischen den Rotationsniveaus innerhalb des gleichen Schwingungszustands ( $\Delta\nu = 0$ ) stattfinden können. Da nun nach dem Erreichen des thermischen Gleichgewichts mit der Schwarzkörperstrahlung der unmittelbaren Umgebung alle  $\text{MgH}^+$ -Moleküle im Schwingungsgrundzustand ( $\nu = 0$ ) vorliegen, ist die Verteilung auf die verschiedenen Rotationsniveaus  $J$  im thermischen Gleichgewicht ein Maß für die Umgebungstemperatur der Moleküle. Bei Raumtemperatur (297 K) kaskadieren die Moleküle innerhalb des  $|\nu = 0, J\rangle_X$ -Niveaus zu niedrigeren Rotationsniveaus, bis im thermischen Gleichgewicht etwa die 15 niedrigsten Rotationsniveaus besetzt sind. Dieser Prozess dauert etwa 1 min [107], und die Besetzungszahlen entsprechen dabei einer Boltzmann-Verteilung. Diese Besetzungszahlen können sich durch Änderung der Umgebungstemperatur ändern und daher zur Bestimmung dieser Temperatur verwendet werden. Beide Möglichkeiten sollen in den folgenden Kapitel besprochen und experimentell verifiziert werden.

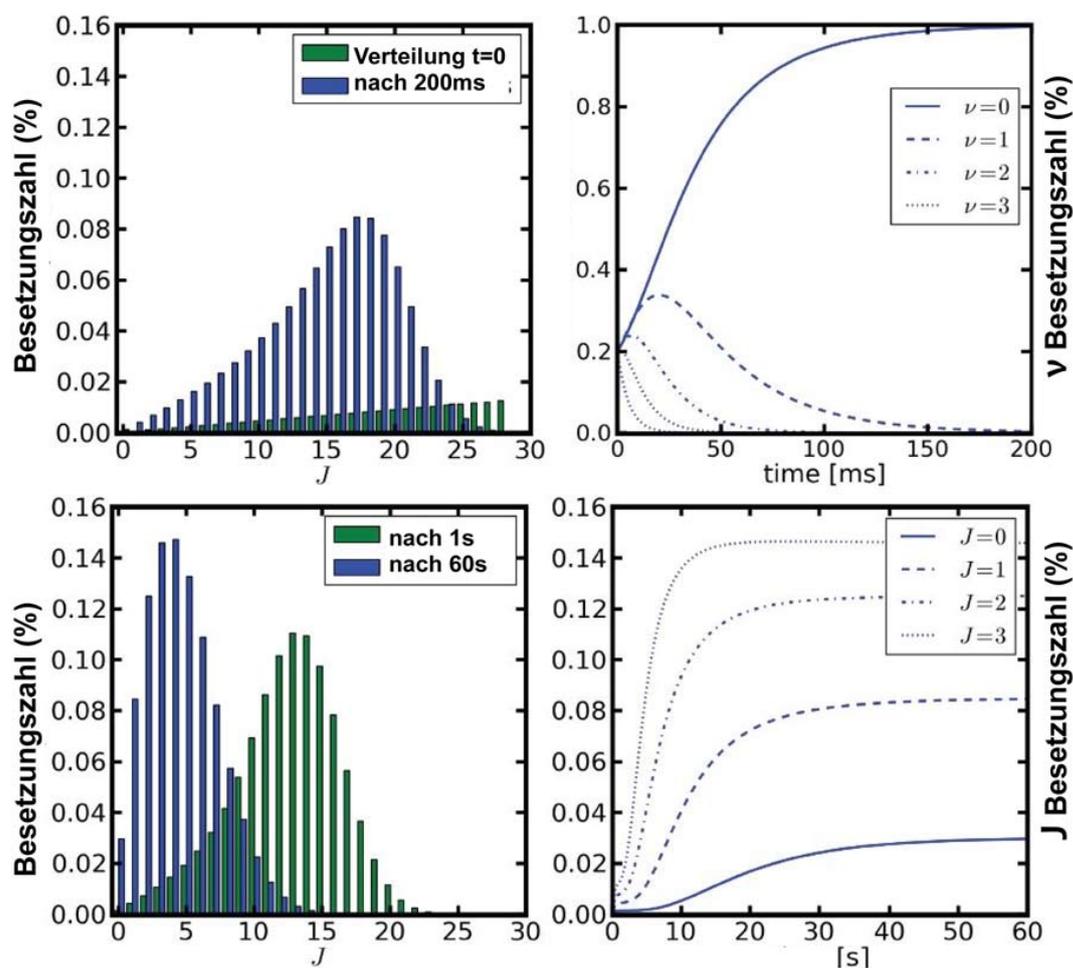


Abbildung 3.6: Zeitliche Entwicklung der Niveaubesetzungen von  $\text{MgH}^+$ -Ionen in einer 297 K-Umgebung nach deren Erzeugung zur Zeit  $t = 0$ . Oben: Besetzungswahrscheinlichkeiten der Rotationsniveaus  $J$  (links) und zeitlicher Verlauf der Besetzungswahrscheinlichkeiten der Schwingungsniveaus  $\nu$  (rechts) für die ersten 200 ms nach der Erzeugung. Unten: Besetzungswahrscheinlichkeiten der Rotationsniveaus  $J$  und deren zeitlicher Verlauf für den Zeitraum zwischen 1 s und 60 s. Entnommen aus [111].

### 3.5 Beeinflussung der Rotationsniveaubesetzung $|\nu = 0, J\rangle_X$

#### 3.5.1 Änderung der Umgebungstemperatur

Eine Besonderheit der hier vorgestellten Experimente ist die kryogene Umgebung der Paul-Falle. Die Moleküle sind dadurch im Vergleich zu anderen Experimenten [21], [22] nicht mehr in dem durch die Schwarzkörperstrahlung bedingten thermischen Gleichgewicht mit der Gefäßwand bei der Temperatur 297 K, sondern mit einer Temperatur von 4 K. Der Unterschied zwischen den Energiedichten der Schwarzkörperstrahlung für diese zwei Temperaturen ist in Abbildung 3.7 verdeutlicht. Es ist zu erkennen, dass hier eine starke Abhängigkeit von der Temperatur vorherrscht und es einen Unterschied von mehreren

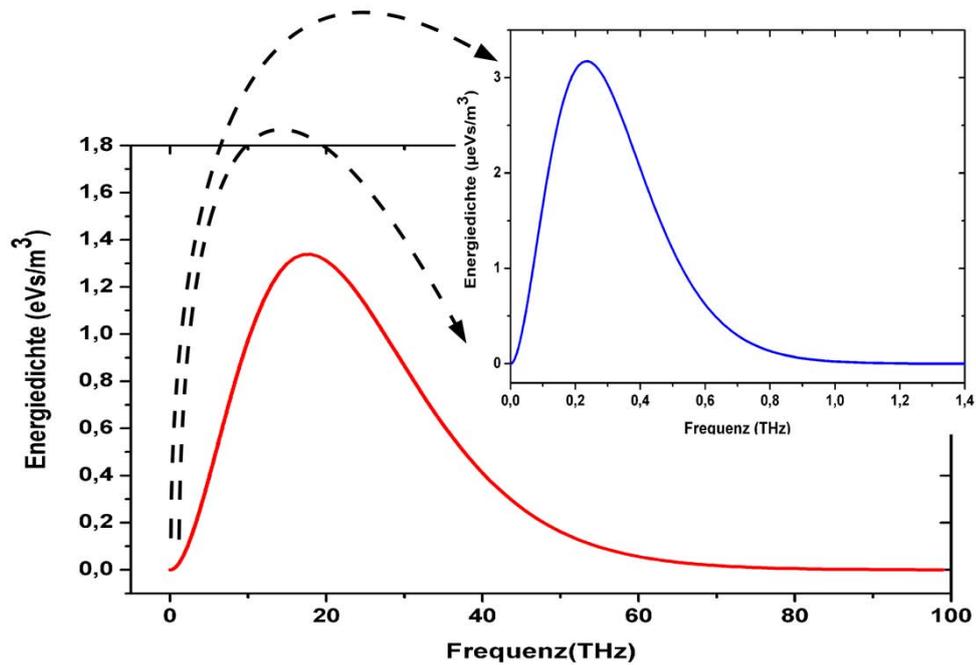


Abbildung 3.7: Vergleich der Energiedichten eines schwarzen Körpers bei 4 K (blauer Graph in der kleinen Box) und bei Raumtemperatur (roter Graph), hier mit einem Wert von 297 K.

Größenordnungen bezüglich der emittierten Frequenzen gibt.

Bei der Betrachtung der kryogenen Umgebung von CryPTE<sub>x</sub> muss berücksichtigt werden, dass die große Anzahl der optischen Zugänge einen Anteil von Schwarzkörperstrahlung mit Raumtemperatur im Fallenzentrum zur Folge hat. Bei den Simulationen wurde der Anteil der 297 K-BBR in der Fallenregion variiert, um ihren Einfluss auf die Rotationsniveaubesetzung abzuschätzen. Es wurden 97 % bis 99 % des Raumwinkels mit 4 K-Schwarzkörperstrahlung und entsprechend 3 % bis 1 % des Raumwinkels durch Raumtemperatur belegt. Diese Annahme folgt der geometrischen Abschätzung des Anteils vom Raumwinkel an 297 K-Flächen, den die Ionen im Fallenzentrum durch die optischen Zugänge „sehen“. Dieser wurde anhand der Durchmesser der Zugänge im 40 K-Schild und deren Abstände zum Fallenzentrum rechnerisch zu einem Wert von 0,92 % ermittelt (siehe [111]). Dass die Bevölkerung der verschiedenen Rotationsniveaus  $J$  sehr empfindlich auf den genauen Wert des Raumwinkels, vor allem bei kleinen Werten  $J$ , ist, lässt sich anhand der Simulation in Abbildung 3.8 erkennen. Hier wurde der Anteil der 297 K-BBR am gesamten Raumwinkel im Bereich zwischen 0 % und 1 % variiert.

Bis die  $\text{MgH}^+$ -Ionen allerdings im Gleichgewicht mit der 4 K-BBR sind dauert es bis zu 20 Minuten. Dazu wurden ebenfalls im Rahmen der Arbeit von Simon B. Kristensen numerische Simulationen zur Bevölkerung der niedrigeren Rotationsniveaus und zu der Zeit bis zur Gleichgewichtseinstellung durchgeführt [111]. In Abbildung 3.9 ist das Ergebnis

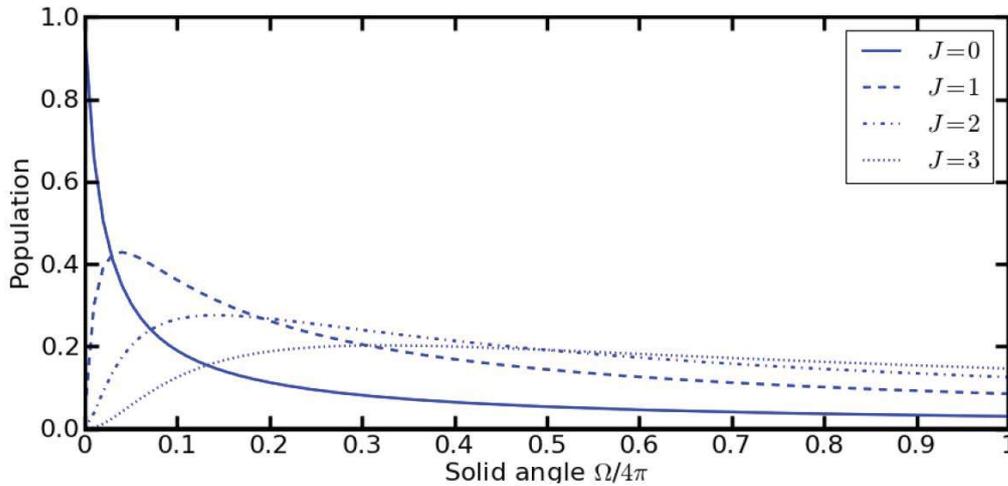


Abbildung 3.8: Bevölkerung der niedrigeren Rotationszustände in Abhängigkeit vom Raumwinkel, der durch 297 K-BBR bestimmt wird. Entnommen aus [111].

solch einer Simulation für die Verteilung über die Rotationsniveaus und deren zeitliche Entwicklung für Ionen in einer kryogenen Umgebung simuliert. Hier werden drei Szenarien für drei verschiedenen Anteile der Raumtemperatur-BBR (1 % (a), 3 % (b) und 5 % (c)) gegenübergestellt. Mit grünen Balken ist die Besetzung zu Beginn der Simulation dargestellt. Dafür wird ein „heißes“ Ensemble angenommen, bei der alle Zustände unter Berücksichtigung der Entartung der Rotationsniveaus gleich stark besetzt sind. Mit blauen Balken ist die Besetzung im thermischen Gleichgewicht aufgetragen. Die blauen Kurven im rechten Teil der jeweiligen Abbildungen geben den zeitlichen Verlauf der Besetzungswahrscheinlichkeiten wieder.

Es ist zu erkennen, dass in der Simulation direkt nach der Produktion der Molekülonen nur sehr wenig Ionen die niedrigen Rotationsniveaus (im Bereich bis  $J = 8$ ) besetzen. Im Falle des Raumwinkelanteils für die 297 K-BBR von 1 %, Graph 3.9(a), befinden sich nach Erreichen des thermischen Gleichgewichts etwa 66 % der  $\text{MgH}^+$ -Ionen im Rotationsgrundzustand ( $J = 0$ ) und 30 % im ersten angeregten Rotationszustand ( $J = 1$ ). Wie allerdings an dem Graphen mit der zeitlichen Entwicklung zu erkennen ist, dauert es mindestens 1200 s (also 20 min) bis dieses Gleichgewicht erreicht ist. Der Grund für diese lange „Wartezeit“ bis zum Erreichen des Gleichgewichts sind die notwendigen, langsamen Übergänge zwischen den niedrigsten Rotationsniveaus. Diese Übergänge bestimmen somit die Zeit bis zur Gleichgewichtseinstellung, wenn die Moleküle von höheren zu niedrigeren Rotationsniveaus sukzessiv kaskadieren müssen.

Die Fähigkeit der kryogenen Paul-Falle einen Ionenkristall praktisch ohne Verlust von Ionen über so eine Zeitspanne zu speichern ist, wie in Kapitel 3.11 gezeigt wird, durchaus gegeben. Solch lange Wartezeiten sind während eines Experiments allerdings eher unhand-

lich, so dass der Prozess der Einstellung des thermischen Gleichgewichts durch Hinzufügen eines weiteren Lasers beschleunigt werden kann.

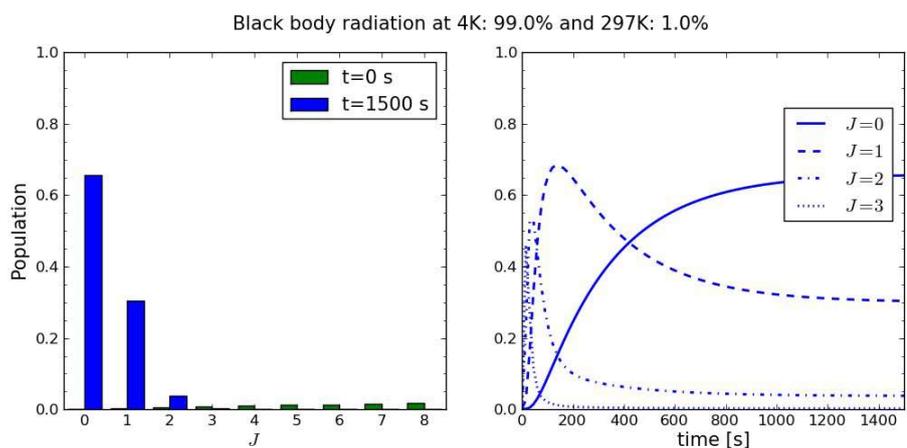
### 3.5.2 Manipulation durch kryogene Umgebung und Laser

In den hier vorgestellten Experimenten wird die Besetzung der Rotationsniveaus mittels eines QCLs manipuliert. Abbildung 3.10 skizziert den Einfluss dieses Lasers anhand eines Schemas des elektronischen Grundzustands von  $\text{MgH}^+$ .

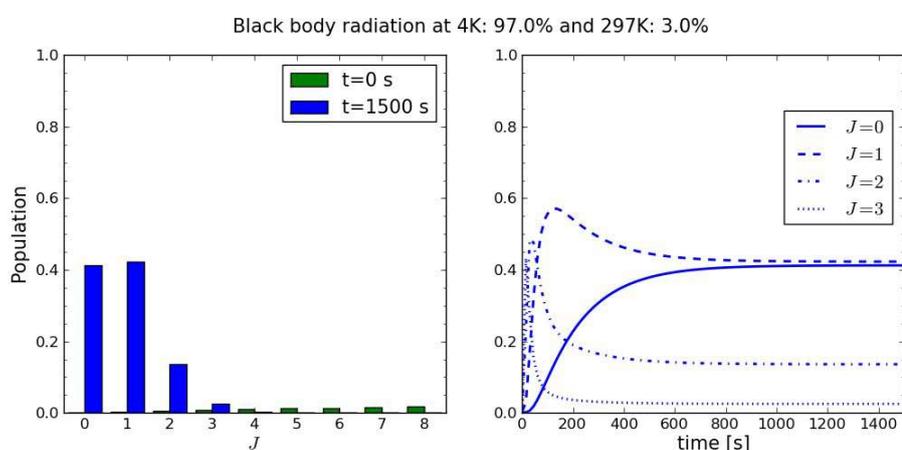
Der QCL transferiert die  $\text{MgH}^+$ -Ionen durch Anregung und eine darauf folgende spontane Emission in den Schwingungs- und Rotationsgrundzustand  $|\nu = 0, J = 0\rangle_X$ . Er spricht mit einer Wellenlänge von  $6,2 \mu\text{m}$  den zweiten angeregten Rotationszustand im Schwingungsgrundzustand  $|\nu = 0, J = 2\rangle_X$  an und regt die Ionen in den ersten angeregten Rotationszustand des ersten angeregten Schwingungszustands  $|\nu = 1, J = 1\rangle_X$  an. Durch die hohe Leistung des Lasers, 30 mW, ist dieser Übergang gesättigt. Der Anregungsprozess ist durch einen roten Pfeil in Abbildung 3.10 dargestellt. Von dort aus können die Ionen aufgrund der Paritätserhaltung radiativ nur über einen elektronischen Dipol-Übergang zurück in den angeregten Rotationszustand  $|\nu = 0, J = 2\rangle_X$  oder aber in den erwünschten Grundzustand  $|\nu = 0, J = 0\rangle_X$  fallen (durch geschwungene rote Pfeile verdeutlicht). So lange wie sich nun Ionen im Zustand  $|\nu = 0, J = 2\rangle_X$  befinden, wird dieser Prozess wiederholt, bis dieser Zustand vollständig entvölkert wurde. Dieses Vorgehen ist besonders effektiv bei der Rotationskühlung, weil die Lebensdauern der niedrigsten Zustände immer größer werden und somit die Ionen immer langsamer zu niedrigeren Rotationsniveaus kaskadieren. Dadurch, dass der QCL direkt den Rotationsgrundzustand anspricht und dabei die zwei letzten Übergänge beim Kaskadieren überspringt, wird der Prozess des Rotationskühlens stark beschleunigt und auch verstärkt.

Die Schwarzkörperstrahlung (durch blaue Pfeile in Abbildung 3.10 markiert) koppelt höhere Rotationszustände mit dem  $|\nu = 0, J = 2\rangle_X$ -Zustand und kann daher auch die Molekülonen unerwünschterweise wieder neu auf höhere Rotationszustände verteilen. Im Vergleich zu einer Falle bei Raumtemperatur sollten in der kryogenen Paul-Falle allerdings fast keine Ionen mehr in die Rotationszustände oberhalb von  $J = 3$  angeregt werden. Somit bleiben auch nach dem Ausschalten des QCLs die Molekülonen dauerhaft in den niedrigsten Rotationszuständen.

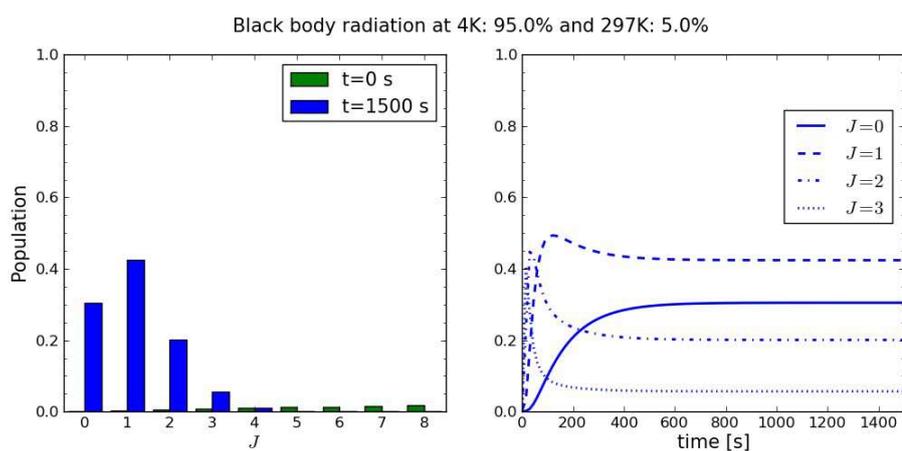
In Abbildung 3.11 sind Simulationen für die Besetzungswahrscheinlichkeiten der Rotationsniveaus und deren zeitliche Entwicklung für  $\text{MgH}^+$  in einer kryogenen Umgebung und der zusätzlichen Einstrahlung des QCLs graphisch dargestellt. Hierbei wurden wieder die Situationen von verschiedenen Anteilen der 297 K-BBR gegenübergestellt. Es ist zu erkennen, dass sich durch den QCL schon nach etwa 60 s ein neues Gleichgewicht für die Besetzung der Rotationszustände einstellt.



(a)



(b)



(c)

Abbildung 3.9: Simulationen zur Besetzungswahrscheinlichkeit der Rotationsniveaus  $J$  im Grundzustand  $|v=0, J\rangle_X$  und der zeitlichen Entwicklung dieser Besetzungen ab dem Zeitpunkt der Herstellung von  $\text{MgH}^+$  in einer kryogenen Umgebung. Der Raumwinkelanteil der 297 K-BBR variiert zwischen 1 % (a), 3 % (b) und 5 % (c). [111]

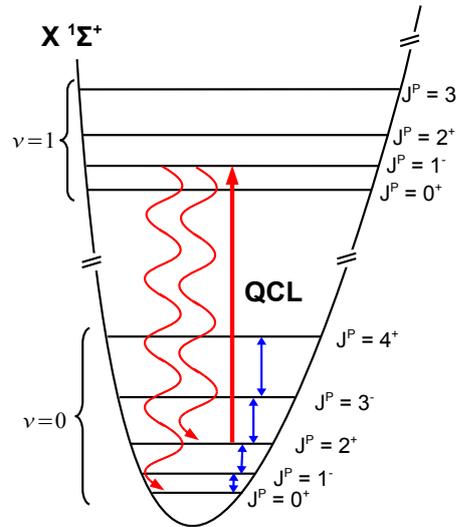
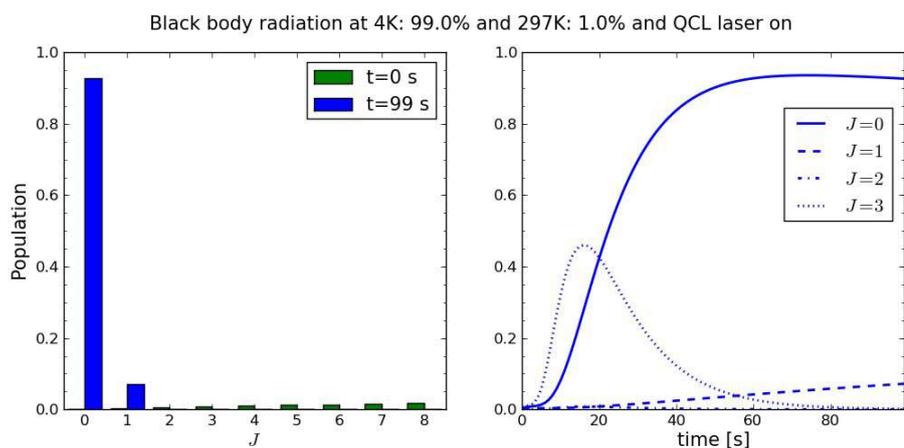


Abbildung 3.10: Energieschema des elektronischen Grundzustands von  $\text{MgH}^+$ . Die Schwingungsquantenzahl ist durch  $\nu$  gegeben,  $J$  bezeichnet den Rotationszustand und  $P$  zeigt die Parität des jeweiligen Niveaus an. Der rote Pfeil gibt den Pfad der Laseranregung durch den QCL an. Die geschwungenen roten Pfeile stellen die möglichen Pfade (unter Berücksichtigung der Auswahlregel  $J = \pm 1$ ) der spontanen radiativen Relaxation an. Die blauen Pfeile deuten die Rotationsübergänge an, die durch Wechselwirkung mit der Schwarzkörperstrahlung der Umgebung hervorgerufen werden.

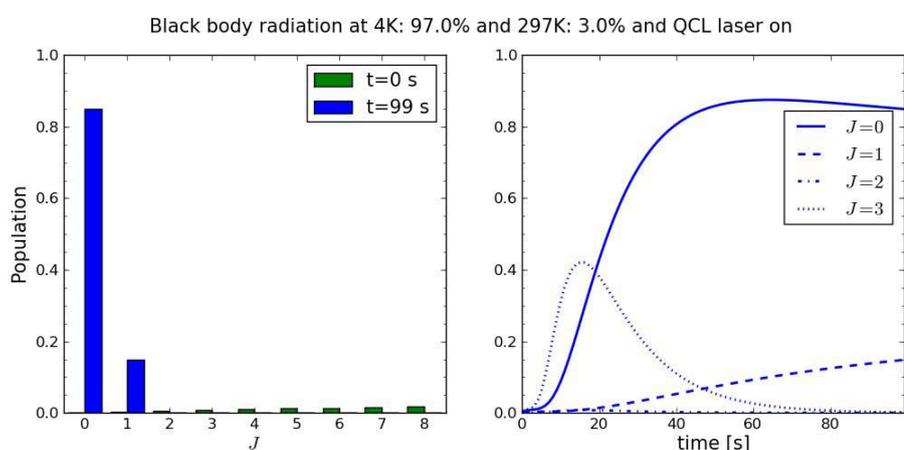
Auffällig ist, dass durch den Einfluss des QCL die Besetzung des Rotationsgrundzustands  $|\nu = 0, J = 0\rangle_X$  signifikant auf bis zu 95 % erhöht werden kann (vergleiche Abbildung 3.11(a)). Aufgrund der stark unterdrückten BBR kann hier auch keine Umverteilung mehr in höhere Rotationszustände ( $J \geq 3$ ) stattfinden.

### 3.6 Messung der Besetzung der Rotationsniveaus

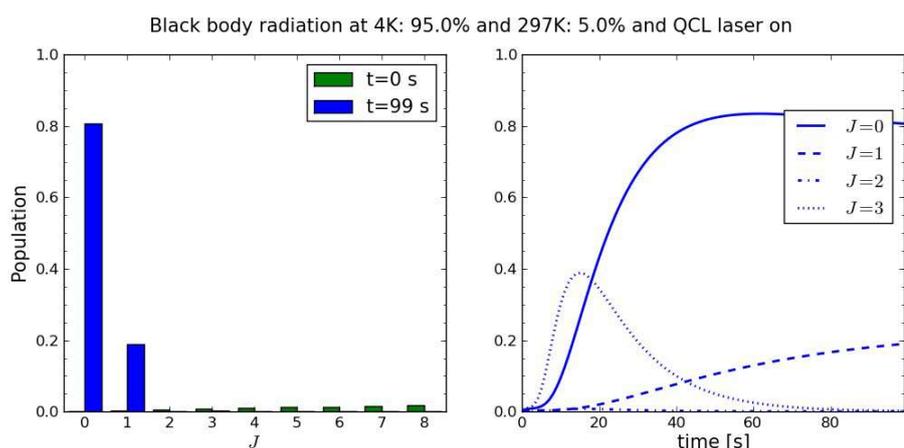
Die Bestimmung der Besetzungszahlen der verschiedenen Rotationsniveaus innerhalb des Schwingungsgrundzustands,  $|\nu = 0, J\rangle_X$ , erfolgt durch eine zustandsselektive Dissoziation der Molekülionen. Es wird die sogenannte 1 + 1-Resonant-erhöhte-Multi-Photonen-Dissoziations-Technik (REMPD, engl.: *Resonance Enhanced Multi-Photon Dissociation*) verwendet [114]. Bei dieser Methode werden die Molekülionen durch die resonante Absorption von zwei Photonen dissoziiert. Der Ausdruck „1 + 1“ steht hierbei für den Gebrauch von zwei Photonen verschiedener Energie. Dafür wird im Experiment der gesamte Ionenkristall ( $\text{Mg}^+$ - und  $\text{MgH}^+$ -Ionen) mit zwei simultanen Laserpulsen beschossen, nämlich wie in Kapitel 2.7 beschrieben mit einem Puls bei 281 nm und einem bei 266 nm. Ein Schuss besteht immer aus einem 281 nm- und einem 266 nm-Puls und zur Erhöhung der Ausbeute kann diese Kombination dreifach ( $n = 3$ ) oder fünffach ( $n = 5$ ) angewendet werden. Ein



(a)



(b)



(c)

Abbildung 3.11: Simulationen zur Besetzungswahrscheinlichkeit der Rotationsniveaus  $J$  im Grundzustand  $|v=0, J\rangle_X$  und der zeitlichen Entwicklung dieser Besetzungen ab dem Zeitpunkt der Herstellung von  $\text{MgH}^+$  in einer kryogenen Umgebung und der zusätzlichen Einstrahlung des QCLs. Der Raumwinkelanteil der 297 K-BBR variiert zwischen 1 % (a), 3 % (b) und 5 % (c). Entnommen aus [111].

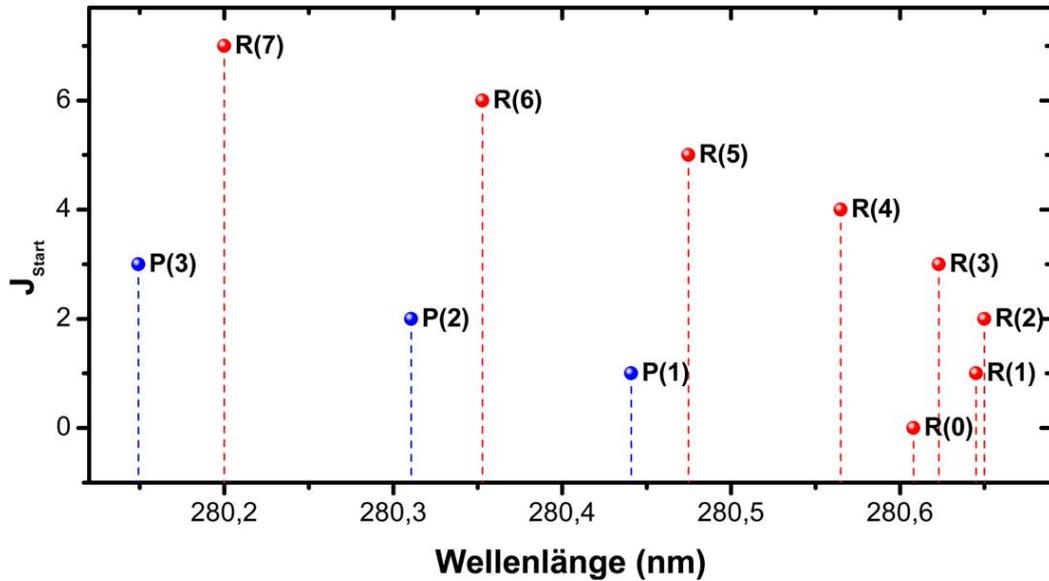


Abbildung 3.12: Das Rotationsniveau  $J$  ist gegen die Wellenlänge der P-Übergänge mit  $\Delta J = -1$  (blaue Punkte) und der R-Übergänge  $\Delta J = +1$  (rote Punkte) von  $\text{MgH}^+$  aufgetragen. Die Positionen der Linien wurde aus [113] entnommen.

vollständiger Dissoziationspuls setzt sich dann aus  $n$  Schüssen zusammen. Der Abstand zwischen den Schüssen beträgt dabei 100 ms.

In Abbildung 3.5 ist der Prozess der Dissoziation von  $\text{MgH}^+$  schematisch dargestellt. Zuerst wird mit einem Photon des 281 nm-Lasers das Molekülion von einem der Rotationszustände des elektronischen Grundzustands  $X^1\Sigma^+$  in den  $A^1\Sigma^+$ -Zustand angeregt. Das Molekül kann aufgrund der Auswahlregel mit einem P- oder einem R-Übergang angeregt werden. Die Wellenlänge des 281 nm-Lasers kann um einige 100 pm durchgestimmt werden, so dass die verschiedenen Rotationsniveaus im elektronischen und Schwingungsgrundzustand gezielt angesprochen werden können.

Die hier verwendete Notation um P- und R-Übergänge zu unterscheiden ist  $P(J)$  und  $R(J)$ , wobei  $J$  das Niveau angibt von dem aus der Übergang im Grundzustand  $|\nu = 0, J\rangle_X$  startet. In Abbildung 3.12 sind die Lagen der P- und R-Linien des  $\text{MgH}^+$ -Moleküls angegeben. Es ist zu erkennen, dass die niedrigen R-Übergänge sehr nahe beieinander liegen. Mittels optogalvanischer Spektroskopie wurde die Linienbreite des 281 nm-Laser zu einer FWHM-Breite von ungefähr 13 pm bestimmt (FWHM, *engl.: full width half maximum*). Dabei ist die Reproduzierbarkeit der Wellenlänge beim Durchstimmen der Wellenlänge des Lasers auf 5 pm genau. Dies führt dazu, dass die R(1)- und die R(2)-Linie nicht getrennt aufgelöst werden können. Das gleiche gilt für die R(0)-Linie und die R(3)-Linie. Um Informationen über die Niveaus  $J = 1$ ,  $J = 2$  und  $J = 3$  zu bekommen werden deshalb die entsprechenden P-Linien genutzt.

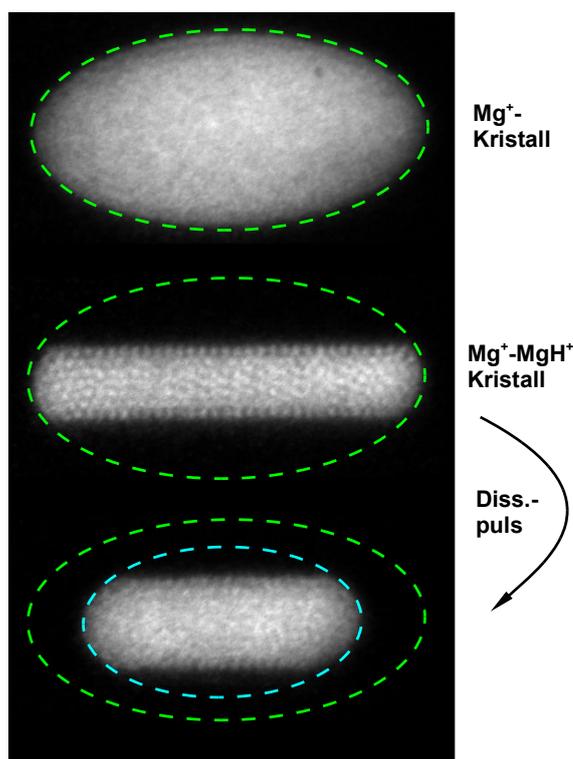


Abbildung 3.13: CCD-Kameraaufnahmen eines beispielhaften Messablaufs. Ein Mg<sup>+</sup>-Ionenkristall wurde im oberen Bild erzeugt. Das zweite Bild stellt einen Zweikomponentenkristall dar. Zwischen den letzten beiden Bildern hat ein Dissoziationspuls stattgefunden, so dass ein Anteil der MgH<sup>+</sup>-Ionen aus dem Kristall verschwindet. Die grüne Ellipse verdeutlicht die Größe des Mg<sup>+</sup>-Kristalls zu Beginn des Experiments. Die blaue Ellipse markiert die Größe des Ionenkristalls nach dem Dissoziationspuls.

Das angeregte Molekül kann im zweiten Schritt des Dissoziationsprozesses ein Photon des intensiven 266 nm-Lasers absorbieren und wird somit in den Kontinuumszustand  $C^1\Sigma^+$  angeregt. Von diesem Zustand aus dissoziiert das Molekül in ein neutrales Magnesiumatom und ein Proton, die die Falle verlassen.

Zusätzlich zu dieser zustandsselektiven Dissoziation, kann allerdings auch ein nicht-resonanter Zweiphotonenprozess stattfinden, bei dem die Moleküle nur durch mindestens zwei Photonen des 266 nm-Lasers dissoziiert werden. Diesem Effekt wird bei der Auswertung der Dissoziationseffizienz durch den Korrekturfaktor  $C_{266}$  Rechnung getragen, der in Kapitel 3.9 ermittelt wird.

In Abbildung 3.13 sind drei charakteristischen CCD-Kameraaufnahmen dargestellt, die während eines vollständigen Messablaufs entstehen. Die Zahl der in einem Kristall gebundenen Molekülionen sinkt mit jedem Dissoziationspuls. Wohingegen die Zahl der Mg<sup>+</sup>-Ionen im Kristall konstant bleibt. Die Anzahl der verlorenen Molekülionen ist gleich der Anzahl der dissoziierten Molekülionen. Der Dissoziationsprozess kann an einem Zweikomponentenkristall so oft wiederholt werden, bis alle MgH<sup>+</sup>-Ionen dissoziiert wurden. Zurück

bleibt ein Ionenkristall, der nur noch aus  $\text{Mg}^+$ -Ionen besteht, der allerdings kleiner ist als der Kristall mit dem die Messung begonnen wurde. Wenn ein Anteil dunkler Ionen im Kristall zurückbleibt, der nicht mit den Dissoziationslasern wechselwirkt, handelt es sich um Verunreinigungen, zum Beispiel Ionen der mit dem Kühllaser nicht resonanten Magnesiumisotope ( $^{25}\text{Mg}^+$  oder  $^{26}\text{Mg}^+$ ), die durch Ladungsaustausch zwischen  $^{24}\text{Mg}^+$  und neutralem Mg entstanden sein können [107]. Diesem Umstand wird vorgebeugt, indem zu Anfang der Messreihe ein möglichst reiner Kristall, der also nur aus  $^{24}\text{Mg}^+$ -Ionen besteht, erzeugt wird.

### Besonderheiten der Messung

Bei der Messung der Besetzungszahlen der Rotationsniveaus ist der Unterschied zwischen der gemessenen „Ionenabnahme“ der  $\text{MgH}^+$ -Ionenanzahl und dem Begriff „Besetzungszahl“ zu beachten.

Während eines Dissoziationsvorgangs wird rotationsniveauselektiv die Ionenabnahme der  $\text{MgH}^+$ -Ionenanzahl in einem Zweikomponentenkristall gemessen. Um aus dieser Zahl die tatsächliche Besetzungszahl des vermessenen Rotationsniveaus zu erhalten muss die Ionenabnahme eines Rotationsniveaus auf die Summe der Ionenabnahmen aller besetzten Rotationsniveaus normiert werden, oder äquivalent dazu mit der Dissoziationseffizienz multipliziert werden. Die Dissoziationseffizienz kann von Tag zu Tag aufgrund von leichten Veränderungen der Laserparameter variieren. Dies bedeutet, dass sich Ionenabnahmen, die an verschiedenen Tagen gemessen wurden nicht direkt vergleichen lassen. Für den Fall, dass Messungen über mehrere Tage verlaufen, werden die Daten mit der entsprechenden Tageseffizienz multipliziert.

Zusätzlich muss die Entartung der Energieniveaus berücksichtigt werden, da die Dissoziationslaser linear polarisiert sind. Die lineare Polarisation führt dazu, dass bei P-Übergängen die Niveaus  $m_J = J$  und  $m_J = -J$  mit dem 281 nm-Dissoziationspuls nicht erreicht werden können. Die anhand von P-Übergängen gemessenen Werte für die Ionenabnahme müssen deshalb mit dem Verhältnis der Entartungen  $g_h$  und  $g_a$  der beiden beteiligten Rotationsniveaus  $J$  und  $J - 1$ , dem Faktor

$$\frac{g_h}{g_a} = \frac{2(J - 1) + 1}{2J + 1} = \frac{2J - 1}{2J + 1}, \quad (3.2)$$

multipliziert werden. Danach können die Werte aus Messungen der P-Übergänge erst mit denen von R-Übergängen verglichen werden.

In den graphischen Darstellungen ist jeweils angegeben, ob der Wert der Ionenabnahme für den Unterschied zwischen P- und R-Übergang korrigiert wurde und ob es sich um die rotationsniveauselektive gemessene Ionenabnahme der Ionenanzahl oder die tatsächliche

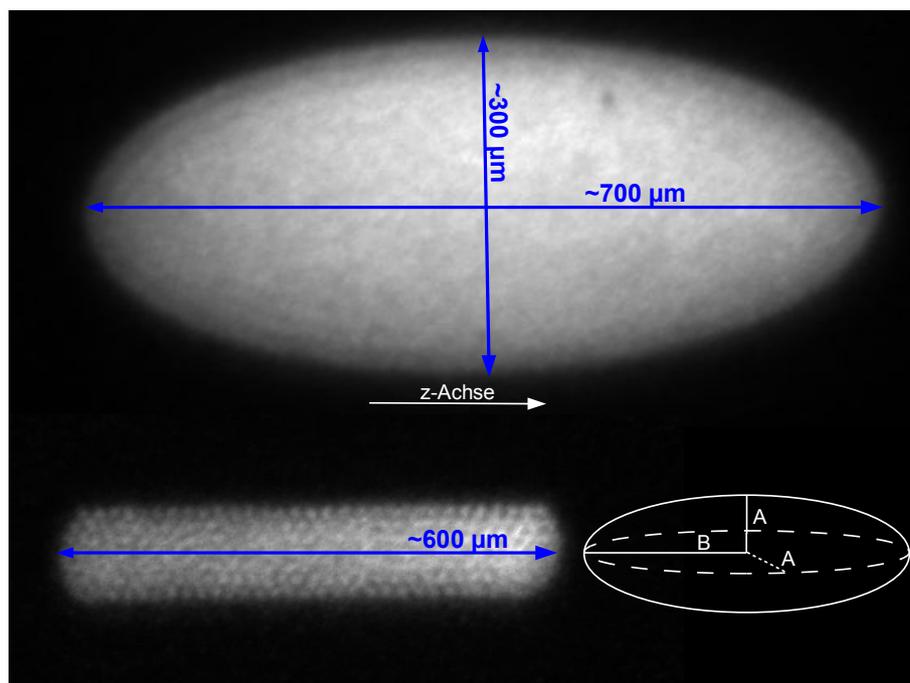


Abbildung 3.14: CCD-Aufnahmen zweier Ionenkristalle (mit Linse). Die hier gezeigten Kristalle gehören zu den kleineren, die in den Messungen verwendet wurden. In blau sind die ungefähren Größen der Kristalle markiert. Das Schema rechts unten im Bild skizziert die ellipsoide Form der Kristalle und die Lage der großen sowie der kleinen Halbachse B und A. Durch Abmessen der Abstände zwischen den Ionen im Kristall links unten, etwa 14 Pixel entlang der  $x$ -Achse, und Umrechnung mit  $f_{CCD}$  lässt sich grob ein Ionenabstand von etwa  $20 \mu\text{m}$  abschätzen.

Besetzungszahl des Rotationsniveaus handelt.

### 3.7 Bestimmung des Kristallvolumens

Die Anzahl der Ionen in einem Kristall wird anhand der Aufnahmen der CCD-Kamera bestimmt. Für die Umrechnung von Abständen, die aus den Aufnahmen in Pixeln abgelesen werden, wird der Faktor

$$f_{CCD} = \frac{6,45 \mu\text{m} \cdot 2}{(9,09 \pm 0,24) \cdot \text{pixel}} = (1,42 \pm 0,04) \frac{\mu\text{m}}{\text{pixel}}. \quad (3.3)$$

genutzt, der die Vergrößerung  $M = 9,09$  des optischen Systems mit der Quarzlinse enthält. Kristalle, die aus einer großen Anzahl und nur aus einer Sorte von Ionen bestehen, haben die Form eines Rotationsellipsoids. Die Zahl der Ionen in solch einem Kristall kann im Allgemeinen durch Bestimmung des Verhältnisses der beiden Achsen der Ellipse und durch die Verwendung der Ionendichte bestimmt werden. Das Volumen eines solchen Kristalls wird mittels der CCD-Aufnahmen der Kristalle berechnet. Die CCD-Aufnahme stellt, wie in Abbildung 3.14 verdeutlicht, die Projektion eines Ellipsoids, also eine Ellipse, dar. Aus

diesen Aufnahmen können die Werte für die kleine Halbachse  $A$  und die große Halbachse  $B$  abgelesen werden, so dass das Kristallvolumen aus

$$V = \frac{4\pi}{3}A^2B \quad (3.4)$$

folgt.

Typische Kristalllängen ( $2B$ ) und Kristallhöhen ( $2A$ ), wie sie für die hier vorgestellten Experimente genutzt werden, sind für große Kristalle

$$2B = (1,11 \pm 0,03) \text{ mm} \quad \text{und} \quad 2A = (0,44 \pm 0,02) \text{ mm} \quad (3.5)$$

und für kleine Kristalle, wie sie in Abbildung 3.14 abgebildet sind,

$$2B = (0,69 \pm 0,02) \text{ mm} \quad \text{und} \quad 2A = (0,29 \pm 0,01) \text{ mm}. \quad (3.6)$$

Zum Vergleich sei noch die Größe eines Kristalls und der typische Abstand der Ionen in einem Kristall, die während der Tests des Spiegelobjektivs aufgenommen wurden angeführt. In Abbildung 3.15 sind zwei Aufnahmen abgebildet, die mittels Spiegelobjektiv von Ionenkristallen erstellt wurden. Die Dichte der Ionen in einem Kristall ist durch die Formel

$$n = \frac{\epsilon_0 U_{RF}^2}{m r_0^4 \Omega^2}. \quad (3.7)$$

gegeben. Hieraus ergeben sich theoretische Werte für die Dichten der Ionenkristalle. Es werden die Werte  $\Omega = 2\pi f = 2\pi \cdot 3,912 \text{ MHz}$ ,  $U_{RF} = 240 \text{ V}$  und  $m = 24 \text{ amu}$  verwendet. Für Kristalle die nur aus  $\text{Mg}^+$ -Ionen bestehen erhält man einen Wert von

$$n_{\text{Mg}^+} = 1,411 \cdot 10^{14} \frac{1}{\text{m}^3} \quad (3.8)$$

und für Kristalle, die aus  $\text{MgH}^+$ -Ionen bestehen, findet sich ein Wert von

$$n_{\text{MgH}^+} = 1,355 \cdot 10^{14} \frac{1}{\text{m}^3}. \quad (3.9)$$

Aus dem Wert für  $\text{Mg}^+$ -Ionen ergibt sich ein errechneter Abstand der Ionen von

$$d_{\text{Ion}} = 19,26 \mu\text{m}. \quad (3.10)$$

An einem Kristall, in dem die Ionen quasi abzählbar ist und der in Abbildung 3.14 dargestellt ist, lässt sich die Anzahl der Ionen durch Messen des Abstands in Pixeln und

Umrechnung mit dem Faktor  $f_{CCD}$  zu etwa

$$d_{Ion}^{exp} = 20 \mu\text{m} \quad (3.11)$$

bestimmen. Da der theoretische und der experimentell bestimmte Ionenabstand gut übereinstimmen, ist es gerechtfertigt den theoretischen Ionenabstand zu verwenden. Dieser Wert wird als einer der Eingangsparameter für das Programm, welches die Ionenanzahl bestimmt und im Folgenden beschrieben wird, genutzt.

Zum Vergleich soll hier auch noch der Ionenabstand für Aufnahmen mit dem Spiegelobjektiv bestimmt werden. Da bei diesen Aufnahmen kleinere Werte für die Spannung der Radiofrequenz  $U_{RF}$  verwendet wurden, haben Kristalle eine geringere Dichte und somit sollten sich größere Abstände zwischen den Ionen ergeben. Der theoretische Wert der Ionendichte für die Aufnahmen mit dem Spiegelobjektiv ergibt sich mit einer RF-Spannung von  $U_{RF} = 100 \text{ V}$  zu

$$n_{Mg^+}^{SP} = 2,45 \cdot 10^{13} \frac{1}{\text{m}^3}. \quad (3.12)$$

Daraus folgt ein theoretischer Ionenabstand von

$$d_{SP} = 34,43 \mu\text{m}. \quad (3.13)$$

Da hier keine Kalibrierung mittels Glasfaser vorgenommen wurde, wird der theoretische Ionenabstand verwendet um die Größe der Kristalle auf den CCD-Aufnahmen mittels Spiegelobjektiv abzuschätzen. Dabei werden die Ionen auf den hochaufgelösten Aufnahmen gezählt. In Abbildung 3.15 können bei dem großen Kristall in etwa 14 bis 16 Ionen entlang der großen Halbachse gezählt werden. Die sich daraus ergebende Länge und Höhe des Kristalls sind  $2B = (480 \pm 35) \mu\text{m}$  und  $2A = (120 \pm 18) \mu\text{m}$ .

Bei den hier untersuchten Kristallen handelt es sich um Zweikomponentenkristalle. Daher muss zur Berechnung der Menge der jeweiligen Ionensorte eine genauere Betrachtung der Kristallstruktur herangezogen werden [115]. Der Innere Teil dieses Kristalls, der aus  $\text{Mg}^+$ -Ionen besteht, hat eine zylindrische Form. Der äußere Teil, der aus  $\text{MgH}^+$ -Ionen besteht, füllt den Rest des Rotationsellipsoids aus. Da die Massen der  $\text{Mg}^+$ -Ionen und der  $\text{MgH}^+$ -Ionen sich nur um etwa 4% unterscheiden, kann das Längenverhältnis für einen  $\text{MgH}^+$ -Ionenkristall durch den eines  $\text{Mg}^+$ -Ionenkristalls angenähert werden.

Die Volumenanalyse wird mit einem durch die Gruppe von M. Drewsen angefertigten LabView-Programm durchgeführt, welches im Wesentlichen folgende Schritte durchführt: 1) Das Volumen  $V_{ges}$  des gesamten Kristalls wird aus den ersten Aufnahmen, auf denen der Kristall noch aus  $\text{Mg}^+$ -Ionen besteht, gewonnen. Nachdem die Bildung eines Zweikomponentenkristalls abgeschlossen ist, wird 2) aus der Aufnahme des sich ergebenden Kristalls das Volumen  $V_{Mg}$  und die Zahl  $N_{Mg}$  der restlichen  $\text{Mg}^+$ -Ionen bestimmt. Dazu

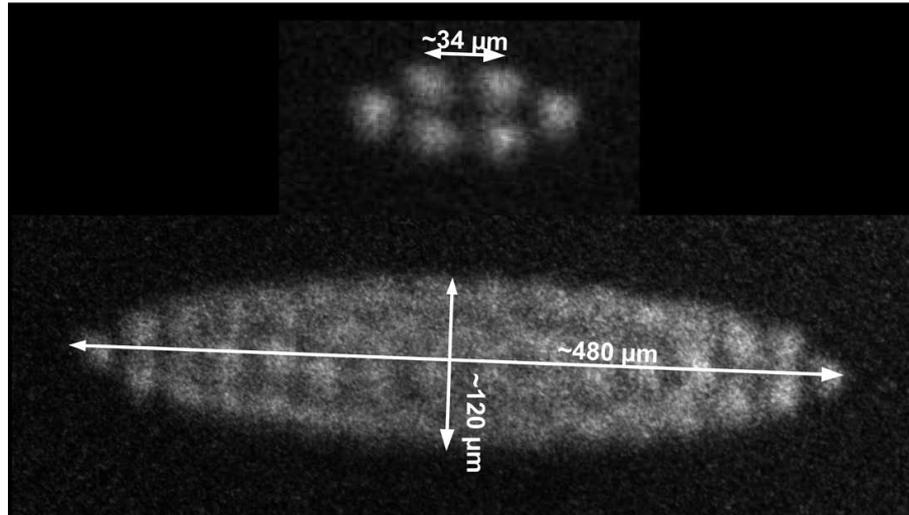


Abbildung 3.15: CCD-Kameraaufnahmen (mittels Spiegelobjektiv) von einem sehr kleinen Ionenkristall (6 Ionen) und einem größeren Kristall, der gerade noch in das Sichtfeld des Objektivs passt. Die Maße des großen Kristalls sowie die Ionenabstände ( $34,43 \mu\text{m}$ ) sind angegeben.

werden die Aufnahmen der Kristalle, wie sie in Abbildung 3.14 dargestellt sind, entlang der  $z$ -Achse in Scheiben der Dicke 1 pix unterteilt. Der Radius dieser Scheiben wird aus der Abbildung abgelesen. 3) Durch Aufsummieren der Scheiben erhält man das Volumen und mit Hilfe der Dichte letztendlich die Ionenanzahl. Das Volumen  $V_{MgH}$  und die Anzahl  $N_{MgH}$  der nicht-fluoreszierenden  $MgH^+$ -Ionen erhält man indem von dem Volumen des gesamten Kristalls aus Schritt 1) das Volumen der restlichen  $Mg^+$ -Ionen subtrahiert wird. Der radiale Abstand zwischen den beiden Ionensorten kann dabei vernachlässigt werden.

### 3.8 Korrektur der CCD-Aufnahmen

Die Intensität der Ionenkristalle auf den CCD-Aufnahmen variiert entlang der beiden Kristallachsen. In Abbildung 3.16 sind zur Verdeutlichung zwei Kristallaufnahmen, mit unskalierter Intensität (oben) und mit skalierten Intensität (unten), gegenübergestellt. Dies ist in erster Linie nicht auf die ungleichmäßige Effizienz des Bildverstärkers oder die unsymmetrische Ausleuchtung des Ionenkristalls durch die Kühllaserstrahlen zurückzuführen. Vielmehr ist eine leichte Asymmetrie des Fallenpotentials entlang der  $z$ -Achse der Grund für diese Variation der Intensität. Durch diese Asymmetrie kommt es für große Kristalle zu einer erhöhten Mikrobewegung der Ionen in axiale Richtung. Somit haben die Ionen unterschiedliche Bewegungsamplituden und durchschnittliche Geschwindigkeiten in Richtung des Kühllasers im Kristall, so dass sie das Licht des Kühllasers unterschiedlich stark streuen; dies führt zu der beobachteten Intensitätsvariation.

Um die CCD-Aufnahmen mit der Analysesoftware zu bearbeiten muss der Kristall jedoch

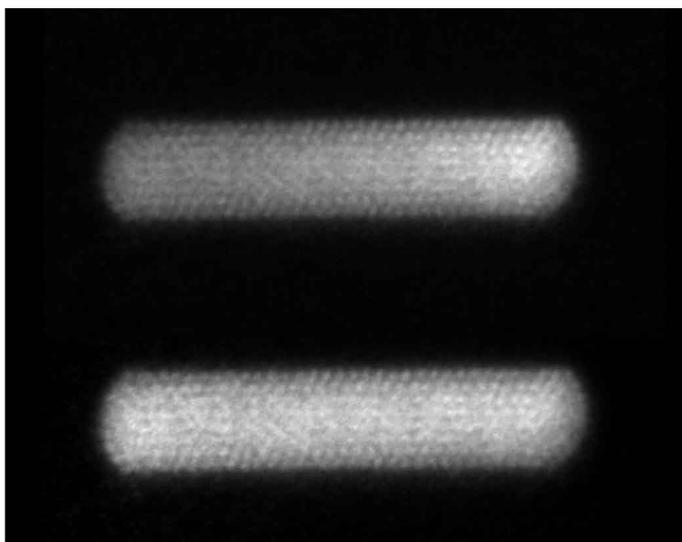


Abbildung 3.16: Vergleich einer unbearbeiteten CCD-Kameraaufnahme (oben) mit der bearbeiteten Aufnahme (unten), bei der die Intensität des Kristalls entlang der kleinen und der großen Halbachse linear skaliert wurde.

möglichst gleichmäßig ausgeleuchtet sein. Dies bedeutet, dass die CCD-Aufnahmen vor der Datenanalyse nachbearbeitet werden müssen. Mittels eines Matlab Programmes wird die Intensität der Kristalle entlang der kleinen und der großen Halbachse jeweils mit einem Faktor  $F_A$  und  $F_B$  linear skaliert. Die Werte dieser Faktoren werden durch optische Analyse bestimmt. Dabei werden Schnitte entlang der beiden Halbachsen der Kristalle erstellt und deren Intensitätsverlauf durch Veränderung der Faktoren  $F_A$  und  $F_B$  auf eine minimale Steigung optimiert. Die Skalierungsfaktoren liegen im Bereich  $F_A = -0,6$  bis  $0,3$  und  $F_B = 0,1$  bis  $0,65$ . Sie ändern sich hauptsächlich wenn man die Messungen vergleicht, bei denen der Verlauf der Laserstrahlen nachjustiert wurde oder die an verschiedenen Tagen aufgenommen wurden.

### 3.9 Berücksichtigung des 266 nm-Beitrags

Bei der Bestimmung der Dissoziierten Moleküle pro Dissoziationspuls ist zu berücksichtigen, dass es immer einen nicht-resonanten Beitrag durch den 266 nm-Laser gibt. Um sicher zu stellen, dass alle Ionen, die im ersten Schritt zustandsselektiv angeregt werden im zweiten, nicht-resonanten Schritt auch dissoziiert werden, wird für diesen Laser eine etwa 100 mal höhere Pulsenergie verwendet als für den zustandsselektiven 281 nm-Laserpuls. Dies führt aber zu einem nicht vernachlässigbaren Anteil an Dissoziationseignissen, die durch zwei 266 nm-Photonen herbeigeführt wird. Um diesen Anteil zu berücksichtigen wird die Höhe des Ionenverlusts durch einen Dissoziationspuls, der nur aus dem 266 nm-Laser besteht gemessen. In Abbildung 3.17 ist die Ionenabnahme der  $\text{MgH}^+$ -Ionen gegen die Anzahl der

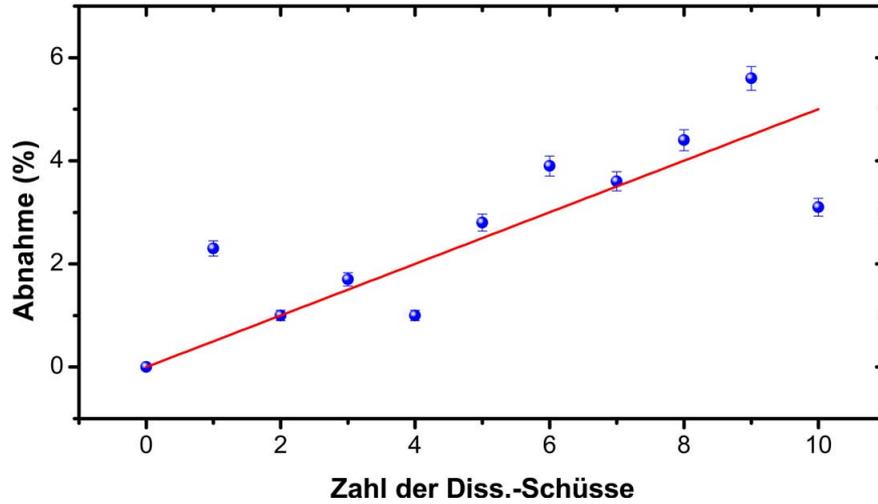


Abbildung 3.17:  $\text{MgH}^+$ -Ionenabnahme in Abhängigkeit von der Anzahl der Schüsse, die nur aus einem 266 m-Puls bestehen. In rot ist ein linearer Fit durch die Messpunkte (blaue Punkte) dargestellt.

Dissoziationspulse aufgetragen. Aus der Steigung ergibt sich ein Korrekturwert von

$$C_{266} = n \cdot (0,5 \pm 00,5) \% \quad (3.14)$$

mit der Anzahl  $n$  der Schüsse pro Dissoziationspuls. Dieser Wert wird von den gemessenen Werten für die Ionenabnahme der  $\text{MgH}^+$ -Ionen abgezogen. Der Korrekturwert hängt zudem quadratisch von der Leistung des 266 nm-Dissoziationslasers ab. Aus diesem Grund wird diese im Verlauf der Experimente auf einem konstanten Wert gehalten.

### 3.10 Fehlerrechnung der Dissoziationsmessungen

Zur Beschreibung der Fluktuationen der gemessenen Zustandspopulation wird die zustandsselektive Dissoziation der Moleküle als Bernoulli-Prozess betrachtet [116]. Ein Dissoziationspuls wird dabei als eine Serie von gleichen aber unabhängigen (da die Zustände der Moleküle nicht miteinander korreliert sind) Versuchen betrachtet. Die Versuche haben nur zwei mögliche Ergebnisse: Erfolg (Dissoziation des Moleküls) oder Misserfolg (keine Dissoziation des Moleküls). Die Erfolgswahrscheinlichkeit  $p$ , also die Wahrscheinlichkeit ein Molekül in dem abgefragten Zustand  $|\nu, J\rangle$  zu finden, entspricht der Zustandspopulation in der Einheit %. Außerdem wird der Anzahl der Versuche  $n$  die Anzahl der dunklen Ionen in dem vermessenen Kristall zugeordnet. Die gesuchte Wahrscheinlichkeitsverteilung ist dann eine Binomialverteilung mit dem Erwartungswert  $\mu = n \cdot p$ , deren Varianz durch  $\text{Var} = np(1 - p)$  gegeben ist. Daraus folgt die Standardabweichung der Populationsmes-

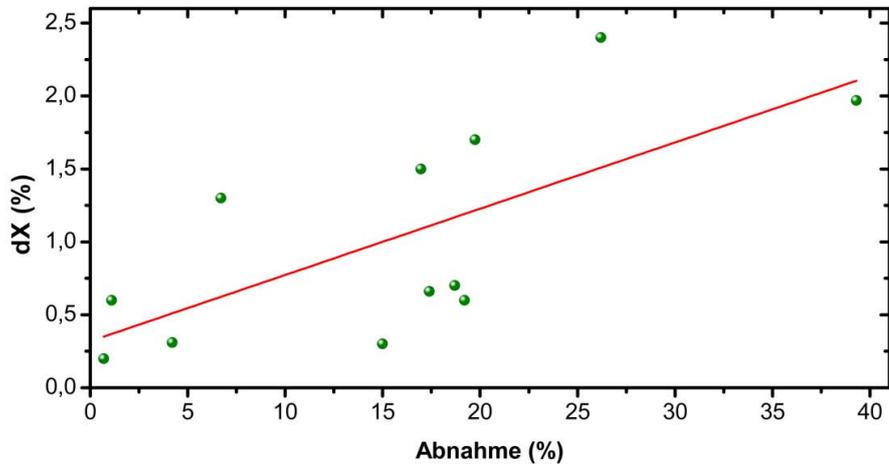


Abbildung 3.18: Standardabweichung in Abhängigkeit der Ionenabnahme von  $\text{MgH}^+$ -Ionen bei einem Dissoziationspuls.

sungen zu

$$\sigma = \frac{\sqrt{\text{Var}}}{n} = \frac{\sqrt{np(1-p)}}{n} = \sqrt{\frac{p(1-p)}{n}}. \quad (3.15)$$

Das bedeutet, dass für jeden Dissoziationsvorgang die Standardabweichung einzeln bestimmt werden muss. Dafür wird durch das Auswerteprogramm zusätzlich zur Anzahl der Dissoziierten  $\text{MgH}^+$ -Ionen die Anzahl dieser Ionen zu Beginn der Messung ausgegeben. Diese Überlegungen bestimmen allerdings nur den statistischen Fehler der Messung.

Da das Lasersystem von Tag zu Tag Leistungsvariationen aufweist muss ein zusätzlicher systematischer Fehlerbeitrag berücksichtigt werden. Dieser ergibt sich aus der Änderung der Dissoziationseffizienz. Für die Bestimmung dieser Unsicherheit werden die Standardabweichungen  $dX$  für Messung der Ionenabnahmen  $X$  in Abbildung 3.18 gegen letztere aufgetragen. Ein linearer Fit durch die Messwerte ergibt eine Steigung von  $m_{dx} = 0,045 \pm 0,01$  und einen Schnittpunkt mit der  $y$ -Achse bei  $dX(0) = 0,32$ . Somit lässt sich der Fehler der gemessenen Ionenabnahmen durch

$$dX = dX(0) + m_{dX} \cdot X \quad (3.16)$$

bestimmen.

Dieser Weg die Fehler zu bestimmen stellt nur eine erste Näherung dar, und es werden noch weitere Betrachtungen folgen müssen, um den einzelnen Effekten auf die Streuung Messwerte besser Rechnung zu tragen. Andererseits hat sich gezeigt, dass diese Betrachtung dennoch für die hier dokumentierte Datenanalyse ausreichend ist.

Beim Vergleich der beiden Wege, den Fehler der Messungen zu bestimmen fällt auf, dass die erste Methode die Streuung der Messwerte vor allem für große Ionenabnahmen un-

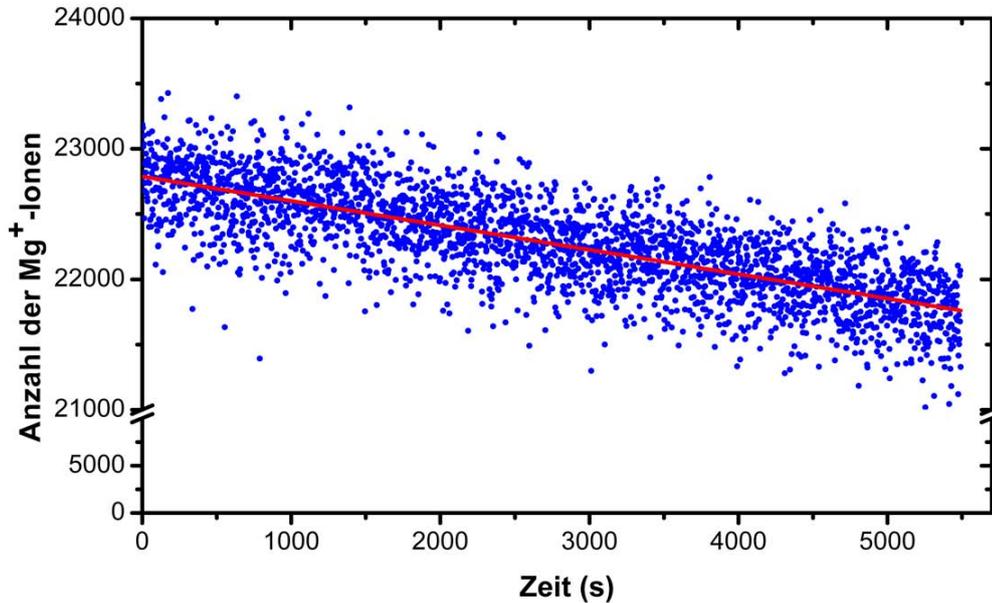


Abbildung 3.19: Messung der Anzahl der  $\text{Mg}^+$ -Ionen in einem Kristall in Abhängigkeit von der Dauer (in Sekunden), die dieser in der kryogenen Paul-Falle gespeichert wird. Der Kristall wurde über einen Zeitraum von 1,5 h beobachtet. Die Spannungswerte wurden optimiert:  $U_{DC} = 4 \text{ V}$  und  $U_{RF} = 240 \text{ V}$ . Es wurde nur die Anzahl der sichtbaren Ionen gemessen.

terschätzt. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die Effizienz der Messungen stärker von der Tagesform des experimentellen Aufbaus (Lasersysteme, Fallenaufbau) als von der Effizienzfluktuation zwischen direkt hintereinander ausgeführten Messungen abhängt. Deshalb geben die Fehlerbalken bei Graphen, in denen Messwerte von mehreren Tagen genutzt werden den Gesamtfehler, das heißt die Summe aus statistischem und systematischem Fehler an. Dabei ist der systematische Fehler der bei weitem dominierende Beitrag.

### 3.11 Bestimmung des Drucks in CryPTE<sub>x</sub>

Eine direkte Messung des Drucks im Fallenzentrum von CryPTE<sub>x</sub> mittels Drucksonden ist nicht möglich. Die Qualität des Vakuums in der kryogenen Fallenregion lässt sich jedoch anhand der Zeitspanne, über welche Ionen(-kristalle) ohne Ionenverlust in der Fallenregion gespeichert werden können, ermitteln. Für diese Messung wurde ein sehr großer Kristall aus etwa 22 000 Ionen  $\text{Mg}^+$ -Ionen erzeugt, und die Abnahme seiner Ionenanzahl über 1,5 h durch CCD-Kameraaufnahmen dokumentiert.

Es ist zu beachten, dass  $\text{Mg}^+$ -Ionen durch zwei Prozesse den Kristall verlassen können. Zunächst kann durch eine Kollision mit einem anderen Ion oder einem Restgasteilchen ein kinetischer Energieübertrag stattfinden. Dieser regt die Translationsfreiheitsgrade des Ions an und bringt es auf einen instabilen Orbit, so dass es das Fallenpotential verlassen kann.

Dieser Effekt wird durch das Optimieren der K hllaserpositionen, der K hllaserwellenl nge sowie der Werte f r die Fallenspannungen  $U_{DC}$  und  $U_{RF}$  minimiert. Zus tzlich k nnen  $Mg^+$ -Ionen mit Wasserstoff aus dem Restgas in der Falle zu  $MgH^+$  reagieren. In diesem Fall hat das  $Mg^+$ -Ion das Fallenpotential nicht verlassen, wird aber dennoch als verloren betrachtet. Beide Effekte k nnen durch die Analyse der Kristallgr  e in Abh ngigkeit von der Zeit bestimmt werden.

In Abbildung 3.19 ist die Anzahl der  $Mg^+$ -Ionen (blaue Punkte) in Abh ngigkeit von der Zeit aufgetragen. Es ist deutlich zu erkennen, dass sich die Anzahl der  $Mg^+$ -Ionen kaum  ndert. Ein Fit der Daten ergibt eine Lebensdauer von ungef hr 30 h. Zus tzlich konnte kein signifikanter Anstieg von dunklen Ionen im Kristall gemessen werden. Daraus kann geschlossen werden, dass kaum Reaktionen mit  $H_2$ , aus dem das Restgas in der Falle vorwiegend besteht, stattfinden. Als obere Schranke f r die Bestimmung der  $H_2$ -Dichte kann jedoch die ermittelte Lebensdauer verwendet werden.

Im direkten Vergleich mit der Lebensdauer von Ionen, die in der baugleichen Paul-Falle der *Ion Trap Group* gespeichert werden, l sst sich eine obere Grenze f r den Druck im Fallenzentrum absch tzen. Die Lebensdauer von  $Mg^+$ -Ionen in der Raumtemperaturfalle liegt im Bereich von  $10^2$  s bei einem Druck von  $10^{-10}$  mbar. Das entspricht einer Effizienz der Ionenspeicherung, die um einen Faktor  $10^3$  kleiner ist als die von CryPTEx. Daraus l sst sich ein Druck von  $10^{-13}$  mbar (falls die Fallenregion von Restgasteilchen bei Raumtemperatur dominiert wird) oder sogar von  $10^{-15}$  mbar (falls die Fallenregion von Restgasteilchen bei 4 K dominiert wird) absch tzen. Messungen, die im weiteren Verlauf dieses Kapitels vorgestellt werden, geben Hinweise darauf, dass der Druck im Fallenzentrum haupts chlich durch einen ballistischen Gasfluss durch die optischen Laserzug nge bestimmt wird.

# MgH<sup>+</sup>-Ionen in einer kryogenen Paul-Falle

In diesem Kapitel werden die ersten Messungen vorgestellt, die mit MgH<sup>+</sup>-Ionen in der kryogenen Paul-Falle, CryPTE<sub>x</sub>, durchgeführt wurden. Zuerst soll die wichtigste Eigenschaft der neuen Falle, die tatsächlich erreichte Temperatur in der Fallenregion, durch Messung der Verteilung der MgH<sup>+</sup>-Ionen auf die Rotationsniveaus bestimmt werden. In einer zweiten Messung wird die Verteilung zusätzlich durch einen Laser beeinflusst und dann gemessen. Beide Ergebnisse werden mit analogen Experimenten in Paul-Fallen bei Raumtemperatur verglichen [21]. Außerdem wird durch zeitabhängige Messungen der Rotationsniveaubesetzungszahlen von MgH<sup>+</sup> die Dynamik des Prozesses der Gleichgewichtseinstellung in der Hauptfalle und im Vorfallenbereich untersucht und verglichen. Zuletzt soll die Bestimmung der Größenordnungen der Wechselwirkungskonstanten für benachbarte Rotationsniveaus einen Einblick in die Dynamik innerhalb des Schwingungsgrundniveaus  $|\nu = 0, J\rangle_X$  geben.

## 4.1 Bestimmung einer Temperatur für den Fallenbereich von CryPTE<sub>x</sub>

Wie zum Beispiel in [52] vorgeschlagen, kann die Rotationsniveaustuktur eines Moleküls genutzt werden um Temperaturen in einer experimentellen Umgebung zu messen. Bisher wurde die Besetzung der Rotationsniveaus von MgH<sup>+</sup> (und auch von polaren Molekülen im Allgemeinen) nur in Umgebungen bei Raumtemperatur vermessen. Hier sollen nun die Besetzungszahlen der Rotationsniveaus von MgH<sup>+</sup>-Ionen gemessen werden, die im thermischen Gleichgewicht mit der BBR des 4 K-Fallenbereichs von CryPTE<sub>x</sub> sind.

Dafür wird ein Ionenkristall vorbereitet, der insgesamt aus etwa 15.000 Ionen besteht, von denen etwa 2/3 bis 3/4 MgH<sup>+</sup>-Ionen sind. Um die Besetzungszahlen zu bestimmen, wird die Wellenlänge des 281 nm-Lasers durchgestimmt und die Anzahl der dissoziierten

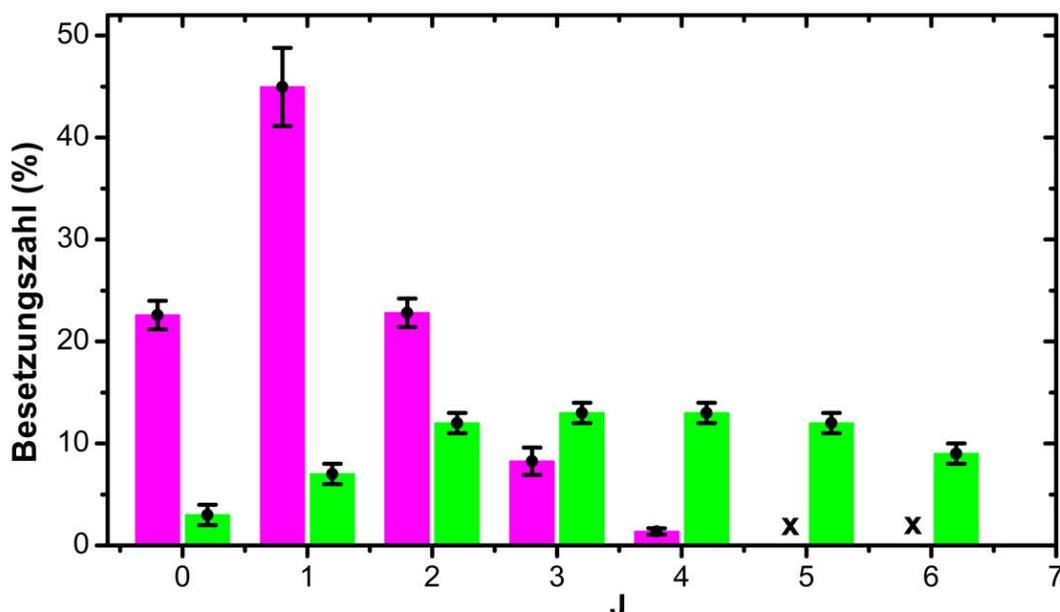


Abbildung 4.1: Die Messung der Besetzungszahlen der Rotationsniveaus (bis zum Niveau  $J = 4$ ) des Schwingungsgrundzustands ( $|\nu = 0, J\rangle_X$ ) von  $\text{MgH}^+$ -Ionen, die sich in der kryogenen Umgebung von CryP-TE<sub>x</sub> befinden ist dargestellt. Die durch „x“ markierten Rotationsniveaus wurden für diese Übersicht nicht vermessen. Die Messung der R(0)-, P(1)-, P(2)-, P(3)- und R(4)-Übergänge wurden hier für den Effekt der Niveautartung und mit der Dissoziationseffizienz korrigiert. Zum Vergleich sind die Messungen (in grün), die an  $\text{MgH}^+$ -Ionen in einer Paul-Falle bei Raumtemperatur erfolgten, aus [21] aufgetragen.

Moleküle pro Dissoziationspuls gemessen. Dabei wurde die Besetzung der Niveaus von  $J = 0, 1, 2, 3$  und 4 anhand der Übergänge R(0), P(1), P(2), P(3) und R(4) untersucht. Die gemessenen Ionenabnahmen werden für den Effekt der Entartung der Energieniveaus sowie den Effekt der Ionisation durch zwei 266 nm-Photonen korrigiert. Sie sind zudem durch Verwendung der Dissoziationseffizienz normiert, so dass die Summe aller Besetzungszahlen 100 % ergibt.

Der Vergleich mit den Messungen in einer Paul-Falle bei Raumtemperatur in Abbildung 4.1 verdeutlicht, dass es durch die kryogene Falle gelungen ist die Besetzung der Rotationsniveaus signifikant in den Bereich der niedrigsten vier Rotationsniveaus zu verschieben. Im Vergleich mit der Besetzung der Rotationsniveaus bei Raumtemperatur wurden die Besetzungszahlen des ( $J = 0$ )- und des ( $J = 1$ )-Niveaus um einen Faktor 6 erhöht. Die Besetzung des ( $J = 3$ )-Niveaus wurde um einen Faktor 2 erhöht. Die Besetzung der höheren Rotationsniveaus ist so weit reduziert, dass für das Niveau  $J = 4$  eine 10-fach verringerte Besetzung gemessen wurde. Da die Besetzung dieses Zustands nur noch 1 % beträgt und es sich hier um eine Boltzmann-Verteilung handelt, kann davon ausgegangen werden, dass die höheren Rotationsniveaus vollständig geleert sind.

Im Vergleich mit der theoretisch erwarteten Besetzung der Rotationsniveaus, die in Abbildung 4.1 vorgestellt wurde, fällt jedoch auf, dass die Besetzung der zwei niedrigsten

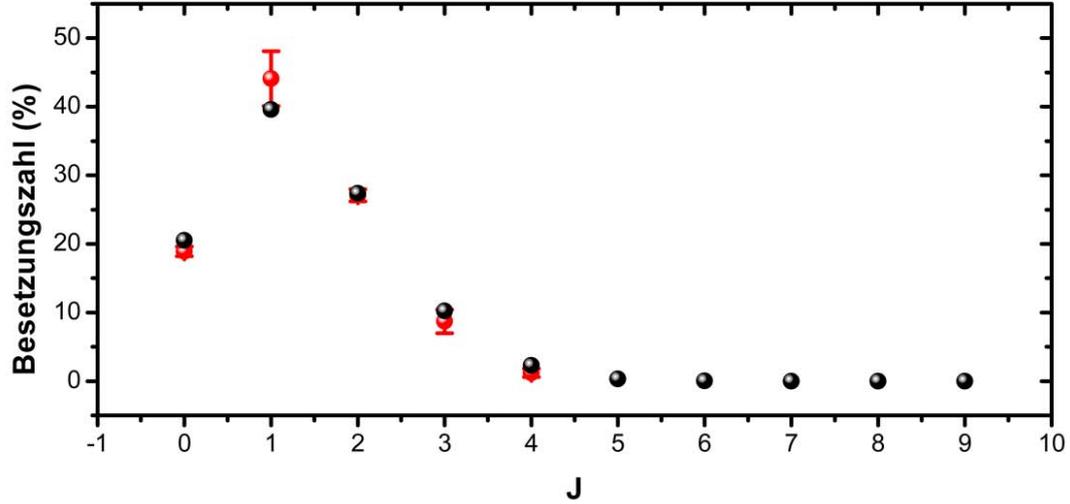


Abbildung 4.2: Vergleich der gemessenen Rotationsniveaubesetzung im thermischen Gleichgewicht mit der kryogenen Fallenumgebung (rote Punkte) und dem Verlauf der Boltzmannverteilung für eine Temperatur von 41,9 K (schwarze Punkte).

Rotationszustände deutlich kleiner als erwartet ist. In Abbildung 4.2 ist an die Messung der Besetzungszahl in CryPTE<sub>x</sub> (in rot) der theoretische Boltzmannverteilungsverlauf der Verteilung über die Rotationsniveaus angepasst worden. Dieser theoretische Verlauf der Besetzungszahl  $B_{Ion}(T)$  in Abhängigkeit von der Temperatur  $T$  der BBR ergibt sich aus

$$B_{Ion}(T) = \frac{1}{Z} (2J + 1) \exp\left(-\bar{B} \frac{J(J + 1)}{k_B T}\right). \quad (4.1)$$

Hierbei ist die Rotationskonstante von  $\text{MgH}^+$  im elektronischen und Schwingungsgrundzustand durch  $\bar{B} = 6,441 \text{ cm}^{-1}$  [113] gegeben,  $Z$  ist der Normierungsfaktor. Mit einem Wert von  $k_B = 0,691 \text{ cm}^{-1}$  ergibt sich für die Temperatur nach optischer Anpassung des theoretischen Verlaufs der Wert

$$T_{kryo} = (41,9 \pm 2,0) \text{ K} \quad (4.2)$$

mit  $Z = 0,205$ . Diese Temperatur der Verteilung ist etwa um einen Faktor zehn größer als die erwartete Temperatur von 4 K. Allerdings handelt es sich hier nicht um die reine Temperatur einer BBR mit der die Ionen im thermischen Gleichgewicht sind. Bei der Angabe einer Temperatur im Fallenbereich von CryPTE<sub>x</sub> muss berücksichtigt werden, dass es hier weitere Einflüsse gibt, die die Besetzung der Rotationsniveaus bestimmen. Zusätzlich zur BBR, die von Bereichen bei 297 K stammt und deren Anteil am Raumwinkel zu 2 % abgeschätzt wurde, gibt es Restgasteilchen (vor allem  $\text{H}_2$ ), die aus diesem Temperaturbereich durch die optischen Zugänge in die Falle strömen. Das Restgas, dessen

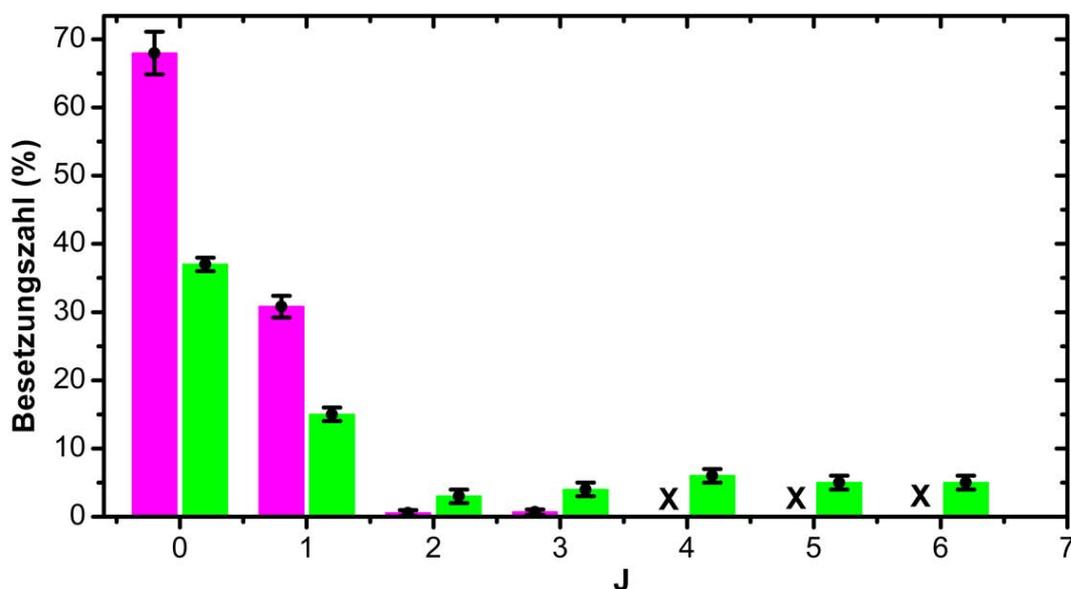


Abbildung 4.3: Messung der Besetzungszahlen der Rotationsniveaus von  $\text{MgH}^+$  in CryPTEx und mit zusätzlicher Rotationskühlung durch den QCL bis zum Niveau  $J=3$  des Schwingungsgrundzustands. Die Messung der R(0)-, R(1)-, P(2)- und P(3)-Übergänge wurden für den Effekt der Niveaumentartung und mit der Dissoziationseffizienz korrigiert. Die durch „x“ markierten Rotationsniveaus wurden hier nicht vermessen. Zum Vergleich sind die Messungen (in grün) für  $\text{MgH}^+$ -Ionen in einer Raumtemperaturfalle mit zusätzlicher Rotationskühlung durch QCL aus [21] aufgetragen.

Teilchendichte in Kapitel 2.2 abgeschätzt wurde, kann durch Stöße mit den Molekülonen diese aufheizen, somit zu einer Umbesetzung der Rotationsniveaus führen und dadurch die gemessene Temperatur bedingt haben. Ob es sich bei dieser höheren Temperatur um einen Effekt, der auf die Unterschätzung des Raumwinkelanteils der 297 K-BBR entsteht, handelt kann nicht ohne weitere Experimente vollständig verifiziert werden.

## 4.2 Rotationskühlung durch kryogene BBR und Laser

Bisher wurden  $\text{MgH}^+$ -Ionen von der *Ion Trap Group* in Paul-Fallen bei Raumtemperatur gespeichert und deren Rotationszustände in dieser Umgebung manipuliert. Dabei wurde die Rotationsniveaubesetzung der  $\text{MgH}^+$ -Ionen im thermischen Gleichgewicht mit der Raumtemperaturumgebung sowie mittels zusätzlicher Manipulation durch den QCL vermessen. Das Ergebnis beider Messungen wurde bereits in [21] veröffentlicht und diskutiert. Durch Hinzunahme des QCL ist es möglich die Besetzung der untersten Rotationszustände von  $\text{MgH}^+$ -Ionen in der kryogenen Paul-Falle noch weiter, hin zu den niedrigsten Rotationsniveaus, zu transferieren. Um den Effekt dieser zusätzlichen Manipulation zu untersuchen werden die Messungen aus Kapitel 4.1, nun aber bei eingeschaltetem QCL, wiederholt. In Abbildung 4.3 sind zu Vergleichszwecken die Besetzungszahlen der Messungen in der

Tabelle 4.1: Vergleich der Besetzungszahlen der Rotationsniveaus für  $\text{MgH}^+$  (alle Angaben in %) in einer Paul-Falle bei Raumtemperatur (entnommen aus [21]), in einer Paul-Falle bei Raumtemperatur mit Rotationskühlung durch QCL (entnommen aus [21]), in einer kryogenen Falle (Ergebnisse dieser Arbeit), sowie in einer kryogenen Falle mit Rotationskühlung durch QCL (Ergebnisse dieser Arbeit).

$\nu = 0, J$	297 K	297 K und QCL	4 K	4 K und QCL
0	$3 \pm 1$	$37 \pm 1$	$18,9 \pm 0,7$	$68,0 \pm 3,1$
1	$7 \pm 1$	$15 \pm 1$	$44,1 \pm 4,0$	$30,8 \pm 1,6$
2	$12 \pm 1$	$3 \pm 1$	$27,1 \pm 0,9$	$0,5 \pm 0,4$
3	$13 \pm 1$	$4 \pm 1$	$8,7 \pm 1,717$	$0,7 \pm 0,4$
4	$13 \pm 1$	$6 \pm 1$	$1,2 \pm 0,6$	-

kryogenen Paul-Falle und der Paul-Falle bei Raumtemperatur graphisch dargestellt. Es ist zu erkennen, dass es durch die Anwendung des QCLs gelungen ist die Besetzung von den zwei niedrigsten Niveaus  $J = 0$  und  $J = 1$  zu maximieren. Dabei wird im Vergleich mit den Messungen an, mittels QCL, rotationsgekühlten  $\text{MgH}^+$ -Ionen in einer Raumtemperaturfalle die Besetzung dieser Niveaus in etwa verdoppelt. Darüber hinaus ist die Besetzung der Niveaus oberhalb von  $J = 1$  auf Werte unter 1% abgesenkt worden. Dies ist auf die kryogene BBR von CryPTEEx zurückzuführen: diese führt durch eine geringe Energiedichte bei höheren Frequenzen im Gegensatz zu der 297 K-BBR nicht mehr zu einer dauerhaften Umverteilung der Besetzung in höhere Rotationszustände.

In Tabelle 4.1 sind zum Vergleich die vier Fälle, bei denen die Besetzungszahlen der niedrigsten Rotationsniveaus im Schwingungsgrundzustand von  $\text{MgH}^+$ -Molekülonen bestimmt wurden, aufgeführt. Es handelt sich dabei um Messungen mit und ohne QCL-Manipulation jeweils bei Raumtemperatur und in der kryogenen Umgebung von CryPTEEx. Die Fehlerangaben der Messungen in CryPTEEx sind hier jedoch rein statistischer Natur und nur für die Momentaufnahmen der Besetzungszahlen gültig, welche die Messungen darstellen. Bei Bestimmungen der Ionenabnahmen an verschiedenen Tagen wurden größere systematische Schwankungen beobachtet, als es die Fehler angeben. Andere systematische Fehler sind hier nicht miteinbezogen worden. Ein Einblick in die Auswirkungen dieser Fluktuation erfolgt am Ende dieses Kapitels durch den Vergleich von Wechselwirkungsraten, die aus Besetzungszahlen von verschiedenen Tagen ermittelt wurden.

### 4.3 Einflüsse auf Ionen in Haupt- und Vorfälle

Die Vorfälle der kryogenen Paul-Falle ist nur durch zwei optische Zugänge erreichbar. Dieser Umstand hat zur Folge, dass Ionen in diesem Bereich weniger BBR und Restgaspartikeln, die jeweils ihren Ursprung in Bereichen bei Raumtemperatur haben, ausgesetzt sind. Die Absenkung dieser äußeren Einflüsse ist recht groß, so dass diese bei Messungen der Einstellungsdynamik eines thermischen Gleichgewichts mit der Umgebung in Haupt-

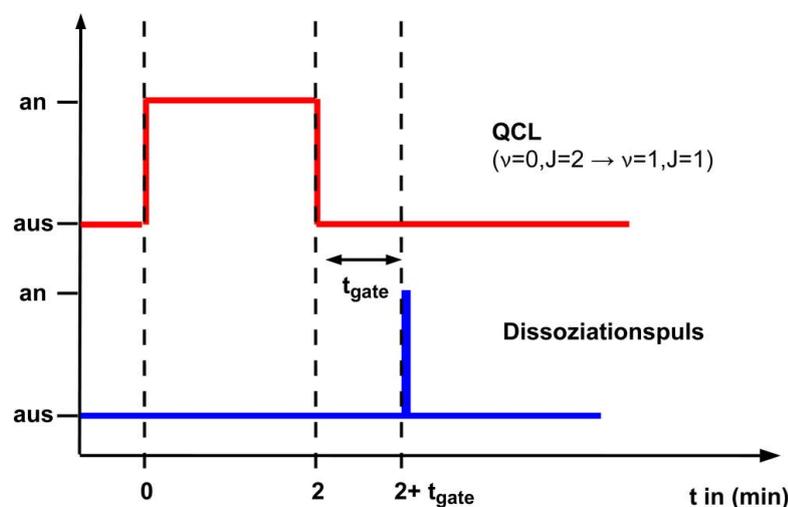


Abbildung 4.4: Schematische Darstellung der Messung der Zeit bis zur Einstellung des thermischen Gleichgewichts mit der BBR der kryogenen Falle. Zuerst werden die Ionen für 2 min mittels QCL rotationsgekühlt, bis die Besetzung der Rotationsniveaus ein neues Gleichgewicht erreicht hat. Dann wird der QCL ausgeschaltet und in verschiedenen Zeitabständen  $t_{\text{gate}}$  nach dem Ausschalten wird die Ionenabnahme durch Dissoziation gemessen.

falle und Vorfälle zu beobachten sein muss.

Im Folgenden werden Messungen vorgestellt, bei denen der Kristall sich entweder in der Hauptfalle befindet oder aus dem Sichtfeld des optischen Systems in Richtung der Vorfalle verschoben wird. Dazu wird an die Mittelelektroden der Hauptfalle eine Spannung von 2 V angelegt und die, zur Vorfalle gelegenen Endkappenelektroden geerdet. Somit kann der Kristall das Zentrum der Hauptfalle verlassen und wird bei der Erhöhung des Potentials an den entsprechenden Endkappenelektroden der Hauptfalle weiter in Richtung Vorfalle verschoben. An den Mittelelektroden der Vorfalle ist eine Spannung von 4 V angelegt, damit der Kristall die Falle nicht verlassen kann. Aufgrund von experimentellen Einschränkungen konnte nicht sichergestellt werden, dass der Kristall entlang der  $z$ -Achse vollständig bis hin in den Bereich der Vorfalle verschoben wird. Die Reduktion des Raumwinkels für BBR und Restgasteilchen sollte jedoch schon direkt neben dem Zentrum der Hauptfalle sichtbar werden und einen ersten Einblick in die Änderung der Dynamik geben, was sich im Experiment bestätigen lässt.

Um den Effekt der unterschiedlichen äußeren Einflüsse auf Ionenkristalle in den zwei Fallenbereichen zu beobachten werden die Ionenabnahmen des  $|\nu = 0, J = 0\rangle$ -Zustands in Abhängigkeit der Zeit  $t_{\text{gate}}$  gemessen, nachdem der QCL ausgeschaltet wurde. Der Ablauf dieser Messung ist schematisch in Abbildung 4.4 dargestellt. Diese Messung erlaubt es herauszufinden wie schnell die Molekülionen in das thermische Gleichgewicht mit der BBR der kryogenen Falle im Hauptfallen- oder Vorfallenbereich zurückkehren nachdem der QCL für 2 min eingeschaltet war und dann ausgeschaltet wird.

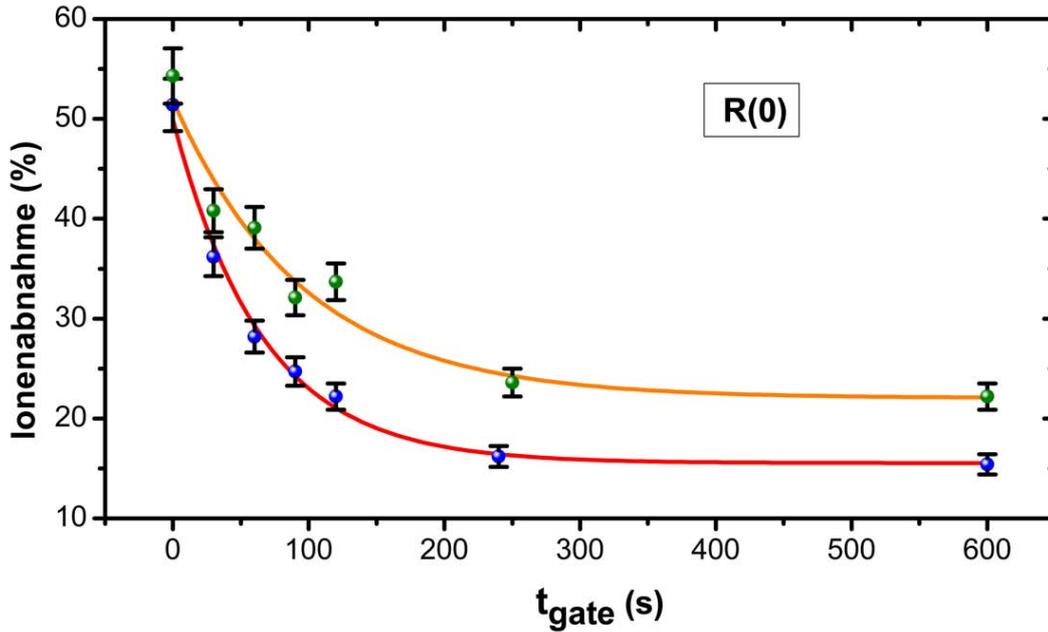


Abbildung 4.5: Messung der Ionenabnahme zu verschiedenen Zeiten  $t_{gate}$  nachdem der QCL ausgeschaltet wurde. Die Daten für  $MgH^+$ -Ionen in der Hauptfalle (blaue Punkte) und im Bereich der Vorfälle (grüne Punkte) wurden mit einem exponentiellen Abfall angepasst.

In der Abbildung 4.5 ist diese Messung für Ionen in der Hauptfalle (in blau) und für Ionen in der Vorfälle (in grün) dargestellt. An beide Datenreihen wird ein exponentieller Abfall (in orange und in rot dargestellt) angepasst, welche jeweils eine Zeitkonstante  $\tau$  und die dazugehörige Zerfallskonstante  $\Gamma$  des Prozess der Gleichgewichtseinstellung in der Hauptfalle und dem Bereich der Vorfälle ergeben:

$$\tau_{HF} = (65,6 \pm 5,3) \text{ s} \quad \Gamma_{HF} = (15 \pm 1) \text{ mHz} \quad (4.3)$$

$$\tau_{VF} = (96,2 \pm 20,8) \text{ s} \quad \Gamma_{VF} = (10 \pm 2) \text{ mHz}. \quad (4.4)$$

Daraus lässt sich ableiten, dass für Molekülionen im Vorfällenbereich eine größere Zeitspanne für die Einstellung des thermischen Gleichgewichts notwendig ist. Sie sind somit weniger äußeren Einflüssen ausgesetzt, wie zum Beispiel von 297 K kommenden Restgasteilchen, die das Zurückkehren in das Gleichgewicht durch Stöße beschleunigen.

Die Graphen verdeutlichen außerdem, dass es für den Fall des thermischen Gleichgewichts, also  $t \rightarrow \infty$ , für Hauptfalle und Vorfälle verschiedene Werte der Ionenabnahme gibt. Das bedeutet, dass Ionenkristalle in den verschiedenen Fallenbereichen verschiedene Verteilungen im thermischen Gleichgewicht mit der kryogenen Umgebung erreichen. Aus den

Graphen 4.5 lassen sich aus den angepassten exponentiellen Kurven die Werte

$$A_{HF} = (15,5 \pm 0,6) \% \quad A_{VF} = (22,1 \pm 1,6) \% \quad (4.5)$$

für die Ionenabnahmen bei der Messung des R(0)-Übergangs in der Haupt- und dem Bereich der Vorfalle ermitteln.

Der Unterschied dieser Werte ist offenbar auf den kleineren Raumwinkel der 297 K-BBR und der von 297 K kommenden Restgasteilchen zurückzuführen, den die Ionen in der Vorfalle sehen. Dies führt dazu, dass die Ionen weniger durch Absorption von Photonen aus der BBR und Stöße mit Restgasteilchen aufgeheizt werden. Somit können sie durch Wechselwirkung mit der kryogenen BBR der Falle stärker abkühlen und eine höhere Besetzungszahl im niedrigsten Schwingungs- und Rotationszustand  $|\nu = 0, J = 0\rangle$  kann erreicht werden.

Laut der Simulationen zur Gleichgewichtseinstellung, die in Kapitel 3.5 vorgestellt wurden, ist das thermische Gleichgewicht mit der kryogenen Umgebung von CryPTE<sub>x</sub> erst nach 20 Minuten erreicht. Aus den Messungen dieses Kapitels lässt sich jedoch ableiten, dass die Dynamik der Gleichgewichtseinstellung mit der kryogenen BBR viel schneller als erwartet abläuft und das Gleichgewicht früher erreicht wird. In den darauf folgenden Messungen wird den Molekülonen deshalb nur eine Zeit von  $t_{equ} = 4$  min zur thermischen Gleichgewichtseinstellung mit der kryogenen BBR gegeben. Diese Zeit entspricht ungefähr dem Vierfachen der Zeitkonstante  $\tau_{HF}$ , die für den Prozess der Gleichgewichtseinstellung in dem Hauptfallenbereich von CryPTE<sub>x</sub> gefunden wurde. Wenn zusätzlich der QCL verwendet wird, ist ein Zeitraum von  $t_{equ}^{QCL} = 2$  min für das Erreichen des thermischen Gleichgewichts ausreichend. Dieser Wert hat seinen Ursprung in den Simulationen zum Verlauf der Besetzungszahlen bei eingeschaltetem QCL (vergleiche Abbildung 3.11). Hier ist auf den Abbildung zu erkennen, dass die Besetzungszahlen nach etwa 1 min einen konstanten Wert erreichen; zur Sicherheit wurde jedoch die doppelte Zeitspanne gewählt.

#### 4.4 Wechselwirkung zwischen den niedrigsten Rotationsniveaus

Um die Darstellung der Vorgänge im MgH<sup>+</sup>-Molekül auf das Wesentliche zu reduzieren wird in den folgenden Überlegungen das MgH<sup>+</sup>-Molekül als ein System betrachtet, das nur aus fünf Niveaus besteht, wie in Abbildung 4.6 dargestellt. Es besteht aus den vier niedrigsten Rotationsniveaus im Schwingungsgrundzustand sowie dem ersten angeregten Rotationszustand im ersten angeregten Schwingungszustand, wobei alle Niveaus im elektronischen Grundzustand X<sup>1</sup>Σ<sup>+</sup> liegen. Die Besetzungszahlen der Rotationsniveaus sind durch  $N_a$  für  $|\nu = 0, J = 0\rangle$ ,  $N_b$  für  $|\nu = 0, J = 1\rangle$ ,  $N_c$  für  $|\nu = 0, J = 2\rangle$ ,  $N_d$  für

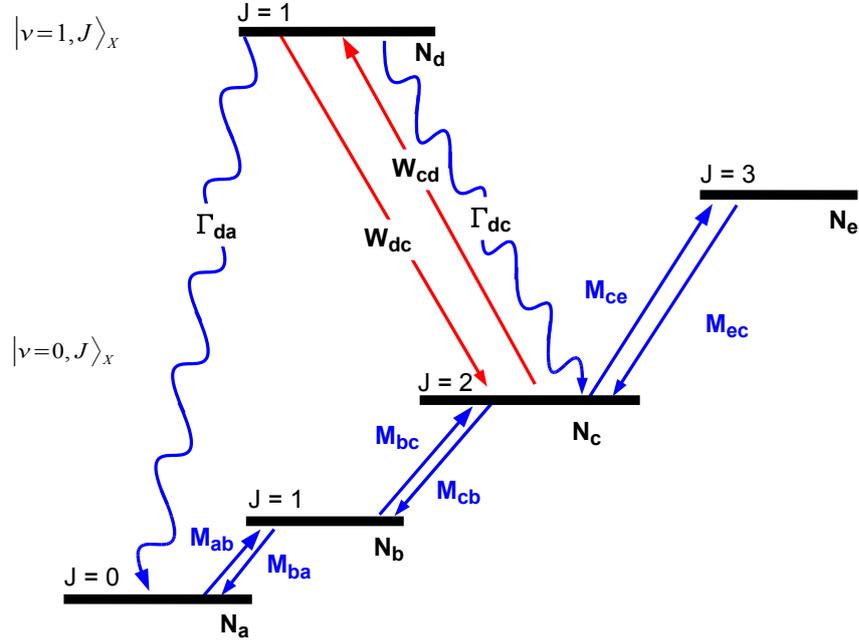


Abbildung 4.6: Übersicht der MgH<sup>+</sup>-Niveaustuktur für den stark vereinfachten Fall, bei dem sich die wesentlichen Vorgänge innerhalb der dargestellten fünf Niveaus innerhalb des elektronischen Grundzustands X<sup>1</sup>Σ<sup>+</sup> abspielen. Zusätzlich zu den relevanten Niveaus sind die verschiedenen Koeffizienten der möglichen radiativen Übergänge  $\Gamma_{ij}$ , Wechselwirkungen  $M_{ij}$  und Laseranregungen  $W_{ij}$  dargestellt

$|\nu = 1, J = 1\rangle$  und  $N_e$  für  $|\nu = 0, J = 3\rangle$  gegeben. Die zeitliche Änderung der Besetzungszahlen der verschiedenen Niveaus wird durch  $N_i(t)$  beschrieben, mit einem Satz gekoppelter Differenzialgleichungen:

$$\dot{N}_a(t) = \Gamma_{da}N_d(t) - M_{ab}N_a(t) + M_{ba}N_b(t) \quad (4.6)$$

$$\dot{N}_b(t) = -(M_{ba} + M_{bc})N_b(t) + M_{ab}N_a(t) + M_{cb}N_c(t) \quad (4.7)$$

$$\dot{N}_c(t) = \Gamma_{dc}N_d(t) + M_{bc}N_b(t) - M_{cb}N_c(t) + W_{dc}N_d(t) - W_{cd}N_c(t) \quad (4.8)$$

$$\dot{N}_d(t) = -(\Gamma_{da} + \Gamma_{dc})N_d(t) + W_{cd}N_c(t) - W_{dc}N_d(t) \quad (4.9)$$

$$\dot{N}_e(t) = M_{ce}N_c(t) - M_{ec}N_e(t) \quad (4.10)$$

Dabei werden die Raten  $\Gamma_{da}$  und  $\Gamma_{dc}$  für die spontane Emission von Niveau  $|0,0\rangle$  zum Niveau  $|0,2\rangle$  und  $|1,1\rangle$  verwendet. Die Raten  $W_{cd}$  und  $W_{dc}$  beschreiben die Absorption und die stimulierte Emission, beide werden durch den QCL hervorgerufen. Zudem werden die Raten  $M_{ij}$  benutzt, um die Wechselwirkungen der Ionen mit der BBR und dem Restgas zu beschreiben, und die dadurch hervorgerufenen Umverteilung der Besetzungszahlen unter den Rotationsniveaus im Schwingungsgrundzustand  $|\nu = 0, J\rangle_X$ .

Für die Bestimmung der Wechselwirkung zwischen den Rotationsniveaus, die bei MgH<sup>+</sup>-

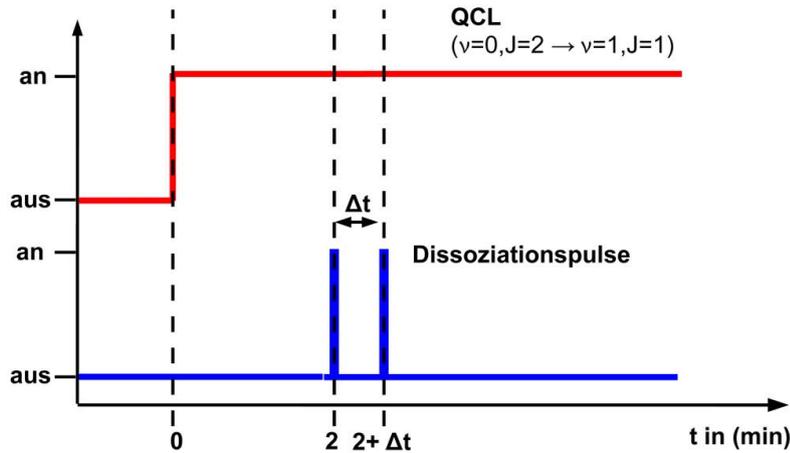


Abbildung 4.7: Messschema für die Bestimmung der Zeitabhängigkeit von den Besetzungszahlen der Niveaus  $J = 0$  und  $J = 1$ . Dargestellt sind die zeitlichen Verläufe des Ein- und Ausschaltens von dem QCL und dem Dissoziationspuls. Der QCL bleibt für 2 min eingeschaltet, bis die Besetzung der Rotationsniveaus ein neues Gleichgewicht erreicht hat. Dann wird das jeweilige Niveau durch einen ersten Dissoziationspuls geleert. Nach einer Zeit  $\Delta t$  wird die Ionenabnahme des zuvor geleerten Niveaus durch einen weiteren Dissoziationspuls gemessen.

Ionen in der kryogenen Paul-Falle besetzt sind, soll nun das Auffüllen beziehungsweise das Entleeren der beteiligten Rotationsniveaus untersucht werden. Die Größenordnung der Wechselwirkungsraten  $M_{ij}$  zwischen den ersten drei niedrigsten Rotationsniveaus ( $J = 0$  bis  $J = 2$ ) kann durch die Messung der Zeitkonstanten des Auffüllprozesses dieser Niveaus bestimmt werden. Wie in Abbildung 4.7 schematisch dargestellt, werden zur Bestimmung dieser Zeitkonstanten die Rotationsniveaus  $J = 0$  und  $J = 1$  zuerst durch einen Dissoziationspuls gezielt geleert. Anschließend wird durch einen R(0)- oder einen R(1)-Übergang die Ionenabnahme des gerade geleerten Niveaus in Abhängigkeit der Zeit  $\Delta t$  gemessen, die seit dem vorangegangenen Dissoziationspuls vergangen ist. Der QCL ist zwei Minuten vor dem Start der Messung und während der Messung eingeschaltet. Auf diese Weise kann gemessen werden wie schnell sich die geleerten Niveaus wieder auffüllen. Daraus lässt sich wiederum die Effizienz bestimmen, mit der sich die Besetzungszahlen der niedrigsten Rotationsniveaus vermischen.

In einem weiteren Spezialfall können zusätzliche Annahmen zu noch größeren Vereinfachungen führen. Bei eingeschaltetem QCL sind nach dem Erreichen des thermischen Gleichgewichts vorwiegend die Rotationsniveaus  $J = 0$ ,  $J = 1$  und  $J = 2$  des Schwingungsgrundzustands besetzt. Somit ist es ausreichend, diese Niveaus in ein Modell der Messung für die Beschreibung der Vorgänge im Molekül bei eingeschaltetem QCL mit einzubeziehen. Zur Vereinfachung wird das  $\text{MgH}^+$ -Molekül nun als 3-Zustandssystem betrachtet. Eine Übersicht über die verwendeten Niveaus und die Wechselwirkungen zwischen den Niveaus ist in Abbildung 4.8 dargestellt. Dabei sind auch die Übergänge R(0) und R(1) angegeben, die für die Messung genutzt werden. Es werden nur die Besetzungszahlen

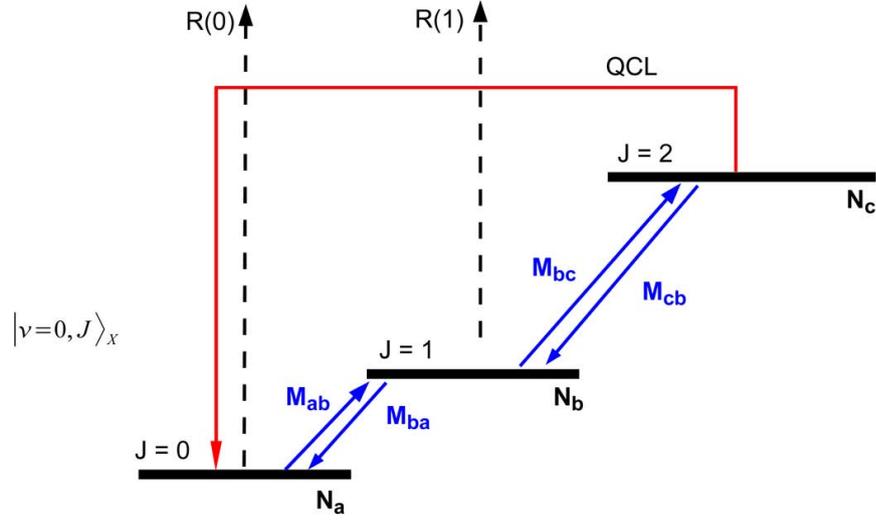


Abbildung 4.8: Vereinfachtes Schema des  $\text{MgH}^+$ -Moleküls. Es werden nur die drei niedrigsten Rotationsniveaus  $J = 0$ ,  $J = 1$  und  $J = 2$  betrachtet. Der Einfluss des QCLs ist durch den roten Pfeil zwischen  $J = 2$  und  $J = 1$  dargestellt.

$N_a(t)$ ,  $N_b(t)$  und  $N_c(t)$  der Rotationsniveaus  $J = 0$ ,  $J = 1$  und  $J = 2$ , sowie die Wechselwirkungsraten  $M_{ab}$ ,  $M_{ba}$ ,  $M_{bc}$  und  $M_{cb}$  verwendet. Das System lässt sich nach dem Erreichen des thermischen Gleichgewichts durch die vereinfachten gekoppelten Differentialgleichungen beschreiben

$$\dot{N}_a(t) = (M_{ba} + M_{bc})N_b(t) - M_{ab}N_a(t) \quad (4.11)$$

$$\dot{N}_b(t) = M_{ab}N_a(t) - (M_{ba} + M_{bc})N_b(t) \quad (4.12)$$

$$\dot{N}_c(t) = 0. \quad (4.13)$$

Hierbei wurde verwendet, dass  $N_c(t) = 0$  gilt. Zusätzlich kann angenommen werden, dass  $N_c$  mittels QCL über den Zustand  $|\nu = 1, J = 1\rangle$  mit  $N_a$  verbunden ist. Die dazugehörige Rate ist im Vergleich mit den  $M_{ij}$  so groß (vergleiche Kapitel 5), dass alle Molekülonen, die durch  $M_{bc}$  in das Niveau  $N_c$  gelangen, direkt nach  $N_a$  transportiert werden. Zu beachten ist, dass der Transport nur in diese eine Richtung stattfindet. Dieser Ansatz wurde durch numerische Simulationen mit dem Programm *Mathematica* [117] verifiziert. Dabei wurde das Gleichungssystem, bestehend aus allen fünf betrachteten Niveaus, gelöst. Abweichungen von den Wechselwirkungsraten, die durch das weiter vereinfachte Modell entstehen lagen im Bereich von 2 % und damit innerhalb der Fehlergrenzen (siehe unten). Außerdem gilt im thermischen Gleichgewicht  $N_a + N_b = 1$ . Dies führt zu den entkoppelten

Differentialgleichungen:

$$\begin{aligned}\dot{N}_a(t) &= (M_{ba} + M_{bc})(1 - N_a(t)) - M_{ab}N_a(t) \\ &= (M_{ba} + M_{bc}) - (M_{ab} + M_{ba} + M_{bc})N_a(t)\end{aligned}\quad (4.14)$$

$$\begin{aligned}\dot{N}_b(t) &= M_{ab}(1 - N_a(t)) - M_{ba} + M_{bc})N_b(t) \\ &= M_{ab} - (M_{ab} + M_{ba} + M_{bc})N_b(t).\end{aligned}\quad (4.15)$$

Die allgemeine Lösung für  $N_a(t)$ , mit der Konstante  $C_a$ , ergibt sich zu

$$N_a(t) = C_a \cdot e^{-(M_{ab}+M_{ba}+M_{bc})t} + \frac{M_{ba} + M_{bc}}{M_{ab} + M_{ba} + M_{bc}}. \quad (4.16)$$

Als Anfangsbedingung für die R(0)-Messung kann nun angenommen werden, dass das  $|\nu = 0, J = 0\rangle$ -Niveau zu Beginn leer ist,  $N_a(0) = 0$ , und sich somit alle Ionen im Zustand  $|\nu = 0, J = 1\rangle$  befinden. Dies führt zur speziellen Lösung

$$N_a(t) = \frac{M_{ba} + M_{bc}}{M_{ab} + M_{ba} + M_{bc}} \cdot \left(1 - e^{-(M_{ab}+M_{ba}+M_{bc})t}\right). \quad (4.17)$$

Für die allgemeine Lösung für  $N_b(t)$ , mit der Konstante  $C_b$  findet sich

$$N_b(t) = C_b \cdot e^{-(M_{ab}+M_{ba}+M_{bc})t} + \frac{M_{ab}}{M_{ab} + M_{ba} + M_{bc}}. \quad (4.18)$$

Im Falle der R(1)-Messung gilt  $N_b(0) = 0$  als Anfangsbedingung, da dieses Niveau zu Anfang geleert wird. Zusätzlich ist angenommen worden, dass der Zustand  $|\nu = 0, J = 2\rangle$  ebenfalls unbesetzt ist, weil er durch den QCL geleert wird. Dies ist wichtig, da die Übergänge R(1) und R(2) so nahe beieinander liegen, dass sie mit den vorhandenen Lasern nicht aufgelöst werden können (vergleiche Abbildung 3.12). Dies führt zur speziellen Lösung

$$N_b(t) = \frac{M_{ab}}{M_{ab} + M_{ba} + M_{bc}} \cdot \left(1 - e^{-(M_{ab}+M_{ba}+M_{bc})t}\right). \quad (4.19)$$

Es stellt sich heraus, dass durch das experimentelle Bestimmen der Zeitkonstanten aus den Auffüllprozessen der Niveaus  $J = 0$  und  $J = 1$  keine direkte Messung der einzelnen Wechselwirkungskonstanten möglich ist. Vielmehr kann aus den Messungen nur ein Wert für die Summe der Wechselwirkungsraten  $M_{ab} + M_{ba} + M_{bc}$  bestimmt werden.

In Abbildung 4.9 und 4.10 sind die zeitlichen Entwicklungen der R(0)- und der R(1)-Messung der Ionenabnahme für die Niveaus  $|\nu = 0, J = 0\rangle$  und  $|\nu = 0, J = 1\rangle$  dargestellt. Nachdem die Niveaus zum Zeitpunkt  $t = 0$  geleert wurden kann beobachtet werden, wie die Werte für die Ionenabnahme steigen, sich die Rotationsniveaus also wieder mit Ionen füllen. Dabei füllen diese sich mit Ionen, die durch den Einfluss der BBR und der Stöße mit

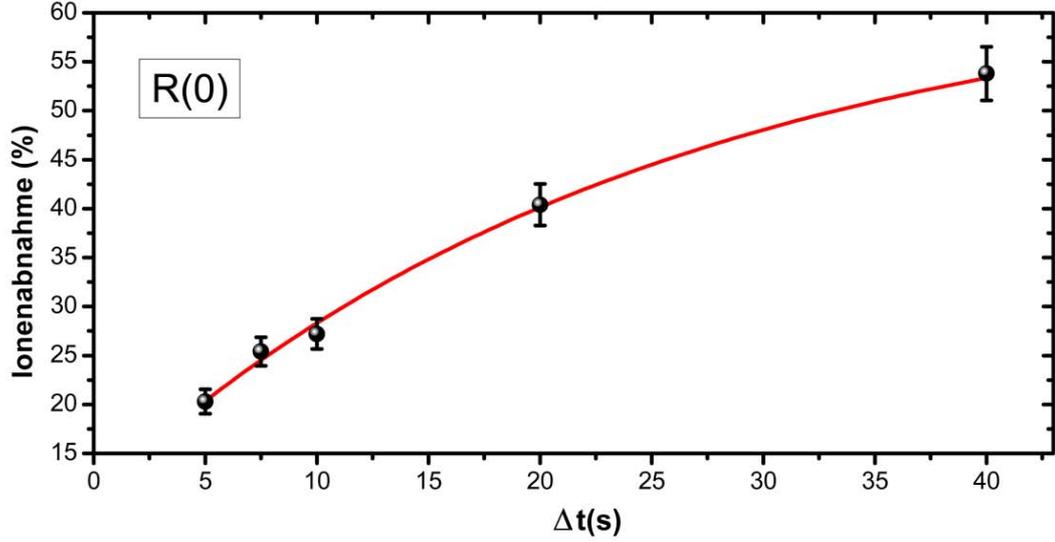


Abbildung 4.9: Messung der Ionenabnahme zu verschiedenen Zeiten  $\Delta t$  nachdem das Niveau  $|\nu = 0, J = 0\rangle_X$  geleert wurde. Der QCL ist dabei durchgängig eingeschaltet. An die Daten (schwarz) wurde eine exponentielle Kurve (rot) angepasst.

Restgasteilchen aus anderen Rotationsniveaus umverteilt werden, charakterisiert durch die Wechselwirkungsraten  $M_{ij}$ . Aus den Graphen lassen sich mittels eines exponentiellen Fits (jeweils in rot dargestellt) Werte für die Zeitkonstanten bestimmen.

Für die R(0)-Messung und für die R(1)-Messung ergeben sich die Zeitkonstanten

$$\tau_{R(0)} = (24,8 \pm 1,6) \text{ s} \quad \text{und} \quad \tau_{R(1)} = (24,7 \pm 5,6) \text{ s}. \quad (4.20)$$

Die Übereinstimmung der beiden Werte innerhalb ihrer Fehlergrenzen ist konsistent mit unserem vereinfachten Modell und der daraus folgenden Annahme, dass die Besetzungszahlen  $N_a(t)$  und  $N_c(t)$  hier durch die gleiche Zeitkonstante bestimmt werden (vergleiche Gleichungen 4.17 und 4.19).

Da die Messungen der beiden Zeitkonstanten konsistent sind, aber an verschiedenen Tagen durchgeführt wurden, ist eine Mittelwertbildung aufgrund der tagesabhängigen Effizienz des gesamten Systems nicht sinnvoll. Der aus der R(0)-Messung ermittelte Wert ist aufgrund seines kleineren Fehlers vertrauenswürdiger und soll deshalb für die folgende Abschätzung der Größenordnungen der Wechselwirkungsraten verwendet werden. Trotzdem ist wieder zu beachten, dass diese Zeitkonstante aus einer Momentaufnahme der Besetzungszahlen bestimmt wurde und ein größerer systematischer Fehler angenommen werden muss.

$$M_{ab} + M_{ba} + M_{bc} = \frac{1}{(24,8 \pm 1,6) \text{ s}}. \quad (4.21)$$

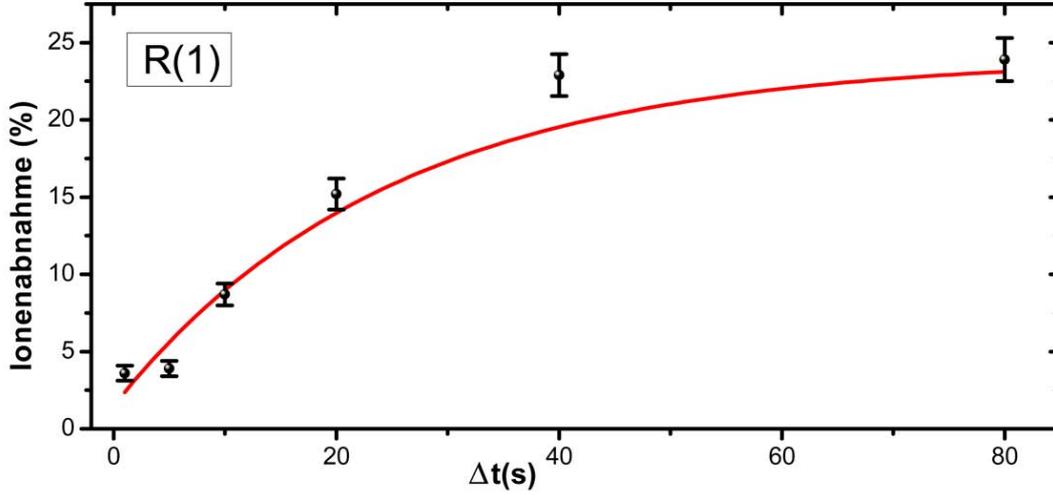


Abbildung 4.10: Messung der Ionenabnahme zu verschiedenen Zeiten  $\Delta t$  nachdem das Niveau  $|\nu = 0, J = 1\rangle$  geleert wurde. Der QCL ist dabei durchgängig eingeschaltet. An die Daten (schwarz) wurde eine exponentielle Kurve (rot) gefittet.

Aus den Messungen des vorangegangenen Kapitels ist außerdem das Verhältnis der Besetzungszahlen der beiden niedrigsten Rotationsniveaus  $\frac{N_b}{N_a} = \frac{30,8\%}{68\%} = 0,45 \pm 0,03$  für das thermische Gleichgewicht bei eingeschaltetem QCL bekannt. Da nun für das Gleichgewicht für  $t \rightarrow \infty$

$$\frac{N_b}{N_a} = \frac{M_{ab}}{M_{ba} + M_{bc}} \quad (4.22)$$

gilt, erhält man durch Gleichsetzen der beiden Zusammenhänge für  $\frac{N_b}{N_a}$ :

$$\frac{M_{ab}}{M_{ba} + M_{bc}} = 0,45 \pm 0,03. \quad (4.23)$$

Durch Einsetzen von Gleichung 4.23 in 4.21 erhält man

$$M_{ab} \left( 1 + \frac{1}{0,45 \pm 0,03} \right) = 3,22 \pm 0,22 \cdot M_{ab} = \frac{1}{(24,8 \pm 1,6) \text{ s}}. \quad (4.24)$$

Somit ergibt sich für die Wechselwirkungsrate von Niveau  $J = 0$  zu  $J = 1$

$$M_{ab} = (12,5 \pm 1,0) \text{ mHz}. \quad (4.25)$$

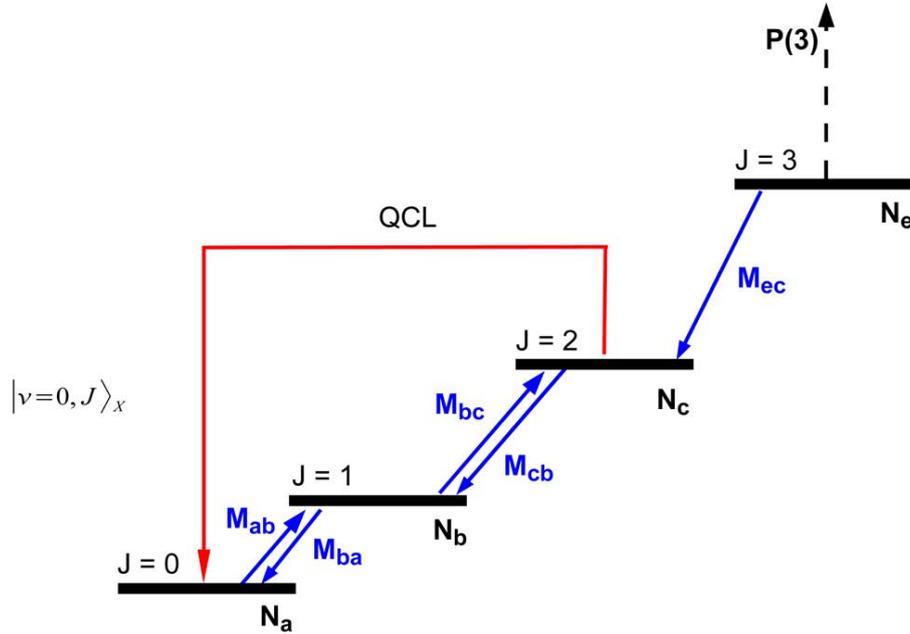


Abbildung 4.11: Messschema zur Bestimmung von  $M_{ec}$ . Die Ionenabnahme des  $|\nu = 0, J = 3\rangle$ -Niveaus wird durch den  $P(3)$ -Übergang bestimmt.

Im thermischen Gleichgewicht mit der BBR der kryogenen Paul-Falle (ohne eingeschaltetem QCL) wurde zudem aus  $\dot{N}_i = 0$  (für alle  $i$ ), der Zusammenhang

$$N_i M_{ij} = N_j M_{ji} \quad \Leftrightarrow \quad \frac{N_i}{N_j} = \frac{M_{ji}}{M_{ij}} \quad (4.26)$$

abgeleitet. Dies gilt für jeweils zwei benachbarte Besetzungszahlen  $N_i$  und  $N_j$  sowie den dazugehörigen Wechselwirkungsraten  $M_{ij}$  und  $M_{ji}$ . Das bedeutet, dass die weiteren Wechselwirkungsraten durch die Verhältnisse der Besetzungszahlen  $\frac{N_i}{N_j}$  bestimmt werden können. Aus den Messungen der Besetzungszahlen im thermischen Gleichgewicht (ohne QCL) in Kapitel 4.1 erhält man die Verhältnisse und daraus folgende Wechselwirkungsraten:

$$M_{ba} = (6,3 \pm 0,8) \text{ mHz} \quad (4.27)$$

$$M_{bc} = (21,4 \pm 1,7) \text{ mHz} \quad (4.28)$$

$$M_{cb} = (42,4 \pm 5,7) \text{ mHz}. \quad (4.29)$$

Durch eine Messung der zeitabhängigen Ionenabnahme des ( $J = 3$ )-Niveaus erhält man weitere Informationen, so dass sich die beiden Wechselwirkungsraten  $M_{ce}$  und  $M_{ec}$  zwischen den Niveaus  $J = 2$  und  $J = 3$  bestimmen lassen. In diesem Niveau befinden sich im thermischen Gleichgewicht mit der Paul-Falle noch ein Anteil von 8,7 % der  $\text{MgH}^+$ -Ionen. Dieser Anteil kann, durch die Wechselwirkungsrate  $M_{ec}$ , in das benachbarte, tieferliegen-

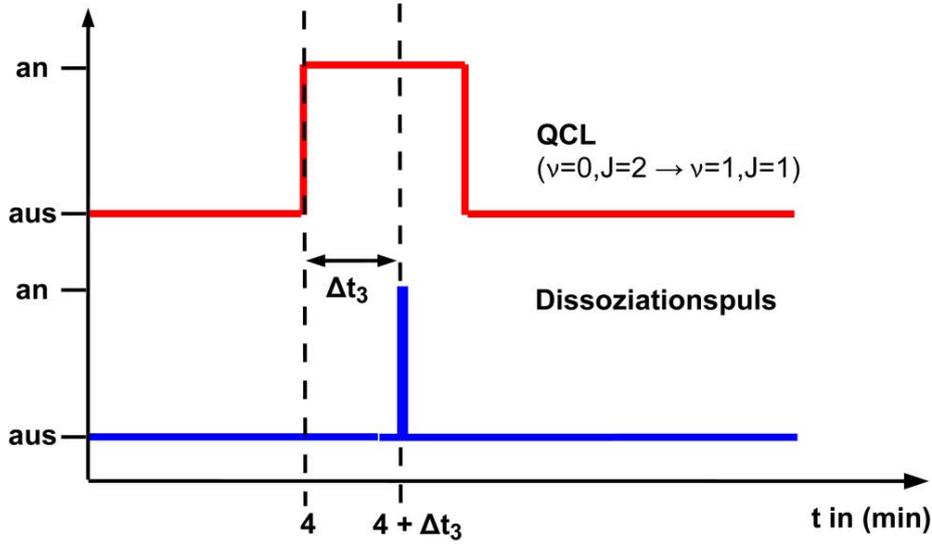


Abbildung 4.12: Messschema für die Bestimmung der Zeitabhängigkeit von den Besetzungszahlen des Niveaus  $J = 3$ .

de Niveau  $J = 2$  umverteilt werden. Dadurch dass das Niveau  $J = 2$  jedoch stetig durch den QCL geleert, wird kann von dort, wie in Abbildung 4.11 dargestellt, nichts durch die Wechselwirkungsrate  $M_{ce}$  zurück in das Niveau  $J = 3$  gelangen. Eine Messung des  $P(3)$ -Übergangs, wie in Abbildung 4.12 dargestellt, in Abhängigkeit von der Zeit  $\Delta t_3$ , die der QCL eingeschaltet gewesen ist, wurde durchgeführt. Dies liefert uns die mit der Zeit  $\Delta t_3$  sinkende Ionenabnahme des Niveaus  $N_e$  und somit einen Wert für  $M_{ec}$  in Form der Zerfallskonstante. Die Ionenabnahme in Abhängigkeit von der Zeit  $\Delta t_3$ , ist in Abbildung 4.13 aufgetragen. Aus einem exponentiellen Fit an die Datenpunkte erhält man die Wechselwirkungsrate  $M_{ec}$ . Durch Verwendung der Gleichung 4.26 kann auch die Wechselwirkungsrate  $M_{ce}$  berechnet werden. Somit erhält man:

$$M_{ce} = (18,8 \pm 10,5) \text{ mHz} \quad (4.30)$$

$$M_{ec} = (52,0 \pm 26,0) \text{ mHz}. \quad (4.31)$$

Die Werte für die Wechselwirkungsraten werden ein weiteres Mal bei einer leicht veränderten Verteilung bestimmt. Diese wurde an einem anderen Tag durchgeführt, an dem sich eine schlechtere Kühlung der Rotationsniveaus ergab. Sie stellen den ungünstigsten Fall dar, wohingegen die zuerst beschriebenen Messungen jeweils den günstigsten Fall beschreiben, bei der eine maximale Kühlung der Rotationsniveaus erreicht wurde. Durch diese Vorgehensweise soll abgeschätzt werden wie empfindlich die Raten auf ein leicht verändertes System sind und ob die angegebenen Fehler ausreichen um solche tägliche Fluktuation zu beschreiben.

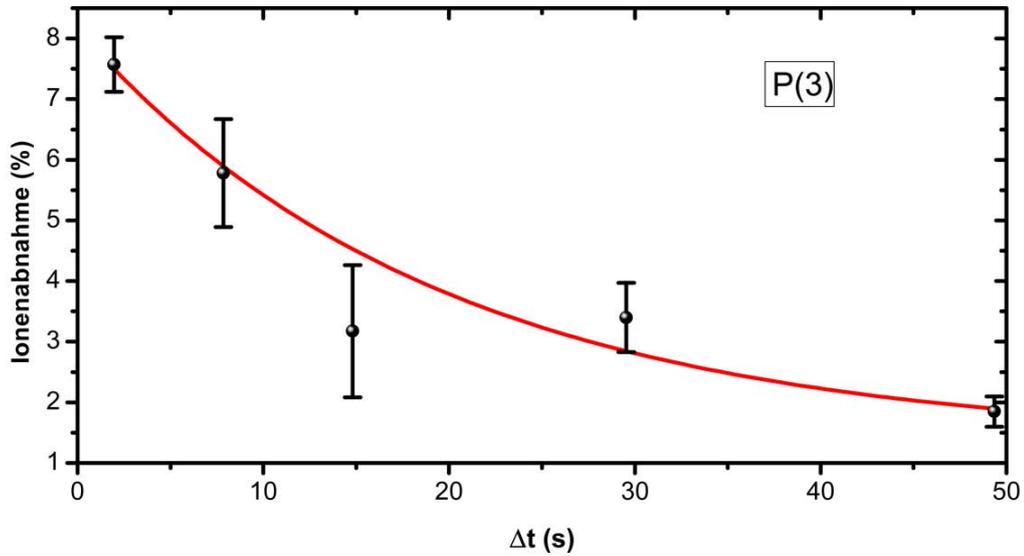


Abbildung 4.13: Messung der Ionenabnahme des P(3)-Übergangs in Abhängigkeit von der Zeit  $\Delta t$ , die der QCL eingeschaltet war. An die Daten (in schwarz) ist ein exponentieller Abfall (in rot) angepasst.

Die Raten beider Fälle sind in Tabelle 4.2 zusammen mit den theoretischen Raten für die Wechselwirkung zwischen den Rotationsniveaus für eine BBR bei 4 K und eine BBR bei 40 K aufgeführt. Die theoretischen Werte wurden aus den Einsteinkoeffizienten bestimmt [118]. Es ist zu erkennen, dass die experimentellen Wechselwirkungsraten trotz der Schwankungen durch die täglichen Änderungen des Systems gut miteinander übereinstimmen. Auffällig sind die Abweichungen von den theoretischen Werten für die Wechselwirkungsraten von  $\text{MgH}^+$ -Molekülonen in einer kryogenen Umgebung. Diese theoretischen Werte lassen sich für den radiativen Zerfall durch die Summe der Einsteinkoeffizienten  $A_{ij} + B_{ij}$  oder für die Anregung eines Rotationsniveaus direkt aus dem  $B_{ji}$ -Koeffizienten bestimmen. Es ist zu erkennen, dass die experimentellen Wechselwirkungen stark von den theoretischen Werten für eine BBR bei 4 K abweicht. Die experimentellen Werte stimmen jedoch gut mit den theoretischen Wechselwirkungsraten bei 40 K überein. Dies bestätigt das Ergebnis aus Kapitel 4.1, dass die Temperaturverteilung der  $\text{MgH}^+$ -Ionen in CryP-TEEx einer Verteilung im thermischen Gleichgewicht mit einer 40 K-BBR entspricht. Es sind jedoch noch weitere Messungen notwendig, um den tatsächlichen Anteil der Wechselwirkung der Rotationsniveaus von  $\text{MgH}^+$ -Ionen mit der BBR und den Anteil des Einflusses der Restgasteilchen zu verstehen. Die Größenordnungen der Wechselwirkungsraten liegen insgesamt im mHz-Bereich. Somit können Wechselwirkungen zwischen den Rotationsniveaus im Schwingungsgrundzustand vernachlässigt werden, wenn andere deutlich schnellere Prozesse im  $\text{MgH}^+$ -Molekül betrachtet werden.

Dies bedeutet, dass die Besetzung der Rotationsniveaus in solchen Fällen als konstant angesehen werden kann. Ein Beispiel für solch einen schnelleren Prozess ist die spontane

Tabelle 4.2: Übersicht der bestimmten Raten. „Wert bc“ bezeichnet die Werte, die unter den besten Voraussetzungen für die Rotationskühlung gemessen wurden. „Wert wc“ bezeichnet die Werte, die unter den schlechteren Voraussetzungen für die Rotationskühlung gemessen wurden. Zum Vergleich wurden die Wechselwirkungsraten, die aus den Einstein A- und B-Koeffizienten bestimmt werden können, mit aufgeführt [118].

<b>Rate</b> -	<b>Exp. bc</b> <b>(mHz)</b>	<b>Exp. wc</b> <b>(mHz)</b>	<b>Theorie 4 K</b> <b>(mHz)</b>	<b>Theorie 40 K</b> <b>(mHz)</b>
$M_{ab}$	$12,5 \pm 1,0$	$14,6 \pm 1,3$	$70 \cdot 10^{-3}$	11,8
$M_{ba}$	$6,3 \pm 0,8$	$4,2 \pm 0,5$	2,3	6,2
$M_{bc}$	$21,4 \pm 1,7$	$21,7 \pm 1,8$	$4 \cdot 10^{-3}$	24,5
$M_{cb}$	$42,4 \pm 5,7$	$42,3 \pm 6,1$	21,6	36,3
$M_{ce}$	$18,8 \pm 10,5$	$23,9 \pm 14,5$	$0,1 \cdot 10^{-3}$	37,7
$M_{ec}$	$52,0 \pm 26,0$	$51,8 \pm 25,9$	78,0	104,9

Abregung des  $\text{MgH}^+$ -Ions vom ersten angeregten Schwingungszustand in den Schwingungsgrundzustand. Dieser Prozess wird im nächsten Kapitel vorgestellt und genauer untersucht.

## Bestimmung einer Zerfallsrate

Die in den vorherigen Kapiteln beschriebene Methode zur Rotationskühlung hat interessante Anwendungen, die sich auch auf weitere diatomare Moleküle erweitern ließen. Daher lohnt es sich, die verwendeten Modelle anhand von Messungen zu überprüfen. In diesem Kapitel werden die besonderen Stärken des neuen Aufbaus verwendet, um eine zustandsselektive Messung der Zerfallsrate des wichtigsten Niveaus in diesem Scheme durchzuführen. Die Rotationskühlung der  $\text{MgH}^+$ -Ionen im Schwingungsgrundzustand  $\nu = 0$  erfolgt über den Zustand  $|\nu = 1, J = 1\rangle$ , der durch den QCL angesprochen wird. Der Prozess der Rotationskühlung hängt daher stark von der Zeitskala ab, auf dem der Zerfall des angeregten Niveau  $|\nu = 1, J = 1\rangle$  stattfindet. Denn die Rate dieses Prozesses muss die Raten der Wechselwirkungen zwischen den Rotationsniveaus stark übersteigen, welche aufgrund der BBR stattfinden. Dies ist typischerweise der Fall für Hydrid-Molekülonen, weil diese große Schwingungskonstanten aufweisen. Da die letztendlich erreichte Besetzung der Rotationsniveaus durch Manipulation mittels QCL und die theoretische Simulationen dieses Prozesses von dem genauen Wert der Zerfallskonstante abhängen, wurde sie im Rahmen dieser Arbeit experimentell ermittelt. Ein entsprechendes Manuskript über diese neuesten Ergebnisse steht unmittelbar vor dem Einreichen [119].

### 5.1 Ablauf der Messungen

Es soll nun die Zerfallskonstante der radiativen Abregung vom  $|\nu = 1, J = 1\rangle$ -Zustand in den  $|\nu = 0, J = 0\rangle$ -Zustand bestimmt werden. Die relevanten Niveaus und Zusammenhänge sind in Abbildung 5.2 dargestellt. Das Versuchsprinzip ist das folgende. Es werden dazu die Besetzungszahlen des  $|\nu = 0, J = 0\rangle$ -Zustands und die des  $|\nu = 0, J = 2\rangle$ -Zustands in Abhängigkeit von der Zeit gemessen, welche bei Anwendung des QCLs in direktem Zusammenhang mit dem  $|\nu = 1, J = 1\rangle$ -Niveau stehen.

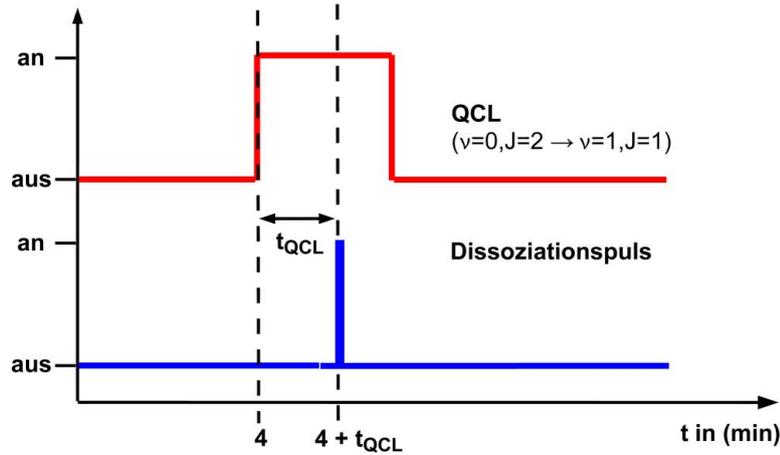


Abbildung 5.1: Messschema für die Lebensdauermessungen. Dargestellt sind die zeitlichen Verläufe des Ein- und Ausschaltens von dem QCL und dem Dissoziationspuls. Markiert ist die Zeit  $t_{QCL}$ , die zwischen dem Einschalten des QCLs und dem Dissoziieren der Moleküle gewartet wird.

Am Anfang eines Messzyklus wird den  $\text{MgH}^+$ -Ionen zuerst 4 min Zeit gegeben, damit sich ein thermisches Gleichgewicht mit der kryogenen Fallenumgebung einstellen kann. Als nächstes wird, wie in Abbildung 5.1 dargestellt, der QCL für einen variablen Zeitraum  $t_{QCL}$  eingeschaltet. Eine Superposition der Besetzung der beiden Energieniveaus  $|\nu = 0, J = 2\rangle$  und  $|\nu = 1, J = 1\rangle$  hat sich innerhalb einiger 10 ms hergestellt, nachdem der QCL eingeschaltet wurde. Dabei werden  $\text{MgH}^+$ -Ionen aus dem Niveau  $|\nu = 0, J = 2\rangle$  in das  $|\nu = 1, J = 1\rangle$ -Niveau umverteilt. Aus dieser Besetzung der Niveaus heraus zerfällt der  $|\nu = 1, J = 1\rangle$ -Zustand spontan in den  $|\nu = 0, J = 0\rangle$ -Zustand. Gibt man dem System ausreichend Zeit wird auf diesem Wege das  $|\nu = 0, J = 2\rangle$ -Niveau vollständig entvölkert und die Besetzungszahl des  $|\nu = 0, J = 0\rangle$ -Niveaus maximiert.

Mit einem Dissoziationspuls, der um die Rotationskühlungszeit  $t_{QCL}$  bis zum Einschalten des QCLs verzögert wird, wird nun sowohl die Ionenabnahme des  $|\nu = 0, J = 0\rangle$ - als auch des  $|\nu = 0, J = 2\rangle$ -Zustands bestimmt. Zu deren Bestimmung wird der R(0)- und der P(2)-Übergang gemessen. Aus diesen Daten kann eine Wachstums- und eine Zerfallskonstante für die jeweilige zeitlichen Verläufe der beiden Ionenabnahmen ermittelt werden, und daraus die Zerfallsrate des  $|\nu = 1, J = 1\rangle$ -Niveaus abgeleitet werden.

## 5.2 Die Zerfallskonstante von $|\nu = 1, J = 1\rangle$

Um die Darstellung der Lebensdauermessung auf das Wesentliche zu reduzieren reicht es wieder aus, das  $\text{MgH}^+$ -Molekül als 5-Niveau-System zu betrachten, dass für diese Aufgabenstellung noch weiter vereinfacht werden kann. Dieses System und die gemessenen R- und P-Übergänge sind in Abbildung 5.2 dargestellt. Für dieses System ergibt sich der Satz

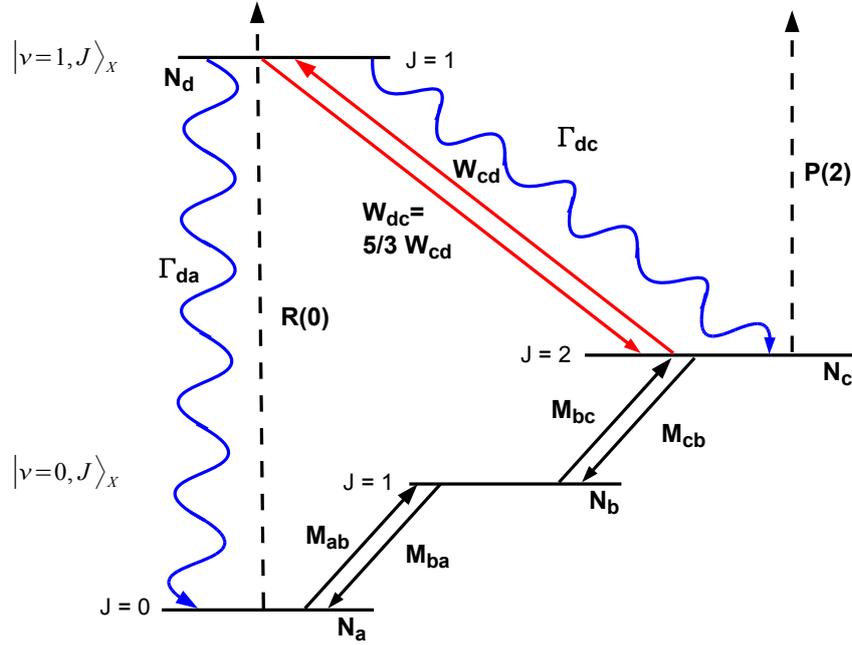


Abbildung 5.2: Energieniveauschema mit den relevanten Niveaus und den verschiedenen Koeffizienten der möglichen Übergänge  $\Gamma_{ij}$ , Wechselwirkungen  $M_{ij}$  und Laseranregungen  $W_{ij}$  von  $\text{MgH}^+$ . Zudem sind der  $R(0)$ - und der  $P(2)$ -Übergang eingezeichnet, anhand derer Messungen durchgeführt werden um  $\Gamma_{da}$  zu ermitteln.

(aus Kapitel 4.4) von fünf gekoppelten Differenzialgleichungen für zeitliche Änderung der Besetzungszahlen  $N_i(t)$ , der hier der Vollständigkeit der mathematischen Betrachtungen halber noch einmal aufgeführt sei.

$$\dot{N}_a(t) = \Gamma_{da}N_d(t) - M_{ab}N_a(t) + M_{ba}N_b(t) \quad (5.1)$$

$$\dot{N}_b(t) = -(M_{ba} + M_{bc})N_b(t) + M_{ab}N_a(t) + M_{cb}N_c(t) \quad (5.2)$$

$$\dot{N}_c(t) = \Gamma_{dc}N_d(t) + M_{bc}N_b(t) - M_{cb}N_c(t) + W_{dc}N_d(t) - W_{cd}N_c(t) \quad (5.3)$$

$$\dot{N}_d(t) = -(\Gamma_{da} + \Gamma_{dc})N_d(t) + W_{cd}N_c(t) - W_{dc}N_d(t) \quad (5.4)$$

$$\dot{N}_e(t) = M_{ce}N_c(t) - M_{ec}N_e(t) \quad (5.5)$$

Dabei beschreiben die Raten  $\Gamma_{da}$  und  $\Gamma_{dc}$  die spontane Emission von Niveau  $|0,0\rangle$  zum Niveau  $|0,2\rangle$  und  $|1,1\rangle$ . Es wird ab jetzt nur noch  $\Gamma = \Gamma_{da}$  verwendet. Die Raten  $W_{cd}$  und  $W_{dc}$  stehen für die Absorption und die stimulierte Emission, die durch den QCL hervorgerufen werden. Die Raten  $M_{ij}$  stehen für die Wechselwirkungen der Ionen mit der BBR und dem Restgas.

Diese Differentialgleichungen lassen sich stark vereinfachen.

- $M_{ij} = 0$ , da im vorangegangenen Kapitel gezeigt wurde, dass die Wechselwirkungen

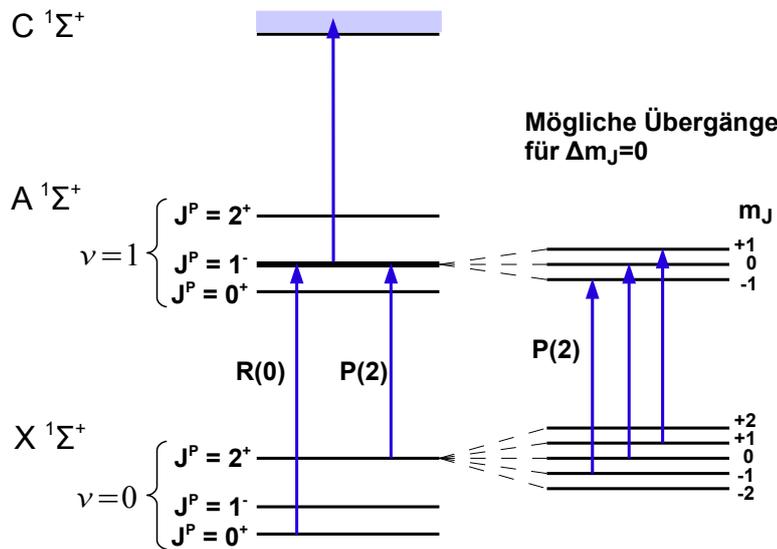


Abbildung 5.3: Schema für die Lebensdauerermessung mit den elektronischen Niveaus  $X\ ^1\Sigma^+$ ,  $A\ ^1\Sigma^+$  und  $C\ ^1\Sigma^+$ , den Schwingungszuständen  $\nu$ , den Rotationszuständen  $J^P$  (und ihrer jeweiligen Parität  $P$ ) sowie mit den magnetischen Unterebenen  $m_J$  der Zustände  $|\nu = 0, J = 2\rangle$  und  $|\nu = 1, J = 1\rangle$ . Die Übergänge  $R(0)$  und  $P(2)$  werden genutzt um indirekt Informationen über die Besetzung des Zustands  $|\nu = 0, J = 1\rangle$  zu erhalten. Da die Dissoziationspulse linear polarisiert sind, gilt  $\Delta m = 0$  als Auswahlregel und es können somit während des  $P(2)$ -Übergangs nur  $3/5$  der fünf Niveaus des  $|\nu = 0, J = 2\rangle$ -Zustands angesprochen werden.

mit der BBR und dem Restgas auf längeren Zeitskalen stattfinden als es für die hier gemessenen Effekte der Fall sein wird. Das bedeutet, dass  $\dot{N}_b(t) = 0$  und  $\dot{N}_e(t) = 0$  gilt also die Besetzungen der Niveaus  $|\nu = 0, J = 1\rangle$  und  $|\nu = 0, J = 3\rangle$  als konstant angenommen werden können.

- $N_c(t) = \frac{5}{3}N_d(t)$  und somit  $\dot{N}_c(t) = \frac{5}{3}\dot{N}_d(t)$ , aufgrund der drei- beziehungsweise fünf-fachen Entartung der Niveaus  $N_c$  und  $N_d$  (vergleiche Gleichung 1.23) und für den Fall der völligen Sättigung des Übergangs durch den QCL.
- Wegen der linearen Polarisation der Dissoziationslaser gilt die Auswahlregel  $\Delta m = 0$  für die magnetischen Unterebenen  $m_J$  der Rotationszustände, die schematisch in Abbildung 5.3 dargestellt ist.
- Hinzu kommt die überprüfte Annahme, dass der Übergang zwischen den Niveaus durch den QCL gesättigt wird, und dass die Zeitspanne bis zum Erreichen der Sättigung extrem kurz im Vergleich zu allen anderen Zeitskalen des Versuchs ist, also im ms-Bereich liegt. Dies entspricht  $W_{dc} = \frac{5}{3}W_{cd}$  in Abbildung 5.2.

Die Besetzung der Energieniveaus im thermischen Gleichgewicht und bevor der QCL eingeschaltet wird ist durch  $N_i^0$  gegeben und wurde in Kapitel 4.1 bestimmt. Zu Beginn gilt  $N_a^0 = (18,9 \pm 0,7) \%$ ,  $N_b^0 = (44,1 \pm 4,0) \%$ ,  $N_c^0 = (27,1 \pm 0,9) \%$  und  $N_d^0 = (8,7 \pm 1,7) \%$ . Nachdem der QCL eingeschaltet wurde hat sich eine Superposition der Besetzung der Niveaus  $|0, 2\rangle$  und  $|1, 1\rangle$  eingestellt, so dass  $N_c(0) = \frac{5}{8}N_c^0$  und  $N_d(0) = \frac{3}{8}N_c^0$  gilt. Dass diese Besetzung der Niveaus sich in ausreichend kurzer Zeit einstellt wird ermittelt, indem die Ionenabnahme des  $|\nu = 0, J = 2\rangle$ -Niveaus durch den P(2)-Übergang in Abhängigkeit von der Zeit  $t_{QCL}$  gemessen wird. In Abbildung 5.4 ist das Ergebnis der Messung graphisch dargestellt. An die Daten wurde ein exponentieller Abfall (in rot) angepasst. Dieser ergab eine Zeitkonstante von  $\tau_{QCL} = (3,19 \pm 1,09) \text{ ms}$  für die Einstellung einer vollständigen Kopplung zwischen den Zuständen  $|\nu = 0, J = 2\rangle$  und  $|\nu = 1, J = 1\rangle$ . Mit den getroffenen Annahmen und zusätzlichen Angaben lassen sich nun die gekoppelten Differenzialgleichungen auf drei relevante Gleichungen vereinfachen:

$$\dot{N}_a(t) = \Gamma N_d(t) \quad (5.6)$$

$$\dot{N}_b(t) = 0 \quad (5.7)$$

$$\dot{N}_c(t) = W_{dc}N_d(t) - W_{cd}N_c(t) \quad (5.8)$$

$$\dot{N}_d(t) = -\Gamma N_d(t) + W_{cd}N_c(t) - W_{dc}N_d(t) \quad (5.9)$$

$$\dot{N}_e(t) = 0. \quad (5.10)$$

Durch Addition von Gleichung 5.8 und Gleichung 5.9 erhält man

$$\dot{N}_c(t) + \dot{N}_d(t) = -\Gamma N_d(t). \quad (5.11)$$

Mit  $N_d(t) = \frac{3}{5}N_c(t)$  ergibt sich

$$\begin{aligned} \left(1 + \frac{3}{5}\right) \dot{N}_c(t) &= -\Gamma \frac{3}{5}N_c(t) \\ \dot{N}_c(t) &= -\frac{3}{8}\Gamma N_c(t). \end{aligned} \quad (5.12)$$

Durch Integration erhält man

$$N_c(t) = N_c(0)e^{-\frac{3}{8}\Gamma t} = \frac{5}{8}N_c^0 e^{-\frac{3}{8}\Gamma t}. \quad (5.13)$$

Für die Besetzung des Zustands  $|0, 0\rangle$  ergibt sich aus

$$\dot{N}_a(t) = \Gamma N_d(t) = \Gamma \frac{3}{5}N_c(t) \quad (5.14)$$

mit Gleichung 5.13

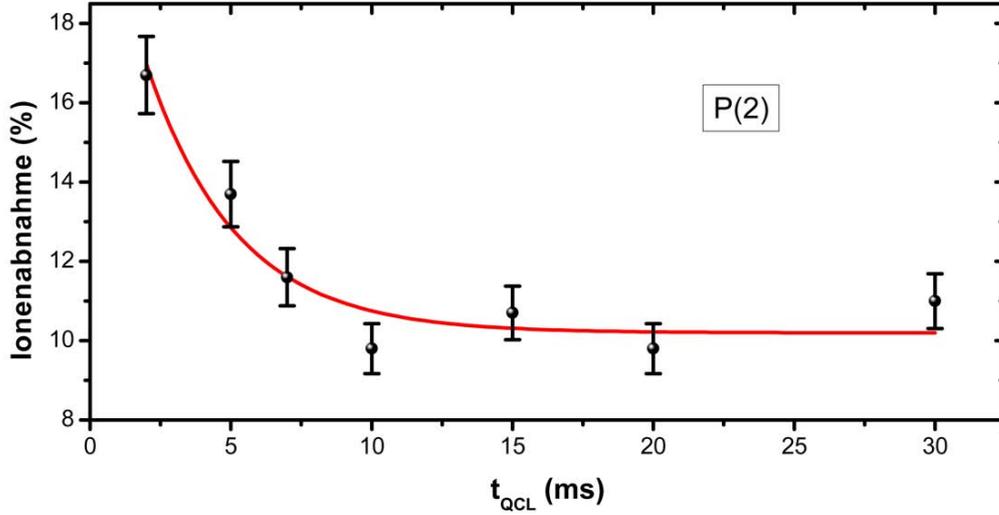


Abbildung 5.4: Messung des P(2)-Übergangs zur Bestimmung der Ionenabnahme des Niveaus  $|\nu = 0, J = 2\rangle$  in Abhängigkeit von der Zeit  $t_{QCL}$ .

$$\dot{N}_a(t) = \Gamma \frac{3}{8} N_c^0 e^{-\frac{3}{8}\Gamma t}. \quad (5.15)$$

Durch Integration und den Bedingungen  $N_a(0) = N_a^0$  und  $N_a(t) = N_a^0 + N_c^0$  für große Werte für  $t$  folgt

$$N_a(t) = N_a^0 + N_c^0 - N_c^0 e^{-\frac{3}{8}\Gamma t}. \quad (5.16)$$

Somit erhalten wir folgende Lösungen der gekoppelten Differentialgleichungen:

$$N_a(t) = N_a^0 + N_c^0 - N_c^0 e^{-\frac{3}{8}\Gamma t} \quad (5.17)$$

$$N_b(t) = N_b(0) \quad (5.18)$$

$$N_c(t) = \frac{5}{8} N_c^0 e^{-\frac{3}{8}\Gamma t} \quad (5.19)$$

$$N_d(t) = N_d(0) e^{-\frac{3}{8}\Gamma t}. \quad (5.20)$$

In Abbildung 5.5 sind die qualitativen Verläufe der Besetzungszahlen  $N_i(t)$  dargestellt. Vor der Zeit  $t = 0$  wird der QCL eingeschaltet, und innerhalb kürzester Zeit danach stellen sich neue Besetzungszahlen, ausgehend von  $N_i^0$  hin zu  $N_i(t = 0)$ , ein. Dann folgen die Kurven dem Verlauf, der durch Lösung der Differentialgleichungen ermittelt wurde. Zu erkennen ist der Prozess der Rotationskühlung mittels QCL, bei dem die Molekülionen durch die Anregung und die darauf folgende Abregung durch spontane Emission vom Niveau  $|\nu = 0, J = 2\rangle$  in das Niveau  $|\nu = 0, J = 0\rangle$  umverteilt werden. Das heißt, dass nach einer gewissen Zeit  $N_a(t \rightarrow \infty) = N_a^0 + N_c^0$  gilt. Die Besetzungszahl des  $|\nu = 0, J = 2\rangle$ -Niveaus hingegen sinkt vom Anfangswert  $5/8 N_c^0$  auf den Wert Null. Die gefundenen Zusammenhänge zwischen  $N_a(t)$  und  $N_c(t)$  lassen sich anhand der Messung der R(0)-

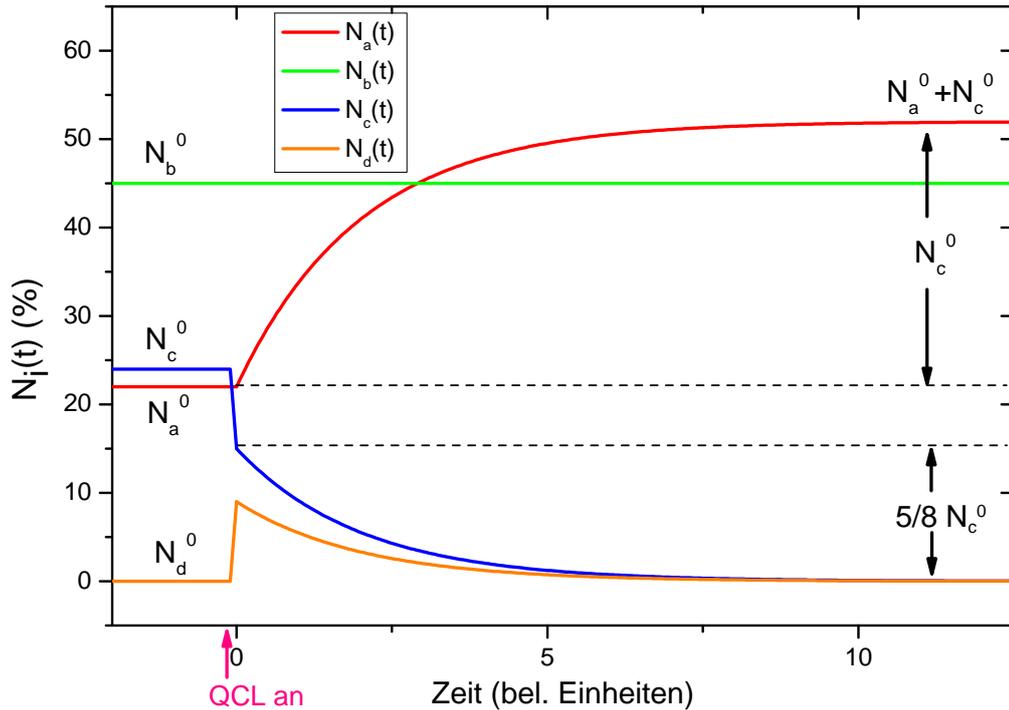


Abbildung 5.5: Schematische Darstellung der zeitlichen Verläufe der Besetzungszahlen  $N_i(t)$  ( $t = 0$  entspricht hier nicht dem Zeitpunkt Null der Graphen aus den Messungen). Zu Beginn sind die  $\text{MgH}^+$ -Ionen im thermischen Gleichgewicht mit der kryogenen Umgebung und die Besetzungszahlen  $N_i$  sind durch die Werte aus Kapitel 4.1 gegeben. Nach Einschalten des QCLs hat sich bis zur Zeit  $t = 0$  ein neues Gleichgewicht eingestellt. Ausgehend von diesen Besetzungszahlen stellen sich neue Besetzungszahlen ein.

und P(2)-Übergänge und dem daraus bestimmten zeitlichen Verlauf der Ionenabnahmen überprüfen.

Hierbei muss beachtet werden, dass diese Kurven nur für die Simulation bei Vernachlässigung der Wechselwirkung zwischen den Rotationsniveaus gilt. Im Experiment würden sich die Besetzungszahlen nach einer Zeit im Bereich von 10 s durch die Wechselwirkungen erneut anfangen zu ändern. Dennoch kann daraus der Wert der Zerfallsrate  $\Gamma$  ohne große, von solch einem Prozess hervorgerufene, systematische Unsicherheiten ermittelt werden. Zu beachten ist, dass die im Experiment gemessene Rate dem Faktor  $\frac{3}{8}\Gamma$  entspricht (vergleiche Formel 5.17 bis 5.20).

### 5.3 P(2)-Messung

In Abbildung 5.6 ist der zeitliche Verlauf der Ionenabnahme des Niveaus  $|\nu = 0, J = 0\rangle$  dargestellt. Dafür wurde in Abhängigkeit von der Zeit  $t_{QCL}$  nachdem der QCL eingeschaltet wurde der P(2)-Übergang ( $|\nu = 0, J = 2\rangle \rightarrow |\nu = 1, J = 1\rangle$ ) gemessen. An die Daten (in blau) lässt sich die Summe aus einer exponentiellen Funktion und einer Konstanten (in

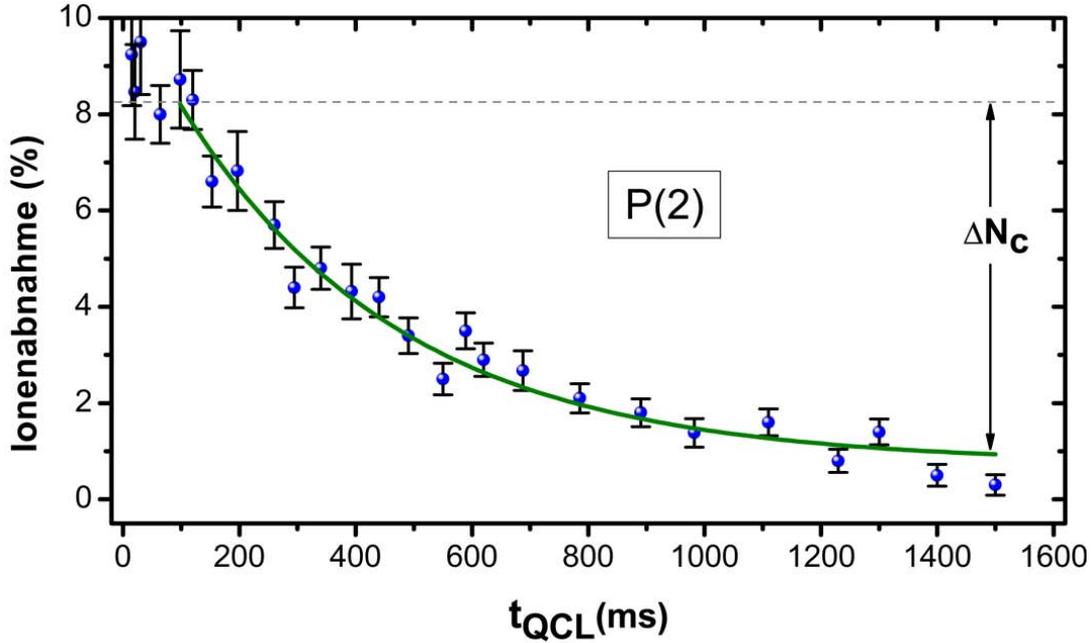


Abbildung 5.6: Messung der Ionenabnahme im Zustand  $|\nu = 0, J = 2\rangle$  durch den Übergang P(2) in Abhängigkeit von der Zeit  $t_{QCL}$  seit dem der QCL eingeschaltet wurde. An die Datenpunkte (in blau) wurde ein exponentieller Abfall (in grün) angepasst. Hier ist noch keine Korrektur für den 266 nm-Beitrag, die Entartung der Energieniveaus und die Dissoziationseffizienz erfolgt. Daher darf die y-Achse nicht als Besetzungszahl interpretiert werden.

grün) anpassen. Dabei ist zu beachten, dass es zusätzliche systematische Fehler durch den physikalischen Bereich gibt, in dem die Korrekturwerte für den 266 nm-Beitrag und für den Einfluss der Wechselwirkungen zwischen den Rotationsniveaus liegen. Bei dem Anpassen eines Graphen wurde daher die Konstante in einem Bereich der Ionenabnahme von 0,5 % bis 1 % variiert, um eine konservative Abschätzung des systematischen Fehlers zu erhalten. Der Beitrag durch den 266 nm-Laser ist dabei der dominierende. Dieser Fehlerbereich ist unten mit „syst“ gekennzeichnet. Die Kurve ergab einen Wert von

$$\tau_{P2} = (380 \pm 23_{stat} \pm 31_{syst}) \text{ ms} \quad (5.21)$$

für die, dem Zerfall proportionalen Konstante  $\tau_{P2}$ . Da  $\frac{1}{\tau_{R0}} = \frac{3}{8}\Gamma$  gilt ergibt sich aus der P(2)-Messung ein Wert von

$$\Gamma_{P2} = (7,02 \pm 0,54_{stat} \pm 0,72_{syst}) \text{ Hz}. \quad (5.22)$$

Anhand des Fits lässt sich die Differenz  $\Delta N_c$  ermitteln, um die sich die Ionenabnahmen zur Zeit  $t = 0$  und für den Fall  $t \rightarrow \infty$  unterscheiden:

$$\Delta N_c = (9,7 \pm 0,7) \%. \quad (5.23)$$

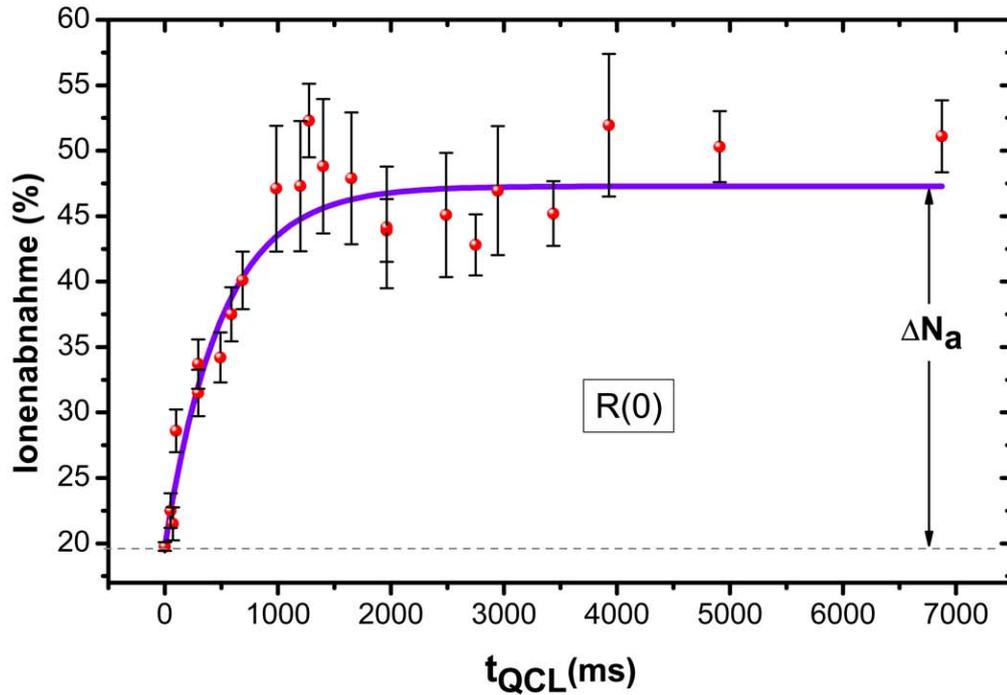


Abbildung 5.7: Messung der Ionenabnahme im Zustand  $|\nu = 0, J = 0\rangle$  durch den Übergang R(0) in Abhängigkeit von der Zeit  $t_{QCL}$  seit dem der QCL eingeschaltet wurde. An die Datenpunkte (in rot) ist ein exponentieller Anstieg (in blau) angepasst. Hier ist noch keine Korrektur für den 266 nm-Beitrag, die Entartung der Energieniveaus und die Dissoziationseffizienz erfolgt. Daher darf die y-Achse nicht als Besetzungszahl interpretiert werden.

Da aber hier noch keine Korrektur für den 266 nm-Beitrag, die Entartung der Energieniveaus und die Dissoziationseffizienz erfolgt ist, darf dieser Wert nicht als Besetzungszahl interpretiert werden.

## 5.4 R(0)-Messung

Die Ergebnisse, welche durch den zeitlichen Verlauf der R(0)-Messungen erhalten werden, müssen mit einer gewissen Vorsicht betrachtet werden, da sie sehr empfindlich von den Wechselwirkungen zwischen den Rotationsniveaus abhängen. Die hier vorgestellten Daten und Ergebnisse zu dieser Messung sind daher vorläufige Ergebnisse, die noch einer genaueren Untersuchung unterworfen werden sollen. In Abbildung 5.7 ist der zeitliche Verlauf der Ionenabnahme des Niveaus  $|\nu = 0, J = 0\rangle$  dargestellt. Dafür wurde in Abhängigkeit von der Zeit  $t_{QCL}$  nachdem der QCL eingeschaltet wurde der R(0)-Übergang ( $|\nu = 0, J = 0\rangle \rightarrow |\nu = 1, J = 1\rangle$ ) gemessen. An die Daten (in rot) lässt sich eine exponentielle Funktion (in blau) anpassen. Der Fit ergab einen vorläufigen Wert von

$$\tau_{R0} = (500 \pm 67) \text{ ms} \quad (5.24)$$

für die, dem Wachstum proportionalen Konstante  $\tau_{R0}$ . Für diese Zeitkonstante muss eine zusätzlicher Korrektur hinzugezogen werden, um den Einfluss der Wechselwirkungsraten zwischen den Rotationsniveaus zu berücksichtigen. Diese Korrektur liegt nach ersten Abschätzungen im Bereich 100 ms - 200 ms. Der genaue Wert ist Gegenstand laufender Auswertungen, weshalb die Rate, welche aus der Zeitkonstante bestimmt werden kann, hier nicht berücksichtigt wird.

Der Einfluss der Wechselwirkungsraten  $M_{ij}$  auf die Amplitude ( $\Delta N_a$ ) des Graphen wird für die Zeitspanne des Experiments, etwa 1 - 6 s, auf weniger als 1 % geschätzt. Deshalb macht es durchaus Sinn, die Amplitude hier zu bestimmen und im weiteren Verlauf mit der Amplitude der P(2)-Messung zu vergleichen. Aus dem Graphen und anhand des Fits lässt sich die Ionenanteil  $\Delta N_a$  bestimmen, um die die Ionenabnahme gestiegen ist:

$$\Delta N_a = (27,5 \pm 1,3) \% . \quad (5.25)$$

Da auch hier noch keine Korrektur für den 266 nm-Beitrag, die Entartung der Energieniveaus und die Dissoziationseffizienz erfolgt ist, darf dieser Wert nicht als Besetzungszahl interpretiert werden.

## 5.5 Vergleich von P(2)- und R(0)-Messung

Da die Messungen des R(0)- und des P(2)-Übergangs zu verschiedenen Zeiten stattgefunden haben, müssen sie mit der jeweils bestimmten Dissoziationseffizienz skaliert werden, um ihre Werte für die Ionenabnahme vergleichen zu können. Deshalb werden die Daten für  $\Delta N_c$  mit dem Korrekturfaktor  $f_{Eff} = 1,14 \pm 0,05$  skaliert.

Weiterhin muss für den P-Übergang die Entartung der Niveaus beachtet werden und der gemessenen Wert  $\Delta N_c$  mit dem Faktor  $\left(\frac{2J+1}{2J-1}\right)_{J=2} = \frac{5}{3}$  multipliziert werden, um ihn mit den Werten, die bei R-Übergängen gemessen werden, vergleichen zu können. Wie oben angegeben, wird angenommen, dass nach dem Einschalten des QCLs außerdem  $N_c(0) = \frac{5}{8}N_c^0$  gilt. Das heißt, dass die experimentell bestimmte Differenz der Ionenabnahmen zwischen Beginn und Ende der Messung dem Wert  $\frac{5}{8}N_c^0$  entspricht (wie in Abbildung 5.5 markiert). Diese zwei Zusammenhänge bedeuten, dass der durch den P(2)-Übergang gemessene Wert für  $\frac{5}{3}\Delta N_c$  dem Anteil  $\frac{5}{8}\Delta N_a$  entsprechen sollte. Das heißt also, dass die Amplituden aus den Messungen für R(0) und P(2) theoretisch in folgendem Verhältnis zueinander stehen sollten:

$$\frac{\Delta N_a}{\Delta N_c \cdot f_{Eff}} \stackrel{theo}{=} \frac{5}{3} \cdot \frac{8}{5} = \frac{8}{3} = 2,67. \quad (5.26)$$

Setzt man die gemessenen Werte für  $\Delta N_a$  und  $\Delta N_c$  ein, so erhält man

$$\frac{\Delta N_a}{\Delta N_c \cdot f_{Eff}} = \frac{(27,52 \pm 1,26) \%}{(9,67 \pm 0,35) \% \cdot 1,14 \pm 0,05} = 2,49 \pm 0,18. \quad (5.27)$$

Die Übereinstimmung zwischen dem theoretisch erwarteten Verhältnis und dem experimentell bestimmten Verhältnis ist sehr gut. Dies bestätigt die zu Anfang dieses Kapitels getroffene Annahme, dass aufgrund der Entartung der Rotationsniveaus nur ein Anteil von  $\frac{5}{8}$  der anfänglichen Molekülonenzahl das Niveau  $|\nu = 0, J = 2\rangle$  besetzt, nachdem der QCL eingeschaltet wurde. Außerdem verifiziert diese Übereinstimmung der Verhältnisse den Faktor  $\frac{8}{3}$ , der verwendet wurde um aus der gemessenen Zeitkonstante  $\tau_{P2}$  die Zerfallsrate  $\Gamma$  zu erhalten.

Für die Messung der Zerfallsrate  $\Gamma$  wurde auch angenommen, dass die Besetzung der Rotationsniveaus im Schwingungsgrundzustand als stationär angesehen kann und dass eine Umverteilung nur durch den QCL und den darauf folgenden Zerfall bestimmt wird. Diese Annahme lässt sich bestätigen, wenn man die Zeitskalen der Wechselwirkungsraten aus Tabelle 4.2 mit den oben bestimmten Zerfallsraten vergleicht. Der Prozess der Anregung der Molekülonen in den  $|\nu = 1, J = 1\rangle$ -Zustand mittels QCL und die folgende Abregung ist um einen Faktor  $10^2$  schneller als die Umverteilung der Besetzungen zwischen den einzelnen Rotationsniveaus im Schwingungsgrundzustand. Es konnte jedoch aus Zeitgründen bisher nur für die P(2)-Messungen bestätigt werden, dass für die Bestimmung einer Zerfallskonstante die Umverteilung von Ionen aus dem  $|\nu = 0, J = 1\rangle$ -Zustand durch BBR oder Stöße vernachlässigt werden kann. Die Stärke des Einflusses der Wechselwirkungsraten wurde zudem durch Verwendung der experimentell bestimmten Wechselwirkungsraten und einer Simulation mittels Mathematica abgeschätzt. Hierbei ergibt sich, dass der P(2)-Übergang recht unempfindlich auf die Wechselwirkung zwischen den Rotationsniveaus ist. Aus der Messung sowie aus den Simulationen ergibt sich, dass der R(0)-Übergang hingegen eine höhere Empfindlichkeit und eine stärkere systematische Abweichung zeigt, die derzeit Gegenstand laufender Untersuchungen ist.

Der gefundene Wert für die Zerfallskonstante  $\Gamma$  ist in Tabelle 5.1 mit den theoretischen Werten des elektrischen Dipolübergangs  $|\nu = 1, J = 1\rangle \rightarrow |\nu = 0, J = 0\rangle$  verglichen. Die theoretischen Werte stammen jeweils aus Rechnungen, bei denen das Programm *Level* [120] verwendet wurde, um aus den theoretischen Dipol-Übergangsmomenten eine Zerfallsrate zu ermitteln. Es ist zu erkennen, dass die experimentelle Zerfallsrate vor allem von der Theorie aus [95] abweicht. Mit der Theorie aus [96] wird hingegen unter Berücksichtigung der systematischen Abweichung eine gute Übereinstimmung gefunden.

Zusammenfassend kann bestätigt werden, dass hier zum ersten Mal die Bestimmung einer Zerfallskonstante eines rovibronischen Zustands von translatorisch kalten  $\text{MgH}^+$ -Molekülonen gelungen ist. Zudem ist bei dieser Messung einer der niedrigsten Zerfallsra-

Tabelle 5.1: Die experimentell bestimmte Zerfallskonstante  $\Gamma_{P(2)}$  des elektrischen Dipolübergangs  $|\nu = 1, J = 1\rangle \rightarrow |\nu = 0, J = 0\rangle$  ist zusammen mit den theoretische Werten aus [96] für Theorie 1, [95] für Theorie 2 aufgeführt.

$\Gamma_{P(2)}$ (Hz)	Theorie 1 (Hz)	Theorie 2 (Hz)
$7,02 \pm 0,54$	7,886	5,5834

ten beziehungsweise der längsten Zeitkonstanten bestimmt worden, die je bei Molekülen untersucht wurde. Dies ist auf die hervorragenden Vakuumbedingungen und die extrem niedrige BBR zurückzuführen, die durch CryPTEx für Experimente mit Molekülonen zur Verfügung gestellt wurde. Die Kenntnisse der experimentellen Werte der Wechselwirkungsraten der Rotationszustände im Zusammenhang mit der Zerfallsrate des ersten angeregten Schwingungszustands unterstützen zudem das Verständnis der Rotationskühlung von  $\text{MgH}^+$  mittels QCL, und liefern damit eine weitere Grundvoraussetzung für Experimente in denen diese Ionen in einem definierten Quantenzustand präpariert werden sollen.

## Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine neue kryogene Paul-Falle für das sympathetische Kühlen hochgeladener Ionen konstruiert, aufgebaut und durch Experimente mit polaren Molekülonen getestet. Ein Manuskript zum Aufbau wurde bereits bei *Review of Scientific Instruments* eingereicht [97]. Bei den Experimenten wurde erstmals die Zerfallskonstante eines durch kohärente Laseranregung präparierten rovibronischen Zustands eines Molekülions,  $\text{MgH}^+$ , durch die Abfrage der Besetzungszahlen der gekoppelten Zustände gemessen. Das Molekülon wurde zuvor gespeichert, sympathetisch gekühlt und somit dessen Oszillationsamplitude auf ein Minimum gesenkt.

Der kryogene Aufbau wird ausschließlich durch einen Kältekopf gekühlt. Dabei ist die Last durch Wärmeeintrag so gering, dass Temperaturen der Bauteile von 4 K im Fallenbereich erreicht werden können. Die 40 K-Stufe des verwendeten Pulsröhrenkühlers kühlt den entsprechenden Bereich des experimentellen Aufbaus auf eine Temperatur von 35 K herunter. Das Ziel, ein für das Speichern hochgeladener Ionen geeignetes ultrahohes Vakuum zu gewährleisten, wurde erreicht, mit geschätzten Enddruckwerten von  $\sim 10^{-15}$  mbar im Fallenbereich. Die Elektrodenkonfiguration der Falle besteht aus einem optisch sehr gut zugänglichen Hauptfallenbereich sowie einem kryogen noch besser abgeschirmten Vorfallenbereich. Radiofrequenzen im MHz-Bereich mit Spannungen von bis zu 1000 V sowie Gleichspannungen von bis zu 100 V können an den Elektroden angelegt werden. Durch 15 auf das Fallenzentrum der Hauptfalle ausgerichtete Öffnungen wird der optische Zugang ermöglicht. Aufgrund der speziellen Konstruktion von Öffnungen mit kleinem Raumwinkel, wird die kryogene Temperatur im Fallenbereich kaum durch Einstrahlung von BBR oder Restgasteilchen, die aus Raumtemperaturbereichen stammen, beeinträchtigt. Zudem trennen diese schmalen Öffnungen die Vakuumbereiche differentiell sehr gut ab.

In ersten Experimenten wurden die exzellenten Betriebseigenschaften der kryogenen Paul-Falle demonstriert. Zuerst wurde die Falle in Heidelberg als Massenfilter getestet, um die Apparatur, die Elektronik und die Software zu optimieren. Dabei gelang es den Stabilitätsbereich für  $\text{He}^+$ -Ionen bei verschiedenen kinetischen Energien zu vermessen und die

darin enthaltene Unterstruktur aufzulösen. Diese Struktur konnte auf die Länge des Fallenaufbaus im Massenfilterbetrieb und der dadurch bedingten Divergenz des Ionenstrahls am Fallenausgang, abhängig vom Pseudopotential des Filters, zurückgeführt werden. Diese Eigenschaft der Ionentrajektorien führte zu Intensitätsminima und -maxima innerhalb des Stabilitätsbereichs, welche durch Simulationen reproduziert werden konnten.

Die kryogene Paul-Falle wurde im weiteren Verlauf dieser Arbeit an die Aarhus Universität transportiert und dort bei der *Ion Trap Group* von M. Drewsen in den bestehenden Laseraufbau für Experimente mit  $\text{Mg}^+$  und  $\text{MgH}^+$ -Ionen eingebunden. Hier wurden die Messungen durchgeführt, die in dieser Arbeit vorgestellt werden. Zuerst wurden  $\text{Mg}^+$ -Ionen dopplergekühlt und Ionenkristalle daraus erzeugt. In der Folge wurden Zweikomponenten-Ionenkristalle, bestehend aus  $\text{Mg}^+$ - und molekularen  $\text{MgH}^+$ -Ionen, hergestellt. Diese wurden nicht nur erzeugt und gefangen, sondern auch über Zeiträume von mehreren zehn Stunden gespeichert, wodurch sich die hervorragenden Vakuumbedingungen der Falle belegen ließen. Zudem wurde die Rotationszustandsbesetzung der polaren Molekulation  $\text{MgH}^+$  im thermischen Gleichgewicht mit der kryogenen Umgebung der Paul-Falle bestimmt. Diese entsprach der Verteilung, die man bei  $\text{MgH}^+$ -Ionen erwartet, die im thermischen Gleichgewicht mit BBR bei einer Temperatur von etwa 42 K, jedoch nicht von 4 K, sind. Ob diese Verteilung vorwiegend durch eine residuelle 297 K-BBR von wenigen Prozent des Raumwinkels oder durch Stöße mit ballistischen Restgasteilchen aus dem Raumtemperaturbereich, welche jeweils durch die optischen Zugänge in den Fallenbereich strömen, hervorgerufen wird, bleibt noch nachzuweisen. Eine noch tiefere Temperatur wurde mit dem bestehenden Aufbau dadurch erzielt, dass Ionenkristalle von der optisch zugänglichen Hauptfalle in den optisch besser abgeschirmten Bereich in Richtung der Vorfalle transferiert wurden. Nur zum Zweck der Rotationszustandsabfrage mittels Laserstrahlen wurden diese Ionen zurück in den Hauptfallenbereich gebracht. Eine weitere Verbesserung der kryogenen Bedingungen im Fallenzentrum der Hauptfalle wird künftig durch den Einsatz von zusätzlichen  $\text{CaF}_2$ -Fenstern im kryogenen Bereich auf den optischen Zugängen innerhalb der Vakuumkammer erreicht werden.

Des Weiteren wurde die Besetzung der Rotationszustände mittels Laserspulse manipuliert und auf diesem Wege noch weiter hin zu niedrigeren Rotationszuständen verschoben, als es bisher bei Raumtemperatur gelungen ist [21]. Die Besetzungszahl des elektronischen Schwingungs- und Rotationsgrundzustands wurde im Vergleich dazu um einen Faktor zwei auf etwa 70 % erhöht.

Diese gezielte Präparation einzelner Zustände war entscheidend für den nächsten Schritt, nämlich die experimentelle Bestimmung der Übergangsraten für die vier niedrigsten Rotationszustände ( $J = 0$  bis  $J = 3$ ) im Schwingungsgrundzustand, um Informationen über die zeitlichen Dimensionen der Abläufe im  $\text{MgH}^+$ -Molekül zu erhalten. Es wurde ermittelt, dass sich diese Vorgänge auf Zeitskalen im Minuten-Bereich abspielen.

Das zentrale physikalische Resultat dieser Arbeit ist die erstmals gelungene Messung der Zerfallsrate des durch Laser präparierten rovibronischen Zustands eines in einer Paul-Falle gespeicherten Molekülions. Dabei wurde der Zustand  $|\nu = 1, J = 1\rangle_X$  des  $\text{MgH}^+$ -Molekülions, der für die Rotationskühlung verwendet wird, näher untersucht. Es wurde eine präzise Bestimmung der Zerfallskonstante des Übergangs zum  $|\nu = 0, J = 0\rangle_X$ -Zustand durchgeführt. Dieser Wert führte unter Annahme eines theoretischen Werts für die Zerfallskonstante (im Hz-Bereich) zu der Erkenntnis, dass die Besetzung der Rotationsniveaus während des radiativen Zerfalls nahezu konstant bleibt. Die Zerfallsrate konnte daraus zu einem Wert von  $(7,02 \pm 1,26)$  Hz bestimmt werden. Dies stimmt gut mit dem theoretischen Wert aus [96] überein, weicht jedoch von dem Wert aus [95] ab. Mit diesen experimentell bestimmten Raten stehen nun erstmals experimentelle Ergebnisse zur Verfügung, welche weitere theoretische Betrachtungen der Vorgänge in dem  $\text{MgH}^+$ -Molekül sowie bei dessen Rotationskühlung hin zum Grundzustand  $|\nu = 0, J = 0\rangle_X$  ermöglichen. Ein Manuskript über diese Ergebnisse wird demnächst bei *Physical Review* eingereicht [119]

Durch die vorgestellten Experimente wurde gezeigt, dass das Design der Falle, obwohl primär auf Experimente mit HCIs ausgelegt, sich sowohl für das Messen als auch für das Präparieren der Quantenzustände von polaren Molekülionen eignet. Dies ist auf die signifikante Reduktion der BBR zurückzuführen, was Messungen mit sehr hohen Kohärenzzeiten ermöglicht. Zusätzlich verschiebt diese niedrige BBR die Besetzungszahlen der Rotationszustände so weit hin zu niedrigen Quantenzahlen, dass es mittels Lasermanipulation möglich sein wird, Molekülionen quantenoptisch in einem wohldefinierten Schwingungs- und Rotationszustand zu präparieren.

Die primär vorgesehene Anwendung der kryogenen Paul-Falle ist die hochpräzise Laserspektroskopie von HCIs. Dafür soll eine EBIT, die HCIs erzeugt, als Quelle verwendet werden und die HCIs zusammen mit Berylliumionen in der Paul-Falle gespeichert werden. Da HCIs nicht für direkte Doppler-Kühlung zugänglich sind, ist es das Ziel diese durch die Coulombwechselwirkung mit einfach geladenen Berylliumionen ( $\text{Be}^+$ ) sympathetisch zu kühlen und sie somit zu einem Ionenkristall zu formen. Dies wird dadurch ermöglicht werden, dass viele HCIs, zum Beispiel  $\text{Ar}^{13+}$  mit  $\frac{m}{Q} = \frac{40\text{u}}{13e}$ , ein Masse-zu-Ladungsverhältnis im Bereich  $\frac{1}{3} \cdot \frac{m_{\text{Be}^+}}{1e} < \frac{m_{\text{HCI}}}{Q_{\text{HCI}}} < 3 \cdot \frac{m_{\text{Be}^+}}{1e}$  haben. Dieser Parameter gibt an für welche Ionensorten es möglich ist gleichzeitig mit  $\text{Be}^+$  in der Paul-Falle gespeichert und sympathetisch gekühlt zu werden.

Zu diesem Zweck wurde vor kurzem ein Lasersystem zur Doppler-Kühlung von  $\text{Be}^+$  in Zusammenarbeit mit der *QUEST Gruppe* (Centre for Quantum Engineering and Space-Time Research) von Piet O. Schmidt an der Physikalisch-Technischen-Bundesanstalt (PTB) aufgebaut. Zur Kühlung wird der  $2s^2S_{1/2} \longleftrightarrow 2p^2P_{3/2}$  Übergang im  $^9\text{Be}^+$ -Ion als geschlossenes Zweizustandssystem genutzt. Dieser Übergang lässt sich mit einer Wellenlänge im UV-Bereich ansprechen. Um ausreichend große  $\text{Be}^+$ -Ionenkristalle für sympathetisches

Kühlen zu erzeugen wird eine möglichst hohe Laserleistung auf einem entsprechend Querschnitt benötigt. Das aufgebaute Festkörperlasersystem stellt bis zu 730 mW Leistung bei der benötigten Wellenlänge zur Verfügung.

Das Prinzip dieses Systems [121] basiert auf zwei Faserlasern mit fundamentalen Wellenlängen 1051 nm und 1550 nm und je einer Leistung von 5 W. Mit Hilfe eines periodisch gepolten Lithiumniobat-Kristalls (PPLN) wird die Summenfrequenz (626 nm) dieser beiden Wellenlängen bei einer Leistung von 1,8 W erzeugt. Dann wird durch Frequenzverdopplung in einem Beta-Bariumborat-Kristall (BBO) die gewünschte Wellenlänge (313 nm) erzeugt. Durch eine Glasfaser wird das Laserlicht zum optischen Aufbau der Paul-Falle transportiert.

An sympathetisch gekühlten HCIs sollen mit diesem gesamten Aufbau spektroskopische Untersuchungen von verbotenen Übergängen bis zur Grenze der natürlichen Linienbreite durchgeführt werden. Die Dopplerverbreiterung, die bei HCIs in EBITs auftritt, bedingt bisher die Grenze der Auflösung. Hier wurden zwar in den letzten Jahren Fortschritte erzielt, indem die Temperaturen bei denen die HCIs vorliegen durch Verdampfungskühlung von 300 eV (etwa 33 MK) auf 15 eV (etwa 0,17 MK) gesenkt wurde [122, 123]. Jedoch konnten mit den bisher angewendeten Methoden diese Dopplerverbreiterungen nicht weiter verringert werden. Bei der Mitspeicherung von HCIs in  $\text{Be}^+$ -Ionenkristallen wird es möglich sein, diese auf Temperaturen in den mK-Bereich herunterzukühlen, was eine Absenkung um neun Größenordnungen darstellt und letztendlich die Überwindung der bisherigen Grenzen der Auflösung gestatten wird.

Die Experimente mit  $\text{Be}^+$ -Ionen und HCIs werden Mitte 2012 beginnen, sobald die Messungen an Molekülionen in Aarhus abgeschlossen sind und die kryogene Paul-Falle wieder in Heidelberg ist. Sie soll hier mit einer neuen Quelle für Beryllium und mit dem neuen Lasersystem in Betrieb genommen werden.

Zuletzt sei erwähnt, dass der flexible und leicht zu transportierende Aufbau von CryP-TEEx sich bei den Messkampagnen in Aarhus sehr gut bewährt hat, womit auch ideale Voraussetzungen für geplante zukünftige Experimente an externen Photonenquellen, wie zum Beispiel an Synchrotronen oder Freie-Elektronen-Lasern gegeben sind.

# Anhang

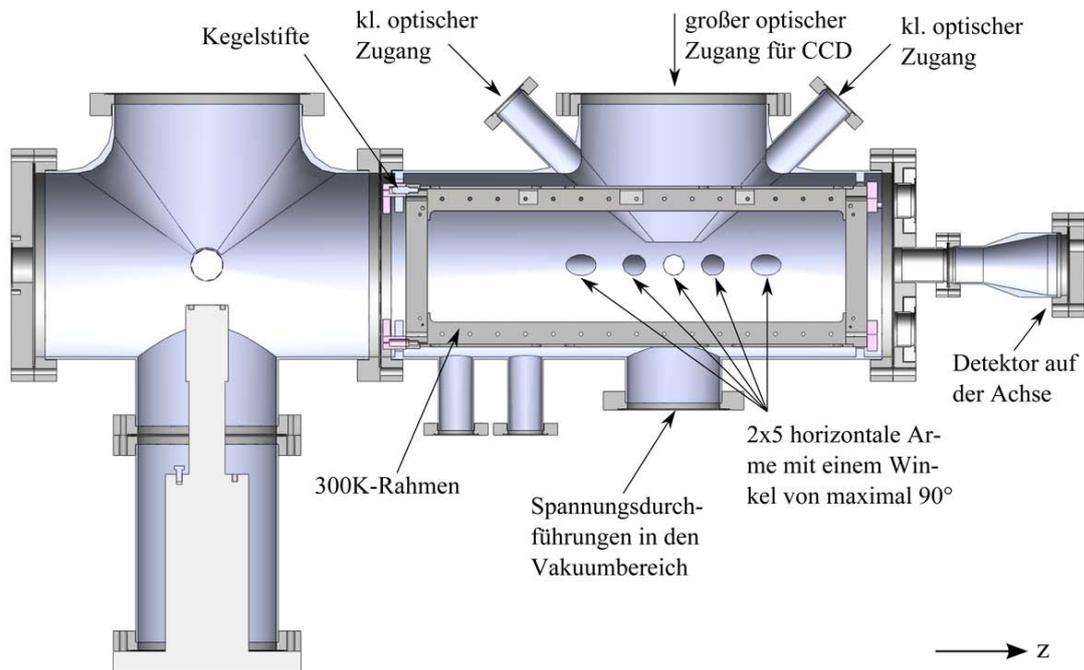


Abbildung 5.8: Schnittansicht der Elemente der 297 K-Stufe.

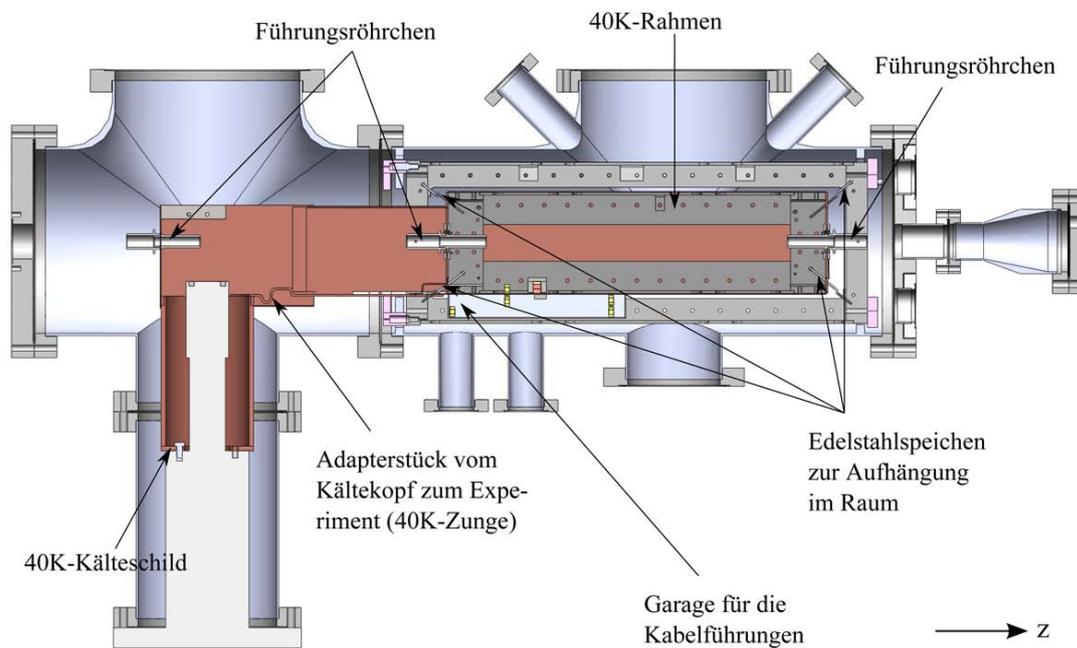


Abbildung 5.9: Schnittansicht der Elemente der 297 K und der 40 K-Stufe.

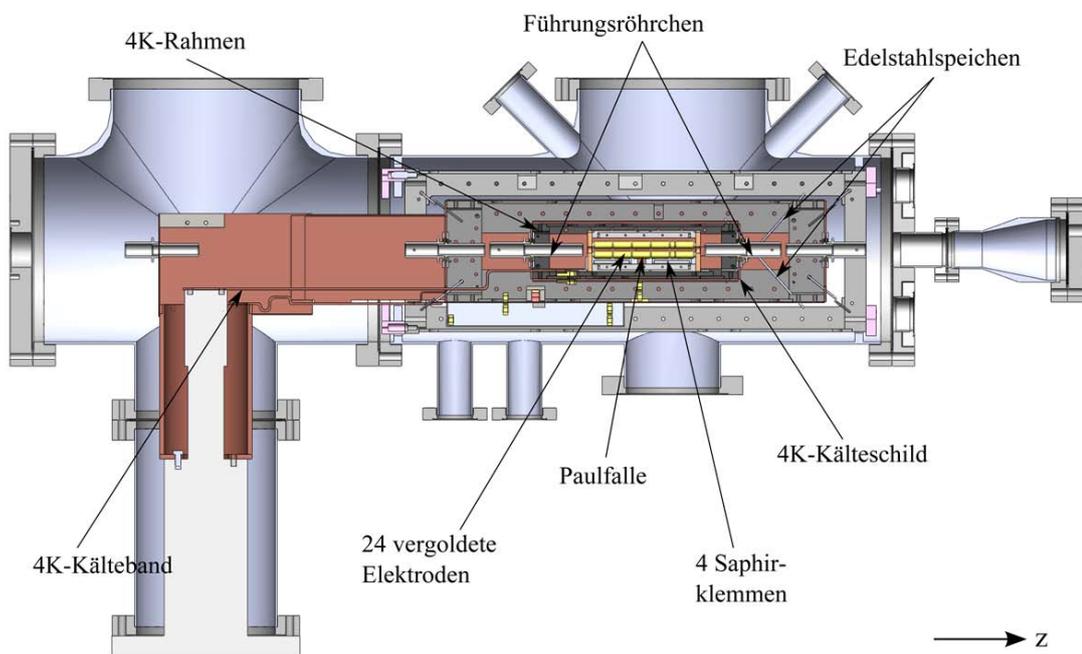


Abbildung 5.10: Schnittansicht der Elemente aller drei Temperaturstufen.



# Literaturverzeichnis

- [1] W. Paul, M. Raether. Das elektrische Massenfilter. *Zeitschrift für Physik* **140**, 262 (1955). (Zitiert auf Seite [1](#) und [45](#)).
- [2] W. Paul, H. P. Reinhard, U. von Zahn. Das elektrische Massenfilter als Massenspektrometer und Isotopentrenner. *Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei* **152**, 143 (1958). (Zitiert auf Seite [1](#), [8](#) und [12](#)).
- [3] W. Paul. Electromagnetic traps for charged and neutral particles. *Reviews of Modern Physics* **62**, 531 (1990). (Zitiert auf Seite [1](#) und [7](#)).
- [4] J. D. Prestage, G. J. Dick, L. Maleki. New ion trap for frequency standard applications. *Journal of Applied Physics* **66**, 1013+ (1989). (Zitiert auf Seite [1](#)).
- [5] W. Paul, O. Osberghaus, E. Fischer. Forschungsber. d. Wirtsch. Ministeriums Nordrh.-Westf. Nr 415 (1955). (Vorgetragen von W. Paul auf der Physikertagung in Achen April 1955). (Zitiert auf Seite [1](#)).
- [6] E. Fischer. Die dreidimensionale Stabilisierung von Ladungsträgern in einem Vierpolfeld. *Zeitschrift für Physik* **156**, 1 (1959). (Zitiert auf Seite [1](#)).
- [7] G. Werth. *Principles of Ion Traps*. vol. 749 (Springer Berlin Heidelberg, 2008). (Zitiert auf Seite [1](#)).
- [8] M. Block, A. Drakoudis, H. Leuthner, P. Seibert, G. Werth. Crystalline ion structures in a Paul trap. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **33**, L375+ (2000). (Zitiert auf Seite [1](#)).
- [9] M. Drewsen, C. Brodersen, L. Hornekaer, J. S. Hangst, J. P. Schiffrer. Large Ion Crystals in a Linear Paul Trap. *Physical Review Letters* **81**, 2878 (1998). (Zitiert auf Seite [2](#) und [32](#)).

- [10] S. Willitsch, M. T. Bell, A. D. Gingell, T. P. Softley. Chemical applications of laser- and sympathetically-cooled ions in ion traps. *Physical Chemistry Chemical Physics* **10** (2008). (Zitiert auf Seite [3](#)).
- [11] G. Werth, V. N. Gheorghe, F. G. Major. *Charged Particle Traps II* (Springer Berlin Heidelberg, 2009). (Zitiert auf Seite [2](#)).
- [12] D. Leibfried, R. Blatt, C. Monroe, D. Wineland. Quantum dynamics of single trapped ions. *Reviews of Modern Physics* **75**, 281 (2003). (Zitiert auf Seite [2](#)).
- [13] H. Häffner, C. F. Roos, R. Blatt. Quantum computing with trapped ions. *Physics Reports* **469**, 155 (2008). (Zitiert auf Seite [2](#)).
- [14] R. Blatt, D. Wineland. Entangled states of trapped atomic ions. *Nature* **453**, 1008 (2008). (Zitiert auf Seite [2](#)).
- [15] P. Gill. Optical frequency standards. *Metrologia* **42** (2005). (Zitiert auf Seite [2](#)).
- [16] 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). (Zitiert auf Seite [2](#)).
- [17] P. F. Herskind, A. Dantan, J. P. Marler, M. Albert, M. Drewsen. Realization of collective strong coupling with ion Coulomb crystals in an optical cavity. *Nature Physics* **5**, 494 (2009). (Zitiert auf Seite [2](#)).
- [18] C. Russo, *et al.*. Raman spectroscopy of a single ion coupled to a high-finesse cavity. *Applied Physics B: Lasers and Optics* **95**, 205 (2009). (Zitiert auf Seite [2](#)).
- [19] A. Dantan, M. Albert, J. P. Marler, P. F. Herskind, M. Drewsen. Large ion Coulomb crystals: A near-ideal medium for coupling optical cavity modes to matter. *Physical Review A* **80**, 041802 (2009). (Zitiert auf Seite [2](#)).
- [20] F. Dubin, *et al.*. Quantum to classical transition in a single-ion laser. *Nature Physics* **6**, 350 (2010). (Zitiert auf Seite [2](#)).
- [21] P. Sta anum, K. Hojbjerg, P. S. Skyt, A. K. Hansen, M. Drewsen. Rotational laser cooling of vibrationally and translationally cold molecular ions. *Nature Physics* **6**, 271 (2010). (Zitiert auf Seite [2](#), [57](#), [64](#), [83](#), [84](#), [86](#), [87](#) und [114](#)).
- [22] T. Schneider, H. D. B. Roth, I. Ernsting, S. Schiller. All-optical preparation of molecular ions in the rovibrational ground state. *Nature Physics* **6**, 275 (2010). (Zitiert auf Seite [2](#) und [64](#)).

- 
- [23] D. J. Wineland, R. E. Drullinger, F. L. Walls. Radiation-Pressure Cooling of Bound Resonant Absorbers. *Physical Review Letters* **40**, 1639 (1978). (Zitiert auf Seite [2](#) und [16](#)).
- [24] W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P. Toschek, H. Dehmelt. Optical-Sideband Cooling of Visible Atom Cloud Confined in Parabolic Well. *Physical Review Letters* **41**, 233 (1978). (Zitiert auf Seite [2](#)).
- [25] W. M. Itano, D. J. Wineland. Laser cooling of ions stored in harmonic and Penning traps. *Physical Review A* **25**, 35 (1982). (Zitiert auf Seite [2](#)).
- [26] F. Diedrich, J. C. Bergquist, W. M. Itano, D. J. Wineland. Laser Cooling to the Zero-Point Energy of Motion. *Physical Review Letters* **62**, 403 (1989). (Zitiert auf Seite [2](#)).
- [27] J. D. Prestage, A. Williams, L. Maleki, M. J. Djomehri, E. Harabetian. Dynamics of charged particles in a Paul radio-frequency quadrupole trap. *Physical Review Letters* **66**, 2964 (1991). (Zitiert auf Seite [2](#)).
- [28] M. G. Raizen, J. M. Gilligan, J. C. Bergquist, W. M. Itano, D. J. Wineland. Ionic crystals in a linear Paul trap. *Physical Review A* **45**, 6493 (1992). (Zitiert auf Seite [2](#)).
- [29] M. Drewsen, A. Mortensen, R. Martinussen, P. Sta anum, J. L. Sørensen. Nondestructive Identification of Cold and Extremely Localized Single Molecular Ions. *Physical Review Letters* **93**, 243201 (2004). (Zitiert auf Seite [2](#)).
- [30] P. F. Sta anum, K. Højbjerg, R. Wester, M. Drewsen. Probing Isotope Effects in Chemical Reactions Using Single Ions. *Physical Review Letters* **100**, 243003 (2008). (Zitiert auf Seite [2](#) und [3](#)).
- [31] K. Højbjerg, *et al.*. Consecutive photodissociation of a single complex molecular ion. *Physical Review A* **77**, 030702 (2008). (Zitiert auf Seite [2](#)).
- [32] C. W. Chou, D. B. Hume, J. C. J. Koelemeij, D. J. Wineland, T. Rosenband. Frequency Comparison of Two High-Accuracy  $\text{Al}^+$  Optical Clocks. *Physical Review Letters* **104**, 070802 (2010). (Zitiert auf Seite [2](#)).
- [33] A. Rahman, J. P. Schiffer. Structure of a One-Component Plasma in an External Field: A Molecular-Dynamics Study of Particle Arrangement in a Heavy-Ion Storage Ring. *Physical Review Letters* **57**, 1133 (1986). (Zitiert auf Seite [2](#)).

- [34] F. Diedrich, E. Peik, J. M. Chen, W. Quint, H. Walther. Observation of a Phase Transition of Stored Laser-Cooled Ions. *Physical Review Letters* **59**, 2931 (1987). (Zitiert auf Seite 2).
- [35] D. H. E. Dubin. First-order anharmonic correction to the free energy of a Coulomb crystal in periodic boundary conditions. *Physical Review A* **42**, 4972 (1990). (Zitiert auf Seite 2).
- [36] J. L. Barrat, J. P. Hansen, R. Mochkovitch. Crystallization of carbon-oxygen mixtures in white dwarfs. *Astronomy and Astrophysics* **199**, L15 (1988). (Zitiert auf Seite 2).
- [37] B. Roth, U. Fröhlich, S. Schiller. Sympathetic Cooling of  $^4\text{He}^+$  Ions in a Radio-Frequency Trap. *Physical Review Letters* **94**, 053001 (2005). (Zitiert auf Seite 2).
- [38] J. B. Wübbena, S. Amairi, O. Mandel, P. O. Schmidt. Sympathetic Cooling of Mixed Species Two-Ion Crystals for Precision Spectroscopy. *arXiv:1202.2730v2* (2012). (Zitiert auf Seite 2).
- [39] P. Rowe, *et al.*. Sympathetic Crystallization of Trapped Ions. *Physical Review Letters* **82**, 2071 (1999). (Zitiert auf Seite 2).
- [40] R. Drullinger, D. J. Wineland, J. C. Berquist. High-Resolution Optical Spectra of Laser Cooled Ions. *Applied Physics* **22**, 365 (1980). (Zitiert auf Seite 2 und 24).
- [41] D. J. Larson, J. C. Bergquist, J. J. Bollinger, W. M. Itano, D. J. Wineland. Sympathetic cooling of trapped ions: A laser-cooled two-species nonneutral ion plasma. *Physical Review Letters* **57**, 70 (1986). (Zitiert auf Seite 2).
- [42] H. Imajo, *et al.*. High-resolution ultraviolet spectra of sympathetically-laser-cooled  $\text{Cd}^+$  ions. *Physical Review A* **53**, 122 (1996). (Zitiert auf Seite 2).
- [43] M. Drewsen, *et al.*. Sympathetic cooling and crystallization of ions in a linear Paul trap. *AIP Conference Proceedings* **457**, 305 (1999). (Zitiert auf Seite 2, 24 und 60).
- [44] K. Mølhave, M. Drewsen. Formation of translationally cold  $\text{MgH}^+$  and  $\text{MgD}^+$  molecules in an ion trap. *Physical Review A* **62**, 011401+ (2000). (Zitiert auf Seite 3 und 5).
- [45] O. Asvany, *et al.*. High-Resolution Rotational Spectroscopy in a Cold Ion Trap:  $\text{H}_2\text{D}^+$  and  $\text{D}_2\text{H}^+$ . *Physical Review Letters* **100**, 233004 (2008). (Zitiert auf Seite 3).
- [46] P. O. Schmidt, *et al.*. Spectroscopy Using Quantum Logic. *Science* **309**, 749 (2005). (Zitiert auf Seite 3).

- 
- [47] D. B. Hume, *et al.*. Trapped-Ion State Detection through Coherent Motion. *Physical Review Letters* **107**, 243902 (2011). (Zitiert auf Seite 3).
- [48] M. Shapiro, P. Brumer. *Principles of the Quantum Control of Molecular Processes* (John Wiley & Sons inc. Hoboken, 2003). (Zitiert auf Seite 3).
- [49] I. W. M. Smith. *Low temperatures and cold molecules* (Imperial College Press (London ), 2008). (Zitiert auf Seite 3).
- [50] S. A. Harich, *et al.*. Forward scattering due to slow-down of the intermediate in the  $H^+ HD \rightarrow D^+ H_2$  reaction. *Nature Physics* **419**, 281 (2002). (Zitiert auf Seite 3).
- [51] H. Stapelfeldt, T. Seideman. Colloquium: Aligning molecules with strong laser pulses. *Reviews of Modern Physics* **75**, 543 (2003). (Zitiert auf Seite 3).
- [52] J. C. J. Koelemeij, B. Roth, S. Schiller. Blackbody thermometry with cold molecular ions and application to ion-based frequency standards. *Physical Review A* **76**, 023413+ (2007). (Zitiert auf Seite 3 und 83).
- [53] Z. Amitay, *et al.*. Dissociative recombination of vibrationally excited  $HD^+$ : State-selective experimental investigation. *Physical Review A* **60**, 3769 (1999). (Zitiert auf Seite 3).
- [54] D. Church. Collision measurements and excited-level lifetime measurements on ions stored in Paul, Penning and Kingdon ion traps. *Physics Reports* **228**, 253 (1993). (Zitiert auf Seite 3).
- [55] V. Mäckel, R. Klawitter, G. Brenner, J. R. Crespo López-Urrutia, J. Ullrich. Laser Spectroscopy on Forbidden Transitions in Trapped Highly Charged  $Ar^{13+}$  Ions. *Physical Review Letters* **107**, 143002 (2011). (Zitiert auf Seite 3).
- [56] L. Gruber, *et al.*. Evidence for highly charged ion Coulomb crystallization in multi-component strongly coupled plasmas. *Physical Review Letters* **86**, 636 (2001). (Zitiert auf Seite 3).
- [57] T. Kwapień, U. Eichmann, W. Sandner. Sympathetic cooling of laser-produced doubly charged ions in a few-ion crystal. *Physical Review A* **75**, 063418 (2007). (Zitiert auf Seite 3).
- [58] M. Bussmann, U. Schramm, D. Habs, V. Kolhinen, J. Szerypo. Stopping highly charged ions in a laser-cooled one component plasma of  $Mg^{24+}$  ions. *International Journal of Mass Spectrometry* **251**, 179 (2006). (Zitiert auf Seite 3).

- [59] T. Fang, C. R. Canizares. Probing Cosmology with the X-Ray Forest. *The Astrophysical Journal* **539**, 532 (2000). (Zitiert auf Seite 3).
- [60] S. W. Epp, *et al.*. Soft X-Ray Laser Spectroscopy on Trapped Highly Charged Ions at FLASH. *Physical Review Letters* **98**, 183001 (2007). (Zitiert auf Seite 3).
- [61] S. Sturm, *et al.*.  $g$  Factor of Hydrogenlike  $^{28}\text{Si}^{13+}$ . *Physical Review Letters* **107**, 023002 (2011). (Zitiert auf Seite 3).
- [62] M. Zolotarev, D. Budker. Parity Nonconservation in Relativistic Hydrogenic Ions. *Physical Review Letters* **78**, 4717 (1997). (Zitiert auf Seite 3).
- [63] A. Surzhykov, *et al.*. Angular correlations in the two-photon decay of heliumlike heavy ions. *Physical Review A* **81**, 042510 (2010). (Zitiert auf Seite 3).
- [64] V. M. Shabaev, A. V. Volotka, C. Kozhuharov, G. Plunien, T. Stöhlker. Parity-nonconservation effect with the laser-induced  $2\ ^3S_1 \sim 2\ ^1S_0$  transition in heavy heliumlike ions. *Physical Review A* **81**, 052102 (2010). (Zitiert auf Seite 3).
- [65] S. Schiller. Hydrogenlike Highly Charged Ions for Tests of the Time Independence of Fundamental Constants. *Physical Review Letters* **98**, 180801+ (2007). (Zitiert auf Seite 4).
- [66] J. C. Berengut, V. A. Dzuba, V. V. Flambaum. Enhanced Laboratory Sensitivity to Variation of the Fine-Structure Constant using Highly Charged Ions. *Physical Review Letters* **105**, 120801 (2010). (Zitiert auf Seite 4).
- [67] J. C. Berengut, V. A. Dzuba, V. V. Flambaum, A. Ong. Electron-Hole Transitions in Multiply Charged Ions for Precision Laser Spectroscopy and Searching for Variations in  $\alpha$ . *Physical Review Letters* **106**, 210802 (2011). (Zitiert auf Seite 4).
- [68] J. D. Gillaspay. Highly charged ions. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **34**, R93 (2001). (Zitiert auf Seite 4).
- [69] 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* **1988**, 157 (1988). (Zitiert auf Seite 4).
- [70] T. Stöhlker, *et al.*.  $1s$  Lamb Shift in Hydrogenlike Uranium Measured on Cooled, Decelerated Ion Beams. *Physical Review Letters* **85**, 3109 (2000). (Zitiert auf Seite 4).
- [71] L. Deslauriers, *et al.*. Scaling and Suppression of Anomalous Heating in Ion Traps. *Physical Review Letters* **97**, 103007+ (2006). (Zitiert auf Seite 4).

- 
- [72] D. J. Berkeland, J. D. Miller, J. C. Bergquist, W. M. Itano, D. J. Wineland. Laser-Cooled Mercury Ion Frequency Standard. *Physical Review Letters* **80**, 2089 (1998). (Zitiert auf Seite 4).
- [73] M. E. Poitzsch, J. C. Bergquist, W. M. Itano, D. J. Wineland. Cryogenic linear ion trap for accurate spectroscopy. *Review of Scientific Instruments* **67**, 129 (1995). (Zitiert auf Seite 4).
- [74] J. Labaziewicz, *et al.*. Suppression of Heating Rates in Cryogenic Surface-Electrode Ion Traps. *Physical Review Letters* **100**, 013001 (2008). (Zitiert auf Seite 5).
- [75] P. B. Antohi, *et al.*. Cryogenic ion trapping systems with surface-electrode traps. *Review of Scientific Instruments* **80**, 013103+ (2009). (Zitiert auf Seite 5).
- [76] N. Kjærgaard. Methods in Laser Cooling of Ions in Storage Rings and Traps. Ph.D. thesis. Århus Universitet (2001). (Zitiert auf Seite 5, 32, 33 und 60).
- [77] T. Baumann. Spektroskopische Untersuchungen resonanter Rekombinationsprozesse an hochgeladenem Silizium in einer Elektronenstrahl-Falle. Ph.D. thesis. Universität Heidelberg (2012). (Zitiert auf Seite 5 und 46).
- [78] A. Müller, E. Salzborn. Scaling of cross sections for multiple electron transfer to highly charged ions colliding with atoms and molecules. *Physical Review A* **62**, 391 (1977). (Zitiert auf Seite 5).
- [79] P. Ghosh. *Ion Traps* (Clarendon Press, Oxford, 1995). chap. 2. (Zitiert auf Seite 7).
- [80] D. R. Denison. Operating Parameters of a Quadrupole in a Grounded Cylindrical Housing. *Journal of Vacuum Science and Technology* **8**, 266 (1971). (Zitiert auf Seite 8).
- [81] N. McLachlan. *Theory and applications of Mathieu functions* (Clarendon Press, Oxford, 1947). (Zitiert auf Seite 9).
- [82] F. R. Brunner. Entwurf und Aufbau einer kryogenen, linearen Paul-Falle für hochgeladene Ionen (2010). (Zitiert auf Seite 11, 31, 35 und 40).
- [83] W. Haken. *Atom- und Quantenphysik* (Springer, 2004). (Zitiert auf Seite 13 und 16).
- [84] H. J. Metcalf, P. van der Straten. *Laser Cooling and Trapping* (Springer, 1999). (Zitiert auf Seite 16).
- [85] R. Frisch. Experimenteller Nachweis des Einsteinschen Strahlungsrückstoßes. *Zeitschrift für Physik* **86**, 42 (1933). (Zitiert auf Seite 16).

- [86] T. Hänsch, A. L. Schawlow. Cooling of Gases by Laser Radiation. *Optics Communications* **13**, 68 (1975). (Zitiert auf Seite 16).
- [87] E. L. Pollock, J. P. Hansen. Statistical Mechanics of Dense Ionized Matter. II. Equilibrium Properties and Melting Transition of the Crystallized One-Component Plasma. *Physical Review A* **8**, 3110 (1973). (Zitiert auf Seite 22).
- [88] J. N. Tan, J. J. Bollinger, B. Jelenkovic, W. M. Itano, D. J. Wineland. Observation of Long-Range Order in Trapped Ion Plasmas By Bragg Scattering. *Proceeding International Conference on the Physics of Strongly Coupled Plasmas* pp. 387–396 (1995). (Zitiert auf Seite 22).
- [89] A. Mortensen, E. Nielsen, T. Matthey, M. Drewsen. Observation of Three-Dimensional Long-Range Order in Small Ion Coulomb Crystals in an rf Trap. *Phys. Rev. Lett.* **96**, 103001 (2006). (Zitiert auf Seite 23).
- [90] R. W. Hasse, V. V. Avilov. Structure and Madelung energy of spherical Coulomb crystals. *Physical Review A* **44**, 4506 (1991). (Zitiert auf Seite 23).
- [91] A. Mortensen. Aspects of Ion Coulomb Crystal based Quantum Memory for Light. Ph.D. thesis. Århus Universitet (2005). (Zitiert auf Seite 23, 32 und 33).
- [92] F. Engelke. *Aufbau der Moleküle* (Teubner Studienbücher, 1992). (Zitiert auf Seite 24).
- [93] W. Demtröder. *Experimentalphysik 3* (Springer, 2000). 2. Auflage. (Zitiert auf Seite 24).
- [94] F. K. Kneubühl. *Laser* (Teubner-Studienbücher, 1991). (Zitiert auf Seite 28).
- [95] M. Aymar, R. Guérout, M. Sahlaoui, O. Dulieu. Electronic structure of the magnesium hydride molecular ion. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **42**, 154025+ (2009). (Zitiert auf Seite 29, 111, 112 und 115).
- [96] K. Højbjerg. Experiments with cold trapped molecular ions. Ph.D. thesis. Århus Universitet (2009). (Zitiert auf Seite 29, 56, 111, 112 und 115).
- [97] M. Schwarz, *et al.*. Cryogenic Linear Paul Trap for cold Highly Charged Ion Experiments. *submitted* (2012). (Zitiert auf Seite 31 und 113).
- [98] T. Ballance. Commissioning of a cryogenic Paul trap for highly charged ions. Master's thesis. Imperial College London (2011). (Zitiert auf Seite 31, 45, 48 und 49).
- [99] I. N. Laboratory. *SIMION 8.0 User Manual*. (Zitiert auf Seite 34 und 49).

- 
- [100] W. Martienssen, H. Warlimont, eds.. *Springer handbook of condensed matter and materials data* (Springer, 2005). (Zitiert auf Seite [35](#)).
- [101] W. M. Haynes. *Handbook of Chemistry and Physics* (Taylor and Francis Group, LLC, 2012). (Zitiert auf Seite [35](#)).
- [102] *SHI Cryocooler Specification, Model: SRP-082B-F70H*. (Zitiert auf Seite [39](#)).
- [103] MPIA. LabView Programm zum Auslesen des Temperaturmonitors. (Zitiert auf Seite [39](#)).
- [104] S. Bieling. N.A. (Bachelor thesis. Universität Heidelberg (2010)). (Zitiert auf Seite [43](#)).
- [105] S. Eberle. Construction of an electron impact ion source for test measurements on a linear Paul trap. (Bachelor thesis. Universität Heidelberg (2010)). (Zitiert auf Seite [45](#)).
- [106] J. Faist, *et al.*. Quantum Cascade Laser. *Science* **264**, 553 (1994). (Zitiert auf Seite [56](#)).
- [107] K. Højbjerg, A. K. Hansen, P. S. Skyt, P. F. Staantum, M. Drewsen. Rotational state resolved photodissociation spectroscopy of translationally and vibrationally cold  $\text{MgH}^+$  ions: toward rotational cooling of molecular ions. *New Journal of Physics* **11**, 055026+ (2009). (Zitiert auf Seite [57](#), [61](#), [63](#) und [73](#)).
- [108] V. Kaufman, W. C. Martin. References for Ionization Energies of the neutral atoms. Mg. *Journal of Physical and Chemical Reference Data* **20** (1991). (Zitiert auf Seite [57](#)).
- [109] NIST Atomic Spectra Database. (Zitiert auf Seite [58](#)).
- [110] N. Kjærgaard, L. Hornekær, A. M. Thommesen, Z. Videsen, M. Drewsen. Isotope selective loading of an ion trap using resonance-enhanced two-photon ionization. *Applied Physics B: Lasers and Optics* **71**, 207 (2000). (Zitiert auf Seite [58](#)).
- [111] S. B. Kristensen. Development of methods for internal state preparation of  $\text{MgH}^+$  molecules. Master's thesis. Århus Universitet (2012). (Zitiert auf Seite [62](#), [64](#), [65](#), [66](#), [68](#) und [70](#)).
- [112] M. Otto. *Analytische Chemie* (Wiley-VCH, 2011). (Zitiert auf Seite [63](#)).
- [113] W. J. Balfour. Rotational Analysis of the  $A^1\Sigma^+ \rightarrow X^1\Sigma^+$  and  $B^1\Sigma \rightarrow X^1\Sigma^+$  Systems of  $^{24}\text{MgH}^+$ ,  $^{25}\text{MgH}^+$ , and  $^{26}\text{MgH}^+$ . *Canadian Journal of Physics* **50**, 72 (1972). (Zitiert auf Seite [71](#) und [85](#)).

- [114] A. Bertelsen, S. Jørgensen, M. Drewsen. The rotational temperature of polar molecular ions in Coulomb crystals. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **39**, L83 (2006). (Zitiert auf Seite 69).
- [115] L. Hornekær, N. Kjærgaard, A. M. Thommesen, M. Drewsen. Structural properties of two-component coulomb crystals in linear paul traps.. *Physical review letters* **86**, 1994 (2001). (Zitiert auf Seite 76).
- [116] H. Bauer. *Wahrscheinlichkeitstheorie und Grundzüge der Maßtheorie* (DeGruyter, 1991). (Zitiert auf Seite 79).
- [117] <http://www.wolfram.com/mathematica/>. (Zitiert auf Seite 93).
- [118] A. K. Hansen. Private Mitteilung. (Zitiert auf Seite 99 und 100).
- [119] M. Schwarz, *et al.*. Decay rate of  $\text{MgH}^+$  rovibrational level  $|\nu = 1, J = 1\rangle \rightarrow |\nu = 0, J = 0\rangle$  measured in a Coulomb Crystal. *in preparation* (2012). (Zitiert auf Seite 101 und 115).
- [120] R. J. Le Roy. LEVEL 7.5: a computer program for solving the radial Schrödinger equation for bound and quasibound levels. *University of Waterloo Chemical Physics Research* (2002). (Zitiert auf Seite 111).
- [121] A. C. Wilson, *et al.*. A 750-mW, continuous-wave, solid-state laser source at 313 nm for cooling and manipulating trapped  $^9\text{Be}^+$ -ions. *Applied Physics B: Lasers and Optics* **105**, 741 (2011). (Zitiert auf Seite 116).
- [122] R. Soria 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  $\text{Ar}^{13+}$ . *Physical Review A* **76**, 052501 (2007). (Zitiert auf Seite 116).
- [123] K. Schnorr. Laserspektroskopie hochgeladener Ionen in einer EBIT. Diploma thesis. Justus-Liebig Universität Giessen (2011). (Zitiert auf Seite 116).

# Erklärung

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

Heidelberg, den 26.04.2012