INAUGURAL-DISSERTATION zur Erlangung der Doktorwürde der Naturwissenschaftlich-Mathematischen Gesamtfakultät der Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

> vorgelegt von Dipl.-Phys. Günther Sikler aus Arad (Rumänien)

Tag der mündlichen Prüfung: 11.02.2003

Massenspektrometrie kurzlebiger Sr- und Sn-Isotope und Aufbau der SHIPTRAP-Penningfallen

Gutachter:

Prof. Dr. H.-Jürgen Kluge Prof. Dr. Andreas Wolf

# Massenspektrometrie kurzlebiger Sr- und Sn-Isotope und Aufbau der SHIPTRAP-Penningfallen.

Mit Hilfe des Penningfallen-Massenspektrometers ISOLTRAP bei ISOLDE/CERN wurden die atomaren Massen protonenreicher Strontium- und neutronenreicher Zinnisotope mit einer relativen Genauigkeit von  $\frac{\Delta m}{m} \approx 10^{-7}$  bestimmt. Für den doppeltmagischen Kern <sup>132</sup>Sn konnte zum ersten Mal die Masse auf direkte Weise bestimmt werden. <sup>76</sup>Sr ist nun der schwerste N=Z-Kern, dessen Masse genauer als 50 keV bekannt ist. Die ISOLTRAP-Werte für die Massen der untersuchten Nuklide werden mit anderen Werten verglichen, die mit alternativen Meßmethoden ermittelt wurden. Auftretende Diskrepanzen konnten aufgelöst werden.

SHIPTRAP ist eine Ionenfallenanlage hinter SHIP, einem Wien-Filter für Fusionsprodukte an der GSI in Darmstadt. Die Radionuklide werden in einer Gaszelle gestoppt und in linearen, gasgefüllten Radiofrequenz-Quadrupolfallen gekühlt und akkumuliert. Anschließend werden in einer ebenfalls mit Gas gefüllten Penningfalle alle unerwünschten Ionen entfernt. Damit können isobarenreine Ionenensembles transuraner Elemente weiteren Experimenten zur Verfügung gestellt werden, wie beispielsweise der hochpräzisen Massenspektrometrie in einer zweiten Penningfalle. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden die Penningfallen von SHIPTRAP konzipiert, gebaut und in Betrieb genommen.

#### Mass spectrometry on short-lived Sr and Sn isotopes and setup of the Penning traps of SHIPTRAP.

Using the Penning trap mass spectrometer ISOLTRAP at ISOLDE/CERN the atomic masses of proton-rich strontium and neutron-rich tin isotopes were measured. A typical relative accuracy of  $\frac{\Delta m}{m} \approx 10^{-7}$  was reached. The mass of the doubly magic nuclide <sup>132</sup>Sn was measured directly for the first time. <sup>76</sup>Sr is now the heaviest N=Z nucleus with mass measured to an accuracy of less than 50 keV. For the investigated nuclides the ISOLTRAP results were compared with values, obtained by other mass measurement methods. Discrepancies between the new and previously reported values were resolved.

SHIPTRAP is an ion trap-facility behind the Wien-filter SHIP located at GSI in Darmstadt. The fusion products will be stopped in a gas-filled cell and cooled and accumulated in linear radio frequency quadrupole traps. Contaminations from other ion species are removed within a gas-filled Penning trap. SHIPTRAP will provide isobarically pure ensembles of transuranium ions to further experiments as, for example, high precision mass measurements in a second Penning trap. In the framework of this thesis the two SHIPTRAP Penning traps were designed, constructed and set into operation.

# Inhaltsverzeichnis

1	Ein	leitung	1
<b>2</b>	Mo	tivation und Methoden der Massenmessung an Radionukliden	3
	2.1	Motivation	3
	2.2	Methoden der Massenmessung	8
3	Pen	ningfallen-Massenspektrometrie	13
	3.1	Prinzip der Penningfalle	13
	3.2	Anregung der Ionenbewegung mittels elektrischer Wechselfelder	19
	3.3	Massenselektives Puffergas-Kühlen	20
	3.4	Bestimmung der Zyklotronfrequenz mittels der Flugzeitmethode	22
4	ISO	LTRAP	33
	4.1	Experimenteller Aufbau	33
		4.1.1 Der On-line Isotopen-Separator ISOLDE	33
		4.1.2 Das Präzisions-Massenspektrometer ISOLTRAP	35
	4.2	Messungen an protonenreichen Strontium- und	
		neutronenreichen Zinn-Isotopen	39
		4.2.1 Production	39
		4.2.2 Bestimmung der atomaren Masse	41
	4.3	Resultate und ihre Einbindung in die AME-Massentabelle $\ \ . \ . \ .$	52
	4.4	Diskussion	60
		Wigner-Energie in N=Z-Kernen	60
		Doppelter Schalenabschluß	64
	4.5	Zusammenfassung und Ausblick	65
<b>5</b>	SHI	PTRAP	71
	5.1	Erzeugung transuraner Elemente bei SHIP	71
	5.2	Experimenteller Aufbau von SHIPTRAP	73
		5.2.1 Übersicht $\ldots$	73
		5.2.2 Technische Umsetzung	76

		Transferstrecke	 . 78	3
		Penningfallen	 . 8	1
	5.3	Bisherige Ergebnisse und Ausblick	 . 8	5
A	Tran	nsferstrecke	89	•
В	Falle	len	99	9
	Lite	eraturverzeichnis	11'	7

# Abbildungsverzeichnis

2.1	Massenformel von Bethe und Weizsäcker	4
2.2	Neutronen-Separationsenergie $(S_{1n})$ für Barium-Isotope als Funktion der Neutronenanzahl	5
2.3	Astrophysikalischer r-Prozeß	6
2.4	Mattauch-Herzog-Massenspektrometer	10
2.5	Experimentier-Speicherring an der GSI	11
2.6	MISTRAL-Spektrometer	12
3.1	Hyperbolische Penningfalle	14
3.2	Schematische Darstellung der charakteristischen Bewegung eines Ions in einer Penningfalle	16
3.3	Vergleich einer zylindrischen mit einer hyperbolischen Fallenkonfigu- ration	18
3.4	Anregung der radialen Ionenbewegung mit Hilfe elektrischer Wech- selfelder	20
3.5	Radiale Bewegungskomponenten beim massenselektiven Puffergas- Kühlen	21
3.6	Magnetisches Dipolmoment der Zyklotronbahn eines Ions im Magnet- feld	23
3.7	Energieaufnahme bei radialer Quadrupolanregung	25
3.8	Flugzeitspektrum für $^{133}$ Cs <sup>+</sup> -Ionen	27
3.9	Flugzeitverteilung für resonante und nicht-resonante Anregung	28
4.1	Der Online-Separator ISOLDE am CERN	34
4.2	Schema des Präzisions-Massenspektrometers ISOLTRAP $\ .\ .\ .\ .$	35
4.3	ISOLTRAP-Buncher	36
4.4	ISOLTRAP-Kühlerfalle	38
4.5	ISOLTRAP-Präzisionsfalle	39
4.6	Zeitschema eines Meßzyklus	41
4.7	Zählratenbedingte Frequenzverschiebung	45
4.8	Zeitliche Magnetfeld-Änderung während der Zinn- und Strontium- Messungen	49

4.9	$\beta$ -Zerfallsketten für die neutronenreiche S n-Isotope $\ \ldots\ \ldots\ \ldots\ \ldots$	57
4.10	Experimentelle Flugzeitspektren für $^{131}$ Sn	58
4.11	Vergleich aller bisher verfügbaren experimentellen Massenwerte für $^{132}$ Sn	60
4.12	Valenznukleonen-Wechselwirkungs-Energie für (g,g)-Kerne in der Nähe der $N = Z$ -Linie	62
4.13	Experimentelle Valenznukleonen-Wechselwirkungs-Energie für gg- $N = Z$ -Kerne	63
4.14	Vergleich der neuen ISOLTRAP-Werte für die untersuchten Stronti- umisotope mit den zuvor von der AME angegebenen	66
4.15	Vergleich der neuen ISOLTRAP-Werte für die untersuchten Zinniso- tope mit den zuvor von der AME angegebenen	67
5.1	Geschwindigkeitsfilter SHIP	72
5.2	Foto des SHIPTRAP-Aufbaus	73
5.3	Schematische Darstellung des SHIPTRAP-Aufbaus	74
5.4	SHIPTRAP-Stoppzelle und Extraktions-RFQ	75
5.5	Schematische Darstellung das Vakuumsystems von SHIPTRAP	77
5.6	Anordnung der Transfer-Zylinder	78
5.7	Ionenoptische Simulation für den Einschuß ins Magnetfeld	79
5.8	Potentialverlauf im Inneren eines Ablenkers	80
5.9	Schematische Darstellung der SHIPTRAP-Reinigungsfalle	82
5.10	Potentialverlauf in der Reinigungsfalle	83
5.11	Schematische Darstellung der SHIPTRAP-Meßfalle	84
5.12	Foto der SHIPTRAP-Penningfallen	85
5.13	Dipolanregung der reduzierten Zyklotronfrequenz von Xe-Ionen in der SHIPTRAP-Reinigungsfalle	86

# Tabellenverzeichnis

4.1	Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit untersuchten Strontium- und	
	Zinnisotope	40
4.2	Ergebnisse der Zyklotronfrequenzmessungen der untersuchten Sr- und	
	Sn-Isotope	44
4.3	Zyklotronfrequenzen der Zinn-Isotope für geringe Teilchenzahlen in	
	der Penningfalle	46
4.4	Übersicht über alle in Betracht gezogenen Fehlerquellen	51
4.5	Frequenzverhältnisse und atomare Massen der untersuchten Strontium-	
	und Zinn-Isotope	52
4.6	Vergleich der ISOLTRAP-Daten mit den in der AME angegebenen	
	Werten	53

# Kapitel 1 Einleitung

Die Masse ist eine grundlegenden Eigenschaften eines jeden mikroskopischen oder makroskopischen Objekts. Als *schwere Masse* charakterisiert sie die gravitative Wechselwirkung mit anderen Körpern und spielt damit eine große Rolle in der makroskopischen Welt der Alltagserfahrung und in der Kosmologie. Noch weitreichender ist das Konzept der *trägen Masse*. Die durch Newton eingeführte Beschreibung der Natur mittels Bewegungsgleichungen ist eine der Hauptgrundlagen der modernen Physik: Hier setzt die Masse eine wirkenden Kraft in Beziehung zu der durch sie vermittelten Bewegungsänderung.

Durch die Formulierung der allgemeinen Relativitätstheorie durch Albert Einstein werden nicht nur schwere und träge Masse gleichgesetzt, sondern auch als Energie

$$E = mc^2 \tag{1.1}$$

identifiziert. Diese Äquivalenz offenbart sich beispielsweise in der Tatsache, daß ein Objekt, das durch Verschmelzung mehrerer Einzelobjekte entsteht, leichter ist als die Summe der Massen seiner Bestandteile. Diese Massendifferenz, die nach (1.1) der in der Bindung gespeicherten Energie entspricht, ist in der makroskopischen Alltagswelt kaum erfahrbar. Auf atomaren und subatomaren Skalen ist sie aber von entscheidender Bedeutung. Die Masse eines Eisenatomkerns (<sup>56</sup>Fe) ist beispielsweise um fast 1 % geringer als die Summe der Massen der 26 Protonen und der 30 Neutronen, aus denen er besteht. Die Energie, die bei der Spaltung von Atomkernen frei wird, ist Grundlage für Atombomben und die Energieerzeugung in Kernkraftwerken. Die Energie, die in der Sonne bei der Fusion von Wasserstoff frei und abgestrahlt wird, ist die Basis für die Existenz und den Fortbestand von Leben auf unserem Planeten.

Bei Kenntnis der Masse des Protons und des Neutrons kann man durch Messen der Masse eines Atomkerns dessen Bindungsenergie bestimmen. In der Bindungsenergie spiegeln sich alle Kräfte, die in einem Kern zwischen den Nukleonen wirken, wieder. Die Bindungsenergien oder die Massen aller Kerne bilden also die Grundlage für Modelle, die die Kernkraft zu beschreiben versuchen und uns einen besseren Einblick geben in das,

#### ... was die Welt Im Innersten zusammenhält, ...." [1].

,,

Zunächst standen für Untersuchungen lediglich die 270 stabilen und etwa 50 weitere radioaktive, in der Natur vorkommende Nuklide zur Verfügung. Seitdem Kernreaktoren und Beschleuniger zur Verfügung stehen, konnten bereits mehr als 2500 neue, radioaktive Nuklide synthetisiert und nachgewiesen werden. Insgesamt geht man von 6000 bis 7000 gebundenen Nukliden aus. Jedes einzelne von ihnen stellt eine neue Kombination von Z Protonen mit N Neutronen dar. Im Jahre 1995 waren für 1844 verschiedene Kerne die Massen experimentell bestimmt [16]. Mittlerweile gilt dies bereits für mehr als 2150 Nuklide [2]. Damit steht für die Erforschung der Kernstruktur und den Test von Kernmodellen und Massenformeln ein wachsender Datensatz zur Verfügung.

Die vorliegende Arbeit beschreibt den Aufbau einer neuen Anlage zur Massenbestimmung von sehr schweren Nukliden fernab der Stabilität. Darüberhinaus wird von Massenmessungen an mittelschweren Radionukliden berichtet.

In Kap. 2 werden verschiedene Methoden vorgestellt, mit denen die Bindungsenergien beziehungsweise Massen von *exotischen* Kernen bestimmt werden können. Eine besonders genaue Methode ist die Massenspektrometrie in *Penningfallen*, deren Prinzip und Funktionsweise detailiert in Kap. 3 beschrieben werden.

Kapitel 4 beschreibt die Bestimmung der atomaren Massen protonenreicher Strontiumund neutronenreicher Zinnisotope, die mittels des Penningfallen-Massenspektrometers ISOLTRAP am europäischen Kernforschungszentrum CERN in Genf mit einer relativen Genauigkeit von  $\frac{\Delta m}{m} \approx 10^{-7}$  durchgeführt wurden. In diesem Kapitel wird auch die Produktion der untersuchten Radionuklide erläutert und der experimentelle Aufbau von ISOLTRAP beschrieben. Schließlich werden die Ergebnisse vorgestellt und ihre kernphysikalische Bedeutung diskutiert.

Das 5. Kapitel ist der Konstruktion und Inbetriebnahme der Penningfallen der SHIPTRAP-Anlage bei der Gesellschaft für Schwerionenforschung in Darmstadt gewidmet. Mit SHIPTRAP sollen die Massen von Fusionsprodukten, und hier vor allem von überschweren Radionukliden jenseits von Uran bestimmt werden, die an den üblichen on-line Massenseparatoren nicht zur Verfügung stehen.

### Kapitel 2

## Motivation und Methoden der Massenmessung an Radionukliden

#### 2.1 Motivation

In der Einleitung wurde bereits auf die Bedeutung atomarer Massen hingewiesen. Sie liefern Informationen über die Zusammensetzung und die Struktur von Atomen und ihrer Kerne. Die Energie, mit der ein Nukleon an den Kern gebunden ist, beträgt etwa 7 bis 9 MeV, während die Elektronen-Bindungsenergie in einem weiten Bereich von wenigen eV bis zu mehr als 100 keV variieren kann.

Die Masse eines Atomkerns ist geringer als die Summe der Massen aller Nukleonen, aus denen der Kern besteht. Die Differenz, die als *Kernmassendefekt* bezeichnet wird, ist die Summe aller Energien, mit der die einzelnen Protonen und Neutronen im Kern gebunden sind. In der gesamten Kernbindungsenergie spiegeln sich somit alle Kernkräfte wider.

#### Kernmodelle und Massenformeln

Ausgehend vom Tröpfchenmodell entwickelten Bethe und Weizsäcker im Jahre 1935 die erste semi-empirische Massenformel [3]. Sie erlaubt die Bestimmung der Kernbindungsenergie als Funktion der Massenzahl A. Dabei ist die Bindungsenergie B eines Kerns mit Z Protonen und N = A - Z Neutronen gegeben durch die Weizsäcker-Massenformel:

$$B = a_V A - a_S A^{2/3} - a_{\text{Sym}} \frac{(Z - N)^2}{A} - a_{\text{Coul}} \frac{Z^2}{A^{1/3}} + \delta(A).$$
(2.1)

Diese semi-empirische Formel basiert auf der Vorstellung, daß ein Atomkern ein Tröpfchen bestehend aus Kernmaterie (Protonen und Neutronen) ist. Die Bindungsenergie der einzelnen Bestandteile (Nukleonen) hängt vom Volumen ( $\propto A$ ) und der Oberfläche ( $\propto A^{2/3}$ ) des Tropfens ab. Zusätzlich ist sie charakterisiert durch die Ungleichmäßigkeit der Verteilung der Protonen und Neutronen ( $(Z-N)^2/A$ ), die Dichte der sich elektrostatisch abstoßenden Protonen ( $\propto Z^2/A^{1/3}$ ) und der Tendenz der Nukleonen in Paaren aufzutreten. Die Koeffizienten  $a_i$  und der Paarbindungsterm  $\delta(A)$  sind freie Parameter, die experimentell bestimmt werden müssen. Zahlenwerte und Erläuterungen zu den einzelnen Termen finden sich in Lehrbüchern über die Struktur von Atomkernen, wie beispielsweise in [4].

Seit der Zeit Bethes und Weizsäckers wurde eine Vielzahl erweiterter Massenformeln entwickelt [5–9]. Ebenso wie die Weizsäckerformel selbst enthalten auch sie freie Parameter, die nur durch Anpassung an experimentelle Daten bestimmt werden können. Abweichungen von generellen Trends, die aus Massenformeln abgeleitet werden können, führten stets zur Entdeckung neuer Effekte und Phänomene. Ein Vergleich der Weizsäckerformel mit gemessenen Bindungsenergien für die Gesamtheit aller in der Natur vorkommenden Nuklide (Abb. 2.1) offenbart systematische Abweichungen. Dies ist ein Hinweis auf Phänomene, die im Rahmen des Tröpfchenmodells nicht beschrieben werden. Die Neutronen-Separationsenergie ( $S_{1n}$ ) ist die Energie, die aufgewendet werden muß, um ein Neutron vom Kern zu entfernen. Sie kann aus der Massendifferenz benachbarter Isotope bestimmt werden. Das Gleiche gilt für die Protonen-Separationsenergie  $S_{1p}$ .



Abbildung 2.1: Massenformel von Bethe und Weizsäcker. Die durchgezogene Kurve gibt den Verlauf der Bindungsenergie B pro Nukleon als Funktion der Massenzahl A wieder, wie ihn das Tröpfchenmodell vorhersagt. Die Kreise sind experimentelle Werte für Massen von stabilen Kernen. Die Kernschalenstruktur zeichnet sich deutlich ab (Abb. aus [10]).

Kerne mit bestimmten, *magischen* Protonen- beziehungsweise Neutronenzahlen sind außergewöhnlich stark gebunden. Diese Beobachtung führte zur Entwicklung des Schalenmodells für Atomkerne [11]. Die Betrachtung der Neutronen-Separationsenergie als Funktion der Neutronenzahl (bei konstanter Protonenzahl) macht diesen Schalenabschluß deutlich (Abb. 2.2). Die Stärke der Paarbindungskraft läßt sich ebenfalls



Abbildung 2.2: Neutronen-Separationsenergie  $(S_{1n})$  für Barium-Isotope als Funktion der Neutronenanzahl. Sowohl der Neutronenpaarungseffekt als auch der Schalenabschluß bei N = 82 sind deutlich erkennbar. Die Daten zur Berechnung der  $S_{1n}$  sind der AME'95 [16] entnommen.

direkt ablesen. Sie ist einer der Parameter  $(\delta(A))$  in Gl. (2.1). Zwischen je zwei Schalenabschlüssen kann der Verlauf der  $S_{1n}$  beziehungsweise der  $S_{1p}$  Aufschluß über die Deformation der Kerne bieten. Systematische Untersuchungen, die Regionen exotischer Kerne mit einschließen, erlauben immer genauere Einblicke in die Struktur von Kernen und damit in die Natur der Kernkräfte (siehe beispielsweise [14, 15]). Außerdem sind manche Effekte überhaupt erst bei sehr großem Protonen- oder Neutronenüberschuß beobachtbar. So läßt beispielsweise der Verlauf der Neutronen-Separationsenergie fern der Stabilität eine Auflösung der Schalenstruktur vermuten [12, 13]. Sowohl zur Bestimmung freier Parameter als auch zum Test der Massenformeln und der ihnen zugrundeliegenden Kernmodelle ist ein systematisches Vermessen der Massenlandschaft essentiell.

#### Nukleosynthese

Die große Vielfalt und Zusammensetzung chemischer Elemente ist ausschlaggebend für die meisten Strukturen und Phänomene, die in der Natur vorkommen, bis hin zur Entstehung von Leben auf unserem Planeten. Die Erforschung der Grundbausteine der Materie einschließlich ihrer Entstehung war schon immer zentraler Bestandteil der empirischen Naturwissenschaften.

Die Kernbindungsenergie verkörpert nicht nur die Summe aller Wechselwirkungen, die im Kern auftreten, sondern sie bestimmt auch, wieviel Energie für eine bestimmte Kernreaktion zur Verfügung steht. Für den Wirkungsquerschnitt ist unter anderem die Energiemenge ausschlaggebend, die bei der jeweiligen Reaktion frei wird oder aufgewendet werden muß. Diese wird als Q-Wert bezeichnet. In der Regel wird die frei werdende Energie Q in kinetische Energie der Reaktionsprodukte umgewandelt. Falls Energie aufgewendet werden muß, stammt diese aus der kinetischen Energie mindestens eines der zur Kernreaktion beitragenden Teilchen. Sowohl bei der künstlichen Erzeugung exotischer Kerne an Beschleunigeranlagen als auch bei der natürlichen Elemententstehung (*Nukleosynthese*) spielt die Energiebilanz eine entscheidende Rolle.



Abbildung 2.3: Astrophysikalischer r-Prozeß, ein Mechanismus zur Erzeugung schwerer Elemente. In der Nuklidkarte sind alle bekannten Nuklide entsprechend ihrer Protonenund Neutronenzahl angeordnet. Die schwarzen Quadrate repräsentieren die stabilen Nuklide. Links oberhalb davon befindet sich die Region der  $\beta^+$ -, rechts unterhalb diejenige der  $\beta^-$ -Zerfälle. Am oberen, rechten Ende erstreckt sich die Zone der  $\alpha$ -Emitter (hellgrau), und der Nuklide, die spontan spalten (etwas dunkler). Zusätzlich sind die Protonen- und Neutronen-Abbruchkante und der Pfad des astrophysikalischen r-Prozesses eingezeichnet. Dieser wird im Text genauer erläutert.

Es gibt verschiedene Mechanismen, die bei der Nukleosynthese eine Rolle spielen, wie beispielsweise den astrophysikalischen r-Proze $\beta$  (rapid neutron-capture process) [17, 18]. In Anwesenheit eines enorm großen Neutronenflusses, wie er in Supernova-Explosionen angenommen wird, akkumulieren Kerne mehr und mehr Neutronen. Auf diese Weise werden für kurze Zeit Nuklide erzeugt, die sehr nahe an der Neutronen-Abbruchkante (neutron dripline) liegen (Abb. 2.3). An sogenannten Haltepunkten (waiting points), die sich in der Nähe von Neutronenschalenabschlüssen befinden, ist die Rate für  $\beta^-$ -Zerfälle groß im Vergleich zu der für den Einfang weiterer Neutronen. Falls eine Neutronenschale gefüllt ist, führt das Hinzufügen eines weiteren Neutrons zu einem vergleichsweise schwach gebundenen Kern. Die Umwandlung eines Neutrons in ein Proton durch einen  $\beta^-$ -Zerfall ist nun sehr wahrscheinlich, da die dabei frei werdende Energie  $Q_{\beta}$  sehr groß ist. Der entstandene *Tochterkern* ist wieder magisch und kann auf den Einfang eines Neutrons warten. Auf diese Weise verläuft der Pfad des r-Prozesses entlang einer Neutronenschale dem Tal der Stabilität entgegen bis er eine Region erreicht, in der auch nicht-magische Kerne wieder stärker gebunden sind, und die sequentielle Akkumulation vieler Neutronen den Vorzug vor dem  $\beta$ -Zerfall erhält.

Auf diesem Umweg, der weit vom Tal der Stabilität wegführt, können Elemente erzeugt werden, die sehr viel schwerer als Eisen sind, jenem Element, bei dem die Nukleosynthese durch herkömmliche Fusion endet. Analog verläuft entlang der Protonen-Abbruchkante der rp-Proze $\beta$  (rapid proton-capture process) [19]. Dort schreitet die Nukleosynthese mittels Protoneneinfang und  $\beta^+$ -Zerfall voran. Um die Pfade dieser astrophysikalischen Prozesse zu bestimmen und damit die Entstehung schwerer Elemente zu beschreiben, ist neben der Kenntnis der Querschnitte für Neutronen- oder Protoneneinfang auch die der  $Q_{\beta}$ -Werte aller beteiligten Nuklide nötig. Diese wiederum entsprechen jeweils genau der Differenz der Masse von Mutter- und Tochterkern. Da für sehr exotischen Nuklide die Massen nicht direkt gemessen werden können, werden für Modellrechnungen zu den astrophysikalischen Prozessen Massenwerte aus Vorhersagen durch Massenformeln verwendet. Das Vertrauen in diese Vorhersagen ist umso größer, je mehr bekannte Massen reproduziert werden können und je genauer die experimentellen Werte bestimmt werden konnten.

#### Spezielle Kandidaten und Regionen

Manche Radionuklide zerfallen mittels eines übererlaubten, reinen Fermi-Übergangs (super-allowed  $0^{\pm}-0^{+}\beta$  decay). Reine Fermi-Übergänge bieten eine zur Hochenergiephysik komplementäre Möglichkeit, die schwache Wechselwirkung zu erforschen. Innerhalb des Standardmodells geht man davon aus, daß die schwache Wechselwirkung nur aus vektoriellen und axialvektoriellen Anteilen besteht. Eine prinzipiell mögliche Beimischung von skalaren oder tensoriellen Anteilen kann, bisheriger experimenteller Beobachtung zufolge, nur sehr gering sein [20]. Um die Frage zu beantworten, ob sie dennoch existieren und damit des Standardmodell einer Erweiterung bedarf, ist eine sehr genaue Kenntnis der bei dieser Reaktion übertragenen Energie ( $Q_{\beta}$ ), also der Massen von Mutter- und Tochterkern, nötig. Da beim  $\beta$ -Zerfall ein up-Quark in ein down-Quark umgewandelt wird (beziehungsweise ein down- in ein up-Quark), bietet die Untersuchung solcher spezieller Übergänge auch die Möglichkeit, den up-down Koeffizienten ( $V_{ud}$ ) der *CKM-Matrix* zu bestimmen [21]. Diese Größe dominiert den Test der Unitarität, die durch ein Drei-Generationen-Standardmodell erfüllt sein muß.

Eine ganze Region auf der Nuklidkarte, die von hohem kernphysikalischen Interesse ist, stellt die nähere Umgebung der N=Z-Linie dar. Auf ihr sind alle Nuklide angeordnet, die aus derselben Anzahl von Neutronen und Protonen aufgebaut sind. Das bedeutet, daß Neutronen wie Protonen jeweils die gleichen Zustände im Kern

besetzen. Damit ergibt sich eine besondere Möglichkeit, in der Struktur von Kernen spezielle Phänomene zu untersuchen. Auf sie wird in Kap. 4 im Rahmen der Diskussion der Meßergebnisse für <sup>76</sup>Sr noch genauer eingegangen. Je schwerer und damit instabiler diese N=Z-Kerne sind, umso stärker werden die beobachtbaren Effekte. Auch hier ist, wie in all den anderen Beispielen, die Bindungsenergie eine Haupteigenschaft der untersuchten Nuklide und damit eine Größe von hohem Interesse.

Ein weiteres interessantes Gebiet ist die Region der sehr schweren und überschweren Elemente, der SuperHeavy Elements (SHEs). Diese sind schwerer als Uran (Z=92) und haben damit überhaupt keine stabilen Isotope mehr. Wie oben bereits dargelegt gingen mit dem Vorstoßen in unbekannte Regionen und immer genaueren Messungen stets Entdeckungen neuer Phänomene und Strukturen einher, die zur Erweiterungen der Kernmodelle führten. Ähnliches erwartet man auch bei den transuranen Nukliden. Außerdem vermutet man bei einer Protonenzahl von etwa  $Z \ge 114$  sogenannte Inseln der Stabilität, wo vergleichsweise stark gebundene Nuklide erwartet werden [22]. Verschiedene Modelle machen unterschiedliche Aussagen für die genaue Position der Stabilitätsinseln. Durch die Herstellung und den erfolgreichen Nachweis von Isotopen der Elemente 112 und 114 [22,23] wurde die Zuversicht gestärkt, daß bei besserer Kenntnis von Fusions-Wirkungsquerschnitten und der Wahl geeigneter Reaktionsparter noch schwerere Nuklide erzeugt werden können, die sich auf den vermuteten Inseln der Stabilität befinden. Hierfür ist die Bestimmung der Bindungsenergien der bisher synthetisierten Nuklide und ihrer  $\alpha$ -Zerfallsprodukte von sehr großer Bedeutung. Zur Zeit sind direkte Massenmessungen an SHEs zwar nicht durchführbar, da deren Halbwertszeiten in der Größenordnung von  $1 - 100 \mu s$ liegen, und einige nur mit sehr geringen Raten von etwa  $5 \cdot 10^{-6} s^{-1}$  produziert werden können. Jedoch kann aus den  $Q_{\alpha}$ -Werte der Serie von aufeinander folgenden  $\alpha$ -Zerfällen und der Masse des Nuklids am unteren Ende solch einer Zerfallskette die Bindungsenergie aller beteiligten Nuklide ermittelt werden. Die Erzeugung superschwerer Elemente, die hinreichend langlebig sind, würde nicht nur das Forschungsfeld der Kernstruktur-Physik bedeutend erweitern, sondern würde erstmalig neue Elemente einschließlich der ihnen eigenen atomphysikalischen und chemischen Eigenschaften bereitstellen. Das Periodensystem würde um Elemente erweitert, die in unserem Sonnensystem seit dessen Entstehung nie wieder vorhanden gewesen sind.

#### 2.2 Methoden der Massenmessung

Die Massen einer Reihe von stabilen Nukliden wurden mit einer extrem hohen Präzision von  $\frac{\Delta m}{m} = 10^{-10}$  und besser bestimmt [24–27]. All diese Messungen wurden mit Hilfe der Penningfallen-Massenspektrometrie an einzelnen, gespeicherten Ionen durchgeführt, deren Prinzip in Kapitel 3 beschrieben wird. Bei den meisten dieser Experimente wurden die untersuchten Ionen in der Fallen erzeugt. Im Falle instabiler Nuklide kann diese Vorgehensweise nicht angewendet werden. Diese können nur an großen, sogenannten *RIB-Anlagen* (**R**adioactive **Ion B**eam facilities) produziert werden. Außerdem können Radionuklide aufgrund ihrer begrenzten Lebensdauer nicht beliebig lange gespeichert, manipuliert und beobachtet werden. Lange Beobachtungszeiten sind jedoch ausschlaggebend für die Genauigkeit der oben erwähnten Experimente. Aus diesen Gründen wurden neue Techniken entwickelt, um den begrenzten Halbwertszeiten und Produktionsraten von Radionukliden ebenso wie den besonderen Produktionsmechanismen Rechnung zu tragen. Einige dieser Methoden sollen in diesem Kapitel vorgestellt und diskutiert werden.

Die vielseitigste Methode, die Massen von Radionukliden zu bestimmen, besteht in der Messung der Q-Werte ihrer Zerfälle. Ein sehr neutronenreicher Kern beispielsweise wird über eine Serie von  $\beta^-$ -Zerfällen in Richtung des Tals der Stabilität zerfallen. Bei jedem dieser Zerfälle wird eine gewisse Menge an Energie  $(Q_{\beta})$  freigesetzt, die zu unterschiedlichen Anteilen auf die Reaktionsprodukte (Tochterkern, Elektron und Antineutrino) verteilt wird. Aus dem Endpunkt des Energiespektrums des Elektrons kann man die gesamte Zerfallsenergie ermitteln. Durch die Kenntnis sämtlicher  $Q_{\beta}$ -Werte innerhalb einer Zerfallskette kann man die Massen exotischer Nuklide an gut bekannte, direkt gemessene Massen anbinden. Ähnlich kann man mit  $\alpha$ -Emittern und eingeschränkt auch mit spontan spaltenden Kernen verfahren. Da ein Teil von  $Q_{\beta}$  auch in eine mögliche Anregung des Tochterkerns umgewandelt wird, oder der Mutterkern beim Zerfall in angeregtem Zustand gewesen sein kann, muß man prinzipiell die Anregungsschemata beider Kerne vollständig kennen. um systematische Fehler zu vermeiden. Dabei steigt die Wahrscheinlichkeit solcher systematischer Fehler mit wachsender Entfernung vom Tal der Stabilität. Denn für exotische Kerne, die experimentell schwieriger zugänglich sind, sind die Anregungszustände nicht immer hinreichend bekannt. Und selbst wenn die Ubergangsenergien bekannt sind, muß jedes Elektron, das zu einem Energiespektrum beiträgt, in Koinzidenz zu den entsprechenden  $\gamma$ s gemessen werden, was wiederum eine zusätzliche Quelle möglicher systematischer Fehler darstellt. Dennoch ist diese Methode sehr leistungsfähig, da sie sich prinzipiell auf alle Radionuklide anwenden läßt und bei sehr kurzlebigen sogar die einzige Möglichkeit darstellt, deren Massen zu bestimmen.

Erste direkte Massenmessungen an Radionukliden wurden bei ISOLDE (siehe Kap. 4) am CERN bereits vor mehr als zwanzig Jahren durchgeführt [28]. Dabei wurde ein konventionelles, doppeltfokussierendes Massenspektrometer vom Mattauch-Herzog-Typ [29] verwendet (Abb. 2.4). Zwei Ionen mit gleichem Ladungszustand q, aber verschiedenen Massen  $M_A$  und  $M_B$ , sollen beide Schlitze des Spektrometers passieren. Dann muß für die Beschleunigungsspannung  $U_{A,B}$  beziehungsweise für die Ablenkspannung  $V_{A,B}$  im elektrostatischen Sektor folgende Beziehung gelten:

$$\frac{M_A}{M_B} = \frac{V_B}{V_A} = \frac{U_B}{U_A}.$$
(2.2)

Durch eine präzise Bestimmung eines der beiden Spannungsverhältnisse kann somit eine unbekannte Masse relativ zu einer bekannten ermittelt werden. Das Auflösungsvermögen dieses Spektrometers betrug typischerweise  $\frac{m}{\delta m} \approx 10^4$  und hängt im wesentlichen von der Weite der Schlitze ab. Ein hohes Auflösungsvermögen, also schmale Schlitze, bedeutet stets eine vergleichsweise geringe Transmission. Deshalb kann diese Methode nur auf Nuklide angewendet werden, die in großer Zahl produziert



Abbildung 2.4: Mattauch-Herzog-Spektrometer. Mit solch einem Massenspektrometer wurden erstmals direkte Massenmessungen bei ISOLDE durchgeführt. Erläuterung siehe Text (Abb. aus [28]).

werden können. Andernfalls werden lange Meßzeiten erforderlich, während derer die elektrischen und magnetischen Felder stabil gehalten werden müssen.

Ein weitere Möglichkeit, die Masse von Teilchen zu bestimmen, macht sich den Zusammenhang zwischen der Geschwindigkeit eines Objektes und dessen Masse zunutze: Bei gleicher Bewegungsenergie (beispielsweise gegeben durch eine bestimmte elektrostatische Beschleunigungsspannung) haben unterschiedlich schwere Ionen unterschiedliche Geschwindigkeiten und benötigen damit verschiedene Zeiten, um eine bestimmte Flugstrecke zurückzulegen. Ein Flugzeit-Massenspektrometer mißt diese Zeit und damit die Masse. Das maximale Auflösung ist dabei hauptsächlich durch die Länge der Flugstrecke bestimmt. Herkömmliche TOF-Spektrometer (TOF für time of flight) haben ein vergleichsweise geringes Auflösungsvermögen von  $\frac{m}{\delta m} \leq$ 5000. Moderne Geräte nutzen die mehrere Kilometer langen Ionen-Trajektorien in Zyklotronen aus, um eine Massenauflösung von  $\frac{m}{\delta m} \approx 100000$  zu erreichen (z.B. das CSS2 am GANIL [30]). Jedoch ist die Bestimmung der genauen Flugstrecke aufgrund der Komplexität der Maschine (Phasenkonstanz, Präzession, Betatron-Schwingungen u.v.m.) schwierig und Quelle möglicher systematischer Fehler. TOF-Massenmessungen lassen sich prinzipiell auf alle Nuklide anwenden. Nur sehr exotische, deren Lebensdauer deutlich kürzer ist als ihre Flugzeit (einige  $\mu s$ ), bleiben auch mit dieser Methode unzugänglich.

Der nächste Schritt zu noch präziseren Flugzeitmessungen führt zur Verwendung eines Speicherrings für relativistische Schwerionen. In solch einem Ring liegt die Flugstrecke der gespeicherten Ionen bei tausend Umläufen in der Größenordnung von 100 km. Im *ESR* (Experimentier-Speicherring) an der GSI in Darmstadt werden bei relativistischen Geschwindigkeiten hochgeladene Radionuklide gespeichert [32], die zuvor durch Fragmentation schwerer Ionen [33] erzeugt wurden. Wird der Speicher-



Abbildung 2.5: Experimentier-Speicherring an der GSI. Der Speicherring für hochgeladenen, schwere Ionen wird unter anderem für Präzisonsmassenmessungen verwendet (Abb. aus [31]).

ring im isochronen Modus betrieben, hängt die Periodendauer, die die Ionen für einen Umlauf benötigen, nur noch von ihrem Masse-zu-Ladungs-Verhältnis  $\frac{m}{q}$  ab und nicht von ihrer individuellen Geschwindigkeit. Schnellere Ionen machen gleichsam einen Umweg verglichen mit den Bahnen, auf denen langsamere Teilchen gleicher Ladung und Masse umlaufen. Die Flugzeit der Ionen nach einem Umlauf im Speicherring wird mittels spezieller Detektoren [34, 35] bestimmt. Dabei durchdringen die Ionen eine dünne Folie, aus der Elektronen freigesetzt werden, die schließlich nachgewiesen werden. Bei dieser Nachweismethode konnten über 1000 Umläufe beobachtet und eine Genauigkeit von etwa  $\frac{\Delta m}{m} \approx 10^{-6}$  erreicht werden. Die kurzlebigsten Nuklide, die bisher mit dieser Methode am ESR untersucht wurden, hatten eine Halbwertszeit von  $T_{1/2} \approx 50ms$  [36]. Prinzipiell ist diese Methode auf Radionuklide mit Lebensdauern im Bereich von  $\mu$ s anwendbar.

Eine weitere Möglichkeit, hochgenaue Massenmessungen im Speicherring durchzuführen, besteht darin, die Umlauf*frequenz* der gespeicherten Ionen zu ermitteln. Hierzu ist es jedoch notwendig, die Ionen zu kühlen, also allen Teilchen möglichst die gleiche Geschwindigkeit aufzuzwingen. Dafür steht in einer Sektion des ESR ein Elektronenkühler zur Verfügung [37] (Abb. 2.5). Der Prozeß des Kühlens reduziert die Geschwindigkeitsverteilung auf  $\frac{\Delta v}{v} \approx 10^{-6}$  und dauert typischerweise einige Sekunden. Der Nachweis der Ionen und die Bestimmung ihrer Umlauffrequenz erfolgt über das periodische *Schottky-Rauschen*, das die Ionen bei ihrem Umlauf im Ring als Spiegelladung in einer Abnehmer-Elektrode (Schottky pick-up) influenzieren. Nach einer Fourier-Transformation dieses Rauschens erhält man die Umlauffrequenz, damit das Ladungs-zu-Masse-Verhältnis und schließlich die Masse der gespeicherten Ionen. Da die Schottky-Nachweismethode vollkommen zerstörungsfrei ist im Gegensatz zur Flugzeitmessung im isochronen Modus, bei der Umladungsprozesse in der Folie die Anzahl der Umläufe beschränken, kann die Dauer für die Frequenzmessung auf mehrere Sekunden ausgedehnt werden. Daher wird eine typische Genauigkeit von  $1 \cdot 10^{-7} < \frac{\Delta m}{m} < 5 \cdot 10^{-7}$  erreicht [38]. Aufgrund der langen Meß- und Kühlzeiten, bleibt diese Methode auf hinreichend langlebige Nuklide ( $T_{1/2} > 5$  s) beschränkt.



Abbildung 2.6: Funktionsprinzip eines Radiofrequenz-Transmissionsspektrometers. Nur wenn die eingestrahlte Radiofrequenz dem n + 1/2-fachen der Zyklotronfrequenz entspricht, heben sich Modulation und Demodulation genau auf, und das Ion kann den letzten Schlitz passieren (Abb. aus [40]).

Bei einem Radiofrequenz-Transmissionsspektrometer [39] verknüpft man ebenso wie bei der Speicherring-Massenspektrometrie mit der Schottky-Methode die Bestimmung der Masse mit einer Frequenzmessung. MISTRAL bei ISOLDE ist ein Spektrometer dieses Typs. Es bestimmt die Zyklotronfrequenz eines Ions in einem homogenen, magnetischen Feld [40] (Abb. 2.6). Durch Anlegen eines elektrischen Radiofrequenzfeldes wird die kinetische Energie des Ions moduliert. Nur wenn die Frequenz des RF-Feldes  $\omega_{RF} = (n + 1/2)\omega_c$  ist, heben sich die Modulationen an der RF-Elektrode gegenseitig auf und die Ionen können den Austrittsschlitz passieren und auf einem Detektor nachgewiesen werden. Dabei ist n eine beliebige ganze Zahl und  $\omega_c = \frac{q}{m}B$  die Frequenz der Zyklotronbewegung, die ein Teilchen mit Ladung q und Masse m in einem Magnetfeld der Stärke B vollführt. Das MISTRAL-Spektrometer hat ein Auflösungsvermögen von  $R \approx 500000$  und macht im Prinzip Massenmessungen an extrem kurzlebigen Radionukliden möglich. Im Fall von MISTRAL bei ISOLDE ist die Halbwertszeit der zugänglichen Nuklide durch die Zeit bestimmt, die für das Bereitstellen der Radionuklidionen ( $\approx 1$  ms - 10 ms) benötigt wird.

### Kapitel 3

# Penningfallen-Massenspektrometrie

Bei der Massenmessung in Penningfallen macht man sich wie bei MISTRAL (Kap. 2.2) die Zyklotronbewegung eines Ions im homogenen Magnetfeld zunutze. Statt nur zweier Umläufe vollführt das Ion jedoch je nach Masse und Magnetfeldstärke mehr als 10<sup>6</sup> Umlaufperioden pro Sekunde ähnlich wie bei der Schottky-Massenspektrometrie im Speicherring. Im Gegensatz zu diesem ist jedoch die Bewegung des Ions in einer Penningfalle auf einen sehr kleinen Raumbereich ( $\leq 1$ mm<sup>3</sup>) beschränkt. Da nur in diesem Raumgebiet das elektrische und magnetische Feld kontrolliert werden müssen, ist eine sehr präzise Manipulation der geladenen Teilchen und ein Auflösungsvermögen von  $R \geq 10^7$  möglich. Die Bandbreite der bisher in Penningfallen untersuchten Objekte reicht vom leichtesten, freien, geladenen Elementarteilchen, dem Elektron, bis hin zu Protein-Molekülen, die aus vielen zehntausend Atomen bestehen. Im Folgenden wird das Prinzip der Penningfalle beschrieben, einige Techniken zur Manipulation der gespeicherten Teilchen vorgestellt und schließlich die Verwendung von Penningfallen als Massenspektrometer erläutert.

#### 3.1 Prinzip der Penningfalle

Eine Penningfalle besteht aus einem starken, homogenen Magnetfeld und aus einem elektrostatischen Quadrupolfeld geeigneter Orientierung. Solch ein Feld kann beispielsweise durch Spannungen auf Elektroden erzeugt werden, die die Form von Rotations-Hyperboloiden aufweisen und den Äquipotentialflächen des Quadrupolfeldes entsprechen (Abb. 3.1). Der Innendurchmesser der *Ringelektrode* beträgt  $2\rho_0$ , und die *Endelektroden* haben zwischen ihren Scheitelpunkten den Abstand  $2z_0$ . Im folgenden wird das Koordinatensystem so gewählt, daß die z-Achse der gemeinsamen Rotationsachse der Elektroden (*Fallenachse*) entspricht und der Ursprung (x, y, z) = 0 sich bei halbem Abstand zwischen den Endelektroden und im Zentrum der Ringelektrode (*Fallenzentrum*) befindet.



**Abbildung 3.1:** Hyperbolische Penningfalle. Die Elektroden, die Äquipotentialflächen des Quadrupolpotentials entsprechen, haben die Form von Rotations-Hyperboloiden. Die im Fallenvolumen eingezeichneten Linien stellen die Projektion der elektrischen Äquipotential-Flächen auf die x - z-Ebene dar. Das homogene Magnetfeld ist parallel zur Rotations-Symmetrieachse (z-Achse) der Falle orientiert.

Damit gilt für das elektrische Potential:

$$\varphi(x, y, z) = \frac{U}{2z_0^2 + \rho_0^2} (-x^2 - y^2 + 2z^2) .$$
(3.1)

Die Polarität der Spannung U ist so gewählt, daß die Endelektroden (relativ zur Ringelektrode) dasselbe Ladungsvorzeichen wie das zu speichernde Teilchen haben. Die *axiale* Komponente der elektrischen Kraft, die auf das Ion wirkt, ist daher stets zum Fallenzentrum hin gerichtet. Das Magnetfeld ist parallel zur Fallenachse orientiert

$$\vec{B} = \begin{pmatrix} 0\\0\\B \end{pmatrix} , \qquad (3.2)$$

sodaß die radialen Bewegungskomponenten durch die Lorentzkraft beschränkt werden.

Auf ein Teilchen mit der Ladung q und der Geschwindigkeit  $\vec{v}$  wirken also die Kräfte

$$\vec{F}_{\text{Lorentz}} = q \begin{pmatrix} v_y B \\ -v_x B \\ 0 \end{pmatrix} \quad \text{und} \quad \vec{F}_{\text{Coulomb}} = \frac{qU}{\rho_0^2 + 2z_0^2} \begin{pmatrix} 2x \\ 2y \\ -4z \end{pmatrix} .$$
(3.3)

 $\mathbf{14}$ 

Dabei ist U die Spannung zwischen den Endkappen und der Ringelektrode, und B ist der Betrag der Magnetfeldstärke. Die Fallengeometrie ist gegeben durch  $4d^2 := \rho_0^2 + 2z_0^2$ . Für ein Teilchen der Masse m und Ladung q, auf das die Kräfte aus Gl. (3.3) wirken, gelten folgende Bewegungsgleichungen:

$$m\ddot{x} - \frac{qU}{2d^2}x - qB\dot{y} = 0 \tag{3.4}$$

$$m\ddot{y} - \frac{qU}{2d^2}y + qB\dot{x} = 0 \tag{3.5}$$

$$m\ddot{z} + \frac{qU}{d^2}z = 0. (3.6)$$

Eine detaillierte Herleitung der Lösungen dieser Differentialgleichungen und weitere theoretische Aspekte bezüglich Penningfallen finden sich beispielsweise in [41, 42].

Gleichung (3.6) ist von den Gln. (3.4) und (3.5) völlig entkoppelt. Ihre Lösung liefert die z-Komponente der Bewegung und stellt eine harmonische Schwingung mit der axialen Frequenz

$$\omega_z = \sqrt{\frac{qU}{md^2}} \tag{3.7}$$

dar. Die Lösung der beiden anderen, gekoppelten Differentialgleichungen ergibt die Projektion der Ionenbewegung auf die radiale Ebene und entspricht einer Zykloidenbahn:

$$\rho(t) = Ae^{-i\omega_+ t} + Be^{-i\omega_- t} . \tag{3.8}$$

Sie ist die Überlagerung zweier Kreisbewegungen mit den Umlauffrequenzen  $\omega_+$ (*reduzierte Zyklotronfrequenz*) und  $\omega_-$  (*Magnetronfrequenz*):

$$\omega_{+} = \frac{\omega_c}{2} + \sqrt{\frac{\omega_c^2}{4} - \frac{\omega_z^2}{2}}$$
 und (3.9)

$$\omega_{-} = \frac{\omega_{c}}{2} - \sqrt{\frac{\omega_{c}^{2}}{4} - \frac{\omega_{z}^{2}}{2}}, \qquad (3.10)$$

wobei

$$\omega_c = \frac{q}{m}B\tag{3.11}$$

die wahre Zyklotronfrequenz ist, mit der ein Teilchen der Masse m und Ladung q in einem reinen Magnetfeld B umlaufen würde. Das elektrische Feld, das für den Einschluß in axialer Richtung notwendig ist (2. Term in Gl. (3.6)), übt jedoch auch eine radial nach außen gerichtete Kraft auf das Teilchen aus (jeweils 2. Term in den Gln. (3.4, 3.5)). Das Magnetfeld hindert das Ion daran, dieser Kraft frei zu folgen, sodaß beide Felder zusammen das Teilchen zu einer ( $\vec{E} \times \vec{B}$ )-Präzessionsbewegung um das Fallenzentrum herum veranlassen. Diese als Magnetronbewegung bezeichnete Komponente ist der eigentlichen Zyklotronbewegung überlagert (siehe Gl. 3.8). Da beide denselben Drehsinn haben, ist die Zyklotronfrequenz um den Betrag der Magnetronfrequenz reduziert. Die Magnetronbewegung ist die einzige Bewegungskomponente, die nicht stabil ist. Sie ist vielmehr charakterisiert durch das indifferente Gleichgewicht zwischen nach außen gerichteter, elektrischer Kraft und nach innen gerichteter Lorentzkraft, die auf die Magnetronkomponente der Geschwindigkeit wirkt. Nur falls keine dissipativen Kräfte auf die Ionenbewegung wirken, die die Geschwindigkeit reduzieren, bleibt dieses Gleichgewicht erhalten und die Magnetronbahn geschlossen.

Aus den Gln. (3.7), (3.9) und (3.10) können folgende wichtigen Beziehungen für die Eigenfrequenzen hergeleitet werden:

$$\omega_c = \omega_+ + \omega_-$$
 und  $\omega_c^2 = \omega_+^2 + \omega_z^2 + \omega_-^2$ . (3.12)

Abbildung 3.2 stellt schematisch die Bewegung eines Ions in einer Penningfalle als Überlagerung aus den drei *Eigenbewegungen* dar.



Abbildung 3.2: Schematische Darstellung der charakteristischen Bewegung eines Ions in einer Penningfalle. Die Bewegung setzt sich zusammen aus einer harmonischen Schwingung parallel zur z-Achse, einer schnellen, reduzierte Zyklotronbewegung in der radialen Ebene und einer langsamen, azimutale Präzession um das Fallenzentrum, die Magnetronbewegung.

Für solch eine stabile, geschlossene Bewegung muß der Term unter der Wurzel in den Gln. (3.9) und (3.10) positiv sein. Damit erhält man folgendes *Stabilitätskriterium*:

$$\omega_c^2 > 2\omega_z^2 \qquad \stackrel{(3.7),(3.11)}{\Longleftrightarrow} \qquad \frac{q}{m} > \frac{2U}{B^2 d^2} . \tag{3.13}$$

Oft werden die Parameter so gewählt, daß sogar

$$\frac{q}{m} \gg \frac{2U}{B^2 d^2} \tag{3.14}$$

gilt, die Falle also weit im stabilen Bereich betrieben wird. In diesem Fall gelten zusätzlich noch folgende Beziehungen für die Eigenfrequenzen:

$$\omega_{-} \ll \omega_{z} \ll \omega_{+} \iff \omega_{+} \approx \omega_{c} \quad \text{und} \quad \omega_{-} \approx \frac{\omega_{z}^{2}}{2\omega_{c}} = \frac{U}{Bd^{2}} .$$
 (3.15)

Die Bewegung eines einfach geladenen Ions der Masse m = 240 u in der SHIPTRAP-Penningfalle (siehe Kap. 5) mit den typischen Parametern d = 27 mm, B = 7 T und U = 15 V ist durch folgende Eigenfrequenzen charakterisiert ( $\nu_i = \frac{\omega_i}{2\pi}$ ):

$$\nu_{-} = 234 \text{ Hz}, \quad \nu_{z} = 14,5 \text{ kHz} \quad \text{und} \quad \nu_{+} = 447 \text{ kHz}.$$
 (3.16)

Mit den obigen Gleichungen kann die ungestörte Bewegung eines einzelnen Teilchens in einer idealen Penningfalle beschrieben werden. Die Eigenbewegungen sind völlig voneinander entkoppelt und ihre Frequenzen hängen nur von der Fallengröße, den Feldern und der Masse und Ladung des Teilchens ab, nicht jedoch von äußeren Einflüssen oder den Amplituden der Eigenbewegungen. "Ideal" bezieht sich in diesem Zusammenhang auf die Homogenität des Magnetfeldes, auf die Form des elektrischen Quadrupolfeldes, und auf die Ausrichtung der beiden Felder relativ zueinander. In der Realität lassen sich Abweichungen von der idealen Feldform natürlich nicht vermeiden. Das führt im allgemeinen zu einer schwachen Kopplung der Eigenbewegungen untereinander und zu einer Änderung ihrer Frequenzen [43].

Die Homogenität des Magnetfeldes im Fallenzentrum kann durch die Anwesenheit der Fallenelektroden, Halterungen, elektrischer Leitungen und der Vakuumkammer gestört werden, da die magnetische Suszeptibilität der verwendeten Materialien natürlich von Null verschieden ist. Um die Störung der Magnetfeldes zu minimieren ist bei der Konstruktion der Fallen auf die Verwendung von möglichst wenig Material zu achten, das darüberhinaus eine möglichst geringe Suszeptibilität aufweisen sollte. Durch zylindersymmetrische Anordnung und durch Benutzung sehr reiner Materialien, bei denen sich die magnetische Suszeptibilität über das gesamte Volumen der entsprechenden Objekte nur wenig ändert, kann trotz unvermeidlicher, kleiner Magnetfeldänderungen die Homogenität des Magnetfeldes dennoch aufrechterhalten werden.

Zur Erzeugung eines elektrischen Feldes, das der idealen Quadrupolform sehr nahe kommt, gibt es zwei verschiedene Möglichkeiten. Beim Konzept der *hyperbolischen* Penningfalle werden die Elektroden so geformt und angeordnet, daß sie Äquipotentialflächen des gewünschten Feldes entsprechen. Die Elektroden haben die Form von Rotationshyperboloiden. Die endliche Ausdehnung der Elektroden und die Löcher in den Endkappen, die für den Transport der Ionen in die Falle und aus ihr heraus nötig sind, führen zu kleinen Abweichungen von der idealen Feldform. Mittels Korrekturelektroden geeigneter Form, an denen entsprechende Potentiale angelegt werden, können diese Abweichungen weitgehend kompensiert werden.

Eine weitere Möglichkeit, ein Quadrupolpotential zu formen, besteht darin, verschiedene Felder so zu überlagern, daß sich in einem gewissen Raumbereich das gewünschte Feld als deren Superposition ergibt. In einer *zylindrischen* Penningfalle, die aus einem Satz kollinear angeordneter Hohlzylinder besteht, kann ein solches Superpositionsfeld erzeugt werden. Im Gegensatz zur hyperbolischen Falle, mit der man nur quadrupolförmige Felder erzeugen kann, da der Potentialverlauf der Elektrodenform folgen muß, kann in einer zylindrischen Falle die Form des Potentials allein durch ändern der einzelnen Zylinderspannungen geändert werden. Je größer die Anzahl der Zylinder ist, desto vielfältiger sind die Möglichkeiten, komplexe Potentialformen zu schaffen.



Abbildung 3.3: Vergleich einer zylindrischen mit einer hyperbolischen Fallenkonfiguration. Die jeweils im Fallenvolumen eingezeichneten Linien stellen die Projektion der Äquipotentialflächen auf die  $\rho - z$ -Ebene dar. Bei geeigneter Wahl der Korrekturspannungen  $U_{corr,i}$  erzeugt die zylindrische Konfiguration (rechts) im Bereich des Fallenzentrums einen Potentialverlauf, der nahezu identisch mit dem ideal harmonischen (links) ist. Ein quantitativer Vergleich der beiden Felder findet sich in Kap. 5.

In Abb. 3.3 sind Quadrupol-Potentiale dargestellt, wie sie von einer hyperbolischen und einer zylindrischen Falle erzeugt werden. Im Falle der hyperbolischen Geometrie hat das Feld im gesamten Raumbereich, der von den Elektroden eingeschlossen wird, die gewünschte Form. Dagegen kann ein durch Superposition erzeugtes Feld schon prinzipiell nicht perfekt sein. Auch bei geeigneter Wahl der Zylinderlängen und -spannungen kann man nur innerhalb eines begrenzten Bereichs um das Fallenzentrum herum der idealen Feldform nahe kommen. Die Größe dieses Bereichs und die Genauigkeit, mit der dort ein harmonischer Feldverlauf erzeugt werden kann, werden in Kap. 5 am Beispiel der SHIPTRAP-Reinigungsfalle quantitativ diskutiert.

Speziell für Anwendungen, die eine ideale Feldform über ausgedehnte, dicht an die Fallenelektroden heranreichende Raumgebiete erfordern, werden hyperbolische Fallen bevorzugt. Um das Feld nicht zu sehr zu stören, dürfen jedoch die Löcher in den Endkappen, durch die die Ionen in die Falle hinein- und wieder herausgelangen, nicht zu groß sein. Im Vergleich dazu stellt eine zylindrische Falle, bedingt durch ihre Bauart, eine sehr offene Struktur dar. Das ist vorteilhaft für das Evakuieren des Fallenvolumens, um die erforderlichen niedrigen Restgas-Drücke zu erreichen. Außerdem ist bei einer Falle mit großem Eintrittsloch die Akzeptanz höher. Falls Einfangeffizienz und großes Speichervolumen wichtiger sind als ein ausgedehntes, ideales Quadrupolfeld, empfiehlt sich also die Verwendung zylindrischer Penningfallen. Bei ISOLTRAP (Kap. 4) und bei SHIPTRAP (Kap. 5) werden sowohl zylindrische als auch hyperbolische Penningfallen für verschiedene Anwendungen eingesetzt. Ihre besonderen Eigenschaften und Vorzüge ebenso wie die Verringerung und Kompensation von Fallenfehlern werden in jenen Kapiteln detailliert erläutert.

### 3.2 Anregung der Ionenbewegung mittels elektrischer Wechselfelder

Eine weiterer Vorzug von Penningfallen besteht neben der Speicherung von Ionen in der Möglichkeit, diese auf gezielte und präzise Weise zu manipulieren. Im Folgenden werden einige Methoden beschrieben, die die Beeinflussung der Ionenbewegung in einer Penningfalle erlauben. Dabei bleibt die Auswahl auf jene Techniken beschränkt, die bei den Messungen, die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden, Anwendung fanden.

Man kann jede einzelne Eigenbewegung durch Anlegen eines geeigneten elektrischen Wechselfeldes beeinflussen. So kann ein Sinus-Signal der Frequenz  $\nu = \frac{\omega_z}{2\pi}$ , das an eine der Endkappen angelegt wird, die axiale Schwingung des Ions verstärken. Zum Anregen der Magnetron- oder der reduzierten Zyklotronbewegung benötigt man eine radiale Unterteilung der Ringelektrode. Legt man an ein Segment ein Sinus-Signal und an das gegenüberliegende das invertierte Signal an (Abb. 3.4, links), so kann man durch Einstellen der jeweiligen Frequenz eine der beiden radialen Bewegungsanteile antreiben. Diese Art der Anregung wird *dipolartig* genannt, da der Dipol-Term den führenden Beitrag in der Multipolentwicklung des Wechselfeldes darstellt. Entgegengesetzte Phasen an gegenüberliegenden Segmente anzulegen hat gegenüber einer monopolaren Anregung den Vorteil, daß im Fallenzentrum ein zeitlich konstantes Potential und Kräftefreiheit herrscht.

Für eine radiale, *quadrupolartige* Anregung muß die Ringelektrode in vier Segmente unterteilt sein. Dieselbe Phase des Signals wird dabei an je zwei gegenüberliegenden Segmente angelegt (Abb. 3.4, rechts). Mit diesem Wechselfeld kann ebenfalls eine radiale Eigenbewegung angetrieben werden, indem man das Doppelte der jeweiligen Frequenz anlegt.

Außerdem können mit Hilfe der azimutalen Quadrupol-Anregung die beiden radialen Bewegungskomponenten aneinander gekoppelt werden. Dazu muß die Frequenz des eingestrahlten Signals gleich der Summe der beiden Eigenfrequenzen sein. Eine Kopplung von zwei Freiheitsgraden erlaubt es beispielsweise, Energie aus dem äußeren Feld in beide Eigenbewegungen gleichzeitig zu übertragen. Da für die Summenfrequenz  $\omega_+ + \omega_- = \omega_c = \frac{q}{m}B$  gilt, ist dieser Vorgang massenselektiv. Diese Möglichkeit, die Energie im radialen Freiheitsgrad auf gezielte Weise und ausschließlich für Ionen einer bestimmten Sorte zu manipulieren, findet Anwendung beim massenselek-



Radiale Dipol-Anregung.

Radiale Quadrupol-Anregung.

Abbildung 3.4: Anregung der radialen Ionenbewegung mit Hilfe elektrischer Wechselfelder. Die Zeichnung stellt einen radialen Querschnitt durch die Ringelektrode der Penningfalle dar. An die einzelnen Segmente werden die um 180° verschiedenen Phasen eines Radiofrequenzsignals (RF<sub>+</sub> und RF<sub>-</sub>) angelegt. Dadurch ergeben sich in der Nähe des Fallenzentrums ( $\rho = 0$ ) ein dipolförmiges (links) beziehungsweise ein quadrupolförmiges Wechselfeld (rechts).

tiven Puffergas-Kühlen und bei der Bestimmung der Zyklotronfrequenz mittels der Flugzeitmethode. Beide Verfahren finden bei den Massenmessungen an ISOLTRAP Anwendung und bilden die konzeptionelle Grundlage, auf welche die Penningfallen von SHIPTRAP hin ausgelegt worden sind.

#### Massenselektives Puffergas-Kühlen 3.3

Die Verschiebung der charakteristischen Frequenzen aufgrund von Fallenfehlern ist in erster Ordnung proportional zum Quadrat der Amplitude bzw. der Radien der Eigenbewegungen [46]. Neben der Minimierung von Fallenfehlern ist also auch die Beschränkung der Ionenbewegung auf kleine Volumina eine geeignete Maßnahme, um systematische Fehler zu reduzieren. Außerdem sind für die präzise Manipulation der Ionenbewegung sehr kleine Radien und Amplituden eine wünschenswerte Ausgangsbasis. Jeder gewünschte Zustand kann dann durch eine Dipolanregung der jeweiligen Eigenbewegung erreicht werden. Um solche Voraussetzungen zu erreichen, muß man sowohl die Bewegungsenergie der Ionen verringern, als auch die Breite der statistischen Energieverteilung (Temperatur) minimieren.

Puffergas, das in die Falle eingelassen wird, stellt ein mögliches Medium dar, an das die Ionen Bewegungsenergie abgeben können. Die Teilchen werden gekühlt, indem sie durch vielfache Stöße ihre Bewegungsenergie der Temperatur des Puffergases angleichen. Das bedeutet eine Verringerung der axialen Schwingungsamplitude und eine Reduktion des Zyklotronradius. Für den Magnetron-Freiheitsgrad bedeutet die Dissipation jedoch eine Vergrößerung des Radius. Die Magnetronbahn ist nur dann geschlossen, wenn sich die nach außen gerichtete, elektrische Kraft  $|\vec{F}| = \frac{qU}{2d^2}\rho_{-}$  und die nach innen gerichtete Lorentzkraft  $|\vec{F}| = v_B$ , die auf die Magnetronkomponente der Geschwindigkeit  $v_{-} = \rho_{-}\omega_{-}$  wirkt, gegenseitig aufheben. Wird jedoch die Geschwindigkeit beispielsweise durch Stöße verringert (in diesem Fall gilt die Beziehung  $v_{-} = \rho_{-}\omega_{-}$  nicht mehr), unterliegt die rücktreibende Lorentzkraft und das



**Abbildung 3.5:** Radiale Bewegungskomponenten beim massenselektiven Puffergas-Kühlen. In dieser Darstellung beginnt die Ionenbewegung am durch den Pfeil gekennzeichneten Punkt und verläuft sowohl hinsichtlich ihrer Magnetron- als auch ihrer Zyklotronkomponente gegen den Uhrzeigersinn. Im Puffergas wird der Zyklotronradius schnell verringert, während sich der Magnetronradius langsam aufweitet. Durch Einstrahlen eines Quadrupol-Wechselfeldes mit der Frequenz  $\nu_c = \frac{\omega_+ + \omega_-}{2\pi}$  werden die Freiheitsgrade aneinander gekoppelt, was ein gleichzeitiges Kühlen und massenselektives Zentrieren ermöglicht. Das Kreuz markiert des Fallenzentrum und der gestrichelte Kreis gibt jeweils den anfänglichen Magnetronradius an (Abb. aus [47]).

Ion wird immer weiter nach außen getragen. Jeder dissipative Prozeß vergrößert also den Magnetronradius und führt schließlich zum Verlust der Ionen.

Da der Kühleffekt bei höheren Geschwindigkeiten stärker ist, schrumpft der Zyklotronradius sehr viel schneller als sich der Magnetronradius aufweitet (Abb. 3.5, links). Durch Einstrahlen eines azimutalen Quadrupol-Wechselfeldes der Summenfrequenz  $\nu = \frac{\omega_+ + \omega_-}{2\pi}$  erreicht man eine Kopplung der beiden Freiheitsgrade aneinander. Das bedeutet, daß beide Eigenbewegungen gleichzeitig Energie aus dem Radiofrequenzfeld aufnehmen. Der Radius der Magnetronbewegung wird dadurch verringert, während die Zyklotronbewegung lediglich länger gekühlt werden muß (Abb. 3.5, rechts). Die axiale Schwingung, die von der Anregung nicht beeinflußt wird, wird ebenfalls durch die Stöße mit den Puffergasatomen gedämpft. Durch die Kombination von Puffergas und radialer Quadrupolanregung kann man also ein Kühlen und Zentrieren in allen drei Freiheitsgraden gleichzeitig erreichen.

Darüberhinaus ist dieser Prozeß massenselektiv, da die Summenfrequenz genau der wahren Zyklotronfrequenz  $\nu_c = \frac{qB}{2\pi m}$  entspricht. Befinden sich Ionen verschiedener Spezies in der Falle, kann man mittels des massenselektiven Puffergas-Kühlens gezielt die gewünschte Ionensorte zentrieren, während alle übrigen der Aufweitung ihrer Magnetronradien zum Opfer fallen. Am Ende des Kühlvorgangs befinden sich nur noch Ionen mit gleicher Masse ( $\frac{\Delta m}{m} \leq 10^{-4}$ ) und schmaler Energieverteilung  $(\Delta E \leq 50~{\rm meV})$ im Zentrum der Falle. Sowohl die Beseitigung fremder Ionensorten als auch eine geringe Temperatur sind wichtige Voraussetzungen für eine präzise Massenmessung.

Das Einlassen von Gas in eine Penningfalle kann die maximal erreichbare Speicherzeit drastisch reduzieren. Im allgemeinen haben die Ionen die Möglichkeit, Elektronen aus den Hüllen der Gasatome einzufangen, wodurch ihr Ladungszustand verringert würde. Falls sie dabei neutralisiert werden, gehen sie natürlich den Speicherpotentialen der Falle verloren. Als Puffergas werden Edelgase verwendet, weil diese Elemente chemisch inert sind und hohe Ionisationsenergien aufweisen. Damit kann gewährleistet werden, daß die Ionen zumindest einfach positiv geladen bleiben und keine chemischen Verbindungen eingehen. Da jedes vorhandene Fremdatom oder -molekül eine mögliche Ursache für den Verlust der zu untersuchenden Ionen darstellt, ist auf einen sehr hohen Reinheitsgrad des eingelassenen Edelgases zu achten.

Da der gewollte Prozeß des Kühlens auf vielfacher Streuung der Ionen an den Atomen des Puffergases beruht, ist die freie Bewegung der Ionen gestört. Stößt ein Ion bei seinem periodischen Umlaufen mit einem Atom zusammen, wird seine Bahn und damit die Periodendauer für diesen speziellen Umlauf verändert. Bei häufigen Stößen ist die Periodendauer statistischen Schwankungen unterworfen. Eine Resonanzfrequenz, die nur über viele Perioden gemessen werden kann, wird dadurch verbreitert. Daher ist das Auflösungsvermögen einer gasgefüllten Penningfalle prinzipiell geringer als das einer Falle im Ultrahochvakuum, in der sich die Ionen ungehindert bewegen können.

### 3.4 Bestimmung der Zyklotronfrequenz mittels der Flugzeitmethode

Für die Messungen, die im Rahmen dieser Arbeit bei ISOLTRAP durchgeführt wurden, erfolgte die Bestimmung der Zyklotronfrequenz der Radionuklid-Ionen unter Verwendung der *Flugzeitmethode*. Dieses Verfahren wird auch bei den Massenmessungen, die in Zukunft an SHIPTRAP erfolgen werden, Anwendung finden. Im folgenden wird das Prinzip, das der Flugzeitmethode zugrundeliegt, und ein typischer Meßverlauf, der zur Bestimmung der Masse eines Radionuklids führt, vorgestellt. Außerdem wird die erreichbare Auflösung und Genauigkeit detailliert diskutiert.

#### Grundlage

Ein Ion der Ladung q, das auf einer Kreisbahn mit Radius  $\rho$  und der Frequenz  $\omega$  umläuft, stellt einen Kreistrom

$$I = q \frac{\omega}{2\pi} \tag{3.17}$$

dar. Dieser erzeugt ein magnetisches Dipolmoment

$$\vec{\mu} = I \cdot \vec{f} , \qquad (3.18)$$

wobei  $\vec{f}$  der Normalenvektor der Fläche  $F = \pi \rho^2$  ist, die vom Kreisstrom eingeschlossenen wird.  $\vec{f}$  und  $\vec{\mu}$  sind antiparallel zum Magnetfeld orientiert (siehe Abb. 3.6).



**Abbildung 3.6:** Magnetisches Dipolmoment der Zyklotronbahn eines Ions im Magnetfeld. Die Lorentzkraft  $\vec{F}_L = q\vec{v} \times \vec{B}$  zwingt das Ion auf eine Zyklotronbahn. Der Drehsinn des durch die Kreisbewegung vermittelten Stroms *I* ist antiparallel zum Magnetfeld orientiert. Daher ist auch das durch den Strom induzierte magnetische Moment  $\vec{\mu}$  dem Feld entgegengerichtet. Der Zustand antiparalleler Ausrichtung eines magnetischen Dipolmoments in einem Magnetfeld entspricht minimaler, potentieller Energie (Gl. (3.19)).

Für die potentielle Energie eines magnetischen Momentes in einem Magnetfeld gilt allgemein:

$$E_{\rm pot} = -\vec{\mu} \cdot \vec{B} \ . \tag{3.19}$$

Im speziellen Fall eines Ions in einer Penningfalle entspricht dies seiner radialen Bewegungsenergie

$$E_{\rm rad} = \mu B = \frac{1}{2} q \omega \rho^2 B$$
. (3.20)

Wenn das Ion das Magnetfeld verläßt, muß sich diese Energie verringern, also in eine andere Energieform umwandeln. Beim Durchlaufen des inhomogenen Randbereichs des Magnetfeldes wirkt auf das magnetische Moment des Kreisstromes eine Kraft

$$\vec{F} = \vec{\mu} \cdot \vec{\nabla} |\vec{B}| \quad . \tag{3.21}$$

Die Hauptkomponente der Kraft weist in Richtung der positiven z-Achse. Beim Verlassen des magnetischen Feldes wird also die Bewegungsenergie aus dem radialen Freiheitsgrad in Bewegungsenergie des axialen Freiheitsgrades umgewandelt. Diese Tatsache macht man sich bei der Bestimmung der Zyklotronfrequenz mittels der *Flugzeit-Methode* (Time-of-Flight- oder TOF-Methode) [48,49] zunutze. Hierbei wird die Flugzeit der Ionen nach ihrem Ausschuß aus der Falle bis zum Nachweis auf einem Detektor, der sich außerhalb des Magnetfeldes auf der z-Achse befindet, gemessen. Aufgrund der oben erwähnten Energie-Konversion ist die gemessene Flugzeit abhängig von der radialen Energiekomponente, die die Ionen kurz vor ihrem Ausschuß besaßen. Eine Möglichkeit, die radiale Energie auf gezielte Weise

und massenselektiv zu manipulieren, ist die in Abschnitt 3.2 erläuterte azimutale Quadrupol-Anregung mit der Frequenz  $\nu_c$ .

Im folgenden wird der Spezialfall diskutiert, in dem bei resonanter Anregung ( $\nu_{\rm RF} = \nu_c$ ) die vollständige Konversion einer reinen Magnetronbewegung ( $\rho_- = \rho_{\rm max}$  und  $\rho_+ = 0$ ) in eine reine, reduzierte Zyklotronbewegung mit demselben Radius ( $\rho_- = 0$  und  $\rho_+ = \rho_{\rm max}$ ) vollzogen wird. Für solch eine Konversion gilt zwischen der erforderlichen Anregungsdauer  $T_{\rm Konv}$  und der Amplitude  $V_{\rm RF}$  folgende Beziehung [50]:

$$T_{\rm Konv} = \frac{m}{q} \frac{\rho_0^2}{2V_{\rm RF}} (\omega_+ - \omega_-)\pi = B \frac{\rho_0^2}{2V_{\rm RF}} \frac{\omega_+ - \omega_-}{\omega_c} \pi .$$
(3.22)

Falls länger angeregt wird, wird die Konversion wieder rückgängig gemacht, bis schließlich nach einer Anregungsdauer von  $T_{\rm RF} = 2 \cdot T_{\rm Konv}$  die Zyklotronbewegung wieder vollständig in eine reine Magnetronbewegung zurückgeführt ist. Die Kopplung der beiden radialen Bewegungen läßt sich mit zwei gekoppelten Pendeln vergleichen, bei denen ebenfalls die jeweiligen Bewegungsamplituden periodisch variieren.

Die Konversion zwischen *reinen* Eigenbewegungen ist interessant, da sich das Ion sowohl vor als auch nach der Anregung auf derselben Trajektorie befindet. Die potentielle Energie

$$E(\rho)|_{z=0} = -\frac{qU}{4d^2}\rho_{\max}^2$$
(3.23)

ist also in beiden Fällen gleich. Lediglich die radiale, kinetische Energie muß sich beim Übergang von der langsamen Magnetron- in die schnelle Zyklotronbewegung ändern. Die Energiedifferenz zwischen reiner Magnetron- und reiner Zyklotronbewegung beträgt (vgl. Gl. 3.20)

$$\Delta E_{\rm rad} = \mu_+ B - \mu_- B = \frac{1}{2} q B \rho_{\rm max}^2 (\omega_+ - \omega_-) \ . \tag{3.24}$$

Aus einem Wechselfeld, das für die Zeit  $T_{\rm RF}$  mit konstanter Amplitude  $V_{\rm RF}$  eingestrahlt wird, wird abhängig von seiner Frequenz  $\nu_{\rm RF}$  folgende Energie in die Ionenbewegung transferiert [50]:

$$\Delta E_r(\omega_{\rm RF}) = \frac{q^2 V_{\rm RF}^2}{2m\rho_0^4} \frac{\omega_+^2}{(\omega_+ - \omega_-)^2} \frac{\sin^2(\omega_b T_{\rm RF})}{\omega_b^2} \ . \tag{3.25}$$

Dabei ist

$$\omega_b = \frac{1}{2}\sqrt{(\omega_c - \omega_{\rm RF})^2 + (\pi/T_{\rm Konv})^2} .$$
 (3.26)

In Abb. 3.7 ist die Anderung der radialen Energie als Funktion der Frequenz des eingestrahlten Quadrupol-Wechselfeldes für verschiedene Anregungszeiten dargestellt. Wie erwartet wird die maximale, radiale Energie bei voller Konversion ( $\omega_{\rm RF} = \omega_c$ und  $T_{\rm RF} = T_{\rm Konv}$ ) aufgenommen. Für die Breite des Hauptmaximums bei voller Konversion gilt [50]:

$$\Delta \nu (\text{FWHM}) \approx \frac{0,8}{T_{\text{RF}}}$$
 (3.27)


Abbildung 3.7: Energieaufnahme bei radialer Quadrupolanregung. Bei der Konversion von Magnetron- in Zyklotronbewegung wird je nach Dauer und Frequenz der Anregung eine unterschiedliche Menge an Energie aus dem Wechselfeld entnommen. Dargestellt sind Energieabsorptions-Spektren für drei verschieden Anregungszeiten  $T_{\rm RF}$ , also für verschiedene Konversionsstadien. Sowohl die Breite der Resonanzmaxima als auch die Abstände zwischen diesen ist in erster Näherung umgekehrt proportional zur Anregungszeit  $T_{\rm RF}$ . Die einzelnen Graphen sind jeweils auf die maximal übertragene Energie normiert, sodaß ein direkter Vergleich möglich ist.

Sie ist ausschlaggebend für das Auflösungsvermögen, das mit der TOF-Methode erreicht werden kann.

Nach Einstrahlen des Quadrupol-Wechselfeldes setzt sich die Gesamtenergie eines Ions in der Falle ( $z = z_0$ ) zusammen aus der radialen, kinetischen Energie, der potentiellen Energie und der Energie der axialen Schwingung:

$$E_0 = \mu(\omega_{\rm RF})B(z_0) - \frac{qU}{4d^2}\rho_{\rm max}^2 + \frac{m}{2}\rho_z^2\omega_z^2 . \qquad (3.28)$$

Beim Verlassen des Magnetfeldes findet die oben geschilderte Umwandlung von radialer, kinetischer Energie in axiale, kinetische Energie statt:

$$E_{\rm kin}(z) = E_0 - qV(z) - \mu(\omega_{\rm RF})B(z)$$
(3.29)

Dabei ist V(z) das elektrische Potential, das die Ionen entlang der z-Achse aus der Falle führt, und B(z) das entlang dieser Achse stetig abnehmende Magnetfeld.

Die Flugzeit ist schließlich das Wegintegral des Kehrwertes der Geschwindigkeit der Ionen entlang ihrer Trajektorie zwischen Fallenzentrum  $(z_0)$  und Detektorposition  $(z_1)$ :

$$T(\omega_{\rm RF}) = \int_{z_0}^{z_1} dt \approx \int_{z_0}^{z_1} \frac{1}{v(\omega_{\rm RF})} dz$$
  
=  $\int_{z_0}^{z_1} \sqrt{\frac{m}{2[E_0 - q \cdot V(z) - \mu(\omega_{\rm RF}) \cdot B(z)]}} dz$ . (3.30)

25

Trägt man die Flugzeit als Funktion der Frequenz des zuvor eingestrahlten Quadrupolsignals auf, erhält man das theoretische *Flugzeitspektrum*.

Je größer die Radialenergie im Verhältnis zu den anderen Energiebeiträgen ist, die nicht von der Anregungsfrequenz abhängen, umso größer ist der *Flugzeiteffekt*. Dies ist der Kontrast des Flugzeitspektrums, also die relative Differenz der Flugzeiten für nicht-resonante und resonante Anregung

$$\text{TOF} - \text{Effekt} = \frac{T(\omega_{\text{RF}} \gtrsim \omega_c) - T(\omega_{\text{RF}} = \omega_c)}{T(\omega_{\text{RF}} \gtrsim \omega_c)} .$$
(3.31)

#### Experimentelle Bestimmung eines Flugzeitspektrums

Im folgenden wird ein typischer Meßverlauf vorgestellt, der zu einem experimentellen Flugzeitspektrum führt. Zunächst wird die Penningfalle mit einem gekühlten Ionenensemble geladen, bei dem alle Radien bzw. Amplituden sehr klein sind  $(\rho_z = \rho_- = \rho_+ \approx 0)$ . Danach wird die Magnetronbewegung durch Einstrahlen eines dipolförmigen Wechselfeldes der Frequenz  $\nu_-$  angeregt, bis deren Radius  $\rho_{\text{max}}$  entspricht. Hierfür ist eine genaue Kenntnis der Ionenmasse nicht notwendig (siehe Gl. (3.15)). Diese reine Magnetronbewegung ist der Ausgangspunkt für die Quadrupolanregung, die im resonanten Fall ( $\nu_{\text{RF}} = \nu_c$ ) zur vollständigen Konversion in eine reine Zyklotronbewegung führt. Auch für die richtige Wahl der Anregungsdauer ist eine genaue Kenntnis der Ionenmasse nicht nötig. Denn bei typischen Fallenparametern (Gl. (3.16)) ist  $\omega_c \approx \omega_+ - \omega_-$ , weshalb in guter Näherung (siehe Gl. (3.22))

$$T_{\rm Konv} = B \frac{\rho_0^2}{2V_{\rm RF}} \pi \tag{3.32}$$

gilt.

Nach der Quadrupolanregung werden die Ionen aus der Falle extrahiert, indem die Spannung auf der entsprechenden Endelektrode heruntergeschaltet wird. Mit Hilfe elektrischer Felder werden sie aus dem Magnetfeld zu einem Ionendetektor geführt. Mit der Erfassung der mittleren Flugzeit in Abhängigkeit von der Frequenz der zuvor durchgeführten Quadrupolanregung ist ein  $Me\beta zyklus$  abgeschlossen. Um einen Frequenzscan zu erhalten, wird dieser Zyklus für alle Frequenz-Stützpunkte wiederholt, aus denen das Flugzeitspektrum bestehen soll.

In Abb. 3.8 ist ein Flugzeitspektrum dargestellt, das mit der ISOLTRAP-Präzisionsfalle für stabile <sup>133</sup>Cs<sup>+</sup>-Ionen aufgenommen wurde. Die Ionen werden mit einer vergleichsweise hohen Rate von einer Test-Ionenquelle bereitgestellt. Zum gesamten Spektrum tragen 52 Frequenzscans bei, in denen insgesamt etwa 21 000 Teilchen enthalten sind. Das Spektrum besteht aus 41 Frequenz-Stützpunkten, zu deren Flugzeitbestimmung jeweils durchschnittlich 517 nachgewiesene Ionen beitragen. In Abb. 3.9 ist die Verteilung der nachgewiesenen Ionen als Funktion ihrer Flugzeit für zwei spezielle Frequenzen dargestellt, die in Abb. 3.8 als gefüllte Kreise hervorgehoben sind. Wie erwartet erreichen die Ionen, die zuvor resonant angeregt wurden, den



**Abbildung 3.8:** Flugzeitspektrum für <sup>133</sup>Cs<sup>+</sup>-Ionen. Die Flugzeit der Ionen ist als Funktion der Frequenz, mit der sie zuvor in der Falle angeregt wurden, aufgetragen. Zusätzlich ist die theoretisch erwartete Linienform (durchgezogenen Kurve), die an die Datenpunkte angepaßt wurde, eingezeichnet. Das Minimum liegt genau bei der wahren Zyklotronfrequenz  $\nu_c = \frac{qB}{2\pi m}$ . Für weitere Erläuterungen siehe Text.

Detektor deutlich früher als die nicht angeregten. Die Differenz beträgt hier etwa 150  $\mu s$  und der TOF-Effekt 40 %.

Neben den experimentell bestimmten Flugzeiten und deren Fehler ist die theoretisch erwartete Linienform (durchgezogenen Kurve) gemäß Gl. (3.30) eingezeichnet. Sie wurde für die bei dieser Messung eingestellten elektrischen Felder, für den Magnetfeldverlauf und für die verwendete Anregungsdauer errechnet und schließlich an die Datenpunkte angepaßt. Die theoretisch erwartete Linienform beschreibt die Messung sehr gut (reduziertes  $\chi^2 \approx 1$ ). Die Breite des Hauptminimums ebenso wie die Positionen und die Breiten der Nebenminima können gut wiedergegeben werden. Als Resultat dieser Anpassung erhält man unter Anderem auch die Lage des Hauptminimums und damit die wahre Zyklotronfrequenz der Ionen.

Um nun von der Zyklotronfrequenz eines Ions auf dessen Masse schließen zu können, muß dessen Ladungszustand und die Stärke des Magnetfeldes bekannt sein. Wenn der Frequenzmessung der Prozeß des Puffergas-Kühlens vorausgegangen ist, ist der Ladungszustand des Ions einfach positiv. Die genaueste Methode, eine Magnetfeldstärke zu ermitteln, besteht im Messen der Zyklotronfrequenz eines Teilchens mit bekannter Masse und Ladung. Neben der Präzision dieses Verfahrens besteht ein weiterer Vorteil darin, daß die Zyklotronfrequenz des *Referenz-Ions*  $\nu_{\text{Ref}}$  exakt auf dieselbe Weise und am selben Ort gemessen werden kann wie die des Radionuklid-Ions  $\nu_{\text{Rad}}$ . Aus dem Verhältnis der Zyklotronfrequenzen  $r = \nu_{\text{Ref}}/\nu_{\text{Rad}}$ , die jeweils



Abbildung 3.9: Flugzeitverteilung für resonante und nicht-resonante Anregung. Für zwei verschiedenen Anregungsfrequenzen ist die Anzahl der auf dem Detektor nachgewiesenen Ionen als Funktion des Zeitpunktes ihrer Ankunft dargestellt. Das im oberen Teilbild dargestellte Signal erhält man bei resonanter Anregung, während die Ionen der unten dargestellten Verteilung keine Radialenergie aus dem Quadrupol-Wechselfeld aufgenommen haben. Der Unterschied in der Flugzeit beträgt  $\Delta TOF \approx 150 \mu s$ . Die Genauigkeit, mit der durch Anpassung einer Gauß-Funktion der Mittelwert der Flugzeit bestimmt werden kann, hängt hauptsächlich von der Breite der Verteilung  $\sigma$  und der Gesamtzahl der nachgewiesenen Ionen N ab (siehe Gln. (3.34, 3.35)).

für einfach positiv geladene Ionen gemessen wurden, kann die *atomare Masse*, also die Masse des neutralen Radionuklid-Atoms  $m_{\text{Rad}}$ , wie folgt ermittelt werden:

$$m_{\text{Rad}} = r \cdot (m_{\text{Ref}} - m_e) + m_e . \qquad (3.33)$$

Dabei sind  $m_{\text{Ref}}$  die atomare Masse des Referenznuklids und  $m_e$  die Masse des Elektrons. Die Bindungsenergie des äußersten Elektrons, die in der Größenordnung von einigen eV liegt, wird in Gl. 3.33 nicht berücksichtigt. Sie ist vernachlässigbar gering im Vergleich zur Genauigkeit, mit der die Masse von Radionukliden mittels Penningfallen bestimmt werden kann. Je nach der zur Verfügung stehenden, gesamten Teilchenzahl und der Masse der Nuklide können absolute Genauigkeiten von typischerweise 1keV  $< \Delta m < 100$ keV erreicht werden. Die Ungenauigkeit der Massenbestimmung setzt sich aus verschiedenen Beiträgen zusammen, die im folgenden Abschnitt besprochen werden.

#### Auflösung und Genauigkeit

Um Ionen verschiedener Masse mittels der Flugzeitmethode unterscheiden zu können, muß die Differenz ihrer Zyklotronfrequenzen großer als die Breite des Hauptminimums im Flugzeit-Spektrum sein. Ein Maß hierfür ist die Halbwertsbreite  $\Delta\nu$ (FWHM) (Full Width at Half Maximum). Sie hängt bei gegebenen Extraktions-Spannungen und Magnetfeldverlauf von der Breite des Hauptmaximums des Energieabsorptions-Spektrums ab, welche ihrerseits umgekehrt proportional zur Anregungszeit ist (siehe Gl. (3.27)). Das Auflösungsvermögen  $R = \frac{\nu}{\Delta\nu(FWHM)}$  wird also mit wachsender Anregungsdauer immer höher. Im oben diskutierten Beispiel, bei dem die Anregungszeit  $T_{\rm RF} = 900$  ms betrug, wird ein Auflösungsvermögen von  $R \approx 500000$  erreicht.

Die Ungenauigkeit bei der Bestimmung der Lage des Hauptminimums  $\frac{\Delta\nu}{\nu}$  ist in der Regel sehr viel kleiner als die relative Resonanzbreite  $\frac{\Delta\nu(\text{FWHM})}{\nu}$ . Sie hängt unter der Voraussetzung, daß die Anpassung an die Datenpunkte gelingt, von der jeweiligen Genauigkeit der einzelnen Flugzeitbestimmungen  $\Delta \text{TOF}$  und von der Anzahl der Meßpunkte im Scanbereich ab. Der Scanbereich sollte so gewählt werden, daß das Hauptminimum etwa in dessen Mitte liegt und nur Nebenminima enthalten sind, deren Tiefe signifikant größer ist als die Fehlerbalken für die jeweilige Flugzeit. Bei typischen Flugzeit-Effekten von 30% bis 40% und typischen Flugzeitfehlern von  $\Delta \text{TOF} < 15\mu$ s sind die Nebenminima bis zur dritten Ordnung noch tief genug, um bei der Anpassung der berechneten Linienform eine signifikante Rolle zu spielen. Da nicht nur die Breiten, sondern auch die Abstände der Nebenminima mit zunehmender Anregungsdauer kleiner werden, schrumpft auch der signifikante Scanbereich. Bei gegebener Anzahl von Frequenz-Stützpunkten ist also die Genauigkeit der Frequenzbestimmung umso höher, je länger die Anregungsdauer ist.

Die Präzision, mit der die Frequenz gehalten und bei nachfolgenden Scans wieder eingestellt werden kann, beträgt bei kommerziellen Funktionsgeneratoren typischerweise  $\frac{\Delta\nu}{\nu} \leq 10^{-10}$  und ist daher vernachlässigbar. Die Flugzeitfehler für die einzelnen Frequenzstützpunkte rühren hauptsächlich von der endlichen Energieverteilung der extrahierten Ionen und von zufälligen Schwankungen der Fallen- und Extraktions-Spannungen. Die Unsicherheit der Flugzeitbestimmung entspricht im wesentlichen der Genauigkeit, mit der die mittlere Flugzeit durch Anpassen einer Gauß-Funktion bestimmt werden kann. Es gilt [51]:

$$(\Delta T)_{stat} = \frac{\sigma_{TOF}}{\sqrt{N}} , \qquad (3.34)$$

wobei  $\sigma_{TOF}$  die Breite (Standardabweichung) der Flugzeitverteilung und N die Anzahl der zu dieser Verteilung beitragenden Ionen ist. Imperfektionen wie beispielsweise systematische Drifts der angelegten Spannungen und die endliche Genauigkeit der Ionenoptik können im allgemeinen dazu führen, das die Flugzeitverteilung systematisch verschoben ist oder nicht einer idealen Normalverteilung entspricht. Das bedeutet das der Flugzeitfehler neben dem rein statistischen, zählratenbedingten Beitrag aus Gl. (3.34) auch einen systematischen Anteil aufweist:

$$(\Delta T)_{tot} = (\Delta T)_{stat} + (\Delta T)_{syst} .$$
(3.35)

Letzterer kann in Testmessungen mit sehr hoher Zählrate bestimmt werden. Für  $N \to \infty$  wird  $(\Delta T)_{tot} = (\Delta T)_{syst}$  so gewählt, daß die Anpassung der Linienform den experimentellen Frequenzgang korrekt beschreibt ( $\chi^2 \approx 1$ ). Aufgrund der vergleichsweise hohen Zählrate, mit der das Flugzeitspektrum in Abb. 3.8 aufgenommen

wurde, beträgt der Fehler für die mittlere Flugzeit jeweils  $(\Delta T)_{tot} \leq 5\mu s$ . Die Ungenauigkeit, mit der die Zyklotronfrequenz durch Anpassung der berechneten Linienform an die Datenpunkte ermittelt wird, kann zwar durch Erhöhung der Zählstatistik immer weiter verringert werden. Jedoch stellen die systematischen Flugzeitfehler eine untere Grenze dar. In der Regel ist die Zählrate bei Referenzmessungen und erst recht bei Messungen an Radionukliden deutlich geringer als die im hier diskutierten Beispiel. Daher ist die Genauigkeit bei der Zyklotronfrequenz-Bestimmung hauptsächlich statistisch dominiert und wird im folgenden mit  $\sigma_{stat}(\nu)$  bezeichnet.

Je nach Gesamt-Zählrate kann  $\frac{\sigma_{\text{stat}}(\nu)}{\nu}$  bis zu 300 mal kleiner als die relative Breite des Hauptminimums  $\frac{\Delta\nu}{\nu}$  sein. Im vorliegenden Beispiel ist  $\frac{\sigma_{\text{stat}}(\nu)}{\nu} = 7 \cdot 10^{-9}$ . Die Genauigkeit hängt in mehrfacher Hinsicht von der gesamten Meßzeit ab, während der das Flugzeitspektrum aufgenommen wird. Die Anzahl der Zyklen pro Frequenzscan erhöht die Dichte der Stützpunkte, und die Anzahl der Frequenzscans verringert die Fehler für die Mittelwerte der einzelnen Flugzeiten. Umgekehrt kann mit gleichbleibender Zählstatistik die Genauigkeit erhöht werden, indem die Anregungszeit erhöht und damit das Scanfenster eingeengt wird. Jedoch ist bei der Massenmessung an Radionukliden die für einen einzelnen Zyklus zur Verfügung stehende Zeit durch die Lebensdauer der Kerne begrenzt. Zusätzlich ist die Zählstatistik gerade bei exotischen Radionukliden fern ab des Tals der  $\beta$ -Stabilität durch geringe Produktionsraten begrenzt.

Es ist nicht sinnvoll, beliebig viele Frequenzscans zu akkumulieren, um eine hinreichend hohe Zählstatistik zu erreichen, da sich in der Regel bei langen Meßzeiten die Beiträge systematischer Fehler erhöhen. So ist beispielsweise das Magnetfeld zeitlichen Schwankungen unterworfen, was zu einer zusätzlichen, systematischen Unsicherheit in der Bestimmung der Zyklotronfrequenz aus dem Flugzeitspektrum führt. Da die Frequenzmessungen am Radionuklid und am Referenznuklid zeitlich nacheinander erfolgen, kann eine zeitliche Magnetfeldänderung auch das Frequenz*verhältnis* verfälschen. Je nach Produktionsrate und Halbwertszeit wird für die meisten Radionuklide eine relative, statistische Genauigkeit von  $5 \cdot 10^{-8} < \frac{\sigma_{\text{stat}}}{\nu_c} < 5 \cdot 10^{-7}$  angestrebt.

Neben der Magnetfeldschwankung und der Ungenauigkeit der Frequenzbestimmung selbst tragen zum Fehler der atomaren Masse noch weitere Unsicherheiten bei. So beschränkt beispielsweise die Genauigkeit der Referenzmasse diejenige der zu bestimmenden Massen. Zur Kalibrierung des Magnetfeldes verwendet man daher bevorzugt ein Nuklid, dessen Masse möglichst genau bekannt ist. Ein weiteres Auswahlkriterium besteht darin, ein Referenz-Nuklid zu verwenden, dessen Masse vergleichbar mit der des Radionuklids ist, um den Einfluß nicht kompensierter Fallenfehler zu minimieren. Schließlich stellt die Anwesenheit fremder Ionensorten während der Quadrupolanregung eine mögliche Ursache für eine Fehlbestimmung der Zyklotronfrequenz dar.

Die hier vorgestellte Meßprozedur erlaubt es, die Zyklotronfrequenz und damit die Masse prinzipiell jeder Ionensorte mit sehr hoher Präzision zu messen. Die Anwendung auf exotische Kerne stellt eine zusätzliche Herausforderung dar, da die Radionuklide nur außerhalb des Fallensystems erzeugt werden können und aufgrund ihrer Kurzlebigkeit unmittelbar nach ihrer Produktion (on-line) der Massenmessung zugänglich gemacht werden müssen. Über diese generellen Aspekte hinaus müssen Anregungszeit, Kühlzeit und die gesamte Meßdauer jeweils individuell an das Radionuklid, dessen Masse gemessen werden soll, angepaßt werden. Seine Lebensdauer und Produktionsrate, ebenso wie die Art und Menge der Verunreinigungen erfordern stets eine individuelle Anpassung der gesamten Meßprozedur. Die Auswirkungen, Beschränkung und korrekte Abschätzung der systematischen Fehler auf den Wert der atomaren Masse hängt individuell vom jeweiligen Nuklid, genauer von dessen Produktionsmechanismus, -rate, Lebensdauer etc. ab. Die detailierte Behandlung wird jeweils anhand konkreter Beispiele - der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Radionuklide - im folgenden Kapitel vorgestellt.

# Kapitel 4 ISOLTRAP

ISOLTRAP [44] ist ein Penningfallen-Massenspektrometer für Radionuklide am Online-Isotopenseparator ISOLDE [52, 53] am europäischen Kernforschungszentrum CERN in Genf. Bis heute wurden mit ISOLTRAP die Massen von etwa 200 Radionukliden mit einer relativen Genauigkeit von typischerweise  $\frac{\Delta m}{m} \approx 1 \cdot 10^{-7}$  bestimmt. Im Rahmen dieser Arbeit wurden mit diesem Massenspektrometer die Zyklotronfrequenzen der Strontiumisotope im Massenbereich  $76 \leq A \leq 88$  und der Zinnisotope mit 124  $\leq A \leq 132$  gemessen und daraus die atomaren Massen für diese Isotope bestimmt. In diesem Kapitel wird der experimentelle Aufbau von ISOLTRAP vorgestellt. Danach werden die Produktionsmechanismen, die zur Erzeugung der untersuchten Nuklide angewendet wurden, und der gesamte Meßverlauf bis hin zur Bestimmung der Zyklotronfrequenz erläutert. Die ermittelten Massen und deren Genauigkeiten werden diskutiert und gegebenfalls mit bereits aus anderen Experimenten verfügbaren Werten verglichen. Schließlich wird die Einbindung der neuen Massenwerte in die Massentabelle "AME" (atomic mass evaluation) [16] diskutiert.

# 4.1 Experimenteller Aufbau

## 4.1.1 Der On-line Isotopen-Separator ISOLDE

Abbildung 4.1 stellt eine Übersicht der ISOLDE-Anlage (Isotope Separator On-Line **DE**vice) dar. Ihre Aufgabe besteht darin, kurzlebige Radionuklide zu erzeugen und sie in Form von isotopenreinen Ionenstrahlen unmittelbar nach ihrer Produktion (on-line) an mehr als 30 Experimente [54] zu verteilen. Die Produktion der Radionuklide findet innerhalb der beiden Targetstationen von ISOLDE durch den Beschuß mit hochenergetischen Protonen statt. Diese werden mit einer Intensität von etwa  $3 \cdot 10^{13}$  Teilchen pro Puls vom proton synchrotron booster (PSB) bereitgestellt. Der PSB besteht aus einem Satz von vier Synchrotronen, die die Teilchen auf entweder 1 GeV oder 1,4 GeV beschleunigen. Je nach Pulsrate, mit der ISOLDE beliefert wird (0,07 Hz bis 0,4 Hz), entspricht dies einer mittleren Rate von  $2 \cdot 10^{12}$ bis  $1, 3 \cdot 10^{13}$  Protonen pro Sekunde beziehungsweise einem Protonen-Strahlstrom von  $3 \cdot 10^{-7}$  bis  $2 \cdot 10^{-6}$  A. Wenn die Protonen eines der beiden ISOLDE-Targets



Abbildung 4.1: Der Online-Separator ISOLDE am CERN. Durch Beschuß eines Targets mit Protonen werden Radionuklide erzeugt. Nach ihrer Ionisation und Beschleunigung auf 60 keV werden sie im general purpose (GPS) beziehungsweise im high resolution separator (HRS) vorsepariert und zum Massenspektrometer ISOLTRAP transportiert.

treffen, entstehen durch induzierte Spaltung, Spallation und Fragmentation aus den schweren Targetkernen eine Vielzahl verschiedener Nuklide.

Die Reaktionsprodukte diffundieren aus der Targetmatrix in eine Ionenquelle, wo entweder durch Oberflächenionisation, resonante Laserionisation oder in Plasma-Entladungen das äußerste Elektron entfernt wird. Durch die Wahl der Ionisationsart und der Temperatur der Diffusionsstrecke zwischen Target und Ionenquelle findet bereits eine erste Selektion der Radionuklide entsprechend ihrer chemischen und atomphysikalischen Eigenschaften statt. Die Ionenquelle liegt auf einem elektrischen Potential von 60 kV, sodaß die in der Regel einfach positiv geladenen Ionen auf eine kinetische Energie von 60 keV beschleunigt werden. Danach passieren sie einen der beiden Magnetseparatoren, mit deren Hilfe eine Auswahl entsprechend der Ionenmasse, genauer des Ladungs-zu-Masse-Verhältnisses, vorgenommen wird. Ein 70<sup>0</sup>-Magnetsektorfeld mit einer Stärke von 0,45 T stellt den general purpose separator (GPS) dar. Mit ihm kann eine Massenauflösung von etwa  $\frac{m}{\delta m} \approx 2400$  erreicht werden. Der high resolution separator (HRS) besteht aus einem 90<sup>0</sup>- und einem 60<sup>0</sup>-Magneten, die jeweils eine Magnetfeldstärke von 0,7 T aufweisen. Hiermit ist ein Auflösungsvermögen von etwa  $\frac{m}{\delta m} \approx 7000$  möglich. Nach der Separation werden die Ionen zu den verschiedenen Experimenten transportiert. Alle ionenoptischen Elemente und Strahlführungs-Komponenten sind rein elektrostatisch.

Die Zeit, die zwischen der gepulsten Nukliderzeugung und der Bereitstellung für ein Experiment verstreicht, hängt sehr stark von Parametern, wie der Temperatur des Targetmaterials und der Diffusionstrecke, der Ionisationsart aber auch von elementspezifischen Eigenschaften der Nuklide ab. Je nach Element kann die Freisetzung der Radionuklide zwischen 10 ms und vielen Sekunden dauern, was zu einer Auflösung der Zeitstruktur des Ionenstrahls führt. Sie kann im Vergleich mit typischen Zeitskalen für Ionenfallenoperationen als konstant (quasi-DC) betrachtet werden.

## 4.1.2 Das Präzisions-Massenspektrometer ISOLTRAP

Der experimentelle Aufbau von ISOLTRAP [44] besteht im wesentlichen aus drei Ionenfallen (Abb. 4.2). Die erste ist ein gasgefüllter, linearer Radiofrequenz-Quadrupol (*RFQ*), in dem die Ionen gekühlt und akkumuliert werden. In der zweiten, einer gasgefüllten Penningfalle, wird das Ionenbündel mittels massenselektiver Puffergaskühlung von isobaren Kontaminationen befreit und nochmals gekühlt. Die dritte Falle ist eine Präzisions-Penningfalle im Ultrahochvakuum ( $p \approx 10^{-8}$  mbar), in der die eigentliche Bestimmung der Zyklotronfrequenz der Ionen durchgeführt wird.



Abbildung 4.2: Schema des Präzisions-Massenspektrometers ISOLTRAP. Der experimentelle Aufbau besteht aus drei Fallen, in denen die Präparation des von ISOLDE kommenden Ionenstrahls und die eigentliche Messung der Zyklotronfrequenz durchgeführt wird.

Für die Massenbestimmung benötigt man Referenzionen bekannter Masse. Diese werden in einer off-line Ionenquelle durch Oberflächenionisation von stabilen Alkaliatomen produziert. Diese Quelle befindet sich auf demselben Potential wie die ISOLDE-Quelle, um mit den gleichen Parametern den Transport innerhalb des ISOLTRAP-Spektrometers und den Einfang in die Fallen zu gewährleisten. Im folgenden werden die einzelnen Komponenten von ISOLTRAP beschrieben und ihre spezifischen Aufgaben erläutert.

#### Buncher

Der Buncher [55] ist eine mit Puffergas gefüllte RFQ-Struktur, (Abb. 4.3) die auf einem Potential von etwas weniger als 60 kV relativ zum Erdpotential liegt. Das dadurch erzeugte Gegenfeld bremst die von ISOLDE kommenden 60 keV Ionen auf eine kinetische Energie von wenigen eV ab, bevor sie in den Buncher eingefangen werden. Ein radiales Quadrupol-Wechselfeld geeigneter, der Ionenmasse angepaßter Frequenz ( $\approx 1$  MHz) und Amplitude ( $\approx 250$  V<sub>pp</sub>), das an vier parallelen Stäben angelegt wird, schränkt die Ionenbewegung in transversaler Richtung ein. Die Stäbe sind in longitudinaler Richtung in 26 Segmente unterteilt, die elektrisch voneinander isoliert sind. Dadurch kann der Radiofrequenz (RF) ein elektrisches Gleichspannungsfeld (DC) überlagert werden, das in axialer Richtung einen Potentialtopf formt. So entsteht zusammen mit dem RF-Feld ein Potential, das die Ionen in allen drei Raumrichtungen einschließt und speichert.



Abbildung 4.3: ISOLTRAP-Buncher. Der gasgefüllte, lineare RFQ mit überlagertem longitudinalen Gleichspannungs-Potentialtopf dient zum Abbremsen, Kühlen und Bündeln der Ionen, die in Form eines kontinuierlichen 60 keV-Strahls von ISOLDE geliefert werden. Während die Ionen in transversaler Richtung vom RF-Feld eingeschlossen werden, verlieren sie durch Stöße mit dem He-Puffergas ihre Energie und sammeln sich im Potentialminimum am rechten Ende der Struktur. Schließlich wird das Ionenbündel durch Schalten der Spannung an den letzten Segmenten (gestrichelte Linie im Potentialverlauf) extrahiert und weiter transportiert.

Durch Stöße mit dem Puffergas geben die Ionen Bewegungsenergie ab. Der Druck des Gases und die Gleichspannung werden so gewählt, daß die Ionen beim Eintritt

in die Struktur den ersten (in der Abb. linken) DC-Potentialwall überwinden, aber nach einmaliger Reflexion am rechten Potentialwall soviel Energie verloren haben, daß sie die Potentialsenke nicht mehr verlassen können. Während der Oszillation in axialer Richtung thermalisieren die Ionen durch Stöße mit dem Puffergas, sodaß sie sich im Minimum des Gleichspannungspotentialtopfes sammeln. Auf diese Weise werden die Ionen, die nahezu kontinuierlich von ISOLDE geliefert werden, akkumuliert. Während ständig neue Ionen hinzukommen, gehen bereits gespeicherte aufgrund von Umladeprozessen wie dem Elektroneneinfang von Restgasatomen und -molekülen verloren. Ein Gleichgewicht von Zu- und Abnahme, also eine maximale Ionenanzahl, wird bei einem Puffergasdruck von  $10^{-3}$  bis  $10^{-2}$  mbar je nach Strahlintensität bereits nach etwa 10 bis 100 ms erreicht [55]. Nach dieser Zeit wird der Gleichspannungs-Potentialwall am hinteren Ende der Struktur nach unten geschaltet (gestrichelte Linie in Abb. 4.3) und damit das Ionenbündel aus dem Buncher extrahiert. Der Schaltvorgang dauert etwa 1 - 2  $\mu s$ . Anschließend werden die Ionen beim Durchflug durch eine gepulste Driftröhre auf eine kinetische Energie von  $\approx$ 2500 keV gebracht und zur nächsten Falle transportiert.

## Kühlerfalle

Die ISOLTRAP-*Kühlerfalle* [56] (Abb. 4.4) ist eine zylindrische Penningfalle, die mit He-Gas bei einem Druck von  $10^{-5}$  bis  $10^{-6}$  mbar gefüllt ist. Sie besteht aus einer achtfach segmentierten Ringelektrode, aus zwei Paaren Korrekturelektroden und aus den in axialer Richtung jeweils vierfach unterteilten Endelektroden. Der Innendurchmesser der Zylinder beträgt 40 mm.

Die Länge der Ring- und der Korrekturelektroden sowie die angelegten Spannungen sind so gewählt, daß die Abweichung des realen, elektrischen Feldes vom idealen, harmonischen minimiert wird. In einem Bereich von etwa 1 cm<sup>3</sup> um das Fallenzentrum herum beträgt die Frequenzverschiebung  $\frac{\Delta\nu_c}{\nu_c}$  aufgrund der Abweichung des elektrischen Feldes vom idealen Verlauf weniger als 10<sup>-6</sup> [56].

Die axiale Segmentierung der Endelektroden erlaubt es, dem harmonischen Potential im Fallenzentrum ein ausgedehntes Speicherpotential zu überlagern (Abb. 4.4, links). Dadurch wird der Speicherbereich in axialer Richtung ausgedehnt. Ein längeres Speicherpotential erlaubt, daß auch Ionenbündel, die zeitlich ausgedehnter sind oder eine breitere Geschwindigkeitsverteilung aufweisen, durch Schalten der Spannung an der Endelektrode effektiv eingefangen werden können.

Der letzte Zylinder der Kühlerfalle hat einen Durchmesser von lediglich 3 mm. Er stellt beim Ausschuß der Ionen eine Blende dar, die alle Ionen stoppt, die nicht radial innerhalb einer Kreisfläche mit einem Durchmesser von 3 mm zentriert sind. Man muß also bei der Reinigungs-Prozedur nicht darauf warten, bis die Magnetronradien aller unerwünschten Teilchen auf 20 mm (Innendurchmesser der Ringelektrode) aufgeweitet sind, um sie von den zu untersuchenden Ionen zu trennen.



Abbildung 4.4: ISOLTRAP-Kühlerfalle. Die zylindrische Penningfalle besteht aus einer Ringelektrode, zwei Paaren von Korrekturelektroden und zwei Endelektroden (rechts). Die große Zahl von Elektroden erlaubt es, ein in axialer Richtung sehr ausgedehntes Fallenpotential zu erzeugen, das in der Nähe des Fallenzentrums dennoch harmonisch ist (links).

#### Präzisionsfalle

Die ISOLTRAP-Präzisionsfalle [57,58] ist eine hyperbolische Penningfalle. Sie ist im Querschnitt in Abb. 4.5 dargestellt. Der minimale Abstand zwischen den Endkappen beträgt  $2z_0 = 22,36$  mm, und der Innendurchmesser der Ringelektrode ist  $2\rho_0 = 26$ mm. Der Durchmesser des Ein- und des Ausschußlochs beträgt jeweils 5 mm. Die endliche Ausdehnung der Fallenelektroden und die Löcher in den Endkappen verursachen eine Abweichung des elektrischen Feldes vom idealen Quadrupolfeld. Diese wird durch geeignete Korrekturelektroden kompensiert (Abb. 4.5), deren Form und Potentiale mittels der *Relaxationsmethode* bestimmt wurden [43], einem numerischen Verfahren zur Berechnung von Potentialen bei vorgegebenen Randbedingungen [59]. Mit geeigneten Potentialen an den Korrekturelektroden wird erreicht, daß die noch vorhandene Abweichung vom idealen Quadrupolfeld zu einer relativen Verschiebung der Zyklotronfrequenz  $\frac{\Delta \nu}{\nu}$  führt, die geringer als 10<sup>-9</sup> ist. Die Falle befindet sich in einem Magnetfeld der Stärke 5,9 T, das eine relative Inhomogenität von  $\frac{\Delta B}{B} < 10^{-7}$ innerhalb eines Volumens von 1 cm<sup>3</sup> um das Fallenzentrum aufweist. Die zeitliche, relative Änderung des Magnetfeldes beträgt laut Hersteller (Oxford Instruments)  $\frac{dB}{dt}\frac{1}{B} < 5 \cdot 10^{-8}/h.$ 

In der Präzisionsfalle wird die wahre Zyklotronfrequenz der Radionuklid-Ionen unter Verwendung der in Kap. 3 beschriebenen Flugzeit-Methode ermittelt. Für den Nachweis der Ionen wird ein Mikrokanalplatten-Detektor (MCP = micro channel plate) verwendet. Es besteht aus einer großen Anzahl parallel angeordneter, sehr dünner Kanäle (Durchmesser  $\approx 20\mu s$ ), die aus einem Material bestehen, das einen hohen



Abbildung 4.5: ISOLTRAP-Präzisionsfalle. Die Zyklotronfrequenzmessung erfolgt in dieser kompensierten, hyperbolischen Penningfalle.

elektrischen Widerstand von etwa 100 M $\Omega$  zwischen den Kanalenden aufweist. Zwischen den beiden Enden der Kanäle wird eine elektrische Spannung von etwa 1000 V angelegt. Ein Ion, das auf das MCP trifft, erzeugt ein primäres Elektronen, das im Kanal beschleunigt wird und eine Lawine von sehr vielen ( $10^3 - 10^4$ ) Elektronen auslöst. Mittels einer zweiten Platte erhält man einen ausreichend starken Strompuls, der von einem Vielkanalzähler zeitgerecht abgespeichert wird.

# 4.2 Messungen an protonenreichen Strontium- und neutronenreichen Zinn-Isotopen

# 4.2.1 Produktion

Die protonenreichen Strontiumisotope werden durch Spallationsreaktionen beim Beschuß eines Niob-Targets mit Protonen der Energie 1,4 GeV erzeugt. Nachdem die Radionuklide aus der Targetmatrix herausdiffundiert sind, werden sie auf einer heißen Wolframoberfläche ionisiert. Hierbei werden unter anderem auch Rubidium-Ionen erzeugt. Im Fall der exotischsten der untersuchten Isotope (<sup>76,77</sup>Sr) werden die störenden Isobare <sup>76,77</sup>Rb mit einer um das 5000- bis 50000-fache größeren Intensität produziert [62]. Das Auflösungsvermögen von  $R \approx 2400$  des für die Strontium-Untersuchungen verwendeten Magnetseparators GPS reicht nicht aus, um die Rb-Isobare abzutrennen. Auch die ISOLTRAP-Kühlerfalle kann Kontaminationen, deren Menge die des zu untersuchenden Nuklids derart übersteigt, nicht effektiv beseitigen. Um die Sr-Isotope dennoch der Massenmessung zugänglich zu machen, erzeugt man durch Hinzugeben von CF<sub>4</sub>-Gas SrF-Molekülionen, in deren Massenbereich (A = 95, 96) es keine überaus hohen Kontaminationen gibt. Das Element Fluor hat nur ein einziges stabiles Isotop, dessen Masse mit einer relativen Genauigkeit von  $\frac{\Delta m}{m} = 3, 9 \cdot 10^{-9}$  bekannt ist [16]. Die molekulare Bindungsenergie in der Größen-

ordnung von < 1 eV ist für die bei dieser Massenmessung angestrebte Genauigkeit vernachlässigbar gering.

Die Erzeugung der neutronenreichen Zinn-Isotope erfolgt durch Protonenbeschuß eines Urankarbid-Targets (UC<sub>2</sub>). Eine mehrstufige Laserionisation, bei der atomare Zwischenniveaus resonant besetzt werden, bevor das Elektron schließlich in das Kontinuum angeregt wird, erlaubt zusätzlich zur Massenseparation eine elementspezifische Selektion. Da jedoch für eine schnelle und effiziente Diffusion der Radionuklide der Targetbehälter auf mehr als 2000 <sup>o</sup>C geheizt werden muß, werden auch im Behältermaterial enthaltene Cäsium- und Bariumverunreinigungen frei, die an den heißen Oberflächen ionisiert werden. Damit erhält man auch bei den Zinnisotopen eine isobare Verunreinigung im massenseparierten ISOLDE-Ionenstrahl.

**Tabelle 4.1:** Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit untersuchten Strontium- und Zinn-Isotope. Die Anregungsenergien der isomeren Zustände in der zweiten und die Halbwertszeiten in der dritten Spalte sind aus [64] entnommen. Die Produktionsraten der radioaktiven Zinnisotope wurden während der Strahlzeit für das verwendete Target bestimmt, während für <sup>124</sup>Sn und die Strontiumisotope auf Messungen an einem jeweils baugleichen Target zurückgegriffen werden mußte [62]. Die Werte für die Isotope <sup>129,130,131</sup>Sn enthalten jeweils Kerne sowohl im Grund- als auch im langlebigen, isomeren Zustand.

Ion	$T_{\rm excit}$ [keV]	$T_{1/2}$	Ionen pro Protonenpuls
$76 Sr^{19}F^+$		$8,9 \mathrm{~s}$	$4 \cdot 10^{3}$
$^{77}{ m Sr^{19}F^+}$		$9,0 \mathrm{~s}$	$2\cdot 10^5$
$^{80}{ m Sr^{+}}$		$106,3 \mathrm{m}$	$1\cdot 10^9$
$^{81}\mathrm{Sr}^+$		$22,3 \mathrm{m}$	$3\cdot 10^9$
$^{86}{ m Sr^{19}F^+}$		$\operatorname{stabil}$	$2 \cdot 10^{10}$
$^{88}\mathrm{Sr}^+$		$\operatorname{stabil}$	$3\cdot 10^9$
$^{124}\mathrm{Sn}^+$		stabil	$> 1 \cdot 10^9$
$^{129g}\mathrm{Sn}^+$		$2,\!23 \mathrm{~m}$	2 - 2 - 1 - 8
$^{129m}\mathrm{Sn}^+$	35,2~(3)	$6,9~{ m m}$	$\int 3, 2 \cdot 10^{\circ}$
$^{130g}\mathrm{Sn}^+$		$3,72 \mathrm{~m}$	1 2 9 108
$^{130m}\mathrm{Sn}^+$	1 946,88 (10)	$1,7 \mathrm{~m}$	$\int 3,8\cdot 10^{\circ}$
$^{131g}\mathrm{Sn}^+$		$56 \ s$	1 20.108
$^{131m}\mathrm{Sn}^+$	242,8(8)	$58,4 \mathrm{~s}$	$\int 2,9\cdot 10^\circ$
$^{132}Sn^{+}$		39,7s	$1, 6 \cdot 10^{8}$

In Tab. 4.1 sind alle Radionuklidionen aufgeführt, für die im Rahmen der hier vorgestellten Messungen die Zyklotronfrequenz gemessen werden konnte. Zusätzlich ist die Lebensdauer der Sr- beziehungsweise Sn-Kerne und ihre Produktionsrate aufgeführt.

# 4.2.2 Bestimmung der atomaren Masse

## Meßzyklus

In Abb. 4.6 ist schematisch der Zeitverlauf eines kompletten Zyklus dargestellt. Er stellt die Grundeinheit aller Zyklotronfrequenz-Messungen für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Radionuklide und der zur Magnetfeldkalibrierung verwendeten Referenznuklide dar. Ihm geht jeweils die Produktion (1), Ionisation (2) und Separation der Radionuklide durch ISOLDE und deren Transport zum ISOLTRAP-Spektrometer voraus.

## **ISOLDE** Target

proton pulse		(1)
diffusion & ionization	~10 ms - ~1 s	(2)
Buncher		
accumulation 10 - 20	ms	(3)
extraction		(4)
pulsed cavity		(5)
Cooler Trap		
capture		(6)
axial cooling	80 ms	(7)
$\omega_{-}$ excitation (dipolar)	100 ms	(8)
$\omega_{\rm c}$ excitation (quadrupolar)	50 ms	(9)
radial cooling	50 ms	(10)
extraction		(11)
Precision Trap		
capture		(12)
$\omega_{-}$ excitation (dipolar)	50 ms	(13)
$\omega_{+}$ cleaning (dipolar)	300 ms	(14)
$\omega_{\sf RF}$ excitation (quadrupolar)	900 ms	(15)
extraction & start of MCA		(16)

Abbildung 4.6: Zeitschema eines Meßzyklus. Die einzelnen Schritte werden im Text erläutert.

Die Ionen, die mit einer kinetischen Energie von 60 keV von ISOLDE oder der Referenzionenquelle von ISOLTRAP geliefert werden, werden im Buncher eingefangen, gekühlt und gebündelt (3). Durch Herunterschalten der Gleichspannung an den letzten Segmenten wird das Ionenbündel aus dem Buncher extrahiert (4). Beim Verlassen des 60 kV-Hochspannungsfeldes, das die Ionen beim Eintritt in den Buncher abgebremst hat, nehmen diese wieder kinetische Energie auf. Zunächst werden sie auf ein Driftrohr hin beschleunigt, an dem ein elektrisches Potential von etwa 57,5 kV anliegt. Während sich das Ionenbündel im Inneren des Rohres befindet wird dessen Spannung von 57,5 kV auf 0 V heruntergeschaltet (5). Beim Verlassen der Driftröhre haben die Ionen also die vor dem Eintritt aufgenommene kinetische Energie von 2,5 keV und eine potentielle Energie von Null, werden daher also nicht weiter beschleunigt. Falls der Schaltvorgang zu früh oder zu spät erfolgt, die Ionen sich also nicht innerhalb der Driftröhre befinden, wird die gesamte, potentielle Energie von 60 keV in kinetische Energie umgewandelt. Der Schaltzeitpunkt hängt von der Ionenmasse ab und wird stets unter Beobachtung der Ionenflugzeit zu einem Diagnosedetektor experimentell bestimmt. Dadurch kann auch überprüft werden, ob der Schaltvorgang schnell genug verläuft, um das gesamte Bündel auf eine potentielle Energie von 0 V zu befördern.

Anschließend werden die Ionen von der horizontalen Strahlachse der ISOLDE-Strahlführung und des Bunchers um 90<sup>0</sup> aufwärts auf die vertikale Achse der Penningfallen umgelenkt (siehe Abb. 4.2). Eine Vielzahl ionenoptischer Elemente erlaubt es, den Strahl so zu fokussieren und abzulenken, daß ein effizienter Transfer und Einschuß in die Kühlerfalle erreicht werden kann. Unmittelbar davor werden die Ionen erneut elektrostatisch abgebremst, sodaß sie mit einer axialen, kinetischen Energie von einigen Elektronenvolt in die Falle einlaufen. Zu diesem Zeitpunkt sind die Potentiale auf den unteren (Eingangs-)Endelektroden gesenkt. Bevor die Ionen nach einer Reflexion an der oberen Potentialbarriere die Falle durch den Eingang wieder verlassen können, werden die Potentiale dort wieder erhöht und die Ionen damit eingefangen (6).

Direkt nach dem Einfang weisen die Ionen in der Regel eine vergleichsweise große axiale Schwingungsamplitude auf. Außerdem ist die Energieverteilung  $\Delta E_{kin}$  nach der Retardierung mit bis zu 10 eV sehr hoch. Daher wird zunächst eine gewisse Zeit (hier 80 ms) gewartet, bis die Ionen durch Stöße mit dem He-Puffergas in den harmonischen Teil des Fallenpotentials gekühlt wurden (7). Dann werden die Magnetronradien aller in der Falle befindlichen Ionen aufgeweitet, indem ein Dipol-Wechselfeld der Frequenz  $\nu_{-}$  für die Dauer von 100 ms eingestrahlt wird (8). Fände die Extraktion aus der Falle zu diesem Zeitpunkt statt, könnte keines der Ionen die 3 mm weite Blende am oberen Fallenende passieren. Durch Einstrahlen des Quadrupol-Wechselfeldes für 50 ms, was einer Auflösung von  $R \approx 15000$  entspricht, wird genau für die gewünschte Ionensorte die Magnetronbewegung in eine Zyklotronbewegung umgewandelt (9). Diese wird während der anschließenden Wartezeit von erneut 50 ms durch Kühlung reduziert (10). Nun befinden sich nur noch Ionen der gewünschten Masse im Fallenzentrum, während alle anderen auf Magnetronradien umlaufen, die deutlich größer sind als 1,5 mm. Beim anschließenden Ausschuß durch Senken der Potentiale auf den oberen (Ausgangs-)Endelektroden (11) können nur die gewünschten Ionen die Blende passieren.

Das in der Kühlerfalle gekühlte und weitgehend von isobaren Verunreinigungen befreite Ionenbündel wird mittels elektrostatischer Beschleunigung, Fokussierung und Retardierung zur Präzisionsfalle transferiert und dort genau wie beim Einfang in die Kühlerfalle durch zeitlich korreliertes Schalten der Spannung an der unteren Endkappe dynamisch eingefangen (12). Für die resonante Anregung der radialen Bewegungskomponente müssen zunächst die Ionen auf einen endlichen Magnetronradius gebracht werden. Dies geschieht durch Einstrahlen eines dipolaren, elektrischen Wechselfeldes der Frequenz  $\nu_{-}$  für die Dauer von 50 ms (13). Die Anregungsamplitude wird so gewählt, daß der Magnetronradius nach der Anregung etwa  $\rho_{-} \approx 1$ mm beträgt. Um sicherzustellen, daß sich nur Ionen der gewünschten Sorte in der Falle befinden, kann wahlweise eine Reinigungsprozedur durchgeführt werden. Dabei werden Dipol-Wechselfelder der reduzierten Zyklotronfrequenzen der vermuteten kontaminierenden Ionensorten eingestrahlt, um diese durch Aufweitung ihres Zyklotronradius aus dem Fallenzentrum zu entfernen (14). Bei den Zyklotronfrequenz-Messungen an den radioaktiven Zinnisotopen wurde eine sehr starke Verunreinigung durch die jeweiligen Cäsium-, Barium- und Indium-Isobare festgestellt. Sie konnten in den meisten Fällen durch Einstrahlen der entsprechenden reduzierten Zyklotronfrequenzen für 300 ms beseitigt werden.

Für die in der Falle verbliebenen Ionen erfolgt nun die Konversion von Magnetronbewegung in Zyklotronbewegung durch Einstrahlen eines azimutalen Quadrupol-Wechselfeldes der Frequenz  $\nu_{\rm RF}$  (15). Die Amplitude und die Anregungsdauer werden gemäß der Gln. (3.22, 3.32) so gewählt, daß im Fall von Resonanz ( $\nu_{\rm RF} = \frac{q}{2\pi m}B$ ) eine vollständige Konversion der Magnetronbewegung in eine reine Zyklotronbewegung mit gleichem Radius erfolgt. Dadurch ist die Anderung der radialen Energie maximal, während die Ionenbewegung dennoch auf dasselbe kleine Raumvolumen beschränkt bleibt, das vor der Anregung eingenommen wurde  $\rho_+ = \rho_- \approx 1$  mm. Dadurch werden die Auswirkungen unvermeidbarer Fallenfehler so klein wie möglich gehalten. Schließlich werden die Ionen durch Schalten der Spannungen an der oberen Endkappe extrahiert (16). Gleichzeitig wird der Vielkanal-Zähler (MCA) gestartet. Die Signale, die im MCP-Detektor durch die auftreffenden Ionen erzeugt werden, werden vom MCA zeitgerecht erfaßt. Dadurch entsteht eine Flugzeitverteilung (vgl. Abb. 3.9), also eine Darstellung der Ionenzählrate als Funktion der Flugzeit. Die mittlere Flugzeit und ihre Ungenauigkeit wird daraus ermittelt und trägt als einzelner Datenpunkt zum Flugzeitspektrum (siehe Abb. 3.8) bei.

#### Bestimmung der Zyklotronfrequenz und Kontaminationen

Der im letzten Abschnitt beschriebene Zyklus wird für alle Frequenzstützpunkte  $\nu_{\rm RF}$  wiederholt, aus denen das jeweilige Flugzeitspektrum besteht. Solch ein Frequenzscan wird entsprechend der zur Verfügung stehenden Teilchenrate mehrmals wiederholt, um eine ausreichend hohe Zählstatistik zu erlangen. Bei fast allen im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Zyklotronfrequenz-Messungen, einschließlich der Referenzen, betrug die Anregungsdauer  $T_{\rm RF} = 900$  ms. Dies führt zu einer Breite des Hauptminimums von  $\Delta \nu_{\rm FWHM} \approx 1.4$  Hz. Der Scanbereich wurde stets so gewählt, daß er 8 Hz breit ist ( $\nu_c - 4$  Hz  $\leq \nu_{\rm RF} \leq \nu_c + 4$  Hz). Er wurde in Frequenzscans bestehend aus 41 Stützpunkten im Abstand von jeweils 0,2 Hz abgetastet.

**Tabelle 4.2:** Ergebnisse der Zyklotronfrequenzmessungen der untersuchten Sr- und Sn-Isotope. Für manche Isotope wurden mehrere Flugzeitspektren aufgenommen. Unterschiedliche Zyklotronfrequenzen sind auf Änderungen des Magnetfeldes zurückzuführen. Neben der jeweiligen Zyklotronfrequenz und ihrem statistischen Fehler ist die Anzahl N<sub>tot</sub> der insgesamt im Flugzeitspektrum enthaltenen Ionen und der Mittelwert  $< N > /_{Zykl}$  der pro Zyklus nachgewiesenen Ionen aufgeführt.

Ion	$\nu_c \; [\text{Hz}]$	$\sigma_{\rm stat}$ [Hz]	$\sigma_{ m stat}/ u_c$	$N_{\rm tot}$	$< \mathrm{N} > /_{\mathrm{Zykl}}$
$^{76}{ m Sr^{19}F^+}$	958 080,370	0,344	$3,59 \cdot 10^{-7}$	1636	0,27
77g_1917+	948 131,838	0,071	$7,5\cdot 10^{-8}$	2094	1,28
51 1	$948\ 131,702$	$0,\!084$	$8,9\cdot10^{-8}$	860	1,40
$^{80}\mathrm{Sr^{+}}$	$1\ 138\ 079,\!145$	$0,\!136$	$1,19 \cdot 10^{-7}$	600	0,29
$^{81}\mathrm{Sr}^+$	1 124 033,633	0,044	$3,9\cdot10^{-8}$	960	1,20
${}^{86}{ m Sr}{}^{19}{ m F}^+$	$867\ 050,\!646$	$0,\!054$	$6, 2 \cdot 10^{-8}$	8301	9,64
$^{88}\mathrm{Sr}^+$	$1 \ 034 \ 750,291$	$0,\!074$	$7, 2 \cdot 10^{-8}$	1957	4,34
$^{124}\mathrm{Sn^{+}}$	734 112,521	0,013	$1,7\cdot10^{-8}$	6970	5,67
$129q.m_{C_{12}} +$	705 592,593	0,044	$6, 2 \cdot 10^{-8}$	1824	3,71
sn'	$705\ 592,\!554$	0,027	$3,8\cdot10^{-8}$	3435	2,79
$^{130g}\mathrm{Sn}^+$	700 158,854	0,020	$2,9\cdot 10^{-8}$	3998	7,50
	$700\ 158,853$	0,017	$2,4\cdot 10^{-8}$	6891	7,64
	$700\ 158,731$	0,024	$3,4\cdot10^{-8}$	2334	$7,\!12$
$^{130m}\mathrm{Sn^{+}}$	$700\ 147,533$	0,023	$3, 3 \cdot 10^{-8}$	2617	5,32
	$700\ 147,\!524$	0,026	$3,7\cdot10^{-8}$	3506	$6,\!58$
$^{131g,m}\mathrm{Sn}^+$	$694\ 794,081$	0,018	$2, 6 \cdot 10^{-8}$	3869	8,58
	$694\ 794,060$	0,013	$1,9\cdot10^{-8}$	4289	$6,\!54$
132 <b>G</b> <sub>p</sub> +	$689\ 523,249$	0,019	$2, 8 \cdot 10^{-8}$	6748	4,99
511	$689\ 523,\!252$	$0,\!014$	$2,0\cdot 10^{-8}$	5099	6,22

Durch Anpassung der theoretisch erwarteten Linienform (Kap. 3.4) an das Flugzeitspektrum wird jeweils die Lage des Hauptminimums und damit die Zyklotronfrequenz ermittelt. Da die Genauigkeit, mit der dies geschieht, neben der Anregungszeit  $T_{\rm RF}$  nur noch von der Zählstatistik abhängt, wird sie als  $\sigma_{\rm stat}$  bezeichnet. Die Abhängigkeit der statistischen Genauigkeit von der Anregungszeit, von der Anzahl der nachgewiesen Ionen pro Zyklus, von der Anzahl der Zyklen pro Frequenzpunkt und von der Dichte der Frequenzpunkte ist detailiert in Kap. 3.4 erläutert. In Tabelle 4.2 sind sämtliche Ergebnisse aus Flugzeitspektren, die ausgewertet werden konnten, dargestellt. Es wurde noch keine Korrektur bezüglich Zählratenklassen (siehe unten) vorgenommen. Neben der ermittelten Zyklotronfrequenz und deren statistischen Fehler ist die Anzahl der insgesamt zum Flugzeitspektrum beitragenden Ionen und die mittlere Anzahl der pro Zyklus nachgewiesenen Ionen angegeben.

Ein systematischer Fehler bei der Bestimmung der Zyklotronfrequenz kann entstehen, falls sich gleichzeitig mit dem zu bestimmenden Radionuklid Ionen einer anderen Spezies in der Präzisionsfalle befinden [63]. Die Bewegungen der einzelnen Ionen sind über die Coulomb-Wechselwirkung miteinander gekoppelt. Sind Ionen anderer



**Abbildung 4.7:** Zählratenbedingte Frequenzverschiebung. Die Zyklotronfrequenz wird jeweils aus einem Flugzeit-Spektrum ermittelt, zu welchem nur Meßzyklen beitragen, bei denen weniger als Z Ionen auf dem Flugzeitdetektor nachgewiesen wurden. Die Darstellung der Zyklotronfrequenz als Funktion dieser Zählratenklasse verdeutlicht eine signifikante, systematische Verschiebung.

Masse vorhanden, ist die Resonanzfrequenz, bei der die Anregung der Bewegungen stattfindet, etwas verschoben. Diese Verschiebung steht in linearem Zusammenhang mit der Zahl von Fremdionen, die sich zur selben Zeit in der Falle befinden. Da in der Regel das Verhältnis von zu untersuchenden Ionen und Verunreinigungen während einer Messung konstant bleibt, ist die Frequenzverschiebung proportional zur Anzahl der insgesamt auf dem Flugzeitdetektor nachgewiesenen Ionen. In Abb. 4.7 ist die aus einem Flugzeitspektrum für <sup>129</sup>Sn ermittelte Zyklotronfrequenz als Funktion der Zählratenklasse Z aufgetragen. Der Effekt der zählratenbedingten Frequenzverschiebung ist offensichtlich. Man kann den richtigen Wert ermitteln, indem man den Trend der Verschiebung in Abb. 4.7 zu dessen Wert für  $Z \approx 1$  linear extrapoliert.

Besser ist es, durch Anwenden der im letzten Abschnitt (Abb. 4.6, (14)) erwähnten Reinigungsprozedur die Verunreinigungen aus dem Fallenzentrum zu beseitigen. Die räumliche Trennung der kontaminierenden von den zu untersuchenden Ionen verringert den Effekt der Wechselwirkung und die dadurch verursachte Frequenzverschiebung.

Bei den neutronenreichen Zinn-Isotopen erwartet man jeweils deren Ba-, Cs- und In-Isobare als Verunreinigungen. Für diese Nuklide wurde jeweils deren reduzierte Zyklotronfrequenz für 300 ms eingestrahlt, was im Fall von <sup>129</sup>Sn nicht ausgereicht hat. Deshalb wurden zwei weitere Flugzeitspektren für <sup>129</sup>Sn aufgenommen, bei denen die Dauer für die reinigende Anregung 1 s betrug. Bei diesen beiden Spektren ist die zählratenbedingte Frequenzverschiebung sehr viel geringer als die in Abb. 4.7 dargestellte.

Für die Referenzionen wird der Effekt der zählratenabhängigen Frequenzverschie-

**Tabelle 4.3:** Zyklotronfrequenzen der Zinn-Isotope für geringe Teilchenzahlen in der Penningfalle. Um eine Verschiebung der Zyklotronfrequenzen mit Sicherheit auszuschließen, wurden für jedes Flugzeitspektrum nur Zyklen berücksichtigt, bei denen sich nur wenige Ionen (N< 5) in der Präzisionsfalle befanden. Zum Vergleich ist in der zweiten Spalte die Zyklotronfrequenz aufgeführt, wie sie aus dem Flugzeitspektrum mit allen Ereignissen ermittelt wurde (Tab. 4.2).

Ion	$\nu_c  [\text{Hz}]$	$\nu_{\rm lowN}$ [Hz]	$\sigma_{\rm lowN}/\nu$
$^{124}\mathrm{Sn^{+}}$	$734 \ 112,521 \ (13)$	$734 \ 112,553 \ (53)$	$7,2 \cdot 10^{-8}$
$129g,mg_{n+1}$	705 592,593 (44)	705 592,633(179)	$2,54 \cdot 10^{-7}$
ST DI	705 592,554 (27)	$705\ 592,589(143)$	$2,02 \cdot 10^{-7}$
	$700\ 158,854\ (20)$	$700\ 158,867(128)$	$1,83 \cdot 10^{-7}$
$^{130g}\mathrm{Sn^{+}}$	$700\ 158,853\ (17)$	$700\ 158,866(115)$	$1,64 \cdot 10^{-7}$
	$700\ 158,731\ (24)$	$700\ 158,726(125)$	$1,79 \cdot 10^{-7}$
$130m\mathbf{G}_{\mathbf{p}}+$	$700\ 147,533\ (23)$	$700 \ 147,568 \ (90)$	$1,29 \cdot 10^{-7}$
511	$700\ 147,524\ (26)$	$700 \ 147,525 \ (40)$	$5,7 \cdot 10^{-8}$
$131q,m_{S_{12}}+$	694 794,081 (18)	$694  794,\! 083  (36)$	$5,2 \cdot 10^{-8}$
51 511	694 794,060 (13)	$694 \ 794,063 \ (42)$	$6,0 \cdot 10^{-8}$
$132 g_{p} +$	$689\ 523, 249\ (19)$	$689\ 523,254\ (41)$	$5,9 \cdot 10^{-8}$
JII	689 523,252 (14)	$689\ 523,253\ (55)$	$8,0 \cdot 10^{-8}$

bung nicht beobachtet und auch nicht erwartet, da in der Test-Ionenquelle nur Ionen stabiler Isotope des jeweiligen Elements erzeugt werden. Isobare oder isomere Verunreinigungen treten nicht auf. Da man bei den von ISOLDE stammenden Ionen im allgemeinen von isobaren Kontaminationen in großer Zahl ausgehen muß, besteht die sicherste Methode, den hier beschriebenen Effekt zu vermeiden, darin, die Gesamtzahl der Ionen in der Präzisionsfalle möglichst gering zu halten. Bei den hier vorgestellten Messungen wurde die mittlere Anzahl der Ionen, die sich pro Zyklus in der Falle befanden, auf  $\overline{N} \leq 10$  begrenzt (siehe letzte Spalte in Tab. 4.2). Die Analyse der zählratenbedingten Frequenzverschiebung wurde für alle Spektren der untersuchten Radionuklide durchgeführt. Bei den meisten der Zinn-Messungen trat trotz Reinigung stets eine kleine, zählratenbedingte Frequenzverschiebung auf, während der Effekt für die Strontium-Spektren nicht zu beobachten war. Zur Ermittlung der korrekten, nicht durch Kontaminationen verfälschten Zyklotronfrequenz  $\nu_{\text{lowN}}$ wurden lediglich Meßzyklen, bei denen nur wenige Ionen auf dem Flugzeitdetektor nachgewiesen wurden, berücksichtigt. Wenngleich sich in manchen Fällen der Wert  $\nu_{\rm lowN}$  kaum vom ursprünglichen unterscheidet, ist dennoch die Unsicherheit  $\sigma_{\rm lowN}$ aufgrund der geringeren Zählstatistik drastisch erhöht (siehe Tab. 4.3). Von nun an ist mit  $\nu_{\text{Rad}} = \nu_{\text{lowN}}$  und  $\sigma(\nu_{\text{Rad}}) = \sigma_{\text{lowN}}$  stets die mit geringer Zählrate bestimmte Zyklotronfrequenz des Radionuklids und deren statistische Unsicherheit gemeint.

#### Kalibrierung des Magnetfeldes

Die atomare Masse des zu untersuchenden Nuklids wird aus dem Verhältnis r =

 $\nu_{\text{Ref}}/\nu_{\text{Rad}}$  der Zyklotronfrequenz des Radionuklidions  $\nu_{\text{Rad}}$  und derjenigen eines stabilen Referenzions  $\nu_{\text{Ref}}$  wie folgt ermittelt (vgl Gl.3.33):

$$m_{\rm Rad} = r \cdot (m_{\rm Ref} - m_e) + m_e . \qquad (4.1)$$

Dabei ist  $m_e$ ,  $m_{\rm Rad}$  und  $m_{\rm Ref}$  die Masse des Elektrons, des neutralen Radionuklidatoms und des Referenzatoms. Um den Fehlerbeitrag für  $m_{\rm Rad}$ , der sich aus der Ungenauigkeit der Referenzmasse ergibt, zu minimieren, werden vorzugsweise Nuklide sehr gut bekannter Masse verwendet. Für die Strontium-Isotope diente <sup>85</sup>Rb<sup>+</sup> als Referenz-Nuklid, dessen Masse mit einer relativen Genauigkeit von  $\Delta m/m =$  $1, 4 \cdot 10^{-10}$  bekannt ist [26]. Zur Kalibrierung der Zinn-Messungen wurden <sup>133</sup>Cs<sup>+</sup>-Ionen verwendet, deren Masse auf  $\Delta m/m = 1, 8 \cdot 10^{-10}$  [26] genau bekannt ist. Die Frequenzmessung am Referenzion wird auf dieselbe Weise wie die am Radionuklid durchgeführt.

Ein zusätzlicher, systematischer Fehler bei der Bestimmung des Frequenzverhältnisses kann auftreten, wenn die Masse des verwendeten Referenzions stark von den Massen der zu untersuchenden Ionen abweicht. Mögliche nicht kompensierte Fallenfehler, speziell eine Verkippung der Fallenachse relativ zum Magnetfeld, können zu einer Abhängigkeit der Zyklotronfrequenz von der Masse führen, die über den rein linearen Term hinausgeht:

$$\nu_{\rm c} = \frac{q}{m + \alpha m^2} B \text{ mit } \alpha \neq 0 .$$
(4.2)

In diesem Fall entspricht das Verhältnis der Zyklotronfrequenzen  $\nu_1/\nu_2$  zweier Ionen nicht dem reziproken Verhältnis ihrer Massen  $m_2/m_1$ , beziehungsweise tut dies nur im trivialen Fall  $m_1 = m_2$ . Das Verhältnis der gemessenen Frequenzen weicht umso stärker ab, je größer die Differenz der beiden Massen ( $\Delta m = m_1 - m_2$ ) ist. Da diese Nichtlinearität für die ISOLTRAP-Präzisionsfalle sehr gering ist ( $\alpha \ll 1$ ), gilt für die relative Abweichung des Frequenzverhältnisses in guter Näherung:

$$\frac{\Delta r}{r} \propto \Delta m \ . \tag{4.3}$$

Die massenbedingte relative Änderung des Frequenzverhältnisses wurde experimentell bestimmt und beträgt [51]:  $\left(\frac{\Delta r}{r}\right)_{\Delta m} < 2 \cdot 10^{-9}/u \cdot \Delta m$ . Die maximale Massendifferenz zwischen den untersuchten Strontium-Isotopen und

Die maximale Massendifferenz zwischen den untersuchten Strontium-Isotopen und ihrem Referenznuklid <sup>85</sup>Rb beträgt höchstens 11 atomare Masseneinheiten. Ein daraus resultierender Beitrag zum relativen, systematischen Fehler des Frequenzverhältnisses ist also  $\left(\frac{\Delta r}{r}\right)_{\Delta m} < 2, 2 \cdot 10^{-8}$ . Für die Zinn-Isotope beträgt die maximale Massendifferenz zum Referenznuklid <sup>133</sup>Cs sogar nur 4 atomare Masseneinheiten, was einem maximalen, systematischen Fehlerbeitrag von  $\left(\frac{\Delta r}{r}\right)_{\Delta m} < 8 \cdot 10^{-9}$  entspricht. In kürzlich durchgeführten Messungen konnte mithilfe von Kohlenstoff-Clustern die Bestimmung der massenbedingten Verschiebung des Frequenzverhältnisses auf eine größere Zahl verschiedener Massen, die einen größeren Bereich gleichmäßig abdecken, ausgeweitet werden [65]. Dabei wurde eine relative Änderung des Frequenzverhältnisses von  $\left(\frac{\Delta r}{r}\right)_{\Delta m} = 1, 6(4) \cdot 10^{-10}/u \cdot \Delta m$  ermittelt. Die Messungen, die zu diesem

Ergebnis führten, wurden erst nach der Auswertung der im Rahmen dieser Arbeit erhaltenen Daten durchgeführt. Von einer nachträglichen Neuberechnung der Unsicherheit wurde abgesehen, da der Fehlerbeitrag aus der Massendifferenz zwischen Referenz- und Radionuklid für die hier untersuchten Kerne nur eine geringe Rolle spielt.

Eine weitere Fehlerquelle bei der Bestimmung des Frequenzverhältnisses stellt die zeitlichen Schwankung des Magnetfeldes, in dem sich die Präzisionfalle befindet, dar. Für die Aufnahme des Flugzeitspektrums, aus dem die Zyklotronfrequenz bestimmt wird, benötigt man je nach zur Verfügung stehender Zählrate eine gewisse Zeitspanne  $\Delta T$ . Für die Referenzmessungen können in der Testionenquelle Ionen in sehr großer Zahl und frei von isobaren Kontaminationen produziert werden. Die Dauer für die Aufnahme eines Flugzeitspektrums kann daher vergleichsweise kurz sein ( $\Delta T \approx 15$  min) und dennoch eine ausreichende statistische Genauigkeit ( $\sigma_{\text{stat}}(\nu_{\text{Ref}})/\nu_{\text{Ref}} < 5 \cdot 10^{-8}$ ) erzielen. Referenzmessungen werden in der Regel jeweils unmittelbar vor (zur Zeit  $t = t_0$ ) und nach ( $t = t_2$ ) der Messung am Radionuklid durchgeführt.

Je nach Produktionsrate oder aufgrund der Beschränkung auf geringe Zählraten, um kontaminationsbedingte Frequenzverschiebungen zu vermeiden, betrug die Meßdauer bei manchen Radionukliden bis zu einigen Stunden. Da sich das Magnetfeld während dieser Zeit im allgemeinen ändert, ist auch die Zyklotronfrequenz der Ionen eine Funktion der Zeit  $\nu_{\text{Rad}}(t)$ . Die aus dem Flugzeitspektrum ermittelte Zyklotronfrequenz entspricht dem zeitlichen Mittelwert der sich während der Messung ändernden, tatsächlichen Zyklotronfrequenz  $\bar{\nu}_{\text{Rad}}(t)$ . Für die Bildung des korrekten Frequenzverhältnisses  $r = \nu_{\text{Ref}}/\nu_{\text{Rad}}$  müßte man für  $\nu_{\text{Ref}} = \bar{\nu}_{\text{Ref}}(t)$  setzen, also den zeitlichen Mittlerwert der Referenzfrequenz innerhalb desselben Zeitintervalls  $t_0 < t < t_2$ . Da jedoch die Referenzmessungen nicht gleichzeitig mit den Messungen an den Radionukliden erfolgen, kann der für die Verhältnisbildung notwendige Wert für  $\nu_{\text{Ref}}$  nur abgeschätzt werden. Unter der Annahme, daß die Magnetfeld-Änderung während der Messung am Radionuklid linear verläuft, ist der zeitlichen Mittlerwert  $\nu_{\text{Ref}}$  gegeben durch das arithmetische Mittel

$$\nu_{\rm Ref} = \frac{\nu_{\rm Ref|t_0} + \nu_{\rm Ref|t_2}}{2} .$$
 (4.4)

Dabei sind  $\nu_{\text{Ref}|t_0}$  und  $\nu_{\text{Ref}|t_2}$  die Referenzwerte, die unmittelbar vor und nach der Messung am Radionuklid ermittelt wurden. Der Einfluß der zeitlichen Magnetfeld-Änderung auf die Referenzfrequenzen ist im Vergleich zum statistischen Fehler vernachlässigbar gering, wie im folgenden Abschnitt erläutert wird. Zur Unsicherheit für  $\nu_{\text{Ref}}$  tragen also lediglich die statistischen Fehler der Einzelmessungen bei:

$$\sigma(\nu_{\text{Ref}}) = \sqrt{\sigma_{\text{stat}}^2(\nu_{\text{Ref}|t_0}) + \sigma_{\text{stat}}^2(\nu_{\text{Ref}|t_2})} .$$
(4.5)

Der statistische Fehler des Frequenzverhältnisses r ist die quadratische Summe der relativen Fehler der Zyklotronfrequenz des Radionuklids  $\sigma(\nu_{\text{Rad}})$  aus den Tabellen 4.2 und 4.3 und der interpolierten Referenzfrequenz  $\sigma(\nu_{\text{Ref}})$  gemäß Gl. (4.5):

$$\frac{\sigma^2(r)}{r} = \frac{\sigma^2(\nu_{\text{Rad}})}{\nu_{\text{Rad}}} + \frac{\sigma^2(\nu_{\text{Ref}})}{\nu_{\text{Ref}}} .$$
(4.6)

Ein zusätzlicher Fehler für r ergibt sich jedoch dadurch, daß die Magnetfeld-Änderung während der Dauer der Zyklotronfrequenz-Messung im allgemeinen nicht rein linear verläuft. Man muß davon ausgehen, daß das tatsächliche Magnetfeld umso weiter vom linear interpolierten Verlauf abweicht, je größer das Zeitintervall  $\Delta T$ zwischen zwei direkten Messungen ist. Speziell bei langen Erfassungszeiten ist der Fehler für das Frequenzverhältnisses, der durch Magnetfeld-Fluktuationen hervorgerufen werden kann, nicht mehr vernachlässigbar.

#### Zeitliche Fluktuation des Magnetfeldes

Neben Kontaminationen durch fremde Ionensorten stellt die zeitliche Änderung des Magnetfeldes die bedeutendste Quelle für Fehler bei sehr genauen Massenmessungen in Penningfallen dar. Da man dadurch bedingte Abweichungen des Frequenzverhältnisses vom wahren Wert nicht bestimmen und daher auch nicht korrigieren kann, ist eine verläßliche Abschätzung eines möglichen Fehlers von sehr großer Bedeutung.



**Abbildung 4.8:** Zeitliche Magnetfeld-Änderung während der Zinn- und Strontium-Messungen. Die Zyklotronfrequenzen aus sämtlichen Referenzmessungen an <sup>133</sup>Cs-Ionen (links) und <sup>85</sup>Rb-Ionen (rechts) sind als Funktion ihres Meßzeitpunktes dargestellt. Die Zyklotronfrequenz, respektive das Magnetfeld, fällt stetig um etwa  $\frac{\Delta B}{B} \approx 5, 3 \cdot 10^{-8}$  pro 24 h ab. Die dabei vollführten Fluktuationen finden innerhalb eines Bereiches von  $\frac{\Delta B}{B} \approx 10^{-7}$ statt, der durch die gestrichelten Linien dargestellt ist. Das rechte Diagramm ist im Vergleich zum linken um den Faktor  $\frac{133}{85} = 1,56$  in vertikaler Richtung gestaucht.

In systematischen Serien von Zyklotronfrequenz-Messungen an stabilen Testionen (<sup>133</sup>Cs) wurde über viele Tage hinweg die zeitliche Änderung des Magnetfeldes der ISOLTRAP-Präzisionsfalle ermittelt [51]. Es wurde im Mittel ein stetiger, relativer Abfall des Magnetfeldes um  $\frac{\Delta B}{B} \leq 10^{-7}$  pro Tag festgestellt. Auf einer Zeitskala von mehreren Stunden wurden Schwankungen im selben Rahmen beobachtet, die ihre Ursache in tageszeitlich bedingten Druck- und Temperaturschwankungen haben. Zusätzliche systematische Beiträge zur Änderung des Magnetfeldes können nicht beobachtet werden, zumindest sofern äußere Einflüsse, wie die Bewegung massiver, ferromagnetischer Objekte durch die Randbereiche des Magnetfeldes, ausgeschlossen werden. Statistische Fluktuationen auf einer Zeitskala von wenigen Stunden erwiesen sich stets als geringer als die systematischen Änderungen. In kürzlich durchgeführ-

ten Messungen wurden diese Fluktuationen experimentell bestimmt. Ebenfalls unter Verwendung stabiler Testionen ausreichender Zählrate wurde die Abweichung der Magnetfeld-Änderung von einem linearen Verlauf quantifiziert [65]. Die relative Standardabweichung des tatsächlichen, gemessenen Magnetfeldes  $\frac{\sigma(B)}{B}$  von einem, das durch die lineare Interpolation  $B(t) = B_{|t_0} + \frac{B_{|t_0} - B_{|t_2}}{\Delta T} \cdot t$ zwischen zwei im zeitlichen Abstand von  $\Delta T = t_0 - t_2$  gemessenen Werten  $B_{|t_0}$  und  $B_{|t_2}$ ermittelt wird, beträgt:

$$\frac{\sigma(B)}{B} = 6,35(45) \cdot 10^{-11} \text{min}^{-1} \cdot \Delta T .$$
(4.7)

Wenn beispielsweise die beiden Referenzmessungen im Abstand von 30 min durchgeführt werden, kann man also, entsprechend der einfachen Standardabweichung, mit 68%-iger Wahrscheinlichkeit davon ausgehen, daß die relative Abweichung des tatsächlichen Magnetfeldes zum Zeitpunkt  $t_1 = t_0 + \Delta T/2 = t_0 + 15$ min vom arithmetischen Mittelwert  $\frac{B_{|t_0}+B_{|t_2}}{2}$  geringer als 1,91(14)  $\cdot 10^{-9}$  ist. Hiermit ist die Annahme bestätigt, daß kurze ( $\Delta T < 30$ min) Referenzmessungen als Momentaufnahmen des Magnetfeldes betrachtet werden können, deren Genauigkeit lediglich statistisch limitiert ist.

Die Messungen, die zur genaueren Abschätzung der zeitlichen Magnetfeldänderung gemäß Gl. (4.7) führten, wurden wie die Untersuchengen der massenbedingten Frequenzverschiebung erst nach der Auswertung der hier diskutierten Daten durchgeführt. Da dieses Resultat insbesondere während der Durchführung der Messungen noch nicht bekannt war, wurde bei diesen nicht speziell auf kurze Meßperioden und häufige, regelmäßige Referenzmessungen geachtet. Auf einer Zeitskala von einigen Stunden muß man von Abweichungen vom linearen Verlauf des Magnetfeldes ausgehen, die nicht rein statistischer Natur sind und daher nicht mittels Gl. (4.7) abgeschätzt werden können. Zudem darf der in Gl. (4.7) angegebene Wert im allgemeinen nicht als universell für den ISOLTRAP-Magneten betrachtet werden, da zur Zeit noch nicht klar ist, inwieweit er selbst von äußeren Einflüssen wie Tageszeit, Witterung und ähnlichem abhängt. Aus diesen Gründen wird für die hier durchgeführten Messungen von einer genauen Abschätzung der nicht-linearen Magnetfeld-Fluktuation gemäß Gl. (4.7) abgesehen. Stattdessen wird der Unsicherheit durch die Addition eines zusätzlichen, systematischen Fehlers Rechnung getragen.

In Abb. 4.8 sind die Zyklotronfrequenzen aus sämtlichen Referenz- und Testmessungen an <sup>133</sup>Cs-Ionen (links) und <sup>85</sup>Rb-Ionen (rechts), die während der Zinn- beziehungsweise der Strontium-Strahlzeit durchgeführt wurden, als Funktion ihres Meßzeitpunktes dargestellt. Man erkennt, daß die relative Streuung der Meßwerte innerhalb eines schmalen Bandes der Breite  $\frac{\Delta\nu}{\nu} \leq 10^{-7}$  verläuft, und die Differenz zwischen je zwei benachbarten Messungen im Mittel geringer als  $\frac{\Delta\nu}{\nu} \leq 3 \cdot 10^{-8}$  ist. Der zeitliche Abfall auf einer Zeitskala von mehreren Tagen ist ebenfalls zu beobachten, während die tageszeitlich bedingten Schwankungen nicht offensichtlich sind. Das liegt an der Unregelmäßigkeit und der vergleichsweise geringen zeitlichen Dichte der Zyklotronfrequenz-Messungen.

Für alle ermittelten Frequenzverhältnisse wurde zum statistischen Fehler, in dem die Korrektur kontaminationsbedingter Frequenzverschiebungen bereits enthalten

**Tabelle 4.4:** Übersicht über alle in Betracht gezogenen Fehlerquellen. Das Hinzufügen von  $10^{-7}$  zur statistischen Ungenauigkeit, deckt alle systematischen Fehler ab.

Art des Fehlers	Beitrag zur relativen Ungenauigkeit	
	der atomaren Masse $\frac{\Delta m}{m}$	
Bindungsenergie des äußersten Elektrons	$< 10^{-10}$	
$(\delta m/m)$ des Elektrons	$< 10^{-14}$	
$(\delta m/m)$ des Referenz-Ions	$1, 8 \cdot 10^{-10} (Cs), 1, 4 \cdot 10^{-10} (Rb)$	
$(m_{\rm Ref} - m_{\rm Rad}) \neq 0$	$< 8 \cdot 10^{-9} (Cs), < 2, 2 \cdot 10^{-8} (Rb)$	
$B(t) \neq const$	typischerweise $< 3 \cdot 10^{-8}$	
Fremdionen in der Falle	in $\sigma_{\text{lowN}}(\nu_{\text{Rad}})$ enthalten (siehe Tab. 4.3)	
Ungenauigkeit der Flugzeit-Bestimmung	in $\sigma(u_{r,s})$ und $\sigma(u_{r,s})$	
Instabilitäten elektrischer Fallenparameter	$(\text{Tab} \ 4\ 2)$ on the lton	
Endliche Energieverteilung der Ionen	(1ab. 4.2) entitation	
total	$<\sqrt{\left(rac{\sigma_{\mathrm{stat}}}{m} ight)^2 + \left(10^{-7} ight)^2}$	

ist, ein relativer Fehler von  $\frac{\Delta r}{r} = 10^{-7}$  quadratisch hinzuaddiert. Es wird davon ausgegangen, daß in ihm alle hier diskutierten Fehlerbeiträge, die in Tab. 4.4 zusammengestellt sind, enthalten sind. Neben den radioaktiven Nukliden eines jeden Elements beziehungsweise Moleküls wurde auch die Masse eines stabilen Isotops bestimmt. Diese Werte stimmen jeweils innerhalb des Fehlers gut mit den bereits vergleichsweise genau ermittelten Werten überein (siehe Abschnitt 4.3). Auch für die hier vorgestellten Messungen ist also die Wahrscheinlichkeit dafür, daß alle relevanten Fehlerquellen berücksichtigt und in ausreichender Weise quantifiziert wurden, sehr hoch.

Dieses Verfahren, mögliche Fehlerbeiträge aus unbekannten oder nicht näher bestimmbaren Quellen zu behandeln, wurde in den meisten Fällen auf Massenwerte, die bei ISOLTRAP bestimmt wurden, angewendet. Die langjährige Erfahrung aus der Vielzahl von Auswertungen von ISOLTRAP-Messungen und eine Reihe systematischer Langzeitstudien an stabilen Testionen bestätigen, daß der Wert von  $\frac{\Delta r}{r} = 10^{-7}$  die Summe aller systematischen Fehler durchaus überschätzt. Der sich insgesamt für die Masse ergebende Fehler stellt also eine konservative Abschätzung der tatsächlichen Abweichung dar. Die Wahrscheinlichkeit dafür, das der wahre Wert innerhalb der angegebenen Unsicherheit liegt, ist also größer als 68%, was der einfachen Standardabweichung einer statistische Normalverteilung entspräche. Der Einfachheit halber wird beim Vergleich mit Werten, die in anderen Experimenten ermittelt wurden, und bei der Einbindung der neuen ISOLTRAP-Werte in die Massentabelle der Gesamtfehler

$$\frac{\Delta m}{m} = \sqrt{\left(\frac{\sigma_{\text{stat}}(r)}{r}\right)^2 + (10^{-7})^2} = \frac{\sigma(m)}{m}$$
(4.8)

wie eine Standardabweichung verwendet.

# 4.3 Resultate und ihre Einbindung in die AME-Massentabelle

Bei den untersuchten Nukliden, für die mehrere auswertbare Flugzeitspektren vorliegen, werden jeweils die einzelnen Werte für die Frequenzverhältnisse zu deren gewichteten Mittelwert zusammengefaßt. Die Gewichtung eines beitragenden Wertes ist jeweils gegeben durch das inverse Quadrat der Genauigkeit, mit der er bestimmt werden konnte. Der gewichtete Mittelwert  $\bar{m}$  ergibt sich aus den einzelnen Werten  $m_i \pm \sigma_i$  wie folgt:

$$\bar{m} = \sum_{i} g_i m_i \ . \tag{4.9}$$

Für dessen Ungenauigkeit  $\sigma_{\text{ges}}$  und die Gewichtungsfaktoren  $g_i$  gilt:

$$\frac{1}{\sigma_{\text{ges}}^2} = \sum_i \frac{1}{\sigma_i^2} , \qquad g_i = \frac{1/\sigma_i^2}{1/\sigma_{\text{ges}}^2} . \tag{4.10}$$

In Tabelle 4.5 ist für jedes untersuchte Nuklid der Mittelwert der ermittelten Frequenzverhältnisse aufgeführt. Daraus wurden die atomaren Massen berechnet, die in der dritten Spalte in Einheiten von  $\mu u$  (Millionstel der atomaren Masseneinheit) angegeben sind. In der vierten Spalte befinden sich die entsprechenden Werte für

**Tabelle 4.5:** Frequenzverhältnisse und atomare Massen der untersuchten Strontiumund Zinn-Isotope. Bei den Sr-Messungen diente <sup>85</sup>Rb und bei den Sn-Messungen <sup>133</sup>Cs als Referenznuklid. Falls für eine Ionensorte mehrere Werte für das Frequenzverhältnis vorhanden waren, wurde der gewichtete Mittelwert gebildet, bevor die atomare Masse berechnet wurde. Bei den Strontium-Isotopen, für die die Frequenz des jeweiligen Strontiumfluorid-Moleküls bestimmt wurde (<sup>76,77,86</sup>Sr), ist die Masse von <sup>19</sup>F ( $m_{atom}$ = 18 998 403,205(75)  $\mu$ u [66]) bereits subtrahiert. In der vierten Spalte sind die Werte für den Massenexzeß aufgeführt. Zur Umrechnung des atomaren Massenstandards u in keV wurde die Relation 1  $\mu$ u  $\stackrel{\circ}{=}$  931,494012 eV [67] verwendet.

Ion	r	$m_{atom}[\mu \mathrm{u}]$	ME [keV]
$^{76}{ m Sr^{19}F^+}$	1.11810422(43)	$75 \ 941 \ 761(37)$	$-54\ 249(34)$
$^{77}{ m Sr^{19}F^+}$	1.12983627(10)	76937945(8)	-57804(8)
$^{80}\mathrm{Sr^{+}}$	0.94126475(17)	$79 \ 924 \ 506(15)$	$-70\ 322(14)$
$^{81}\mathrm{Sr}^+$	0.95302645(14)	$80 \ 923 \ 207(12)$	$-71\ 532(11)$
${}^{86}{ m Sr^{19}F^+}$	1.23549153(15)	$85 \ 909 \ 264(12)$	$-84\ 520(12)$
$^{88}\mathrm{Sr}^+$	1.03525828(13)	$87 \ 905 \ 614(11)$	$-87\ 920(10)$
$^{124}\mathrm{Sn}^+$	0.93228114(16)	$123 \ 905 \ 283(21)$	-88 228(20)
$^{129g,m}\mathrm{Sn}^+$	0.96996383(22)	$128 \ 913 \ 498(29)$	$-80\ 576(27)$
$^{130g}\mathrm{Sn}^+$	0.97749158(13)	$129 \ 913 \ 972(17)$	$-80\ 134(16)$
$^{130m}\mathrm{Sn}^+$	0.97750729(9)	$129 \ 916 \ 059(12)$	$-78\ 190(11)$
$^{131g,m}\mathrm{Sn}^+$	0.98503912(12)	$130 \ 917 \ 077(16)$	$-77\ 242(15)$
$^{132}\mathrm{Sn^{+}}$	0.99256895(14)	$131 \ 917 \ 829(18)$	$-76\ 542(17)$

den Massenexzeß. Er wird aus der atomaren Masse wie folgt berechnet:

$$ME [u] = m_{atom} [u] - A , \qquad (4.11)$$

wobei  $m_{\rm atom}$  die atomare Masse des Nuklids ist und A seine Massenzahl. Die Angabe der Masse in dieser Form ermöglicht den Umgang mit vergleichsweise kleinen Zahlen ohne dabei signifikante Informationen zu verlieren. Im Hinblick auf die Bedeutung der atomaren Masse für die Kernbindungsenergie wird der Massenexzeß in Einheiten von Elektronenvolt angegeben.

In Zusammenarbeit mit Georges Audi, dem verantwortlichen Herausgeber der Atomic Mass Evaluation wurden die neuen Massenwerte für die jeweiligen Nuklide in die Massentabelle aufgenommen. Die AME ist ein Datensammlung, in der sich der emp-

**Tabelle 4.6:** Vergleich der ISOLTRAP-Daten mit den in der AME angegebenen Werten. In der zweiten Spalte sind die im Rahmen dieser Arbeit ermittelten Werte für den Massenexzeß der untersuchten Nuklide aufgeführt. Bei den Nukliden, die langlebige isomere Zustände aufweisen, die jedoch bei der ISOLTRAP-Messung nicht aufgelöst werden konnten (<sup>129,131</sup>Sn), mußte der Fehler vergrößert werden. In der dritten Spalte sind die jeweiligen Werte für den ME angegeben, wie sie von der AME angegeben wurden, bevor die neuen ISOLTRAP-Werte in die Anpassung mit aufgenommen wurden (Stand: August 2001). Die vierte Spalte enthält die neuen AME-Werte, wie sie sich nach dem Einbinden der ISOLTRAP-Messungen ergeben. Ihr Einfluß auf die aktuellen Werte ist in der fünfte Spalte aufgeführt.

Nuklid	$ME_{IST}$ [keV]	$ME_{AME'01}$ [keV]	$ME_{AME'01\&IST}$ [keV]	Signifikanz [%]
$^{76}\mathrm{Sr}$	$-54\ 249(34)$	-54 390(298) #	-54 244(37)	100
$^{77}\mathrm{Sr}$	-57804(8)	$-57\ 877(150)$	-57804(8)	100
$^{80}\mathrm{Sr}$	$-70\ 322(14)$	$-70\ 304,4(7,5)$	$-70\ 308,2(6,6)$	22
$^{81}\mathrm{Sr}$	$-71\ 532(11)$	$-71\ 526,1(7,5)$	$-71\ 527,7(6,2)$	32
$^{86}\mathrm{Sr}$	$-84\ 520(12)$	$-84\ 521,6(2,2)$	$-84\ 521,6(2,2)$	0
$^{88}\mathrm{Sr}$	$-87\ 920(10)$	$-87\ 919,7(2,2)$	$-87\ 919,7(2,2)$	0
<sup>124</sup> Sn	-88 228(20)	-88 236,1(1,4)	-88 236,1(1,4)	0
$^{129g,m}$ Sn	-80 576(29) †	$-80\ 630(122)$	-80594(29)	95
$^{130g}\mathrm{Sn}$	-80 134(16)*	$-80\ 232(27)$	-80 141(11)	80
$^{130m}$ Sn	-78 190(11)*	$-78\ 284(27)$	$-78\ 193(11)$	80
$^{130g}{ m Sn}^{**}$	-80 136(10)	$-80\ 232(27)$	-80 141(11)	80
$^{131g,m}$ Sn	-77 242(72) †	$-77\ 341(27)$	$-77 \ 341(27)$	0
$^{132}Sn$	$-76\ 542(17)$	$-76\ 577(24)$	$-76\ 554(14)$	67

# Wert wurde aus generellen Trends extrapoliert.

\* Für die Anpassung wurden beide Werte zusammengefaßt (siehe Abschnitt <sup>130</sup>Sn).

\*\* Aus den gemessenen Werten für Grund- und isomeren Zustand mit Hilfe der sehr genau bekannten Anregungsenergie berechneter Mittelwert.

<sup>†</sup> Bei der Messung konnten Grund- und isomerer Zustand nicht aufgelöst werden. Der Wert wurde entsprechend korrigiert und der Fehler angepaßt (siehe Abschnitte <sup>129</sup>Sn und <sup>131</sup>Sn).

fohlene Wert für die atomare Masse eines jeden Nuklids finden läßt, sofern diese experimentell bestimmt worden ist. Selbst zu einigen Nukliden, für die es bislang noch keine experimentellen Daten gibt, sind Massenwerte aufgeführt. Diese sind mit Hilfe genereller Trends aus den experimentellen Massen-Werten benachbarter Nuklide abgeleitet.

Bei den meisten der gemessenen Massen ist der erhaltene Wert relativ zur Masse eines anderen Nuklids bestimmt worden. Entweder wird durch die Bestimmung der Energie, die bei einem radioaktiven Zerfall frei wird, die Masse des jeweiligen Nuklids mit dem Tochter-Nuklid verknüpft oder es muß für direkte Massenmessungen die Apparatur durch Nuklide bekannter Masse kalibriert werden. Absolute Massenmessungen, bei denen die gemessene Masse relativ zu derjenigen des Kohlenstoffisotops <sup>12</sup>C, der Definition des atomaren Massenstandards, bestimmt wird, sind vergleichsweise selten. Für viele der mehr als 2100 in der AME aufgeführten Nuklide wurde die Masse bereits mehrere Male mittels verschiedener Experimente ermittelt, sodaß es in diesen Fällen jeweils mehrere Verknüpfungen zu verschiedenen anderen Massen gibt. So ergibt sich insgesamt ein komplexes Netz von mehr als 5000 Verbindungen, das einen Großteil der gesamten, zur Zeit bekannten Nuklidkarte überdeckt. Jede Verknüpfung in diesem Netzwerk von gemessenen Zusammenhängen wird durch eine Gleichung in einem sehr großen linearen Gleichungssystem berücksichtigt. Die Prozedur für dessen Berechnung ist in [68,69] vorgestellt. Wenn neue Messungen in die AME aufgenommen werden, muß im Prinzip das gesamte Netzwerk neu berechnet und angepaßt werden, um den unterschiedlich starken Einfluß aller Verknüpfungen auf alle Massenwerte Rechnung zu tragen.

Die letzte veröffentlichte Aktualisierung der AME stammt aus dem Jahre 1995 [16]. Seither sind jedoch viele experimentelle Werte neu aufgenommen worden, wofür die hier vorgestellten nur ein Beispiel sind. Die Einbindung der ISOLTRAP-Werte fand im August 2001 statt. Zu diesem Zeitpunkt waren für einige der Nuklide die in der AME'95 angegebenen Werte bereits überholt. In Tab. 4.6 werden die neuen, mittels ISOLTRAP bestimmten Massen-Exzesse ME<sub>IST</sub> (zweite Spalte) mit den zu jenem Zeitpunkt aktuellen AME-Werten ME<sub>AME'01</sub> (dritte Spalte) verglichen. Nach den Anpassungsrechnungen erhält man nun für einige der hier untersuchten Nuklide neue AME-Werte ME<sub>AME'01&IST</sub> (vierte Spalte). Lediglich in den Fällen von <sup>130g</sup>Sn und <sup>130m</sup>Sn trat ein Konflikt auf. Das bedeutet, daß der neue, die ISOLTRAP-Messung mit einschließende AME-Wert signifikant vom zuvor angegebenen abweicht. In der fünften Spalte ist schließlich aufgeführt, mit welchem Gewicht die ISOLTRAP-Werte zu den neuen AME-Werten beitragen. Die neuen Werte und Besonderheiten, die bei ihrer Einbindung in die AME auftraten, werden im folgenden diskutiert.

 $^{76}$ Sr

Die ISOLTRAP-Messung lieferte den ersten experimentellen Wert, der für dieses Nuklid in die AME aufgenommen wurde. Der zuvor empfohlene Wert war unter Anwendung systematischer Trends der Bindungsenergie aus den Massen benachbarter Nuklide abgeschätzt gewesen. Im Rahmen der vergleichsweise großen Ungenauigkeit der Extrapolation ist diese im Einklang mit dem ISOLTRAP-Wert. Unter Verwendung des Zyklotrons CSS2 am GANIL als Flugzeit-Spektrometer (siehe Kap. 2.2 und [30]) konnte ebenfalls ein Wert für die Masse von <sup>76</sup>Sr bestimmt werden [70]. Dieser Messung zufolge beträgt der Massenexzeß ME<sub>CSS2</sub> = -54 784(100) keV und weicht damit um 535 keV signifikant vom ISOLTRAP-Wert (ME<sub>IST</sub> = -54 249(34) keV) ab. Da bisher alle mit ISOLTRAP gewonnen Daten der Überprüfung standhielten, und auch bei den hier vorgestellten Messungen mögliche systematische Fehler eher überschätzt wurden, wird davon ausgegangen, daß bei den GANIL-Messungen der angegebene Fehler zu klein ist. Einen weiteren Hinweis auf die Richtigkeit des ISOLTRAP-Wertes kann man aus der Betrachtung der Valenznukleonen-Restwechselwirkungs-Energie  $\delta V_{np}(N, Z)$  erhalten. Sie wird in Kap. 4.4 erläutert, und es wird gezeigt, daß der ISOLTRAP-Wert verträglicher mit dem für die  $\delta V_{np}(N, Z)$  erwarteten Verlauf ist.

## $^{77}$ Sr

Zum bisherigen AME-Wert für die Masse von <sup>77</sup>Sr trugen bislang zwei Messungen bei. Die Zerfalls-Energie beim  $\beta$ -verzögerten Protonen-Zerfall <sup>77</sup>Sr  $\rightarrow$  <sup>76</sup>Kr und der Q-Wert des  $\beta^+$ -Zerfalls <sup>77</sup>Sr  $\rightarrow$  <sup>77</sup>Rb erlaubten die Anbindung an andere Nuklide und damit eine indirekte Massenbestimmung. Der ISOLTRAP-Wert ist im Einklang mit dem bislang angegebenen, jedoch fast um das 20-fache genauer.

## $^{80,81}$ Sr

Für diese beiden Isotope lagen bereits Ergebnisse aus ISOLTRAP-Messungen vor [80], die in der bisherigen Anpassung das weitaus größte Gewicht hatten. Sie stammen aus einer Zeit, zu der sich die ISOLDE-Anlage an einem anderen Standort befand. Zwischen den älteren und den aktuellen ISOLTRAP-Messungen wurde also die gesamte Fallenanlage komplett demontiert und an einem anderen Ort wieder zusammengebaut. Die neuen Werte stimmen mit den alten überein und erhöhen nun ein wenig die Genauigkeit der entsprechenden AME-Werte. Die gute Übereinstimmung belegt die Zuverlässigkeit und Reproduzierbarkeit des ISOLTRAP-Spektrometers.

## $^{86,88}$ Sr und $^{124}$ Sn

Für alle drei untersuchten stabilen Nuklide sind die bereits vorhandenen experimentellen Werte jeweils viel genauer als die ISOLTRAP-Daten. Somit können diese keinen zusätzlichen Beitrag zur Anpassung der AME-Werte für die Massen dieser Nuklide leisten. Die Tatsache, daß die ISOLTRAP-Werte mit den AME-Werten übereinstimmen, belegt jedoch, daß keine unentdeckten Fehler bei den Messungen aufgetreten sind.

# $^{129}$ Sn

Dieses Nuklid hat einen Grundzustand mit 2,23 min Halbwertszeit und einen langle-

bigen  $(T_{1/2} = 6, 9 \text{ min})$  isomeren Zustand bei einer Anregungsenergie von 35, 2(0, 3)keV [64]. Solch kleine Differenzen in der Bindungsenergie können bei praktikablen Anregungszeiten, die in der Größenordnung von Sekunden liegen, in der Präzisionsfalle nicht aufgelöst werden. Da man davon ausgehen muß, daß sich während der Messung stets Ionen beider Kernzuständen in der Falle befunden haben, entspricht die gemessene Resonanzfrequenz einem Mittelwert aus den beiden reinen Resonanzen, wie man sie für Ionen ausschließlich im Grund- beziehungsweise im isomeren Zustand erhielte. Bei der Mittelwertbildung müssen die beiden reinen Resonanzfrequenzen gewichtet werden mit dem Besetzungsverhältnis der Kernzustände. Da nicht bekannt ist, inwieweit bei der Produktion oder der Ionisation der Radionuklide ein Kernzustand vor dem jeweils anderen bevorzugt wird [81], geht man von einem Besetzungsverhältnis von 1/1 aus. In diesem Fall entspräche die gemessene Masse genau dem arithmetischen Mittelwert der Massen für Grund- und isomeren Zustand. Der tatsächliche Massenexzeß für den Grundzustand von <sup>129</sup>Sn wäre also um 17,6 keV kleiner als derjenige, der aus der gemessenen Zyklotronfrequenz ermittelt wurde (ME = -80576 keV), und beträgt demnach ME = -80594 keV. Da jedoch das tatsächlich Besetzungsverhältnis nicht bekannt ist, besteht die sicherste Annahme darin, von einer Gleichverteilung aller möglichen Besetzungsverhältnisse auszugehen. Die Differenz zwischen gemessener Masse und tatsächlicher Grundzustandsmasse kann also mit gleicher Wahrscheinlichkeit jeden Wert zwischen 0 und 35,2 keV annehmen. Die Standardabweichung für solch eine rechteckförmige Gleichverteilung beträgt [82]:

$$\sigma^2(x) = \frac{1}{12} (x_{\text{max}} - x_{\text{min}})^2 . \qquad (4.12)$$

Um der Ungewißheit des Besetzungsverhältnisses Rechnung zu tragen, wird zum möglichen Fehler für den Massenexzeß, der sich aus der Ungenauigkeit des Frequenzverhältnisses ergibt (27 keV), quadratisch noch ein Fehler von 10 keV hinzuaddiert (entsprechend der Standardabweichung einer Gleichverteilung der Breite 35,2 keV gemäß Gl. (4.12)). Dies ergibt eine kleine Erhöhung der Ungenauigkeit auf 29 keV. Als neuer Wert für den Massenexzeß des Grundzustandes von <sup>129</sup>Sn wird ME = -80 576(29) keV in die AME aufgenommen.

Der zuvor von der AME angegebene Wert war über die  $\beta$ -Zerfallskette Sn  $\rightarrow$  Sb  $\rightarrow$  Te indirekt an das vergleichsweise gut bekannte ( $\Delta m = 3$  keV) Nuklid <sup>129</sup>Te angeknüpft. Die Masse von <sup>129</sup>Sn wurde zum ersten Mal direkt gemessen und zwar mit einer viel höheren Genauigkeit verglichen mit der des bisher akzeptierten Wertes. Der bisherige AME- und der neue ISOLTRAP-Wert sind in vollkommener Übereinstimmung miteinander, und letzterer stellt nun den Hauptbeitrag zur Anpassung dieses Massewertes dar.

 $^{130}\mathbf{Sn}_{g,m}$ 

Neben dem Grundzustand mit einer Halbwertszeit von 3,72 min weist auch dieses Isotop einen langlebigen ( $T_{1/2}=1,7$  min), isomeren Zustand auf, dessen Anregungsenergie  $E_{\gamma} = 1$  946,88(10) keV beträgt. Dieser Wert wurde mit Hilfe der  $\gamma$ -Spektroskopie direkt gemessen [88]. Aufgrund der vergleichsweise großen Energie-



Abbildung 4.9:  $\beta$ -Zerfallsketten für die neutronenreiche Sn-Isotope. Die Massen der Sn-Isotope <sup>129,130,131,132</sup>Sn waren bis zur Einbindung der neuen ISOLTRAP-Werte indirekt mittels  $Q_{\beta}$ -Werten an Nuklide mit gut bekannter Masse angebunden.

differenz war es möglich die Zyklotronfrequenz für Ionen in beiden Kernzuständen getrennt zu bestimmen (siehe Tab. 4.6). Die Differenz der beiden absoluten, an ISOLTRAP gemessenen Massen  $m(^{130m}Sn) - m(^{130g}Sn) = 1$  944(19) keV) stimmt im Rahmen ihrer Ungenauigkeit mit dem direkt gemessenen Wert für  $E_{\gamma}$  überein. Da beide Massen direkt gemessen wurden und ihre Differenz nicht im Widerspruch zur unabhängig davon bestimmten Anregungsenergie steht, können die beiden Werte  $m(^{130g}Sn)$  und  $m(^{130m}Sn) - E_{\gamma}$  zu einem gewichteten Mittelwert für die Grundzustandsmasse zusammengefaßt werden (ME<sub>ave</sub> = -80 136(10) keV).

Die Masse von <sup>130</sup>Sn wurde erstmals direkt gemessen und weicht um 3,3 Standardabweichungen vom bisherigen AME-Wert (ME<sub>AME'01</sub> = -80 232(27) keV) ab. Dieser wurde aus den  $Q_{\beta}$ -Werten der  $\beta$ -Zerfallskette Sn  $\rightarrow$  Sb  $\rightarrow$  Te abgeleitet (Abb. 4.9). <sup>130</sup>Te ist stabil und seine Masse ist auf 2 keV genau bekannt [16]. Zu den empfohlenen Q-Werten tragen jeweils mehrere Messungen bei [83–87]. Aus den gewichteten Mittelwerten  $Q(Sn \rightarrow Sb) = 2$  148(15) keV und  $Q(Sb \rightarrow Te) = 4$  972(22) keV der  $\beta$ -Spektroskopiemessungen ergibt sich für die Summe der beiden Q-Werte: 7 120(26) keV. Dahingegen beträgt die Differenz der beiden direkt gemessenen Massen von <sup>130</sup>Sn (aus dieser Arbeit) und <sup>130</sup>Te (aus der AME) m(Sn) - m(Te) =7 217(16) keV.

Bei der Bestimmung der  $\beta$ -Endpunktsenergien  $E_{\beta}$  erhält man stets mehrere Werte entsprechend der verschiedenen Zerfallsmöglichkeiten aus oder in angeregte Zustände von Mutter- und Tochterkern. Für die Bestimmung von  $Q_{\beta}$  müssen alle gemessenen  $E_{\beta}$ -Werte den entsprechenden Kernniveaus zugeordnet werden. Ein Teil der  $\beta$ -Zerfälle von <sup>130g</sup>Sn endet in einem angeregten Zustand des Tochterkerns <sup>130</sup>Sb.

Beim Zerfall des Isomers <sup>130m</sup>Sn können jedoch andere Zustände des <sup>130</sup>Sb bevölkert werden, die langlebig genug sind, um als Ausgangspunkt für den nachfolgenden  $\beta$ -Zerfall in <sup>130</sup>Te zu dienen. Es zeigte sich, daß die angenommenen Termschemata der an dieser Zerfallskette beteiligten Kerne nicht identisch sind in den Arbeiten, die zu den in der AME angegebenen  $Q_{\beta}$ -Werten beitragen [83–88]. Bei einer sorgfältigen Durchsicht der entsprechenden Veröffentlichungen wurden für alle  $E_{\beta}$ -Werte überprüft, ob ihre Zuordnung zu den entsprechenden Anregungszuständen von Mutterund Tochterkern zweifelsfrei angegeben wurde. In einem Fall konnte eine Fehlbestimmung korrigiert werden [85], und in einem anderen mußte ein fraglicher, mutmaßlich falscher  $E_{\beta}$ -Wert [86] aus der Q-Wert-Bestimmung ausgeschlossen werden. Dies hat eine Änderung des Q-Wertes für den  $\beta$ -Zerfall von <sup>130</sup>Sb zur Folge. Er beträgt nun  $Q(Sb \rightarrow Te) = 5.013(33)$  keV anstatt = 4.972(22) keV. Nach dieser Änderung weicht der über die  $Q_{\beta}$ -Werte bestimmte Massenexzeß von dem durch ISOLTRAP gemessenen nur noch um 1,4  $\sigma$  ab. Sowohl die korrigierten  $Q_{\beta}$ -Messungen als auch die ISOLTRAP-Messungen tragen nun gewichtet entsprechend ihrer Genauigkeit zum neuen AME-Wert für den Massenexzeß von <sup>130</sup>Sn bei. Zusätzlich hat sich durch die Überprüfung der bisher beitragenden  $Q_{\beta}$ -Werte auch der Wert für <sup>130</sup>Sb von  $ME_{AME'01} = -82~379 \text{ keV zu } ME_{AME'01\&IST} = -82~296 \text{ keV verändert.}$ 

#### $^{131}$ Sn

Auch dieses Zinn-Isotop weist neben dem Grundzustand ( $T_{1/2} = 56$  s) einen etwa gleich lange lebenden ( $T_{1/2} = 58, 4$  s) isomeren Zustand mit einer Anregungsenergie von 241, 8(8) keV auf [89]. Die beiden Zustände konnten leider nicht aufgelöst werden, obwohl die Anregungszeit von  $T_{\rm RF} = 0.9$  s in der Präzisionsfalle ausreichend hätte sein müssen. Aufgrund von Schalenmodell-Rechnungen [90] gibt es Grund zur Annahme, das die Anregungsenergie des isomeren Zustandes um mehr als 100 keV kleiner ist als der zur Zeit bekannte Wert von 241,8 keV. Dieser konnte ohnehin nicht direkt gemessen werden, sondern wurde aus  $\beta$ -Zerfalls-Spektren von <sup>131</sup>In und Plausibilitätserklärungen gefolgert [89].Während der ISOLTRAP-Messung an



**Abbildung 4.10:** Experimentelle Flugzeitspektren für <sup>131</sup>Sn. Das linke Spektrum wurde mit einer Anregungszeit von 0,9 s und das rechte mit 2 s aufgenommen.

 $^{131}$ Sn wurde auch ein Flugzeitspektrum aufgenommen, bei dem die Anregungszeit  $T_{\rm RF}=2$ s betrug. Beide Spektren sind in Abb. 4.10 dargestellt. Selbst bei längerer Anregungszeit konnten die beiden zu den verschiedenen Kernzuständen gehörigen Resonanzen nicht aufgelöst werden. Ein möglicher Grund hierfür könnte darin bestehen, daß die Anregungsenergie des isomeren Zustandes tatsächlich deutlich geringer ist als 240 keV. Die Deformation des Spektrums, bei dem 2 s lang angeregt wurde, speziell die verkürzte Flugzeit in den Maxima erster Ordnung, würde diese Vermutung unterstützen. Diese Frage konnte jedoch mit letzter Sicherheit nicht entschieden werden.

Die zweite Möglichkeit für die nicht erfolgte Auflösung wäre, daß einer der beiden Zustände bei der Produktion im ISOLDE-Target mit deutlich geringerer Rate bevölkert wird als der andere. Leider ist das Besetzungsverhältnis der beiden Kernzustände nicht bekannt. Wie im Fall von <sup>129</sup>Sn gibt es allerdings auch keinen Grund, davon auszugehen, daß alle Ionen in genau einem der beiden Zustände vorliegen. Es ist also nicht bekannt, ob die ermittelte Resonanzfrequenz die des Grund- oder des isomeren Zustandes ist oder die Eigenfrequenz eines beliebigen Mischensembles. Wie bei <sup>129</sup>Sn wird also auch hier die ermittelte Zyklotronfrequenz dem Mittelwert der beiden Massen für den Grund- und den isomeren Zustand zugeordnet. Um der Ungewißheit des Besetzungsverhältnisses Rechnung zu tragen, muß gemäß Gl. (4.12) zur Unsicherheit der Messung (15 keV) ein Fehler von 70 keV quadratisch addiert werden. Dadurch ist jedoch der Gesamtfehler von 72 keV für den Massenexzeß so groß, daß das Gewicht des ISOLTRAP-Wertes bei der Neuanpassung der AME leider bedeutungslos wird.

#### $^{132}\mathbf{Sn}$

Die hier vorgestellte ISOLTRAP-Messung ist die erste direkte Messung der atomaren Masse und damit der Grundzustands-Energie des doppeltmagischen Radionuklids <sup>132</sup>Sn. Der in der AME'95 angegebene Wert (ME<sub>AME'95</sub> = -76 620(26) keV) basierte auf Messungen von Q-Werten [93] der  $\beta$ -Zerfallskette <sup>132</sup>Sn  $\rightarrow$ <sup>132</sup>Sb  $\rightarrow$ <sup>132</sup>Te  $\rightarrow$ <sup>132</sup>I  $\rightarrow$ <sup>132</sup>Xe, die die Masse von <sup>132</sup>Sn mit der sehr gut bekannten Masse dessen stabilen Xenon-Isobars verbindet (siehe Abb. 4.9).

Bei dieser Messung wurden auf dieselbe Weise auch die Massen einiger anderer Nuklide aus der näheren Umgebung von <sup>132</sup>Sn bestimmt. Manche davon standen in großem Wiederspruch zu Werten, die durch Schalenmodell-Rechnungen vorhergesagt wurden [94] (siehe Kap. 4.4). Daraufhin wurden die *Q*-Werte der entsprechenden Nuklide, einschließlich <sup>132</sup>Sn, neu bestimmt [95]. Sie wichen in einigen Fällen deutlich von den zuvor bestimmten ab und erhärten die Annahme, daß bei den älteren Messungen die Unsicherheiten als zu klein abgeschätzt wurden. Auf die theoretischen Vorhersagen und die Abweichungen der experimentellen Werte wird detailliert in Kap. 4.4 eingegangen.

Im Fall von <sup>132</sup>Sn ist der neuere, aus den  $Q_{\beta}$ -Werten bestimmte Massenexzeß ME<sub>AME'01</sub> = -76 577(24) keV verträglich mit dem Vorherigen. Der bei ISOLTRAP bestimmte Wert (ME<sub>IST</sub> = -76 542(17) keV) ebenso wie der dadurch geänderte, neue AME-



Abbildung 4.11: Vergleich aller bisher verfügbaren experimentellen Massenwerte für <sup>132</sup>Sn. Der AME'95-Wert basierte auf einer  $Q_{\beta}$ -Messung, die in [93] veröffentlicht ist. Später wurden die Messungen wiederholt [95], was zu einer leichten Verschiebung des Wertes führte (AME'01). Der hier vorgestellte ISOLTRAP-Wert bestätigt die neueren der Q-Wertmessungen. Der aktuelle, die ISOLTRAP-Messung einschließende AME-Wert, ist durch die durchgezogene Linie und dessen Unsicherheit durch die schraffierte Umgebung wiedergegeben.

Wert  $ME_{AME'01\&IST} = -76~554(14)$  keV sind in guter Übereinstimmung mit den neueren der *Q*-Wertmessungen, jedoch nicht mit den älteren (siehe Abb. 4.11).

# 4.4 Diskussion

#### Wigner-Energie in N=Z-Kernen

In Atomkernen, die aus etwa gleich vielen Protonen wie Neutronen aufgebaut sind, lassen sich viele bedeutende Kernstruktur-Effekte untersuchen [71]. Wie bei allen anderen Kernen ist die Grundzustands-Bindungsenergie eine der wichtigsten Eigenschaften. <sup>76</sup>Sr ist der schwerste und damit exotischste N = Z-Kern, für dessen atomare Masse nun ein experimenteller Wert in der AME angegeben wird. Mit seinen 38 Protonen beziehungsweise Neutronen ist er ein gg-Kern. Symmetrische Kerne dieser Art spielen bei Untersuchungen der Kernstruktur eine besondere Rolle. Speziell schwere N = Z-Kerne, die nahe bei der Protonen-Abbruchkante liegen, stellen interessante Testkandidaten für Kernmodelle und die zugrundeliegenden Vorstellungen dar. Da es sich bei Atomkernen in der Regel um Vielteilchen-Systeme handelt, ist eine allgemeine Beschreibung der Kernkräfte auf der Basis fundamentaler Einzelwechselwirkungen zur Zeit auf vergleichsweise leichte Systeme beschränkt. Für Kerne mit vielen (A > 15) Nukleonen versucht man die Entstehung und Entwicklung kollektiver Kernkräfte iterativ aus der Betrachtung von Einzel-Wechselwirkung zwischen
sogenannten Valenz-Nukleonen herzuleiten. In einem gg-Kern beispielsweise ist das äußerste Proton an das äußersten Neutron mit folgender Energie gebunden [72]:

$$\delta V_{np}(N,Z) = \frac{1}{4} \{ [B(N,Z) - B(N-2,Z)] - [B(N,Z-2) - B(N-2,Z-2)] \} .$$
(4.13)

Dabei ist B(N,Z) die gesamte Bindungsenergie eines Kerns, der aus N Neutronen und Z Protonen besteht. Die erste Differenz in eckigen Klammern ist genau die Bindungsenergie, mit der die äußeren beiden Neutronen an den *Restkern* (N-2,Z) gebunden sind, während die zweite Differenz der Bindungsenergie der äußeren beiden Neutronen an den um die beiden äußeren Protonen reduzierten Restkern (N-2, Z-2) entspricht. Die Differenz dieser beiden Differenzen ergibt dann den Teil der Bindungsenergie, der das äußere Neutronenpaar an das äußere Protonenpaar bindet. Ein Viertel davon entspricht nun der mittleren Energie, die eines der beiden Protonen an ein beliebiges der beiden Neutronen bindet. Durch die Wahl der Bindungsenergie-Differenz zum *übernächsten* Nachbarn hinsichtlich Neutronen- beziehungsweise Protonenzahl fallen die Energiebeiträge aus der p-pund der n-n-Paarbindung heraus. Diese Wahl ist also nur sinnvoll für gg-Kerne. Für Kerne mit ungeraden Neutronen- und (oder) Protonenzahlen wird zur Ermittlung der Differenzenergie entsprechend der *direkte* Nachbar bezüglich der jeweiligen Nukleonen-Sorte gewählt.

Eine systematische Betrachtung der  $\delta V_{n,p}$  enthüllt Struktureffekte, wie Schalenabschlüsse und Kerndeformationen [73–75]. Bemerkenswert ist die starke Erhöhung der Valenznukleonen-Restwechselwirkung bei N = Z-Kernen, die deutlich über den in der Weizsäcker-Massenformel 2.1 berücksichtigten Symmetrie- oder Isospin-Term  $a_{\text{Sym}} \frac{(Z-N)^2}{A}$  hinausgeht (z.B. [78,79]). Diese Bindungsenergie-Differenz wird als *Wigner-Energie* bezeichnet und kann für leichte Kerne bis zu etwa 6 MeV betragen.

Unter der Annahme, daß die Kernkräfte symmetrisch bezüglich Spin und Isospin des Kerns sind, können Kernzustände vollkommen durch die entsprechenden Quantenzahlen im Rahmen der SU(4)-Gruppe charakterisiert werden. Dadurch konnten Wigner und Hund bereits im Jahre 1937 das Phänomen der außergewöhnlich starken Bindung von N = Z-Kernen qualitativ beschreiben [76, 77]. Anschaulicher als Symmetrieoperationen ist die Vorstellung, daß in N = Z-Kernen die Valenzprotonen und -neutronen im Kern-Grundzustand die gleichen quantenmechanischen Zustände besetzen. Durch den vergleichsweise großen räumlichen Überlapp ihrer Wellenfunktionen ist daher die Paarbindung erheblich stärker als in den  $N \neq Z$ -Kernen.

In Abb. 4.12 ist der Betrag der Energie für die Restwechselwirkung zwischen Valenzneutron und -proton  $-\delta V_{np}(N, Z)$  für  $N \approx Z$ -Kerne dargestellt, die zwischen den Schalenabschlüssen N,Z=8 und N,Z=20 liegen. Im rechten Teilbild ist der Verlauf dargestellt, wie er aus der Spin-Isospin-Symmetrie, repräsentiert durch die SU(4)-Gruppe, errechnet wird. Das Phänomen der Wigner-Energie für N = Z-Kerne ist offensichtlich. Im linken Teil der Abbildung ist  $-\delta V_{np}(N, Z)$  dargestellt, wobei die Werte gemäß Gl. (4.13) aus den experimentell bestimmten Bindungsenergien der jeweils beitragenden Nuklide bestimmt wurden. Der theoretische Ansatz reproduziert qualitativ das Auftreten der Wigner-Energie für N = Z-Kerne, wenn auch



**Abbildung 4.12:** Experimentelle (links) und theoretische (rechts) Valenznukleonen-Wechselwirkungs-Energie für gg-Kerne in der Nähe der N = Z-Linie. Die Abbildung ist aus [78] entnommen.

ihr tatsächlicher Verlauf entlang der N = Z-Linie nicht konstant ist. Die Wigner-Energie nimmt als Funktion der Nukleonenzahl ab, was sich durch die Asymmetrie bezüglich des Isospins (N - Z) erklären läßt: Mit steigender Protonenzahl wird die Restwechselwirkung kleiner, da aufgrund der zunehmenden Coulomb-Abstoßung, die das Proton erfährt, dessen räumlicher Überlapp mit der entsprechenden Neutronen-Wellenfunktion geringer wird.

Diesem generellen Abfall ist eine Modulation überlagert, deren Maxima den Schalenabschlüssen zugeordnet sind. Speziell bei schwereren Kernen spielt der Bahndrehimpuls der Valenznukleonen eine immer bedeutendere Rolle, sodaß die Symmetrie bezüglich des Nukleonen-Spins, die ja eine der beiden Voraussetzungen für die Anwendung der SU(4)-Gruppe ist, auch nicht mehr gilt. Die Wigner-Energie weist lokale Maxima, die  $\delta V_{np}(N, Z)$  also lokale Minima, bei den gg-Kernen auf, die auf einen Schalenabschluß folgen (z.B. N=Z=10). Die Nukleonen-Paare, die die jeweils nächste Schale besetzen müssen, sind vergleichsweise schwach an den Restkern und im Vergleich dazu umso stärker aneinander gebunden. Das Phänomen der Wigner-Energie wird auch bei uu-Kernen mit N = Z erwartet und beobachtet. Hier ist die Restwechselwirkung sogar noch etwas stärker als bei den gg-Kernen. In schwächerer Form tritt sie auch bei den gu- beziehungsweise den ug-Kernen auf, die unmittelbar an der N = Z-Linie liegen [78].

Die Abnahme der Restwechselwirkung mit der Nukleonenzahl und die Modulation zwischen den Schalenabschlüssen läßt sich deutlich in Abb. 4.13 erkennen. Sie ist aus [70] entnommen und stellt für gg-N = Z-Kerne die experimentellen Werte für die Valenznukleonen-Restwechselwirkungs-Energie  $\delta V_{np}(N, Z)$  dar. Für die Berechnung der letzten fünf Werte ( $N = Z \ge 32$ , gefüllte Kreise) sind keine experimentellen Werte für die Bindungsenergie des exotischsten Mitglieds (B(N - 2, Z))



Abbildung 4.13: Experimentelle Valenznukleonen-Wechselwirkungs-Energie für gg- N = Z-Kerne. Die  $\delta V_{np}(N, Z)$  ist als Funktion der Protonen- beziehungsweise der Neutronenzahl aufgetragen. Für die Berechnung der Werte, die durch offene Kreise symbolisiert sind, gibt es für alle der jeweils notwendigen Bindungsenergien experimentell bestimmte Werte. Bei der Berechnung der gefüllten Kreisen mußte die Bindungsenergie mindestens eines Mitglieds des Quartetts aus Gl. (4.13) abgeschätzt werden. Die Abbildung wurde aus [70] entnommen, und ein Vergleichswert (Raute) hinzugefügt, zu dessen Berechnung der neue, in der vorliegenden Arbeit angegebene ME<sub>IST</sub> (<sup>76</sup>Sr) verwendet wurde.

des jeweiligen Quartetts verfügbar. Sie mußten jeweils aus den Bindungsenergien der entsprechenden Spiegelkerne B(N, Z - 2) abgeschätzt werden. Bei den letzten beiden Werten (<sup>76</sup>Sr und <sup>80</sup>Zr) wurde der Grundterm B(N, Z) im Rahmen der zitierten Arbeit [70] ermittelt. Er wurde jeweils aus den Massen berechnet, die am Flugzeit-Spektrometer CSS2 am GANIL (siehe Kap. 2.2 und [30]) gemessen wurden. Für <sup>76</sup>Sr wurde dort ein Massenexzeß von ME<sub>CSS2</sub> = -54 784(100) keV bestimmt. Dieser weicht vom ISOLTRAP-Wert (ME<sub>IST</sub> = -54 249(34) keV) um 535 keV ab, was etwa 5 Standardabweichungen  $\sigma = \sqrt{(100 \text{keV})^2 + (35 \text{keV})^2} = 106 \text{ keV entspricht.}$ 

Die Gültigkeit des ISOLTRAP-Wertes voraussetzend ist der <sup>76</sup>Sr-Kern um 535 keV schwächer gebunden als es die GANIL-Messung erwarten ließe. Entsprechend ist  $\delta V_{np}(N,Z)$  für dieses Nuklid um 535 keV größer, falls man die Bindungsenergien der anderen drei Quartett-Mitglieder übernimmt. Der entsprechende Wert ist in Abb. 4.13 als Raute eingetragen. Für ihn wird nicht der Anspruch auf Korrektheit erhoben, zumal die Werte für die Bindungsenergien der umliegenden (g,g)-Kerne und insbesondere ihre Unsicherheiten nicht ermittelt werden konnten. Er soll lediglich die Differenz von 535 keV darstellen und verdeutlichen, daß der Wert für  $\delta V_{np}(38, 38)$ , der auf der ISOLTRAP-Messung basiert, besser in eine kontinuierliche Fortsetzung des Kurvenverlaufs paßt. Bisher konnte man stets die verfügbaren Daten sehr gut durch die SU(4) und der zusätzlichen Modifikationen aufgrund der Coulombwechselwirkung der Protonen und der Spin-Bahn-Kopplung reproduzieren [79], ohne dabei von plötzlichen und unerklärlichen Sprüngen ausgehen zu müssen.

#### Doppelter Schalenabschluß

Der doppeltmagische Kern <sup>132</sup>Sn und seine unmittelbaren Nachbarn sind ebenfalls von sehr großer Bedeutung für die Beschreibung der Struktur von Atomkernen. In Analogie zu den Alkali-Metallen in der Atomphysik, die nur ein einzelnes Valenzelektron besitzen, werden die direkten Nachbarn doppeltmagischer Nuklide als Kerne mit einem einzelnen Valenznukleon beziehungsweise Valenzloch betrachtet und weisen deshalb denkbar einfache Termschemata auf. Im Fall von <sup>131</sup>Sn beispielsweise besteht der Restkern aus 50 Protonen und 82 Neutronen, und das Valenzteilchen ist ein Neutronenloch. Die Energien der Kern-Anregungszustände entsprechen der potentiellen Energie lediglich eines einzigen Nukleons oder Lochs im Potential des Restkerns. Komplexe Drei- oder Mehrteilchen-Wechselwirkungen treten hier nicht auf, und kollektive Kernanregungen sind nahezu dieselben für <sup>132</sup>Sn und die ihn umgebenden Nuklide. Aus dem Vergleich der Anregungsschemata von <sup>132</sup>Sn mit denen der Valenzkerne kann unmittelbar die Schalenstruktur der angrenzenden Protonen- und Neutronenschalen hergeleitet werden. Auf Schalenmodell-Rechnungen für Einteilchen-Zustände aufbauend gibt es verschiedene Vorstöße, die Kernschalenstruktur auf universelle Weise theoretisch zu Beschreiben [91–93]. Das bedeutet, daß ein einziges Modell im Wesentlichen die Kerneigenschaften sämtlicher Nuklide beschreiben kann. Experimentelle Werte für die Anregungsspektren und die Grundzustands-Bindungsenergien doppeltmagischer Kerne und ihrer direkten Nachbarn stellen die unverzichtbare Ausgangsbasis für diese Schalenmodell-Rechnungen dar.

Selbst unter den doppeltmagischen Kernen ist <sup>132</sup>Sn speziell. Er ist der einzige dieser Art, der im mittleren Massenbereich der Nuklidkarte liegt und mit heutigen Mitteln in Mengen, die direkte Massenmessungen und spektroskopische Untersuchungen erlauben, hergestellt werden kann. <sup>132</sup>Sn und seine Nachbarn stellen zur Zeit das einzige Bindeglied zwischen den beiden doppeltmagischen Kernen <sup>56</sup>Ni (N = 28, Z = 28)und <sup>208</sup>Pb (N = 126, Z = 82) dar. Während für <sup>56</sup>Ni und <sup>208</sup>Pb und ihre jeweiligen Nachbarn alle notwendigen Daten schon lange verfügbar sind und die theoretischen Vorhersagen gut mit den experimentellen Werten übereinstimmen [73], gibt es bislang für die Region um <sup>132</sup>Sn noch keine ausreichenden Meßergebnisse. Tatsächlich ist die hier vorgestellte Messung bislang die einzige, die direkt bestimmte Massenwerte für Nuklide in dieser Region bereitstellt. Schalenmodell-Vorhersagen, die auf den Daten um <sup>132</sup>Sn herum basieren, werden später alle Kerne betreffen, die zwischen den Protonenschalen 28 < Z < 82 und den Neutronenschalen 50 < N < 126 liegen. Dies sind etwa die Hälfte aller zur Zeit bekannten Nuklide und der Großteil aller neutronenreichen Kerne, die bis heute noch nicht erzeugt werden konnten, jedoch sehr wichtig beispielsweise für die Bestimmung des Pfades des astrophysikalischen r-Prozesses sind.

Zwar kann die bei ISOLTRAP gemessene Masse nicht direkt mit theoretischen Vorhersagen verglichen werden, da aus dem Schalenmodell die Grundzustands-Bindungsenergie für <sup>132</sup>Sn (oder ein anderes Nuklid) allein nicht absolut vorhergesagt werden kann. Jedoch können Zusammenhänge von Grundzustands- und Anregungsenergien verschiedener Nuklide bestimmt werden. Für einige (N=82)-Isotone wurde

das "mass window" W berechnet. Dabei handelt es sich um eine spezielle Linearkombination der Grundzustandsmassen der jeweiligen Isotone:

$$W = m(^{132}Sn) - 3m(^{133}Sb) + 3m(^{134}Te) - m(^{135}I) .$$
(4.14)

Dieser Wert steht in gewissem Zusammenhang mit speziellen Anregungszuständen in den Kernen <sup>135</sup>I und <sup>134</sup>Te [94]. Schalenmodell-Rechnungen zufolge wäre der Wert des mass windows  $W_{\text{theo}} = -3570$  keV. Der unter Verwendung der in der AME'95 angegebenen experimentellen Werte gemäß Gl. (4.14) berechnete Wert  $W_{AME'95} =$ -3080(150) keV weicht davon deutlich ab. Für die (N=128)-Isotone des ebenfalls doppeltmagischen Kerns<sup>208</sup>Pb stimmt der theoretische Wert für das mass window sehr gut mit dem überein, der aus den vergleichsweise gut bekannten, experimentellen Massenwerten ermittelt wurde. Der Verdacht, daß die Fehler der Massen zumindest einiger der (N=82)-Isotone als zu klein abgeschätzt wurde, konnte in neueren  $Q_{\beta}$ -Messungen bestätigt werden [95]. Beispielsweise beträgt nun der Massenexzeß von  $^{134}$ Te ME = -82 559(11) keV und liegt damit um 160 keV unter dem alten Wert von ME = -82399(34) keV [93]. Unter anderem hat sich auch der von der AME angegebene Wert für <sup>132</sup>Sn geändert und beträgt nun  $ME_{AME'01} = -76577(24)$ . Das aus den neuen Werten berechnete mass window  $W_{[95]} = -3608(94)$  keV stimmt mit dem theoretisch erwarteten gut überein. Auch bei den neueren  $Q_{\beta}$ -Endpunktsbestimmungen wurden für die Fehlerangaben laut Aussage der Autoren [95] lediglich statistische Unsicherheiten berücksichtigt. Umso wichtiger ist ihre Bestätigung durch den direkt mittels ISOLTRAP bestimmten Wert ( $ME_{IST} = -76542(17)$  keV), dessen Unsicherheit als eher zu groß angenommen werden kann und dennoch geringer als diejenige der  $Q_{\beta}$ -Messungen ist. Der neue von der AME angegebene Massenexzeß für <sup>132</sup>Sn beträgt  $ME_{AME'01\&IST} = -76~554(14)$  keV. Wenn man ihn in die Berechnung des mass window gemäß Gl. (4.14) einbezieht erhält man W [95]& IST = -3585(92) keV.

# 4.5 Zusammenfassung und Ausblick

Mit Hilfe des Penningfallen-Massenspektrometers ISOLTRAP am europäischen Kernforschungszentrum CERN in Genf wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit die atomaren Massen von instabilen Strontium- und Zinn-Isotopen gemessen. Die dabei ermittelten Werte wurden in die AME-Massentabelle aufgenommen, was in vielen Fällen zu einer deutlichen Steigerung der Genauigkeiten der angegebenen Massen-Exzesse führte. In den Abbildungen 4.14 (für Strontium) und 4.15 (für Zinn) sind für die untersuchten Nuklide die Differenz zwischen den neuen ISOLTRAP-Werten und den zuvor von der AME angegebenen Werten ( $ME_{AME'01}$ ) dargestellt (siehe auch Tab. 4.6).

Für <sup>76</sup>Sr wurde mit dem hier vorgestellten Resultat erstmalig ein experimentell bestimmter Wert für den Massenexzeß in die AME aufgenommen. Er ist im Einklang mit dem zuvor durch die AME angegebenen Wert, der aus systematischen Trends des Verlaufs der Bindungsenergien umliegender Nachbarn abgeschätzt wurde. Ein anderer experimenteller Wert, der am CSS2 am GANIL gemessen wurde, weicht sehr stark von der ISOLTRAP-Messung ab. Bei einer Betrachtung der



Abbildung 4.14: Vergleich der neuen ISOLTRAP-Werte für die untersuchten Strontiumisotope mit den zuvor von der AME angegebenen. Die Abweichung der vor der Einbindung der ISOLTRAP-Werte von der AME angegebenen Werte ist für jedes Isotop jeweils als offener Kreis dargestellt. Der Fehlerbalken repräsentiert die Unsicherheit der AME'01. Daneben als Fehlerbalken an den gefüllten Kreisen sind die Unsicherheiten der ISOLTRAP-Messung dargestellt. Für die Isotope <sup>80,81,86,88</sup>Sr wurde die Skala für die Abweichung vergrößert (Einsatz rechts oben).

Valenznukleonen-Restwechselwirkungs-Energie fügt sich der mittels ISOLTRAP bestimmte Wert deutlich besser in den erwarteten Verlauf ein. Da die Massenwerte der anderen Strontium-Isotope, die mittels ISOLTRAP untersucht wurden, im Einklang mit allen aus anderen Experimenten verfügbaren Werten sind, wird davon ausgegengen, daß beim GANIL-Wert der Fehler unterschätzt wurde.

Das ISOLTRAP-Experiment wird zur Zeit mit einer Kohlenstoff-Cluster-Quelle ausgestattet [97]. In dieser Quelle werden Fullerene, Moleküle, die aus 60 Kohlenstoff-Atomen bestehen, mittels Laser-Dissoziation in eine Vielzahl verschiedener  $C_n$ -Cluster zerteilt und ionisiert. Diese Molekülionen, die nun aus *n* Kohlenstoff-Atomen bestehen, dienen als Referenzionen, deren Masse bei geeigneter Wahl höchstens 6 u von der Masse des zu untersuchenden Nuklidions entfernt ist.

In bereits durchgeführten Langzeitstudien in der ISOLTRAP-Präzisionsfalle wurde mit Hilfe der Kohlenstoff-Cluster die Charakteristik zeitlicher Magnetfeldänderungen genauer untersucht und quantifiziert [65]. Durch Verwendung von Clustern bestehend aus bis zu 20 Kohlenstoff-Atomen konnte die massenbedingte Frequenzverschiebung systematisch über den gesamten Massebereich der Nuklidkarte untersucht werden.



Abbildung 4.15: Vergleich der neuen ISOLTRAP-Werte für die untersuchten Zinnisotope mit den zuvor von der AME angegebenen. Zur Erläuterung siehe Bildunterschrift von Abb. 4.14.

Die Verwendung von Kohlenstoff-Clustern als Referenz-Ionen ermöglicht es, die Masse absolut zu messen, da der atomare Massenstandard über das <sup>12</sup>C-Isotop definiert ist. Die Ungenauigkeit oder ein möglicher Fehler in der Masse des Referenznuklids stellt somit keine Quelle systematischer Fehler mehr dar. Die Molekül-Bindungsenergie ist für die mit dem ISOLTRAP-Spektrometer erreichbare Präzision vernachlässigbar gering. All dies erlaubt es, die weiter oben beschriebenen systematischen Fehler, die bei einer Genauigkeit von  $\frac{\Delta m}{m} \approx 10^{-8}$  eine Rolle spielen, zu reduzieren und genauer abzuschätzen. Damit ist es möglich, die Beiträge systematischer Fehler um etwa eine Größenordnung auf  $\frac{\Delta m}{m} < 8 \cdot 10^{-9}$  zu verringern.

Zusätzlich konnte das Spektrometer hinsichtlich der Effizienzen beim Transport zwischen den einzelnen Fallen und beim Einfang in diese erhöht werden. Die Gesamteffizienz beträgt nun etwa 0,1 bis 1%. Die Verbesserung erlaubt bei gegebener Produktionsrate kürzere Meßzeiten bzw. höhere Gesamtzählraten, was wiederum eine Erhöhung der statistischen Genauigkeit zur Folge hat. Außerdem können nun auch Nuklide untersucht werden, die von ISOLDE lediglich mit einer Rate von wenigen 100 Teilchen pro Protonenpuls geliefert werden.

Die Erhöhung der Effizienz und die Untersuchungen der erreichbaren Genauigkeit erlauben es, die Massen noch exotischerer Kerne mit einer relativen Genauigkeit von  $\frac{\Delta m}{m} < 10^{-7}$  direkt zu bestimmen. Insbesondere die Ausweitung der absolut gemessenen Massen auf noch schwere N = Z-Kerne kann bedeutende Beiträge zum Verständnis der Struktur auch exotischer Nuklide beitragen. Im letzten Jahr konnte

die Masse von <sup>74</sup>Rb gemessen werden [98]. Dieser Kern hat eine Halbwertszeit von lediglich  $T_{1/2}$ = 65 ms und ist damit der kurzlebigste Kern, der jemals in einer Ionenfalle untersucht wurde. Damit wurde der Beweis erbracht, daß auch Nuklide mit Halbwertszeiten, die deutlich kürzer sind als 1 s, mit dem ISOLTRAP-Spektrometer zugänglich sind.

Für die Nuklide <sup>77</sup>Sr, <sup>129,130,131,132</sup>Sn wurde die atomare Masse erstmalig auf direkte Weise gemessen. Die Unsicherheiten sind deutlich geringer, und in den meisten Fällen stimmen die ISOLTRAP-Werte mit den zuvor von der AME angegebenen Massenwerten überein. Beim Zinn-Isotop <sup>130</sup>Sn trat ein Konflikt mit dem zuvor angegebenen Wert auf. Dieser war über  $Q_{\beta}$ -Werte an die Masse von <sup>130</sup>Te angeknüpft. Bei einigen der beitragenden Veröffentlichungen wurden nicht korrekte Anregungsschemata der an der Zerfallskette beteiligten Nuklide verwendet. Sie konnten korrigiert werden und sind nun im Einklang mit dem ISOLTRAP-Ergebnis. Eine direkte Bestimmung der Grundzustandsmasse von <sup>130</sup>Sb, dem Bindeglied zwischen <sup>130</sup>Sn und <sup>130</sup>Te in der  $\beta$ -Zerfallskette, kann letzte Zweifel bezüglich der gemessenen  $Q_{\beta}$ -Werte [83–88] ausräumen und wird daher angestrebt.

Für das Isotop <sup>131</sup>Sn konnten die Massen, die dem Grundzustand und dem langlebigen isomeren Zustand dieses Nuklids entsprechen nicht aufgelöst werden. Ein möglicher Grund hierfür könnte darin bestehen, daß die tatsächliche Anregungsenergie deutlich kleiner ist als die angenommene. Diese Mutmaßung wird durch Vorhersagen aus Schalenmodell-Rechnungen bestärkt, die für die Bindungs- und Anregungsenergien der anderen umliegenden Kerne in guter Übereinstimmung mit experimentellen Werten sind. Der Test dieser Vorhersagen hat sehr große Bedeutung für eine einheitliche, universelle Beschreibung der Kernkräfte im Rahmen des Schalenmodells. Daher wird angestrebt innerhalb einer der nächsten ISOLTRAP-Strahlzeiten, die Massen beider Zustände direkt zu messen [97]. Die Halbwertszeit von etwa 50 s erlaubt hinreichend lange Anregungszeiten, bei denen eine Auflösung beider Zustände möglich ist, auch wenn diese sich nur um etwa 100 keV unterscheiden sollte [96].

Für den Test und die Anpassung von Schalenmodell-Rechnung im weiten Massenbereich zwischen 56 < A < 208 wären hochpräzise Werte aus direkten Massenmessungen für Nuklide in der unmittelbaren Umgebung von <sup>132</sup>Sn von unschätzbarem Wert. Die dazu notwendige Genauigkeit von  $\Delta m < 10$  keV, was einer relativen Genauigkeit von  $\frac{\Delta m}{m} \approx 7 \cdot 10^{-8}$  entspricht, ist mit dem ISOLTRAP-Spektrometer zu erreichen. Selbst für die exotischen Nachbarn <sup>133</sup>Sn und <sup>131</sup>In stellen die Halbwertszeiten von 1,4 s beziehungsweise 280 ms und die ISOLDE-Produktionsrate von jeweils mehr als  $10^5$  Ionen pro Sekunde keine prinzipielle Einschränkung dar. Allein die Produktion und Ionisation isobarer Kontaminationen, wie beispielsweise <sup>131,133</sup>Cs, mit jeweils mehr als 10<sup>10</sup> Ionen pro Sekunde macht die Reinigung der zu untersuchenden Radionuklid-Ionen sehr schwierig. Während der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Strahlzeit ist es beispielsweise nicht gelungen, <sup>133</sup>Sn-Ionen zufriedenstellend von ihren isobaren Kontaminationen zu befreien. Es wäre sehr hilfreich, wenn erheblich weniger Kontaminationen das Massenspektrometer erreichen würden. Die Verwendung des HRS, dem Separator mit höherer Auflösung, sollte die Menge der in der ISOLTRAP-Kühlerfalle zu beseitigenden Kontaminationen deutlich reduzieren. Der Hauptanteil der kontaminierenden Isobare wird schon vor der eigentlichen Laserionisation an den beheizten Oberflächen des Diffusionskanals zwischen dem Targetbehälter und der Ionenquelle ionisiert. Prinzipiell kann der Anteil an oberflächen-ionisierbaren Elementen im ISOLDE-Ionenstrahl durch Kühlung des Diffusionskanals oder mittels elektrischer Gegenfelder reduziert werden. Es ist jedoch zu erwarten, das diese Maßnahmen sich auch negativ auf die absolute Anzahl gewünschter Ionen auswirkt. Sobald diese Sachverhalte geklärt sind, steht einer hochpräzisen, direkten Massenmessung an <sup>132</sup>Sn und allen Nukliden in seiner näheren Umgebung nichts mehr im Wege.

4.5. Zusammenfassung und Ausblick

# Kapitel 5 SHIPTRAP

Die Ionenfallen-Anlage SHIPTRAP befindet sich hinter dem Geschwindigkeitsfilter SHIP an der GSI (Gesellschaft für Schwerionenforschung) in Darmstadt. Die Zielsetzung von SHIPTRAP besteht darin, transurane Nuklide, die an anderen RIB-Anlagen (Rare Isotope Beam), wie beispielsweise ISOLDE, nicht erzeugt werden können, verschiedenen Präzisionsexperimenten zugänglich zu machen. Zu diesem Zweck sollen die sehr schweren Radionuklide in Form isobarenreiner, gekühlter Ionenensembles in einem kleinen, definierten Raumgebiet gespeichert oder mit geringen, wohldefinierten Energien an nachfolgende Experimente geliefert werden. Damit wird eine Vielzahl von Präzisionsexperimenten ermöglicht werden, wie Massenmessungen, Laserspektroskopie, Zerfallsstudien und vieles mehr [100]. Im nun folgenden Kapitel wird die Erzeugung und die Separation transuraner Elemente kurz skizziert und der experimentelle Aufbau von SHIPTRAP vorgestellt. Danach werden die einzelnen Komponenten erläutert und speziell diejenigen, die im Rahmen der vorliegenden Arbeit entstanden sind, detailliert diskutiert. Abschließend werden erste in Testmessungen erhaltene Resultate präsentiert.

### 5.1 Erzeugung transuraner Elemente bei SHIP

Jenseits des schwersten in der Natur vorkommenden Nuklids <sup>238</sup>U kann man noch schwerere Elemente nur in Fusionreaktionen erzeugen. **SHIP** (Seperator for Heavy Ion reaction Products) ist seit vielen Jahren bekannt für die Produktion, Separation und den Nachweis *superschwerer* Elemente [22,99]. In Abb. 5.1 ist die Anlage schematisch dargestellt. Mittelschwere Ionen (50 < A < 150) werden im Linearbeschleuniger **UNILAC** (**UNI**versal Linear **AC**celerator) auf eine kinetische Energie von typischerweise 5-7 MeV/u beschleunigt und in ein Target, eine dünne Folie ebenfalls aus mittelschweren Elementen bestehend, geschossen. Die Energie des Primärstrahls ist so bemessen, daß die Projektilkerne die abstoßende Coulombkraft, die von den Targetkernen ausgeht, überwinden können. Die beiden Kerne können sich so nahe kommen, daß sie miteinander zu einem *Compound-Kern* verschmelzen. Durch den Impuls den, das Projektil-Ion auf den neu geformten Kern überträgt, kann dieser die Targetfolie verlassen. Die Fusionsreaktions-Produkte bewegen sich in Richtung der ursprünglichen Primärstrahlachse mit kinetischen Energien, die in der Größenordnung von einigen hundert keV liegen.

Die Zusammensetzung des Ionenstrahls hinter dem Target enthält jedoch nur zu einem vergleichsweise sehr geringen Anteil die gewünschten Reaktionsprodukte. Hauptsächlich besteht er aus Primärionen, die das Targetmaterial durchdrungen haben, ohne an einer Kernreaktion teilgenommen zu haben. Sie weisen nahezu dieselbe Geschwindigkeit auf wie vor ihrem Eintritt in die Folie und können daher beim nachfolgenden Durchflug durch die Wien'schen Geschwindigkeitsfilter von SHIP von den Reaktionsprodukten abgetrennt werden. Die elektrischen und magnetischen Felder sind so gewählt, daß nur Ionen der gewünschten Geschwindigkeitsklasse den Separator passieren können, während die deutlich schnelleren Primärionen auf einen Strahlstopper gelenkt und vernichtet werden. Zwei Quadrupoltripletts und ein Dipolmagnet erlauben eine geeignete Fokussierung und Lenkung des Ionenstrahls. Die Fusionsprodukte, die SHIP passieren, werden in ein Detektorsystem implantiert, wo sie eine Reihe von  $\alpha$ -Zerfällen durchführen. Die Messung der Energien der  $\alpha$ -Teilchen erlaubt eine Identifikation des Mutternuklids. Das schwerste Element, das bei SHIP bislang synthetisiert und nachgewiesen werden konnte, ist das Element Z=112 [23]. Das Element Hassium, das aus 108 Protonen besteht, ist nach dem Bundesland Hessen benannt, da es zum ersten mal bei der GSI in Darmstadt synthetisiert werden konnte.



# from UNILAC

Abbildung 5.1: Geschwindigkeitsfilter SHIP. Im Targetrad findet die Fusionsreaktion statt. Es rotiert, damit nicht stets derselbe Punkt der dünnen Folie bestrahlt und diese dadurch zerstört wird. Die Felder der Geschwindigkeitsfilter werden so eingestellt, daß lediglich die deutlich langsameren Reaktionsprodukte passieren können, während der Primärstrahl abgetrennt wird. Die Sekundärionen werden dann mittels eines Dipolmagneten zur Ionenfallen-Anlage SHIPTRAP gelenkt. Die beiden Quadrupoltripletts dienen zur Fokussierung des Ionenstrahls. Um Untersuchungen an den transuranen Radionukliden durchführen zu können, die über ihren Nachweis und ihre Identifikation hinausgehen, wird der Detektor entfernt und die Ionen zur SHIPTRAP-Anlage transportiert.

# 5.2 Experimenteller Aufbau von SHIPTRAP

# 5.2.1 Übersicht



**Abbildung 5.2:** Foto des SHIPTRAP-Aufbaus. Im rechten Teil des Bildes, im Vordergrund ist der supraleitende 7T-Magnet zu sehen, in dessen Bohrung sich die beiden Penningfallen befinden. Die Strahlführungsachse von SHIPTRAP verläuft von links hinten durch die Bohrung des Magneten nach rechts vorne. Die entlang dieser Linie angeordneten Vakuumgehäuse enthalten die verschiedenen Komponenten 1 - 5, die in Abb. 5.3 schematisch dargestellt sind. Die Strahlachse von SHIP ist durch die von der Stoppzelle (1) nach rechts hinten verlaufende Linie angedeutet.

In Abb. 5.2 ist ein Foto und in Abb. 5.3 eine schematische Übersicht von SHIPTRAP dargestellt. Der prinzipielle Aufbau ähnelt hinsichtlich der meisten seiner Komponenten dem von ISOLTRAP (siehe Kap. 4). Der wesentlichste Unterschied zum Massenspektrometer bei ISOLDE liegt in der Art, wie die Radionuklid-Ionen abgebremst werden. Bedingt durch den andersartigen Produktionsmechanismus können

die Reaktionsprodukte von SHIP nicht elektrostatisch abgebremst werden. Sie weisen eine totale kinetische Energie auf, die in der Größenordnung von 100 MeV liegt und zudem für die verschiedenen erzeugbaren Nuklide nicht einheitlich ist. Darüberhinaus ist auch der Ladungszustand der Sekundärionen, nachdem sie die Targetfolie verlassen haben, nicht wohl definiert.



Abbildung 5.3: Schematische Darstellung des SHIPTRAP-Aufbaus. Die Fusionsprodukte werden nach der Separation durch SHIP in einer mit Edelgas gefüllten Zelle gestoppt (1). Unter Verwendung von elektrischen Gleich- und Wechselspannungsfeldern und mit Hilfe des Gasflusses werden die Ionen aus der Zelle extrahiert und mittels einer linearen Quadrupolstruktur (2) aus der Region hohen Gasdrucks zum Buncher (3) transportiert. Hier werden die Radionuklid-Ionen gekühlt und gebündelt, bevor sie in die erste Penningfalle (4) transferiert werden. In dieser Reinigungsfalle werden unerwünschte Ionensorten beseitigt. In der zweiten, der Meß-Penningfalle (5), können präzise Manipulationen der Ionenbewegungen durchgeführt werden, die beispielsweise für die Messung der Zyklotronfrequenz mittels der Flugzeit-Methode erforderlich sind.

Die im Target erzeugten und durch SHIP separierten Fusionsprodukte werden in einer mit Helium gefüllten Zelle gestoppt. Wie bei der Puffergaskühlung in einer Penningfalle oder dem Kühlen und Bündeln im Buncher geben die Ionen durch vielfache Stöße mit den Heliumatomen Energie ab, bis sie sich schließlich im thermischen Gleichgewicht mit dem Gas befinden. Allerdings sind die Energien der zu stoppenden Teilchen um viele Größenordnungen höher als in den Beispielen von Puffergaseinsatz in Ionenfallen. Der Druck des Puffergases wird der Energie der zu untersuchenden Radionuklide angepaßt, und liegt etwa in der Größenordnung von 10 mbar <  $p_{\rm He}$  < 100 mbar. Eine dünne Metallfolie von wenigen  $\mu m$  Dicke trennt das Volumen der Stoppzelle vom Hochvakuum des Beschleunigers. Dieses Eintrittsfenster ist dünn genug, sodaß die Ionen es durchdringen können, es aber dennoch der Druckdifferenz standhält.

Nachdem die Ionen in der Stoppzelle (Abb. 5.4) abgebremst wurden, sind sie hauptsächlich einfach positiv geladen. Die hohe Reinheit des Gases und die hohe Ioni-



Abbildung 5.4: SHIPTRAP-Stoppzelle und Extraktions-RFQ. Die Ionen werden, nachdem sie im Puffergas gestoppt wurden, mittels elektrischer Gleich- und Wechselspannungsfelder zur Ausgangsdüse transportiert. Sie werden im Sog des ausströmenden Gases in den Extraktionsbereich geführt und mittels eines linearen Radiofrequenz-Quadrupols weiter transportiert.

sationsenergie von Helium verhindern eine vollständige Neutralisierung. Durch Anlegen elektrischer Potentiale an den Spannungskäfig, in dem sich die Ionen nun befinden, und an den Ausgangstrichter (*Funnel*) werden die Ionen durch das Gas in Richtung der Ausgangsdüse (*Nozzle*) gezogen. Der Trichter ist ein Stapel bestehend aus 40 konzentrisch angeordneten Metallplatten, deren Innendurchmesser zur Ausgangsdüse hin immer kleiner wird. Die an die Platten angelegten Spannungen bestehen aus einer Gleichspannungskomponente und einer Radiofrequenz-Wechselspannung. Die Gleichspannung fällt entlang des Trichters von 220 V auf 40 V in Richtung zur Düse hin ab und erzeugt zusammen mit der an den Käfig angelegten 350 V eine elektrische Kraftkomponente in axialer Richtung. Jeweils zwei benachbarte Platten tragen stets entgegengesetzte Phasen der RF-Wechselspannung (f=2 MHz, U<sub>0</sub> =250 V<sub>pp</sub>). Zusammen mit der dämpfenden Wirkung des Gases erzeugt dies im zeitlichen Mittel eine Kraft, die die Ionen daran hindert, die Trichterelektroden zu berühren.

Auf diese Weise werden die Ionen zur Düse geführt. Diese hat einen Innendurchmesser von etwa 0,5 mm. Das Gas erreicht beim Durchgang durch die Düse mehrfache Schallgeschwindigkeit und expandiert in das Vakuum außerhalb der Stoppzelle. Dabei werden auch die Ionen erfaßt und aus der Zelle extrahiert.

Aufgrund des ständig ausströmenden Gases beträgt der Druck außerhalb der Stopp-

zelle noch etwa  $10^{-2}$  mbar  $< p_{\rm He} < 10^{-1}$  mbar. Hier schließt sich an die Düse eine lineare Radiofrequenz-Quadrupolstruktur an, die die extrahierten Ionen weiterleitet, während das Gas abgepumpt wird. Der Extraktions-RFQ besteht aus vier parallelen Stäben, die jeweils in axialer Richtung segmentiert sind. Die Radiofrequenz (f=1 MHz, U<sub>0</sub> = 200 V<sub>pp</sub>) wird so angelegt, daß jeweils benachbarte Stäbe gegensätzliche Phasen tragen und daher im Inneren der Struktur ein radiales Quadrupolfeld erzeugt wird. An den verschiedenen Segmenten sind der Radiofrequenz zusätzlich verschiedene Gleichspannungen überlagert, die mit zunehmendem Abstand von der Düse geringer werden. Während die Radiofrequenz im zeitlichen Mittel eine zur Achse gerichtete Kraft auf die Ionen ausübt, werden sie durch die abfallenden Gleichspannungs-Komponenten von der Düse weggezogen und durch die Drucksperre geführt, die das Volumen der Extraktionsregion von dem der Bunchersektion trennt. Für genauere Details zur Funktionsweise, zum Aufbau und der technischen Umsetzung der Stoppzelle wird auf [101] verwiesen.

Nachdem die Ionen aus dem Extraktionsbereich geführt wurden, werden sie in den Buncher eingefangen. Dieser ist eine weitere lineare RFQ-Struktur bestehend aus vier in axialer Richtung segmentierten Stäben. Sein Funktionsprinzip ist dasselbe wie das des ISOLTRAP-Bunchers und wurde in Kap. 4 bereits erläutert. Während das Quadrupolfeld die Ionen radial einschließt, thermalisieren diese durch Stöße mit dem Puffergas ( $p_{\text{He}} \approx 10^{-3}$  mbar) und sammeln sich schließlich im Minimum des DC-Potentialverlaufs am der Stoppzelle abgewandten Ende des Bunchers. Durch Schalten der Spannungen an den letzten Segmenten der Struktur wird das gekühlte Ionenbündel extrahiert und auf den Weg Richtung Penningfallen gebracht. Details zur Konstruktion finden sich in [102] und zu den Betriebsparametern und zur Leistungsfähigkeit des SHIPTRAP-Bunchers in [103].

Die Ionen werden nach ihrem Ausschuß aus dem Buncher elektrostatisch auf einige hundert Volt beschleunigt und durch die Transferstrecke in das Magnetfeld der Penningfallen transportiert. Hier, wo die Lorentzkraft einer möglichen radialen Aufweitung des Strahls entgegenwirkt, werden sie wieder abgebremst und bei kleinen kinetischen Energien von wenigen Elektronenvolt dynamisch in die Reinigungsfalle eingefangen. In He-Puffergas bei einem Druck von  $p_{\rm He} \approx 10^{-6}$  mbar wird die in Kap. 3.3 beschriebene massenselektive Puffergaskühlung durchgeführt. Danach wird das isobarenreine Ionen-Ensemble in die Meßfalle transferiert, wo als erste Anwendung hochpräzise Massenmessungen unter Verwendung der Flugzeitmethode (siehe Kap. 3.4) durchgeführt werden sollen.

#### 5.2.2 Technische Umsetzung

In Abb. 5.5 ist eine Übersicht über das Vakuumsystem von SHIPTRAP dargestellt. Das Volumen der Stoppzelle und des Extraktions-RFQs (nicht eingezeichnet) wird durch eine Diffusionssperre vom Bunchervolumen abgetrennt. Dabei handelt es sich um Platten, die die Volumina gegeneinander abdichten und im Zentrum kleine Löcher mit Durchmesser 2-3 mm aufweisen, durch die die Ionen passieren können. In den Bereich des Bunchers kann bei Bedarf Helium eingelassen werden, um den erwünschten Puffergas-Druck von etwa  $p_{\rm He} \approx 10^{-3}$  mbar zu erreichen. Dieses Volumen ist gegen die Transferstrecke und die Reinigungsfalle ebenfalls durch eine Diffusionsperre abgetrennt. Um dort den nötigen Gasdruck von etwa  $p_{\rm He} \approx 10^{-5}$  zu erreichen, kann ebenfalls Helium in die Vakuumkammer eingelassen werden. Da sich beide Penningfallen im selben supraleitenden Magneten befinden, und ihre Zentren lediglich einen Abstand von 20 cm aufweisen, dringt das Puffergas aus der Reinigungsfalle teilweise in die Meßfalle ein. Um diesen Anteil zu verringern, ist zwischen den beiden Penningfallen eine dritte Diffusionssperre eingebaut. Die Sperren und die Turbomolekular-Pumpen erzeugen entlang des SHIPTRAP-Aufbaus eine differentielle Pumpstrecke, die es erlaubt trotz eines Heliumgas-Drucks von etwa 100 mbar in der Gaszelle den für die Präzisionsmessungen notwendigen Druck von  $10^{-8}$  mbar in der Meßfalle zu erreichen.



Abbildung 5.5: Schematische Darstellung das Vakuumsystems von SHIPTRAP. Über verschiedene Stufen wird der Gasdruck von etwa 100 mbar in der Stoppzelle (hier nicht eingezeichnet) auf  $10^{-8}$  mbar in der Meßfalle reduziert.

In den Verlauf der Transferstrecke ist ein Vakuum-Schiebeventil eingebaut, das es erlaubt, aus Sicherheitsgründen und zu Umbau- und Wartungszwecken das Vakuum der Penningfallen von dem des Bunchers und der Stoppzelle zu trennen. Zusätzlich befindet sich dort eine verschiebbare Vorrichtung, die einen MCP-Detektor (micro channel plate) und eine Test-Ionenquelle trägt. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden die beiden Penningfallen und die Transferstrecke zwischen dem Buncher und den Penningfallen konstruiert, eingebaut und in Betrieb genommen.

#### Transferstrecke

Die Transferstrecke (siehe Abb. 5.6) ist im Wesentlichen eine Aneinanderreihung von Hohlzylindern, die elektrisch vom Vakuumgehäuse und voneinander isoliert sind. Sie umschließen die Ionentrajektorie auf der gesamten Strecke zwischen Buncher und Reinigungsfalle. Insgesamt besteht die Transferstrecke aus 9 Zylindern. Einschließlich der Lücken, die jeweils etwa 5 bis 10 mm groß sind, beträgt die Gesamtlänge der Anordnung etwa 1,2 m. Der Abstand zwischen den Zylindern 3 und 4 ist größer  $(\approx 20 \text{ mm})$ , um das ordnungsgemäße Schließen des Vakuumschiebers nicht zu beeinträchtigen. Drei der Zylinder (2, 5 und 8) sind rund gebogene, gelochte Bleche, um einen größeren Pumpquerschnitt zum Innenraum zu schaffen. Vier weitere sind diagonal geteilt. Die jeweiligen Hälften sind elektrisch voneinander isoliert, sodaß man durch Anlegen unterschiedlicher Spannungen, den Ionenstrahl ablenken kann (siehe weiter unten). Der Innendurchmesser der Zylinder beträgt jeweils 48 mm. Beim letzten (9), an den sich die Reinigungsfalle anschließt, wird der Innendurchmesser auf 32 mm reduziert. Dies entspricht dem Innendurchmesser der Elektroden der Penningfallen. Der Lochblechzvlinder, der sich etwa auf halber Strecke befindet (5) ist zusammen mit einem MCP-Detektor und einer Testionenquelle an einer beweglichen Durchführung befestigt. Durch einen Hub von 100 mm kann er für Testmessungen durch den Detektor, der dem Buncher zugewandt ist, und die Ionenquelle, die in die Penningfallen zielt, ausgetauscht werden. Die technischen Zeichnungen für die Zylinder und deren Halterungen befinden sich im Anhang A.



Abbildung 5.6: Anordnung der Transfer-Zylinder. Die Transferstrecke zwischen Buncher und Penningfallen ist eine Folge von 9 koaxial angeordneten Hohlzylindern. Sie erlaubt es die Ionen mit beliebiger Geschwindigkeit in das Magnetfeld zu fokussieren und zu lenken und dabei deren radialsymmetrische Verteilung beizubehalten.

Die nahezu lückenlose Folge der Hohlzylinder erlaubt es, durch Anlegen geeigneter Spannungen die kinetische Energie der Ionen beim Transport innerhalb weiter Grenzen beliebig zu wählen. Andernfalls wäre die Transportenergie durch das DC-Potentialminimum des Bunchers festgelegt, in den das Ionenbündel vor seiner Extraktion gekühlt wird. Bei der Optimierung des Transports müßte man stets sämtliche Buncher- und Penningfallenpotentiale ändern, was in praktischer Hinsicht nahezu unmöglich ist. Zusätzlich müßte man im gesamten Transferbereich die durch die Vakuumkammern und andere in der Nähe der Flugbahn befindlichen Objekte gegebene Feld-Asymmetrie in Kauf nehmen. Jede Deformation der radialen Symmetrie der Ionenverteilung würde den Einschuß in das 7 T starke Magnetfeld erschweren.

Das Ionenbündel verläßt das DC-Potentialminimum des Bunchers, das auf einem Potential von etwa +60 V liegt, und wird im Bereich der ersten beiden Transfer-Zylinder, an die Spannungen von -100 > U > -1000 V angelegt werden, elektrostatisch auf die entsprechende kinetische Energie beschleunigt. Ein Ion der Masse 250 u und einer kinetischen Energie von 1000 eV legt die Strecke zwischen Buncher und Reinigungsfalle in weniger als 50  $\mu$ s zurück. Die Aufweitung des Ionenbündels aufgrund der endlichen Temperatur oder der Coulombabstoßung zwischen den Ionen ist für diese Zeitspanne vernachlässigbar.



Abbildung 5.7: Ionenoptische Simulation für den Einschuß ins Magnetfeld. Die Einhüllende der Ionenbahnen ist im Bereich des ansteigenden Magnetfeldes dargestellt für Spannungen an den Transferzylindern, die hinsichtlich minimaler radialer Aufweitung des Ionenbündels optimiert wurden.

Da der Potentialverlauf entlang der Ionentrajektorie durch Anlegen geeigneter Spannungen beliebig formbar ist, kann man insbesondere auch an drei aufeinanderfolgenden Zylindern eine *Einzellinse* erzeugen, mit der man das Ionenbündel aufweiten oder auf beliebige Punkte fokussieren kann (siehe z.B. [104]). Das ist für einen verlustfreien Einschuß in das Magnetfeld von großer Bedeutung. Speziell beim SHIPTRAP-Magneten, der über eine aktive Abschirmung verfügt, um die Ausdehnung der Streufelder zu beschränken, fällt das Magnetfeld in axialer Richtung auf einer Strecke von etwa 30 cm von 7 T auf 1 T ab. Geladene Teilchen, die auf diesen starken Feldgradienten auftreffen und dabei eine zu große transversale Geschwindigkeitskomponente oder einen zu großen radialen Abstand von der Symmetrieachse des Solenoidfeldes aufweisen, würden reflektiert werden. Mit Hilfe von ionenoptischen Simulationen wurden die Spannungen an den Transferzylindern so bestimmt, daß die Ionen bei ihrem Eintritt in des magnetische Feld möglichst wenig radiale Bewegungsenergie aufnehmen. In Abb. 5.7 ist für eine realistische, anfängliche Ionenverteilung die Einhüllende der Trajektorien dargestellt. Der Strahl, der zuvor in der Transferstrecke aufgeweitet wurde, wird unter Verwendung der Zylinder 7, 8 und 9 als Einzellinse in das Magnetfeld fokussiert. Dadurch weisen die Ionen im homogenen Bereich des Magnetfeldes (7 T) einen Zyklotronradius von maximal 2 mm auf. Bei den Simulationen wurde davon ausgegangen, daß die Ionen ohne Verkippung oder Versatz relativ zur Symmetrieachse des Magnetfeldes einlaufen.



Abbildung 5.8: Potentialverlauf im Inneren eines Ablenkers. Der Potentialverlauf beim Übergang zwischen jeweils zwei Zylindern ändert sich in einer gleichmäßigen, senkrecht zur Strahlachse verlaufenden Stufe. Die Ablenkung der Ionen erfolgt im Inneren des geteilten Zylinders, wo sie der diagonalen Potentialstufe folgen. Die mit Pfeilen gekennzeichneten Linien sind die simulierten Trajektorien von Ionen, die bei verschiedenen radialen Abständen in das System einlaufen, aber dennoch alle dieselbe Ablenkung erfahren.

In der Transferstrecke stehen zwei Paare von Ablenkern zur Verfügung. Dies sind die diagonal geschlitzten Zylinder, die in Abb. 5.6 mit den Nummern 3, 4 und 6, 7 gekennzeichnet sind. Falls zwischen der hinteren und der vorderen Hälfte von Zylinder Nr. 4 beispielsweise eine Spannungsdifferenz angelegt wird, erfahren die Ionen eine elektrische Kraft in horizontaler Richtung senkrecht zur Strahlachse. In Abb. 5.8 ist der Potentialverlauf im Inneren eines Zylindertripletts auf der Ebene, die durch die z- und die x-Achse aufgespannt ist, dargestellt. Das Potential steigt gleichmäßig beim Übergang vom ersten (linken) Zylinder in den zweiten an. Innerhalb des zerteilten Zylinders formt es eine diagonale Stufe, um schließlich beim Übergang in den dritten Zylinder wieder einen gleichförmigen, senkrecht zur Strahlachse verlaufenden Anstieg zu vollführen. Die Trajektorien der Ionen (durch Pfeile gekennzeichnete Linien) werden dadurch in Richtung der positiven x-Achse gebogen. Das bemerkenswerte ist, daß die elektrische Kraft und damit der Ablenkwinkel nicht von der x-Koordinate der anfänglichen Ionenbahn abhängt. Außerdem ist die Ablenkung auch unabhängig von der y-Komponente. Solange die Ionen nicht durch die Randbereiche nahe der Elektrodenoberflächen und -kanten fliegen, wird die Ionenverteilung des Bündels bei der Ablenkung nicht verändert. Die radiale Ausdehnung des Bündels, das aus dem Buncher extrahiert wird, beträgt nur wenige mm im Durchmesser, sodaß die Randfelder der Transferstrecken-Zylinder, die jeweils einen Innendurchmesser von 48 mm aufweisen, die Konformität der Ablenkung nicht beeinträchtigen.

Eine Ablenkung in vertikaler (y-) Richtung kann durch einen zweiten, diagonal geschlitzten Zylinder, der um 90° um die geometrische Achse gedreht ist, bewerkstelligt werden. Zusammen mit einem zweiten Paar solcher Ablenker (6 und 7 in Abb. 5.6) kann insgesamt ein beliebiger, radialer Versatz des Ionenstrahls erreicht werden. Die Transferstrecke erlaubt es, das Ionenbündel, das aus dem Buncher ausgeschossen wird, nach Bedarf abzulenken, radial zu versetzen und zu fokussieren, um einen optimalen Einschuß in das Magnetfeld der Penningfallen zu gewährleisten. Das hier vorgestellte Konzept und die bereits in zahlreichen Tests und Anwendungen erprobte Verwirklichung der Transferstrecke stellt eine vielseitige und robuste Lösung für den verlustfreien Transport von niederenergetischen Ionenstrahlen dar.

#### Penningfallen

Das Prinzip der Reinigungsfalle von SHIPTRAP ist an das der Kühlerfalle von ISOLTRAP angelehnt. Sie besteht aus einer radial achtfach segmentierten Ringelektrode, zwei Paaren von Korrekturelektroden, von denen die inneren radial halbiert sind, und axial dreifach segmentierten Endelektroden (Abb. 5.9). Der Innendurchmesser der Hohlzylinder beträgt  $\phi_i = 32$  mm. Die Verhältnisse der Längen zum Innendurchmesser für die Ring- und Korrekturelektroden sind dieselben wie bei der ISOLTRAP-Kühlerfalle ( $\phi_i = 40$ mm).

Durch Anlegen der entsprechenden Spannungsverhältnisse kann im Fallenzentrum ein nahezu harmonischer Potentialverlauf erreicht werden. In Abb. 5.10 ist der Potentialverlauf entlang der Fallenachse dargestellt, wie er mit Hilfe der Relaxationsmethode [59] für die angelegten Spannungen berechnet wurde. Eine Anpassung des Potentialverlaufs in der Nähe des Fallenzentrums (z=0) durch das Polynom

$$\sum_{i=0}^{\infty} C_i \cdot z^i \tag{5.1}$$

ergibt, daß alle ungeraden Terme wegfallen. Das bedeutet, daß das letzte Endelektrodensegment ("End 6"), das nur einen Innendurchmesser von 3 mm hat, keinen Einfluß auf den Potentialverlauf in der Nähe des Fallenzentrums hat. Ein Vergleich des realen Verlaufs

$$\varphi_{\text{real}}(z)|_{\rho=0} = C_0 + C_2 \cdot z^2 + C_4 \cdot z^4 + \dots$$
(5.2)

81



Abbildung 5.9: Schematische Darstellung der SHIPTRAP-Reinigungsfalle. Die Reinigungsfalle ist eine zylindrische Penningfalle mit einer radial segmentierten Ringelektrode ("Ring"), zwei Paaren von Korrekturelektroden ("Corr1" - "Corr4") und axial geteilten Endelektroden ("End1" - "End6"). Das letzte Segment der Endelektrode, die der Meßfalle zugewandt ist, hat einen Innendurchmesser von nur 3 mm. Es bildet den ersten Teil der Diffusionssperre, die das He-Puffergas am Eindringen in die Meßfalle hindern soll.

mit einem idealen, harmonischen Potential gemäß Gl. (3.1)

$$\varphi_{\text{ideal}}(z)|_{\rho=0} = \frac{U}{2d^2}z^2 \tag{5.3}$$

ergibt, daß für die charakteristische Fallengröße d, wie sie beispielsweise in den Bewegungsgleichungen (3.4), (3.5) und (3.6) verwendet wird, d = 26,8 mm gilt. Für die Abweichung in der Nähe des Fallenzentrums (-10 mm < z < 10 mm) gilt  $\varphi_{\text{real}}(z)|_{\rho=0} - \varphi_{\text{ideal}}(z)|_{\rho=0} < 1, 5 \cdot 10^{-4}$ . Die Anharmonizität, die durch  $C_4/C_2 \approx 10^{-4}$ charakterisiert werden kann, ist klein genug, um als vernachlässigbare Störung betrachtet zu werden.

Bei der Konzeption der SHIPTRAP-Kühlerfalle wurde der zylindrischen Variante einer Penningfalle wegen ihrer vergleichsweise offenen Struktur der Vorzug gegeben. Das Eingangsloch einer hyperbolischen Falle müßte deutlich kleiner sein ( $\phi \approx 3$  mm), um die dadurch verursachte Feldverzerrung kompensieren zu können. Da es sich nicht vermeiden läßt, daß sich die Zyklotronradien der Ionen beim Einschuß ins Magnetfeld vergrößern, ist für einen effizienten Einfang eine größere Fallenöffnung von Vorteil. Außerdem kann durch eine große Öffnung das Fallenvolumen deutlich besser gepumpt werden und ein entsprechend geringer Restgasdruck von  $\approx 10^{-9}$ mbar erreicht werden. Durch die große Eingangsöffnung wird auch das He-Puffergas, das für das Kühlverfahren nötig ist, eingelassen. Damit kann man auf ein langes dünnes Rohr als Zuleitung verzichten und dessen negative Auswirkungen auf den Restgasdruck und die Magnetfeld-Homogenität vermeiden.

Die SHIPTRAP-Meßfalle befindet sich im selben Magnetfeld wie die Reinigungsfalle. Das solenoidförmige Magnetfeld ist entlang der gesamten Doppelfallen-Struktur konstant und weist im Abstand von 20 cm zwei besonders homogene Zentren auf. Innerhalb eines Volumens von jeweils  $\approx 1 \text{ cm}^3$  beträgt die Homogenität laut Hersteller



Abbildung 5.10: Potentialverlauf in der Reinigungsfalle (durchgezogene Kurve). Durch Anlegen der im oberen Teilbild angegebenen Spannungen an die Korrekturelektroden kann im Fallenzentrum ein nahezu harmonisches Potential (gestrichelte Linie) geformt werden.

 $\frac{\Delta B}{B}<10^{-7}$ für die Reinigungsfalle und  $\frac{\Delta B}{B}<10^{-8}$ am Ort der Meßfalle. Dadurch, daß sich beide Penningfallen im selben Magnetfeld befinden, wird die Schwierigkeit umgangen, die Ionen durch extrem starke Feldgradienten befördern zu müssen. Die dabei auftretende, kaum vermeidbare Konversion von kinetischer, axialer in radiale Energie kann hier vermieden werden. Neben allen Vorteilen, die sich aus der Positionierung beider Fallen im selben Magneten ergeben, könnte sich die räumliche Nähe als entscheidender Nachteil herausstellen, falls das Eindringen von Puffergas in die Meßfalle nicht ausreichend beschränkt werden kann. Das letzte Endelektrodensegment der Reinigungsfalle ("End 6" in Abb. 5.9) und das erste der Meßfalle ("End 1" in Abb. 5.11) stellen gemeinsam eine differentielle Pumpstrecke für das in die erste Falle eingelassene Helium dar. Der 3 mm weite und etwa 52 mm lange Kanal weist für Helium bei Zimmertemperatur einen Leitwert von 0,14 l/s auf. Gasflußrechnungen, die von realistischen Werten für die effektive Pumpleistung an den Orten der Fallenzentren ausgehen, ergeben daß der Heliumdruck in der Meßfalle etwa 70 mal geringer ist als der in der Reinigungsfalle. Bei einem Puffergasdruck von etwa  $10^{-6}$  mbar sollte dies ausreichen, um Präzisions-Massenmessungen in der Meßfalle durchführen zu können.

Die SHIPTRAP-Meßfalle (Abb. 5.11) ist ebenfalls ein zylindrische Penningfalle. Sie besitzt nur ein einziges Paar von Korrekturelektroden und verfügt daher bei gleichem Elektroden-Innendurchmesser über ein geringeres Fallenvolumen als die Reinigungsfalle. Die Längenverhältnisse bei diesem speziellen, als *orthogonalisierte* Falle [105] bezeichneten Typ bewirken, daß die axiale Schwingungsfrequenz  $\omega_z$  nicht von der angelegten Korrekturspannung abhängt.



Abbildung 5.11: Schematische Darstellung der SHIPTRAP-Meßfalle. Die aktuelle Version dieser Falle ist eine zylindrische, orthogonalisierte Penningfalle. Sie besteht aus einer schmalen, achtfach segmentierte Ringelektrode ("R"), aus einem Paar Korrekturelektroden ("Corr1", "Corr2") und aus jeweils dreifach, axial geteilten Endelektroden ("End1" - "End6"). Die Elektrode "End 1" stellt den zweiten Teil der Diffusionssperre zwischen den beiden Fallen dar.

Aufgrund des geringen räumlichen Abstandes können die beiden Fallen zusammen in eine gemeinsame Struktur eingebaut werden. Dadurch kann eine optimale Ausrichtung relativ zueinander und eine gute Überlagerung der elektrischen Fallenzentren mit den jeweiligen homogenen, magnetischen Zentren erreicht werden.

In Abb. 5.12 sind die SHIPTRAP-Penningfallen unmittelbar vor ihrem Einbau zu sehen. Sämtliche Elektroden sind zu einer mechanisch stabilen Struktur zusammengesteckt. Das Steck- und Halterungsprinzip, das die stabile Positionierung der einzelnen Zylinder und der Gesamtstruktur gewährleistet, geht aus den Abbildungen 5.9 und 5.11 sowie den technischen Zeichnungen hervor (Anhang B). Die Die Struktur wird als Ganzes von der dem Buncher abgewandten Seite in das Vakuumrohr eingeführt und zusammen mit diesem relativ zum Magnetfeld ausgerichtet. Eine nachträgliche Änderung der Position oder Ausrichtung der Struktur oder Teilen davon kann ausgeschlossen werden.

Für die Fallenelektroden wurde extrem reines (oxygen free highly conductive) OFHC-Kupfer als Material verwendet. Aufgrund des geringen Anteils an Verunreinigungen (< 0,1 %) kann man von einer homogenen magnetischen Suszeptibilität ausgehen. Das bedeutet, daß die Änderung des Magnetfeldes aufgrund der Suszeptibilität des Fallenmaterials nicht nur gering, sondern auch gleichmäßig ist. Die Oberflächen der Fallenelektroden wurden nach der Herstellung versilbert und anschließend vergoldet. Die Goldschicht verhindert ein Oxidieren der Oberfläche und gewährleistet damit, daß die mechanische Oberfläche tatsächlich eine elektrische Äquipotentialfläche darstellt. Die Silberschicht verhindert die Diffusion von Goldatomen in das Kupfer hinein. Für die Halterung, die die Struktur zusammenhält und im Vakuumrohr positioniert, wurde Aluminium verwendet. Es weist wie Kupfer eine geringe magnetische Suszeptibilität auf, verfügt aber über eine geringere Massendichte und



Abbildung 5.12: Foto der SHIPTRAP-Penningfallen.

eine deutlich höhere mechanische Zugfestigkeit. Da alle Teile, die aus Aluminium bestehen weiter von der Fallenachse entfernt sind, ist ihre Auswirkung auf das Magnetfeld in den Fallenzentren entsprechend reduziert. Die Isolatorringe zwischen den Elektroden sind aus Aluminiumoxidkeramik (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). Dieses Material ist von extremer Härte. Die Isolatorringe, die die Kontaktdrähte (aus versilbertem Kupfer) axial von den jeweiligen Elektroden zu den Enden der Fallenstruktur führen, sind aus MACOR-Glaskeramik gefertigt. Im Gegensatz zu Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kann dieses Material mit herkömmlichem Werkzeug bearbeitet werden, was bei jeweils 30 Führungslöchern pro Ring zu einer deutlichen Kostenersparnis führt.

# 5.3 Bisherige Ergebnisse und Ausblick

Sämtliche Komponenten von SHIPTRAP sind aufgebaut und in Betrieb. Auch die Penningfallen sind in das Vakuumsystem eingebaut, und es konnte ein Restgasdruck von  $p_{\text{base}} < 10^{-9}$  erreicht werden. Sowohl Ionen aus der Testionenquelle als auch aus dem Buncher konnten erfolgreich in beide Fallen eingefangen und gespeichert werden. Darüberhinaus konnte in ersten Tests die reduzierte Zyklotronbewegung der Testionen (Xenon) in der Reinigungsfalle angeregt werden. In Abb. 5.13 ist als



Abbildung 5.13: Dipolanregung der reduzierten Zyklotronfrequenz von Xe-Ionen in der SHIPTRAP-Reinigungsfalle.

Funktion der Frequenz des eingestrahlten Dipolwechselfeldes die Anzahl der aus der Falle extrahierten Ionen dargestellt. Die Xenon-Ionen wurden in der Testionenquelle zwischen Buncher und Penningfallen erzeugt und in der Reinigungsfalle gespeichert. Dort wurde über die geteilte Ringelektrode ein dipolförmiges Wechselfeld eingestrahlt. Nach dem Ausschuß erfolgt der Nachweis der Ionen auf dem Detektor, der sich jenseits der Meßfalle außerhalb des Magnetfeldes befindet. Falls die Anregungsfrequenz mit der reduzierten Zyklotronfrequenz einer Ionensorte übereinstimmt, werden die Radien aufgeweitet, sodaß die Ionen beim Ausschuß die Diffusionssperre nicht passieren können. Die verschiedenen Minima im Spektrum können den in der Natur vorkommenden Xenonisotopen zugeordnet werden. Da sich stets sehr viele Ionen (1000 < N < 10000) in der Falle befanden, erfolgte über die Coulomb-Wechselwirkung eine Anregung der gespeicherten Ionen aller Isotopenarten, sofern die Anregungsfrequenz mit der reduzierten Zyklotronfrequenz nur eines der Isotope übereinstimmte. Die Tiefe der Resonanz skaliert mit der Isotopenhäufigkeit. So ist <sup>130</sup>Xe mit 4% im natürlichen Isotopengemisch vertreten, während <sup>129,131,132</sup>Xe mit jeweils über 20 % vorkommen. Weitere Optimierungen der Penningfallen hinsichtlich Feldausrichtung, Effizienz, Auflösung, Genauigkeit und Sensitivität finden zur Zeit statt [107].

Für den Buncher wurde die Test- und Optimierungsphase bereits abgeschlossen. Er funktioniert entsprechend der Erwartungen und produziert Ionenbündel, deren Energieverteilung in etwa derjenigen eines Gases bei Zimmertemperatur entspricht, mit einer Effizienz von mehr als 35 % [103]. Die Stoppzelle wurde in mehreren Strahlzeiten getestet. Dabei konnten Ionen, die in SHIP erzeugt und separiert wurden, gestoppt und teilweise extrahiert werden. Mit den Radionukliden wurde auch ein große Menge von Restgasatomen und -molekülen, die beim Stoppen ionisiert wurden, aus der Zelle gezogen. Da noch keine zweifelsfreie Identifikation der Ionen durchgeführt werden konnte, kann bislang auch noch kein Wert für die Effizienz angegeben werden. Die Ionen, die aus der Stoppzelle extrahiert wurden, konnten erfolgreich im Buncher gekühlt und gebündelt werden. Darüberhinaus konnten sie in die Reinigungsfalle transferiert, dort gespeichert und schließlich auf dem Detektor außerhalb des Magnetfeldes nachgewiesen werden.

In der weiteren Zukunft besteht die Absicht, für den Nachweis der Zyklotronfrequenz die Flugzeitmethode durch die FT-ICR-Methode (Fourier Transform Ion Cyclotron Resonance) zu ersetzen. Bei diesem Verfahren wird die Zyklotronfrequenz ermittelt, indem die Spiegelströme, die die Ionen in Segmenten der Ringelektrode influenzieren, gemessen und hinsichtlich ihrer Frequenz analysiert werden. Zu diesem Zweck wird zur Zeit eine hyperbolische Penningfalle konzipiert, die auf die Temperatur von flüssigem Stickstoff ( $T \approx 77$  K) gekühlt werden soll [106]. Außerdem wird die SHIPTRAP-Anlage um eine Kohlenstoffkluster-Quelle erweitert werden [108]. Mehr noch als bei ISOLTRAP ist die Verwendung von Kohlenstoffklustern als Referenzionen bei der Präzisions-Massenspektrometrie an sehr schweren Nukliden von Vorteil. In diesem Massenbereich gibt es keine Nuklide, deren Masse so genau bekannt ist, daß ihre Unsicherheit nicht zum Fehler der Frequenzverhältnisse beiträgt. 5.3. Bisherige Ergebnisse und Ausblick



# Anhang A

# Transferstrecke

DN 161 Doppelkreuz

Zusammenbau-Zeichnung: Ionenlinsen









Halteringe Material: Aluminium Stückzahl: jeweils 4 Auftraggeber: G. Sikler Tel.: 2114












vertikaler Ablenker (Länge: 125mm)







Bei OFE-Cu handelt es sich um 99.95 % reines Kupfer. Zwei Vollstäbe  $|\phi|$  50, l 600| dieses Materials sind beigelegt.

Die jenigen Elektroden, bei denen als Materialangabe lediglich Cu steht, sollen aus "normalem" Kupfer hergestellt werden. D.h. keine besonderen Anforderungen an die Reinheit, jedoch keine Legierungen.



Тур Мг.	Länge L	Stückzahl	Material
4	12,6	2	OFE-Cu
5	12,8	2	OFE-Cu





Тур Nг.	Länge L	Stückzahl	Material
6	4,7	1	OFE-Cu
7	18,5	1	OFE-Cu

## Segmentierung der Kupferelektroden (Typ 6 und 7)







Bei OFE-Cu handelt es sich um 99.95 % reines Kupfer. Zwei Vollstäbe |Ø 50, l 600| dieses Materials sind beigelegt.

Die jenigen Elektroden, bei denen als Materialangabe lediglich Cu steht, sollen aus "normalem" Kupfer hergestellt werden. D.h. keine besonderen Anforderungen an die Reinheit, jedoch keine Legierungen. Insulators Material: aluminum oxide caramics Rings Type 1 |Amount: 40|



# Rings Type 2 |Amount: 40|



# Insulators Material: aluminum oxide ceramincs Rings Type 3 [Amount: 20]



Sticks |Amount: 40|



Isolatorring Material: MACOR (Stückzahl: 20)



### Radsystem Teil 1 Material: Aluminium









Verbindungsstangen

Toleranzen: ±0,1 mm Material: Aluminium









## Literaturverzeichnis

- [1] J. W. von Goethe, Faust, der Tragödie erster Teil (1808).
- [2] G. Audi (CSNSM-IN2P3-CNRS, Orsay), persönliche Mitteilung 2002.
- [3] C. F. Weizsäcker, Z. Phys. **96** (1935), 431.
- [4] T. Mayer-Kuckuk, *Kernphysik*, Teubner Stuttgart <sup>4</sup>(1984), 49ff.
- [5] J. Dobaczewski, H. Flocard und J. Treiner, Nucl. Phys A422 (1984), 103-139.
- [6] P. Möller, J. R. Nix, W. D. Myers und W. J. Swiatecki, At. Data Nucl. Data Tables 59 (1995), 185-381.
- [7] Y. Aboussir, J. M. Pearson, A. K. Dutta und F. Tondeur, At. Data Nucl. Data Tables 61 (1995), 127-176.
- [8] J. Duflo und A. P. Zuker, Phys. Rev. C52 (1995), R23-R27.
- [9] Z. Patyk et al., Masses and radii of sherical nuclei calculated in various microscopic approaches, Phys. Rev. C29 (1999), 704-713.
- [10] W. F. Hornyak, *Nuclear Structure*, Academic Press New York (1975), 196.
- [11] M. Goeppert-Mayer, *The shell model*, Nobel Lecture 1963, Elsevier Publishing Company, Amsterdam (1964) und dortige Referenzen.
- [12] J. Dobaczewski et al., Nuclear Shell Structure at Particle Drip Lines, Phys. Rev. Lett. 72 (1994), 981-984.
- [13] B. Chen et al., Influence of shell-quenching far from stability on the astrophysical r-process, Phys. Lett. B 355 (1995), 37-44.
- [14] R. Pandharipande et al., Independent particle motion and correlations in fermion systems, Rev. Mod. Phys. 69, (1997), 981-992.
- [15] S. C. Pieper and R. B. Wiringa Quantum Monte Carlo calculations of light neclei, Annu. Rev. Nucl. Part. Sci. 51 (2001), 53-90.
- [16] G. Audi und A. H. Wapstra, The 1995 update to the atomic mass evaluation, Nucl. Phys. A595 (1995).

- [17] F. Käppeler, F.-K. Thielemann und M. Wiescher, Current quest in nuclear astrophysics and experimental approaches, Annu. Rev. Nucl. Part. Sci. 48 (1998), 175-251.
- [18] K.-L. Kratz et al., Nuclear structure studies at ISOLDE and their impact on the astrophysical r-process, Hyp. Int. 129 (2000), 185-221.
- [19] H. Schatz et al., rp-process nucleosynthesis at extreme temperature and density conditions, Phys. Rep. 294 (1998), 167-263.
- [20] E. G. Adelberger et al., Positron-Neutrino Correlation in the  $0^+ \rightarrow 0^+$ Decay of <sup>32</sup>Ar, Phys. Rev. Lett. **83** (1999), 1299-1302 & 3101.
- [21] C. Caso et al. (Particle Data Group), Eur. Phys. J. C 3 (1998), 1.
- [22] S. Hofmann and G. Münzenberg, The discovery of the heaviest elements, Rev. Mod. Phys. 72 (2000), 733-767 und dortige Referenzen.
- [23] S. Hofmann, Superheavy Elements, Nucl. Phys. A654, (1999), 252c-269c.
- [24] R. S. Van Dyck, Jr., D. L. Farnham und P. B. Schwinberg, *Tritium-Helium-3 mass difference using the Penning tarp mass spectroscopy*, Phys. Rev. Lett. **70** (1993), 2888-2891.
- [25] F. DiFilippo, V. Natarajan, K. R. Boyce und D. E. Pritchard, Accurate atomic masses for fundamental metrology, Phys. Rev. Lett. 73 (1994), 1481.
- [26] M. P. Bradley, J. V. Porto, S. Rainville, J. K. Thompson und D. E. Pritchard, Penning trap measurements of the masses of <sup>133</sup>Cs, <sup>87,85</sup>Rb, and <sup>23</sup>Na with uncertainties ≤ 0.2 ppb, Phys. Rev. Lett. 83 (1999), 2510-2513.
- [27] C. Carlberg, T. Fritioff und I. Bergström, Determination of the <sup>133</sup> Cs and proton mass ratio using highly charged ions, Phys. Rev. Lett. 83 (1999), 2506-2509.
- [28] M. Epherre, Direct measurements of the masses of rubidium and cesium isotopes far from stability, Phys. Rev. C19 (1979), 1504-1507.
- [29] J. Mattauch, R. Herzog, Z. Phys. 89 (1934), 736.
- [30] G. Auger et al., A cyclotron as a high resolution mass spectrometer for fast secondary ions, Nucl. Instr. Meth. A350 (1994), 235-243.
- [31] http://www.gsi.de/accelerator/
- [32] B. Franzke, The heavy ion storage and cooler ring project ESR at GSI, Nucl. Instr. Meth. B24/25 (1987), 18.
- [33] H. Geissel et al., Secondary exotic nuclear beams, Annu. Rev. Nucl. Part. Sci. 45 (1995), 163-203.

- [34] J. Trötscher et al., Mass measurements of exotic nuclei at the ESR, Nucl. Instr. Meth. B70 (1992), 455.
- [35] M. Hausmann, Energieisochrone Massenmessungen am Experimentierspeicherring der GSI, Dissertation Universität Gießen (1999).
- [36] M. Hausmann et al., Isochronous Mass Measurements of Hot Exotic Nuclei, Hyp. Int. 132 (2001), 291-297 und dortige Referenzen.
- [37] M. Steck et al., Anomalous Temperature Reduction of Electron-Cooled Heavy Ion Beams in the Storage Ring ESR, Phys. Rev. Lett. 77 (1996), 3803-3806.
- [38] Y. A. Litvinov et al., Schottky Mass Measurements of Cooled Exotic Nuclei, Hyp. Int. 132 (2001), 283-289.
- [39] L. G. Smith, Phys. Rev. **111** (1958), 1606.
- [40] M. D. Lunney et al., MISTRAL: A new program for precise atomic mass determinations of nuclides far from stability, Hyp. Int. 99 (1996), 105-114.
- [41] P. K. Ghosh, *Ion Traps*, Oxford University Press, Oxford (1995), 50-52.
- [42] R. S. Brown and G. Gabrielse, Geonium theory: Physics of a single electron or ion in a Penning trap, Rev. Mod. Phys. 58 (1986), 233-311.
- [43] G. Bollen et al., The accuracy of heavy-ion mass measurements using time of flight-ion cyclotron resonance in a Penning trap, J. Appl. Phys. 68 (1990), 4355-4374.
- [44] G. Bollen et al., ISOLTRAP: a tandem Penning trap system for accurate on-line mass determination of short-lived isotopes, Nucl. Instr. Meth. A368 (1996), 675-697.
- [45] M. König, Präzisionsmassenbestimmung instabiler Cäsium- und Bariumisotope in einer Penningfalle und Untersuchung der Ionenbewegung bei azimuthaler Quadrupolanregung, Dissertation Universität Mainz (1995).
- [46] G. Werth, Ion traps and their application in spectroscopy, Hyp. Int. 99 (1996), 3-30.
- [47] G. Savard et al., A new cooling technique for heavy ions in a Penning trap, Phys. Lett. A158 (1991), 247-252.
- [48] G. Gräff et al., Method for Measuring the Anomalous Magnetic Moment of Free Electrons, Z. Phys. 222 (1969), 201.
- [49] G. Gräff et al., A Direct Determination of the Proton Electron Mass Ratio, Z. Phys. 297 (1980), 35-39.

- [50] M. König et al., Quadrupole excitation of stored ion motion at the true cyclotron frequency, Int. J. Mass Spec. 142 (1995), 95-116.
- [51] D. Beck, Massenbestimmung instabiler Isotope der Seltenen Erden um <sup>146</sup>Gd mit dem ISOLTRAP-Spektrometer, Dissertation Universität Mainz (1997), 25.
- [52] E. Kugler et al., The new CERN-ISOLDE on-line mass-separator facility at the PS-Booster, Nucl. Instr. Meth. B70 (1992), 41-49.
- [53] E. Kugler, *The ISOLDE facility*, Hyp. Int. **129** (2000), 23-42.
- [54] D. Forkel-Wirth, G. Bollen, ISOLDE A Laboratory Portrait, Hyp. Int. 129 (2000).
- [55] F. Herfurth et al., A linear radiofrequency ion trap for accumulation, bunching, and emittance improvement of radioactive ion beams, Nucl. Instr. Meth. A469 (2001), 254-275.
- [56] H. Raimbault-Hartmann et al., A cylindrical Penning trap for capture, mass selective cooling, and bunching of radioactive ion beams, Nucl. Instr. Meth. B126 (1997), 378-382.
- [57] H. Stolzenberg, Präzisionsmassenbestimmung instabiler Cäsium- und Bariumisotope mit Hilfe einer Penningfalle, Dissertation Universität Mainz (1992).
- [58] T. Otto, Penningfallenmassenspektrometrie an neutronenarmen Rubidiumund Strontium-Isotopen, Dissertation Universität Mainz (1993).
- [59] G. Gabrielse, Relaxation calculation of the electrostatic properties of compensated Penning traps with hyperbolic electrodes, Phys. Rev. A27 (1983), 2277-2290.
- [60] F. Herfurth, Ein neuer Ionenstrahlkühler und -pulser für ISOLTRAP und Massenmessungen an radioaktiven Argonisotopen, Dissertation Universität Heidelberg (2001), GSI-Druck: DISS. 2001-05 Mai.
- [61] U. Köster (ISOLDE-CERN, Genf), persönliche Mitteilung 2002.
- [62] http://isolde.web.cern.ch/ISOLDE/, Yield Infomation.
- [63] G. Bollen et al., Resolution of nuclear ground and isomeric states by a Penning trap mass spectrometer, Phys. Rev. C46 (1992), R2140-R2143.
- [64] G. Audi, O. Bersillon, J. Blachot and A.H. Wapstra, The Nubase evaluation of nuclear and decay properties, Nucl. Phys. A624 (1997), 1-124.
- [65] A. Kellerbauer et al., From Direct to Absolute Mass Measurements: A Study of the Accuracy of ISOLTRAP, CERN-EP/2002-047, eingereicht bei Eur. Phys. J. D.

- [66] L. G. Smith and A. H. Wapstra, Masses of isotopes of H, He, C, N, O, and F, Phys. Rev. C11 (1975), 1392-2000.
- [67] CODATA Internationally recommended values of the Fundamental Physical Constants (1998), http://physics.nist.gov/cuu/Constants/.
- [68] G. Audi, A. H. Wapstra and M. Dedieu The 1993 atomic mass evaluation (IV). Evaluation of input data, adjustment procedures, Nucl. Phys. A565 (1993), 193-397.
- [69] G. Audi, Vorlesungsskript: Comment peut-on Evaluer les Masses Atomiques, http://www-csnsm.in2p3.fr/AMDC/masstables/spa.pdf (2001).
- [70] A. S. Lalleman et al., Mass Measurements of Exotic Nuclei around N = Z = 40 with CSS2, Hyp. Int. **132** (2001), 315-322.
- [71] E. Reockl, Decay properties of  $N \approx Z$  nuclei, Eur. Phys. J. A15 (2002), 139-144.
- [72] J. Y. Zhang et al., Empirical proton-neutron interaction energies. Linearity and saturation phenomena, Phys. Lett. B277 (1989), 1-5.
- [73] W. T. Chou et al., Shell structure in empirical p-n interactions: comparison with Nilson and shell model calculations, Phys. Lett. B255 (1991), 487-492.
- [74] D. S. Brenner et al., Empirical p-n interactions: global trends, configuration sensitivity and N = Z enhancements, Phys. Lett. **B243** (1990), 1-6.
- [75] G. Streletz et al., Valence correlation scheme for single nucleon separation energies, Phys. Rev. C54 (1996), R2815-R2819.
- [76] E. Wigner, On the Consequences of the Symmetry of the Nuclear Hamiltonian on the Spectroscopy of Nuclei, Phys. Rev. 51 (1937), 106-119.
- [77] F. Hund, Z. Phys. **105** (1937), 202.
- [78] P. Van Isacker, et al., Test of Wigner's Spin-Isospin Symmetry from Double Binding Energy Differences, Phys. Rev. Lett. 74 (1995), 4607-4610.
- [79] W. Satula, et al., On the origin of the Wigner energy, Phys. Lett. B 407 (1997), 103-109.
- [80] T. Otto et al., Penning-trap mass measurements of neutron-deficient Rb and Sr isotopes, Nucl. Phys. A567 (1994), 281-302.
- [81] U. Köster (ISOLDE-CERN, Genf), persönliche Mitteilung 2001.
- [82] S. Brandt, Datenanalyse mit statistischen Methoden und Computerprogrammen, Bilbliographisches Institut Zürich <sup>2</sup>(1981), 79f.

- [83] B. G. Kiselev et al., Decay of long-lived isomers of Sb<sup>128</sup> and Sb<sup>130</sup>, Soviet Journal of Nuclear Physics 14 (1972), 139-264.
- [84] L. L. Nunnelley and W. D. Loveland, Reexamination of the β<sup>-</sup> decay of <sup>130</sup> Sn, Phys. Rev. C15 (1977), 444-446.
- [85] E. Lund et al., Total  $\beta$ -decay energies and masses of tin, antimony and tellurium isotopes in the vicinity of  ${}^{132}_{50}Sn_{82}$ , Nucl Phys A286 (1977), 403-419.
- [86] U. Stöhlker et al.,  $Q_{\beta}$ -Measurements of indium, tin and antimony isotopes with masses A = 128 and 130, Z. Phys. A336 (1990), 369-374.
- [87] W. B. Walters and C. A. Stone, Structure of the odd-odd fission-product nuclide <sup>130</sup>Sb, presented at the workshop on Nuclear Fission and Fission-Product Spectroscopy, Seyssins (France), (1994).
- [88] Y. V. Sergeenkov, Nuclear Data Sheets for A = 130, Nucl. Data Sheets 58 (1989), 765.
- [89] B. Fogelberg and J. Blomqvist, Identification of the complete set of singlehole states in <sup>131</sup>Sn, Phys. Lett. B137 (1984), 20-22.
- [90] J. Genevey und J. A. Pinston (Institut des Sciences Nucleaires, Grenoble), persönliche Mitteilung 1999.
- [91] J. Blomqvist, Proceedings of the 4th International Conference on Nuclei far from Stability, Helsingor, Denmark (CERN report 81-09, Geneva, 1981), 536.
- [92] G. A. Leander et al., Phys. Rev. C30 (1984), 416.
- [93] K. A. Mezilev et al., Phys. Scr. **T56** (1995).
- [94] C. T. Zhang et al., Yrast Excitations around Doubly Magic <sup>132</sup>Sn from Fission Product  $\gamma$ -Ray Studies, Phys. Rev. Lett. **77** (1996), 3743-3746.
- [95] B. Fogelberg et al., Precise Atomic Mass Values near <sup>132</sup>Sn: The Resolution of a Puzzle, Phys. Rev. Lett. 82 (1999), 1823-1826.
- [96] G. Bollen, Mass measurements of short-lived nuclides with ion traps, Nucl. Phys. A693 (2001), 3-18.
- [97] K. Blaum et al., Carbon clusters for absolute mass measurements at ISOL-TRAP, Eur. Phys. J. A15 (2002), 245-248.
- [98] F. Herfurth et al., Accurate mass measurements of very short-lived nuclei, Eur. Phys. J. A15 (2002), 17-20.
- [99] G. Münzenberg et al., The velocity filter SHIP, a separator of unslowed heavy ion fusion products, Nucl. Instr. Meth. 161 (1979), 65-82.

- [100] Die SHIPTRAP-Kollaboration, Proposal for SHIPTRAP, a capture and storage facility at GSI for heavy radionuclides from SHIP.
- [101] J. Neumayr, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München, in Vorbereitung.
- [102] J. Dilling, Direkte Massenmessungen an exotischen Kernen mit SHIP-TRAP und ISOLTRAP, Dissertation, Universität Heidelberg (2001), GSI-Druck: DISS. 2001-10 Juli.
- [103] D. Rodríguez-Rubiales, Dissertation, Universität Valencia (Spanien), in Vorbereitung.
- [104] H. Wollnik, *Optics of charged particles*, Academic Press, London (1987).
- [105] G. Gabrielse et al., Cylindrical Penning traps with orthogonalized anharmonicity compensation, Int. J. Mass Spec. 57 (1984), 1-17.
- [106] C. Weber, Dissertation, Universität Heidelberg, in Vorbereitung.
- [107] S. Rahaman, Dissertation, Universität Heidelberg, in Vorbereitung.
- [108] M. Mukherjee, Dissertation, Universität Heidelberg, in Vorbereitung.

#### LITERATURVERZEICHNIS

### Danksagung

Dem fertig werdenden Doktoranden bietet sich an dieser Stelle eine besondere Gelegenheit, seine Dankbarkeit auszudrücken. So will auch ich nicht versäumen, einige zu erwähnen, denen ich verdanke, daß ich meine Doktorarbeit so durchführen und niederschreiben konnte, wie sie nun vorliegt.

Beginnen möchte ich mit meinem Betreuer und "Doktorvater" Prof. Dr. H.-Jürgen Kluge. Ihm verdanke ich das Thema meiner Arbeit, die Arbeitsgruppe und die Mittel zum Aufbau unseres Experiments. Darüberhinaus erachte ich die Unterstützung und Förderung, die ich erfahren habe, als außergewöhnlich. Speziell meine Abordnung ans CERN im Sommer 1999 war nicht nur eine schöne und ereignisreiche Phase in meinem Leben, sondern stellt eine wichtige Grundlage der vorliegenden Arbeit dar.

Das führt mich zur nächsten Gruppe von Leuten, denen ich zu großem Dank verpflichtet bin. Die ISOLTRAPper um Prof. Dr. Georg Bollen und Dr. Frank Herfurth haben mir erlaubt, mit ihrem Experiment zu "spielen" und damit die nötige Erfahrung hinsichtlich Ionenfallen zu sammeln. Dort habe ich viel über die "schmutzigen Details" gelernt, die beim Bau und der Inbetriebnahme einer Fallenanlage sehr wichtig sind aber in keiner Veröffentlichung geschweige denn in Lehrbüchern zu finden sind. Auch über die Zeit meines Aufenthalts bei ISOLDE hinaus haben mich die ISOLTRAPper weiterhin gut unterstützt und stets ermutigt.

Concerning the new ISOLTRAP data on the investigated Sr and Sn isotopes I would like to thank Georges Audi, too. Including the new values into the atomic mass evaluation was for me both an interesting and fruitful collaboration. In the treatment of the deviations between our new values and older reported ones I appreciated his continuous support very much. Merci Georges.

Den größten Teil meines Doktorandendaseins habe ich an der GSI in Darmstadt verbracht. Es erscheint mir unmöglich, alle mir und unserer Anlage gewährte Hilfe und Unterstützung ausreichend zu würdigen. Mein größter Dank gilt den SHIPTRAPpern selbst. In unzähligen fruchtbaren Diskussionen, beim Aufbau der Anlage und bei den ersten Strahlzeiten durfte ich nahezu immer das Gefühl haben, daß am Ende ja doch alles gut wird. Stellvertretend für alle ehemaligen und derzeitigen Gruppenmitglieder seien lediglich meine Dokrorandenkollegen erwähnt, da sie mir hinsichtlich der Laborarbeit und dem geteilten Schicksal natürlich am Nähesten stehen: Jens Dilling, Daniel Rodríguez, Christine Weber, Saidur Rahaman und Manas Mukherjee. Nur Mut Leute. Ihr wißt ja: Am Ende...

Die Infrastruktur der GSI stand mir beim Aufbau der Transferstrecke und der Penningfallen zumeist mit gutem Rat und hilfreicher Tat zur Seite. Auch hier würde der Versuch einer Aufzählung nur zu einer Beleidigung der meisten Personen führen, die mich unterstützt haben. Allerdings möchte ich dennoch die feinmechanische Werkstatt der GSI erwähnen. Dem Verständnis, der Geduld und den Ratschlägen von Herrn M. Romig und Herrn L. Schmiedler aber auch der Flexibilität aller ihrer Mitarbeiter ist es zu verdanken, daß ich viel gelernt habe und meine "Physiker-Zeichnungen" verstanden wurden. Bitte nicht erschrecken, aber aufgrund des freundlichen Umgangs und der sehr guten Zusammenarbeit wünsche ich mir manchmal, wieder etwas zu konstruieren und Ihre Werkstatt damit zu betrauen.

Was hat mir während der letzten fast vier Jahre immer wieder zur Energie und Motivation zum Weitermachen verholfen und ist daher Bereicherung für mein Lebensgefühl und maßgebliche Ursache für die Fertigstellung der vorliegenden Arbeit? Ihr seid es, meine lieben Freunde. Ich weiß Eure Zuwendung und Unterstützung zu würdigen and appreciate in the same way the support from my friends who do not understand German well enough (yet).

Darmstadt, im Dezember 2002,

Günther Sikler