

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

vorgelegt von  
Dipl.–Phys. Christine Weber  
aus Mainz

Tag der mündlichen Prüfung: 12.02.2004



**Konzeption eines kryogenen  
Penningfallenaufbaus für SHIPTRAP und  
Massenbestimmungen von Radionukliden um den  
 $Z = 82$  – Schalenabschluss an ISOLTRAP**

Gutachter:

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



### **Konzeption eines kryogenen Penningfallenaufbaus für SHIPTRAP und Massenbestimmungen von Radionukliden um den $Z = 82$ – Schalenabschluss an ISOLTRAP:**

Mit den Penningfallen–Massenspektrometern SHIPTRAP/GSI und ISOLTRAP/CERN können präzise Massenbestimmungen von instabilen, exotischen Nukliden durchgeführt werden. Folgende Nachweismethoden werden vorgestellt: die destruktive Flugzeitmethode (TOF–ICR) und die zerstörungsfreie Fouriertransformations–Ionenzyklotronresonanz–Methode (FT–ICR). An SHIPTRAP sind Experimente an transuranen Elementen geplant. Ihre niedrigen Erzeugungsraten stellen jedoch eine Limitierung für experimentelle Untersuchungen dar. Der *empfindliche* FT–ICR–Nachweis erlaubt eine Identifizierung der gespeicherten Ionen sowie die Massenbestimmung an einem einzelnen, einfach geladenen und schweren Ion. Ziel dieser Arbeit war es, ein solches System aufzubauen. Es besteht aus einer mit flüssigem Stickstoff gekühlten Vakuumapparatur in der Bohrung eines supraleitenden Magneten mit einem System aus zwei Penningfallen – Reinigungsfalle und Messfalle – und einem flüssig Helium–Dewar zum Betreiben einer supraleitenden Induktivität, die für den hochempfindlichen Nachweis notwendig ist.

An ISOLTRAP erfolgt der Nachweis der resonanten Anregung der Zyklotronfrequenz mit der Flugzeitmethode. Es wurden die atomaren Massen der Radionuklide  $^{145,147}\text{Cs}$ ,  $^{181,183,186m,187x,196m,205}\text{Tl}$ ,  $^{187,187m,197,208}\text{Pb}$ ,  $^{190-197,209,215,216}\text{Bi}$ ,  $^{203,205,229}\text{Fr}$  und  $^{214,229,230}\text{Ra}$  experimentell bestimmt. Die relative Massenunsicherheit beträgt typischerweise einige  $10^{-8}$ . Die Messergebnisse wurden in die Datentabelle der “Atomic Mass Evaluation” integriert und eine atomare Massen Anpassung durchgeführt. Die Separationsenergien zeigen den erwarteten globalen Trend, allerdings werden bei den Thallium– und Quecksilberisotopen Abweichungen vom linearen Verlauf beobachtet. Diese können auf unerwartete Kernstruktureffekte hindeuten, wie sie auch in kern– und laserspektroskopischen Experimenten beobachtet wurden.

### **Conceptual Design of a Cryogenic Penning Trap Set–Up for SHIPTRAP and Mass Determination of Radionuclides around the $Z = 82$ – Shell Closure with ISOLTRAP:**

The Penning trap mass spectrometers SHIPTRAP/GSI and ISOLTRAP/CERN enable precise mass determination of unstable, exotic nuclei. The following detection methods are presented: the destructive time–of–flight method (TOF–ICR) and the non–destructive Fourier Transform–Ion Cyclotron Resonance method (FT–ICR). Planned experiments with SHIPTRAP focus on transuranium elements whose low production limit their experimental investigation. The *sensitive* FT–ICR–detection allows the identification of stored ions as well as their mass determination. Within this thesis, a cryogenic Penning trap set–up has been designed and constructed, in order to detect and to observe the cyclotron frequency of a single singly-charged heavy ion. It consists of a vacuum system at liquid nitrogen temperature in the bore of a superconducting magnet housing a double trap set–up, a purification trap and a measurement trap. A superconducting inductivity in a liquid-helium dewar provides extreme sensitivity for detection of the cyclotron frequency.

At ISOLTRAP the resonant excitation at the cyclotron frequency is detected by the time–of–flight method. Atomic masses of the radionuclides  $^{145,147}\text{Cs}$ ,  $^{181,183,186m,187x,196m,205}\text{Tl}$ ,  $^{187,187m,197,208}\text{Pb}$ ,  $^{190-197,209,215,216}\text{Bi}$ ,  $^{203,205,229}\text{Fr}$  and  $^{214,229,230}\text{Ra}$  were determined experimentally with a relative mass uncertainty of typically some  $10^{-8}$ . The results were included into the Atomic Mass Evaluation and a mass adjustment was conducted. Resulting separation energies show the expected global trend, whereas thallium and mercury isotopes reveal a deviation from this linear behaviour. This could point to unexpected nuclear structure effects as observed in nuclear and laser spectroscopic experiments.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>9</b>
<b>2</b>	<b>Theoretische Grundlagen der Penningfalle</b>	<b>13</b>
2.1	Die ideale Penningfalle . . . . .	13
2.2	Die reale Penningfalle . . . . .	15
2.2.1	Elektrische Feldfehler . . . . .	16
2.2.2	Magnetische Feldfehler . . . . .	17
2.2.3	Asymmetrie der Fallengeometrie und Fehljustage . . . . .	17
2.2.4	Einfluss von gespeicherten Ionen anderer Massen . . . . .	17
2.3	Anregung der Ionenbewegung . . . . .	18
2.3.1	Dipolanregung . . . . .	19
2.3.2	Quadrupolanregung . . . . .	19
2.4	Kühlmethoden für gespeicherte Ionen . . . . .	20
2.4.1	Puffergaskühlen . . . . .	20
2.4.2	Widerstandskühlen . . . . .	21
<b>3</b>	<b>Nachweismethoden gespeicherter Ionen</b>	<b>23</b>
3.1	Destruktiver Ionennachweis mit der Flugzeitmethode . . . . .	23
3.1.1	Motivation für den Flugzeitnachweis . . . . .	23
3.1.2	Grundprinzip des Flugzeitnachweises . . . . .	24
3.1.3	Auflösungsvermögen des Flugzeitnachweises . . . . .	24
3.1.4	Experimentelles Verfahren des Flugzeitnachweises . . . . .	25
3.2	Nichtdestruktiver Ionennachweis mittels FT-ICR . . . . .	25
3.2.1	Motivation für den nichtdestruktiven Nachweis . . . . .	25
3.2.2	Grundprinzip des nichtdestruktiven Nachweises . . . . .	25
3.2.3	Auflösungsvermögen des nichtdestruktiven Nachweises . . . . .	27
3.2.4	Experimentelles Verfahren des nichtdestruktiven Nachweises . . . . .	27
3.2.5	Motivation: Der Einzelionennachweis . . . . .	29
3.2.6	Abschätzung des Signal–Rausch–Verhältnisses für den Einzelionennachweis bei SHIPTRAP . . . . .	30
3.3	Vergleich beider Nachweismethoden . . . . .	31
<b>4</b>	<b>Das Penningfallen–Massenspektrometer SHIPTRAP und Konzeption eines kryogenen Fallensystems</b>	<b>35</b>
4.1	Motivation für Massenmessungen an SHIPTRAP . . . . .	35
4.2	Der experimentelle Aufbau von SHIPTRAP . . . . .	38
4.2.1	Das Geschwindigkeitsfilter SHIP . . . . .	39
4.2.2	Die Gaszelle mit Extraktions–RFQ . . . . .	40

4.2.3	Der SHIPTRAP RFQ-Kühler . . . . .	41
4.2.4	Die SHIPTRAP Penningfallen . . . . .	42
4.2.5	Die Driftstrecke zum Flugzeitnachweis . . . . .	43
4.3	Der kryogene Penningfallenaufbau von SHIPTRAP . . . . .	44
4.3.1	Die kryogene Vakuumapparatur . . . . .	45
4.3.2	Die kryogenen SHIPTRAP-Penningfallen . . . . .	48
4.3.3	Die Driftstrecke zum Flugzeitnachweis . . . . .	50
4.3.4	Das elektronische Nachweissystem . . . . .	51
<b>5</b>	<b>Massenbestimmung instabiler Nuklide um <math>^{208}\text{Pb}</math> mit ISOLTRAP</b>	<b>55</b>
5.1	Motivation für Massenmessungen in der Region um $^{208}\text{Pb}$ . . . . .	55
5.2	Der Aufbau des ISOLTRAP-Experiments . . . . .	56
5.2.1	Der On-Line Isotopenseparator ISOLDE . . . . .	57
5.2.2	Der ISOLTRAP RFQ-Kühler bei 60 kV . . . . .	59
5.2.3	Die ISOLTRAP Kühlerfalle . . . . .	60
5.2.4	Die ISOLTRAP Präzisionsfalle . . . . .	60
5.3	Massenmessungen mit der Flugzeitmethode an ISOLTRAP . . . . .	62
5.3.1	Die Strahlzeit zur Bereitstellung der radioaktiven Nuklide . . . . .	62
5.3.2	Zeitlicher Ablauf einer Frequenzbestimmung . . . . .	63
5.4	Experimentelle Ergebnisse . . . . .	64
5.4.1	Bestimmung der Frequenzverhältnisse und deren Fehler . . . . .	64
5.4.2	Zuordnung der Massenwerte zu den isomeren Zuständen . . . . .	69
5.5	Atomare Massenauswertung . . . . .	84
5.5.1	Die Eingangsdaten . . . . .	87
5.5.2	Ergebnisse der atomaren Massen Anpassung . . . . .	92
5.6	Diskussion . . . . .	99
5.7	Ausblick . . . . .	104
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>107</b>
<b>A</b>	<b>Die kryogene Penningfalle</b>	<b>111</b>
<b>B</b>	<b>Zyklotronresonanzen</b>	<b>117</b>

# Kapitel 1

## Einleitung

Die Masse eines Atomkerns ist eine fundamentale Größe der Kernphysik. In ihr spiegelt sich die Bindungsenergie  $BE$  aller Nukleonen wider. Diese ist durch

$$BE(Z, N) = Z \cdot M_p + N \cdot M_n - M(Z, N), \quad (1.1)$$

den Unterschied zwischen der Gesamtmasse  $M(Z, N)$  eines Kerns und der Summe der Massen von  $Z$  Protonen  $M_p$  und  $N$  Neutronen  $M_n$  gegeben.

Mit Massenbestimmungen von *instabilen* Nukliden können systematische Untersuchungen der Kernbindungsenergie in Abhängigkeit von der Nukleonenzahl vorgenommen werden. Sie geben einen Hinweis auf die Summe der im Kern wirkenden Kräfte. Da bislang eine exakte Theorie der starken Wechselwirkung fehlt und wegen der Komplexität des Vielteilchensystems eines Atomkerns, gibt es keine ab-initio Berechnungsmöglichkeit der Kernbindungsenergie. Vielmehr ist man auf Modellbeschreibungen oder Massenformeln angewiesen. Letztere haben freie Parameter, die durch eine Anpassung an experimentelle Werte bestimmt sind. Daher zeigt der Vergleich von Massenmodellen zu experimentell bekannten Werten i.A. eine gute Übereinstimmung, während Werte aus Vorhersagen meist stark voneinander abweichen. Eine Übersicht von experimentellen Methoden zur Massenbestimmung sowie von theoretischen Modellansätzen ist in [Lunn2003] ausführlich dargestellt.

Die aus dem semi-empirischen Tröpfchenmodell des Atomkerns abgeleitete Weizsäcker-Massenformel [Weiz1935] beschreibt ein globales, stetiges Verhalten der Kernbindungsenergie pro Nukleon mit einem Durchschnittswert von etwa 8 MeV/u. Aus den genauen experimentellen Massendaten lassen sich die Separationsenergien für einzelne Kernbausteine extrahieren, was einer Differenzierung der Bindungsenergie entspricht. Hierdurch werden die Gebiete auf der Nuklidkarte, in denen sich die Bindungsenergien stark ändern, sichtbar. Gründe sind die Schalenstruktur der Kerne, Paarungskräfte zwischen gleichartigen Nukleonen oder Regionen mit vorliegender Kerndeformation. Das Vorzeichen von Einteilchenseparationsenergien gibt einen Hinweis über die Grenzen der Stabilität, bzw. die Lage der sogenannten Abbruchkanten (engl.: driplines). Um solche Effekte zu sehen, muß in der Regel eine Genauigkeit der Massenbestimmung von  $\delta m/m = 10^{-6}$  erreicht werden. Zur Untersuchung der Feinstruktur in der Bindungsenergie und zur massenspektrometrischen Trennung isomerer Kernzustände sind höhere Genauigkeiten von mindestens  $\delta m/m \approx 10^{-7}$  erforderlich.

Für einzelne Nuklide ist sogar die präzise Kenntnis ihrer Massen im Bereich von wenigen  $10^{-8}$  erwünscht. Mit übererlaubten  $0^+ \rightarrow 0^+$   $\beta$ -Zerfällen lassen sich beispielsweise Untersuchungen zur schwachen Wechselwirkung durchführen. Da der Axialvektor-Anteil in diesen Übergängen Null ist, lässt sich die Kopplungskonstante des vektoriellen Anteils  $G_V$  direkt aus den  $ft$ -Werten

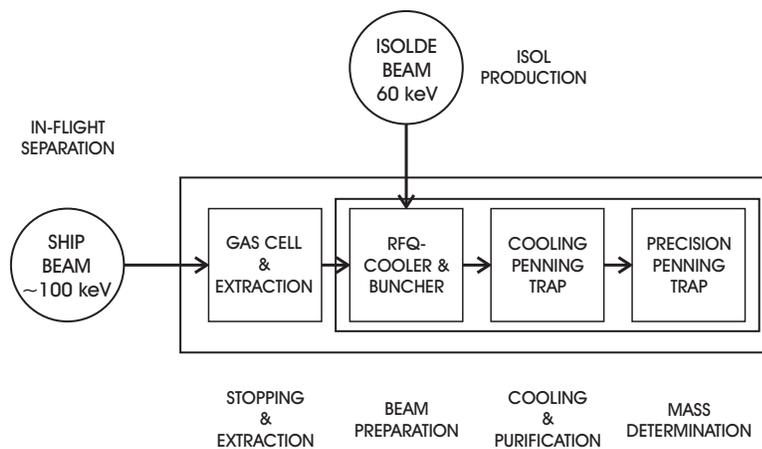


Abbildung 1.1: Schema der Penningfallenmassenspektrometer ISOLTRAP an ISOLDE/CERN und SHIPTRAP an SHIP/GSI. Die drei hinteren Teile, RFQ-Kühler und -Buncher, Reinigungsfalle (Cooling Penning Trap) und Präzisionsfalle sind Bestandteil beider Experimente. An ISOLTRAP werden die Radionuklide durch die ISOL-Methode produziert. Das Geschwindigkeitsfilter SHIP stellt Ionen bei einer höheren Energie von mehreren hundert keV zur Verfügung. Diese werden zuerst in einer Gaszelle gestoppt und mittels elektrischer Felder innerhalb von wenigen Millisekunden extrahiert.

bestimmen [Hard2001, Herf2002]. Ist sie für die  $Q$ -Werte von  $0^+ \rightarrow 0^+$   $\beta$ -Zerfällen verschiedener Nuklide gleich, wird die Hypothese zur Erhaltung des schwachen Stromes (CVC, conservation of the weak vector current) bestätigt. Die hierfür erforderliche Massengenauigkeit für Mutter- und Tochterkern von  $\delta m/m \leq 3 \cdot 10^{-8}$  wird derzeit nur von dem Penningfallen-Experiment ISOLTRAP an ISOLDE/CERN erreicht.

Höchste Präzision wird bei Messgrößen erzielt, die über eine Frequenzbestimmung zugänglich sind. In der Massenspektrometrie geschieht dies durch die Messung der Zyklotronfrequenz von gespeicherten Ionen in einer Penningfalle. Sollen instabile Nuklide untersucht werden, müssen diese zuerst produziert und für die Messung vorbereitet werden. Man unterscheidet zwischen der on-line Isotopentrennung (engl.: isotope separation on-line) (ISOL) und der Separation im Fluge (engl.: in-flight separation), wobei je nach Projektilenergie Fusions- bzw. Fragmentations- und Coulombdissoziationsreaktionen stattfinden.

Die ISOL-Methode basiert auf der Produktion exotischer Nuklide über Spallation, Fragmentation oder Spaltung in einem dicken Target, das durch einen Protonenstrahl beschossen wird. Die so erzeugten Radionuklide diffundieren aus dem Target in eine Ionenquelle, wo sie ionisiert werden. Der Isotopenseparator ISOLDE [Kugl2000] am CERN in Genf ist ein Beispiel einer ISOL-Anlage. Hier wurden erste Massenmessungen an on-line produzierten Radionukliden mit dem ISOLTRAP-Experiment durchgeführt [Boll1987]. Mit der ISOL-Methode können Elemente bis zu Radium ( $Z = 88$ ) bereitgestellt werden.

Bei der in-flight Methode passiert ein Ionenstrahl ein dünnes Target und die resultierenden Spalt- und Projektilfragmente bzw. Fusionsprodukte fliegen in Vorwärtsrichtung weiter. Sie werden entweder nach ihrer magnetischen Steifigkeit  $B\rho$  oder ihrer Geschwindigkeit getrennt. Ein Beispiel für die Trennung von Projektilfragmenten in einem magnetischen Spektrometer ist der Fragmentseparator FRS [Geis1992] der GSI Darmstadt. SHIP [Münz1979] an der GSI, als Beispiel für ein Geschwindigkeitsfilter, ist für die Erzeugung der schwersten Elemente des Periodensystems bekannt.

Am Penningfallen Massenspektrometer SHIPTRAP sollen transurane Nuklide untersucht werden. Abbildung 1.1 zeigt den funktionalen Aufbau beider Massenspektrometer – ISOLTRAP und SHIPTRAP. In beiden Experimenten werden die produzierten exotischen Ionenstrahlen abgebremst, gekühlt und nach Isobaren separiert. Anschließend wird die Masse einzelner Nuklide in der Präzisionsfalle bestimmt.

Das Thema dieser Arbeit ist die Massenbestimmung von Radionukliden in einer Penningfalle am Beispiel von ISOLTRAP und SHIPTRAP, wozu in Kap. 2 die Grundlagen dieser Speichertechniken gelegt werden. Anschließend werden in Kap. 3 zwei verschiedene Nachweismethoden zur Frequenzbestimmung von gespeicherten Ionen beschrieben. Aufgrund der geringen Produktionsraten für Radionuklide am Geschwindigkeitsfilter SHIP ist ein sensitiver Nachweis für einzelne Ionen erforderlich. Das SHIPTRAP-Experiment und die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte Konzeption eines Einteilchennachweises für einfach geladene, schwere Ionen sind in Kap. 4 beschrieben. Mit dem ISOLTRAP-Massenspektrometer wurden die Massen von schweren Radionukliden im Bereich des  $Z = 82$ -Schalenabschlusses bestimmt und eine atomare Massen Anpassung durchgeführt. Die hierbei erreichte Präzision liegt meist im Bereich von einigen  $10^{-8}$ . Diese Messungen werden in Kap. 5 vorgestellt und diskutiert. Schließlich werden in Kap. 6 die Ergebnisse dieser Arbeit zusammengefasst und ein Ausblick über zukünftige Messungen an ISOLTRAP und SHIPTRAP gegeben.



## Kapitel 2

# Theoretische Grundlagen der Penningfalle

Dieses Kapitel behandelt die theoretischen Grundlagen zur Speicherung eines geladenen Teilchens in einer idealen Penningfalle. Abweichungen von den idealen Speicherbedingungen durch die Speicherfelder selbst, sowie durch die Anwesenheit von mehreren Ionensorten werden betrachtet. Die notwendigen Schritte zur geeigneten Präparation und Frequenzbestimmung der gespeicherten Ionen werden aufgezeigt. Dies sind gezielte Anregungs- bzw. Kühlmechanismen zur Manipulation der Ionenbewegung. Eine ausführliche Beschreibung des Systems eines geladenen Teilchens in einer Penningfalle befindet sich in dem Übersichtsartikel von L.S. Brown und G. Gabrielse [Brow1986] sowie in [Boll1990] im Hinblick auf Massenbestimmungen. In diesem Kapitel sind die wesentlichen Merkmale kurz aufgezeigt.

### 2.1 Die ideale Penningfalle

Die dreidimensionale Speicherung eines geladenen Teilchens in einer Penningfalle beruht auf seiner Bewegung im elektromagnetischen Feld. Befindet sich ein Teilchen der Ladung  $q$  und der Masse  $m$  in einem starken, homogenen Magnetfeld  $B$ , das in  $z$ -Richtung zeigt, so bewegt es sich mit der Zyklotronfrequenz

$$\omega_c = \frac{q}{m} B \quad (2.1)$$

auf Kreisbahnen um die magnetischen Feldlinien und ist somit in radialer Richtung gebunden. Eine Speicherung in *allen* Raumrichtungen erhält man durch die zusätzliche Überlagerung eines schwachen, elektrostatischen Quadrupolpotentials der Form

$$V(z, \rho) = \frac{V_0}{2d^2} \left( z^2 - \frac{1}{2} \rho^2 \right), \quad (2.2)$$

gegeben in zylindrischen Koordinaten.

Ein solches Potential kann durch eine Elektrodengeometrie von drei Rotationshyperboloiden erreicht werden, deren Oberflächen den Äquipotentialflächen identisch sind. Abbildung 2.1 (a) zeigt die geometrische Anordnung einer hyperbolischen Penningfalle, bestehend aus einer geschlossenen Ringelektrode und den beiden Endkappen. Mit anderen Käfigformen, wie z.B. der zylindrischen Falle in Abb. 2.1 (b) mit offenen Zylinderelementen als Elektroden, läßt sich ebenso ein speicherndes Potential in axialer Richtung erzeugen.  $V_0$  ist die angelegte Fallenspannung entsprechender Polarität zwischen der Ringelektrode und den beiden Endelektroden mit dem jeweiligen

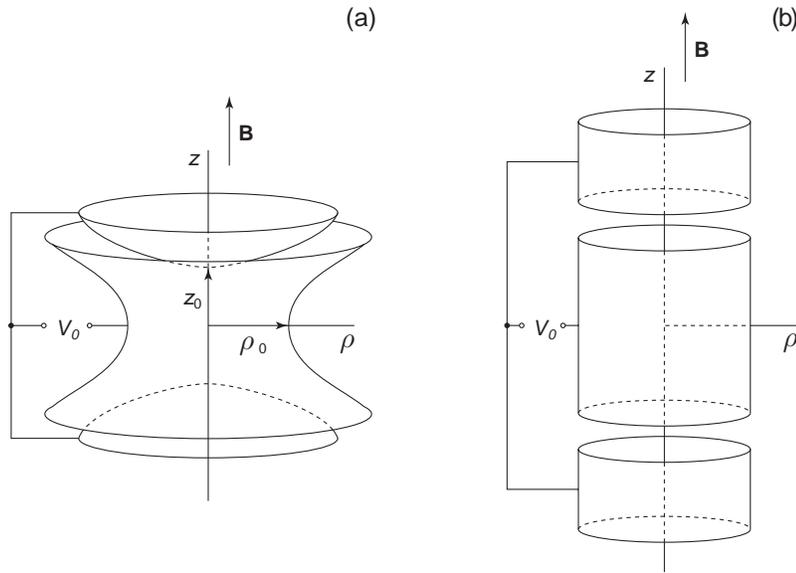


Abbildung 2.1: Penningfalle mit hyperbolischen (a) und zylindrischen (b) Elektroden. Das Magnetfeld ist jeweils entlang der Fallennachse gerichtet. Zur Speicherung wird zwischen der Ringelektrode und den Endkappen die Fallenspannung  $V_0$  entsprechender Polarität angelegt.

Minimalabstand  $\rho_0$  bzw.  $z_0$  zum Fallenzentrum. Die Größe

$$d^2 = \frac{1}{2} \left( z_0^2 + \frac{\rho_0^2}{2} \right) \quad (2.3)$$

ist ein Maß für die Dimension der Falle.

Löst man die Bewegungsgleichungen [Brow1986] für alle Raumkoordinaten,

$$m\ddot{z} = qE_z \quad \text{und} \quad m\ddot{\vec{\rho}} = q \left( \vec{E}_\rho + \dot{\vec{\rho}} \times \vec{B} \right), \quad (2.4)$$

mit den elektrischen Feldstärken

$$E_z = -\frac{V_0}{d^2} z \quad \text{und} \quad \vec{E}_\rho = \left( \frac{V_0}{2d^2} \right) \vec{\rho}, \quad (2.5)$$

so erhält man als resultierende Bewegung die Überlagerung dreier entkoppelter Schwingungen (siehe Abb. 2.2) mit den charakteristischen Eigenfrequenzen

$$\omega_z = \sqrt{\frac{qV_0}{md^2}} \quad \text{und} \quad \omega_{\pm} = \frac{\omega_c}{2} \pm \sqrt{\frac{\omega_c^2}{4} - \frac{\omega_z^2}{2}}. \quad (2.6)$$

Die harmonische, axiale Schwingung mit der Frequenz  $\omega_z$  ist von der angelegten Fallenspannung  $V_0$  und den Geometrieparameter  $d$  abhängig. Die Bewegung in der Radialebene besteht aus den beiden überlagerten Kreisbewegungen mit einer schnellen reduzierten Zyklotronfrequenz  $\omega_+$  und einer langsamen Magnetronfrequenz  $\omega_-$ . Eine Reihenentwicklung der radialen Eigenfrequenzen liefert die folgende Beziehungen:

$$\omega_- \approx \frac{V_0}{2d^2 B} \quad (2.7)$$

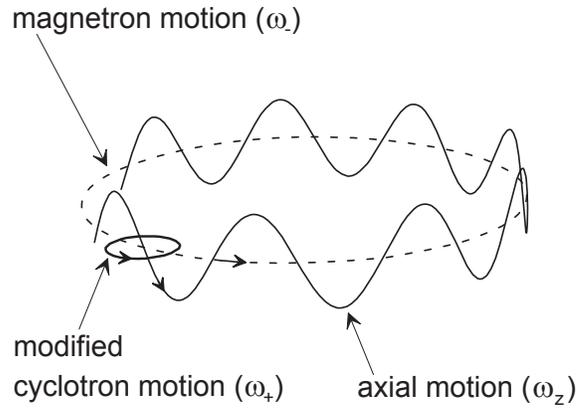


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der drei idealerweise unabhängigen Eigenbewegungen eines gespeicherten Teilchens in einer Penningfalle: Eine harmonische Schwingung im speichernden elektrischen Potential in axialer Richtung ( $\omega_z$ ), sowie die Überlagerung einer schnellen Kreisbewegung mit der reduzierten Zyklotronfrequenz ( $\omega_+$ ) und der langsamen Magnetronbewegung ( $\omega_-$ ) in der Radialebene.

und

$$\omega_+ \approx \omega_c - \frac{V_0}{2d^2B}, \quad (2.8)$$

für die radialen Eigenfrequenzen. Dies zeigt, dass die Magnetronfrequenz in erster Näherung unabhängig von der Masse des gespeicherten Teilchens ist. Zwischen allen Eigenfrequenzen gelten die Relationen:

$$\omega_c = \omega_+ + \omega_-, \quad (2.9)$$

$$\omega_c^2 = \omega_+^2 + \omega_-^2 + \omega_z^2, \quad (2.10)$$

$$\omega_- < \omega_z < \omega_+, \quad (2.11)$$

$$2\omega_+\omega_- = \omega_z^2. \quad (2.12)$$

Zur Bestimmung der Masse eines gespeicherten Teilchens ergibt sich zum einen die Möglichkeit die freie Zyklotronfrequenz (Gl. (2.1)) direkt über einen Flugzeitnachweis zu messen, wie in Kapitel 3.1 beschrieben wird. Zum anderen kann die Masse über die individuelle Beobachtung der Eigenschwingungen (Gl. (2.10)) durch Detektion des influenzierten Signals in den Fallenelektroden ermittelt werden. Diese Methode wird in Kapitel 3.2 vorgestellt.

Als Beispiel sind in Tabelle 2.1 typische Werte der Eigenfrequenzen für die hyperbolische SHIPTRAP-Messfalle aufgelistet. Die Fallendimensionen sind durch den Radius  $\rho_0 = 6,38$  mm und den einfachen Abstand zur Endkappe  $z_0 = 5,5$  mm gegeben. Die Speicherparameter betragen  $B = 7$  T für das Magnetfeld und  $V_0 = 10$  V als typische Fallenspannung. Betrachtet werden Ionen der Massen  $A = 1$  u,  $A = 133$  u,  $A = 197$  u und  $A = 250$  u.

## 2.2 Die reale Penningfalle

Abweichungen von der zuvor beschriebenen idealen Penningfalle mit harmonischem Speicherpotential, wie z.B. mögliche Inhomogenitäten und eine Dejustage der Achse des Magnetfeldes, ergeben für die gespeicherten Teilchen eine Frequenzabhängigkeit von den Bewegungsamplituden und eine mögliche Kopplung der einzelnen Eigenbewegungen. Dies schränkt die Präzision

Tabelle 2.1: Eigenfrequenzen  $\nu_i = \omega_i/2\pi$  von einfach geladenen Ionen in der hyperbolischen SHIPTRAP-Messfalle mit den Betriebsparametern  $\rho_0 = 6,38$  mm,  $z_0 = 5,5$  mm,  $V_0 = 10$  V und  $B = 7$  T für Ionensorten verschiedener Masse.

	A / u			
	1	133	197	250
$\nu_+$	107,6 MHz	804,7 kHz	541,8 kHz	426,0 kHz
$\nu_z$	982,8 kHz	85,22 kHz	70,02 kHz	62,16 kHz
$\nu_-$	4,487 kHz	4,512 kHz	4,525 kHz	4,535 kHz

einer Messung der Schwingungsfrequenzen ein. Zudem modifiziert sich mit zunehmender Anzahl von geladenen Teilchen in der Falle die Tiefe des Speicherpotentials und einzelne Ionen tasten mit ihren unterschiedlichen Bewegungsamplituden verschiedene Speicherfelder ab, was insgesamt zu einer Verbreiterung und Verschiebung des Resonanzschwerpunkts einer Frequenzmessung führen kann. Die genannten Aspekte werden im Folgenden diskutiert.

### 2.2.1 Elektrische Feldfehler

Die Harmonizität des elektrischen Potentials ist gestört durch die nur endliche Ausdehnung der Elektrodenoberflächen, die Bohrungen in den Endkappen der Falle zum Einfang und Ausschuss der Ionen, die Segmentierung der Ring- und der Endkappenelektroden zum Einkoppeln des Anregungssignals und zur Detektion des Ionenstromes, sowie durch mechanische Fertigungstoleranzen und Ungenauigkeiten beim Zusammenbau der Fallenelektroden. Das reale Speicherpotential lässt sich für Bewegungsamplituden  $\rho$  in der Nähe der Fallennitte ( $\rho \ll \rho_0$ ) durch eine Entwicklung nach Legendrepoly-nomen angeben

$$V' = V_{ideal} + \frac{1}{2}V_0 \sum_{k=0}^{\infty} C_k \left(\frac{\rho}{d}\right)^k P_k(\cos \theta). \quad (2.13)$$

Wegen der Symmetrie unter der Transformation von  $z \rightarrow -z$ , verschwinden die ungeraden Ordnungen in  $k$ . Der Term mit  $k = 2$  verändert die Stärke des Quadrupolpotentials und führt zu einer Modifikation von  $\omega_z$  zu

$$\omega_z^2 = \frac{qV_0}{md^2} (1 + C_2), \quad (2.14)$$

und damit auch zur Verschiebung von  $\omega_+$  und  $\omega_-$  mit jeweils entgegengesetztem Vorzeichen. Die Summenfrequenz  $\omega_c$  bleibt unverändert. Terme höherer Ordnung ( $k \geq 4$ ) führen jedoch zu unerwünschten Frequenzverschiebungen, da diese von den Bewegungsamplituden der gespeicherten Teilchen abhängen. Zusätzliche Elektroden zwischen der Ringelektrode und den Endkappen, bzw. an die Endkappe anschließend, ermöglichen das Anlegen einer Korrekturspannung, die anharmonische Anteile des Potentialverlaufs kompensieren soll.

### 2.2.2 Magnetische Feldfehler

Neben Einflüssen aufgrund von Inhomogenitäten des supraleitenden Magneten führt das starke, homogene Magnetfeld  $B_0$  zu einer Magnetisierung der in den Magneten eingebrachten Materialien der Ionenfallenapparatur und damit je nach Größe und Betrag ihrer magnetischen Suszeptibilität zu lokalen Veränderungen in der Feldstärke und in den Eigenfrequenzen. Die linearen Beiträge zur Magnetfeldänderung werden durch die Ionenbewegung weggemittelt. Terme der nächsthöheren Ordnung, durch einen quadratischen Offset  $\Delta B(\beta_2)$  zum magnetischen Feld beschrieben

$$\frac{\Delta B}{B_0} = \beta_2 [(z^2 - \rho^2/2) \cdot z - z \cdot \rho], \quad (2.15)$$

ergeben analog zum Fall der elektrischen Feldfehler eine Frequenzverschiebung, die von der Größe der Bewegungsamplituden abhängt

$$\frac{\Delta\omega_c}{\omega_c} = \beta_2 \left[ \left( z^2 - \frac{\rho_+^2}{4} \left( 1 - \frac{\omega_c}{\omega_+ - \omega_-} \right) - \frac{\rho_-^2}{4} \left( 1 + \frac{\omega_c}{\omega_+ - \omega_-} \right) \right) \right]. \quad (2.16)$$

### 2.2.3 Asymmetrie der Fallengeometrie und Fehljustage

Eine Verkipfung der Magnetfeldachse relativ zur Symmetrieachse der Fallenelektroden und somit zur Achse des elektrischen Potentials, sowie die Abweichung des Quadrupolpotentials von einer perfekten Zylindersymmetrie können allgemein durch

$$V = \frac{1}{2} m \omega_z^2 \left( z^2 - \frac{1}{2} (x^2 + y^2) - \frac{1}{2} \varepsilon (x^2 - y^2) \right) \quad (2.17)$$

beschrieben werden, wobei zusätzlich zum Quadrupolpotential (Gl. (2.2)) die quadratischen Änderungen durch den Asymmetrieparameter  $\varepsilon$  modelliert werden. Die Komponenten des magnetischen Feldes, das um die Winkel  $\theta$  und  $\phi$  verkippt ist, schreiben sich zu

$$B_x = B \sin\theta \cos\phi, \quad (2.18)$$

$$B_y = B \sin\theta \sin\phi, \quad (2.19)$$

$$B_z = B \cos\theta. \quad (2.20)$$

Als wichtigstes Resultat des so gewonnenen Gleichungssystems folgt eine Invarianzbeziehung zwischen den Eigenfrequenzen  $\bar{\omega}_i$  einer nicht vollkommenen Penningfalle analog zu Gl. (2.10)

$$\bar{\omega}_c^2 = \bar{\omega}_+^2 + \bar{\omega}_-^2 + \bar{\omega}_z^2, \quad (2.21)$$

die dazu dienen kann, die Justage des Magnetfeldes zu überprüfen.

### 2.2.4 Einfluss von gespeicherten Ionen anderer Massen

Werden im Verlauf einer Frequenzmessung mehrere Ionen unterschiedlicher Masse gleichzeitig in der Penningfalle gespeichert, so können die kontaminierenden Ionen einen Einfluss auf die Lage der Linienmitte der zu untersuchenden Ionensorte haben. Diese Verunreinigungen sind durch den Produktionsprozess der Ionen vorgegeben. Beispielsweise handelt es sich an ISOLTRAP im Wesentlichen um weitere Isobare oder isomere Zustände eines Nuklids. Die Ergebnisse systematischer Untersuchungen mit 10 bis 30 gespeicherten Ionen, sowie einer Simulation zweier Ionen verschiedener Masse unter Einfluss der Coulombwechselwirkung sind in [Köni1991] und

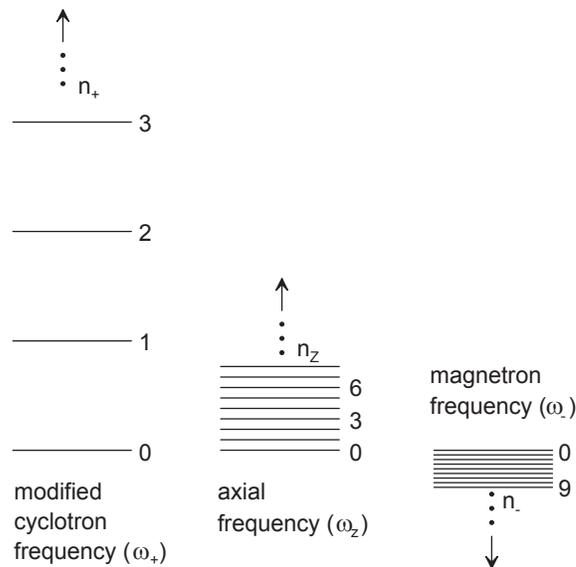


Abbildung 2.3: Energieniveauschema der drei Eigenbewegungen eines gespeicherten Teilchens in einer Penningfalle aus Abb. 2.2.

[Boll1992a] diskutiert. Haben die Ionen die gleiche Masse, so werden beide gleichermaßen mit einem Radiofrequenzfeld angeregt und damit keine Frequenzverschiebung beobachtet. Bei unterschiedlichen Massen hängt das Vorzeichen der Frequenzverschiebung vom Unterschied beider Resonanzfrequenzen relativ zu deren Linienbreiten (FWHM) ab. Sind die Frequenzen beider Ionensorten innerhalb ihrer Linienbreiten nicht zu trennen, so wird *eine* Resonanzkurve beobachtet, die schmäler ist als die Überlagerung beider Einzelresonanzen und beide Frequenzen verschieben sich in Richtung des gemeinsamen Schwerpunktes. Ist der Unterschied beider Ionenmassen so groß, dass deren Resonanzkurven einzeln aufzulösen sind, so beobachtet man eine Verschiebung beider Resonanzen zu niedrigeren Frequenzen hin. Der Betrag der Verschiebung ist in beiden Fällen von der Anzahl der gespeicherten Ionen abhängig.

### 2.3 Anregung der Ionenbewegung

Jede der drei idealerweise voneinander entkoppelten Eigenbewegungen eines gespeicherten Ions stellt für sich gesehen einen frequenzscharfen harmonischen Oszillator dar, dem durch die resonante Einstrahlung eines elektrischen Wechselfeldes von außen Energie zugeführt werden kann. Abbildung 2.3 zeigt die Energieniveaus der einzelnen Eigenschwingungen, die sich zur Gesamtenergie des gespeicherten Teilchens addieren. Die Besonderheit der Magnetronbewegung ist, dass sie hauptsächlich durch ihren negativen Anteil an potentieller Energie bestimmt wird. Ein Erhöhen der Quantenzahl  $n_-$  bzw. ein Vergrößern des Magnetronradius bedeutet in diesem Fall einen Verlust an potentieller Energie. Die resonante Dipolanregung kann allgemein dazu dienen, einzelne Eigenfrequenzen genau zu bestimmen. Eine Quadrupolanregung bei einer Summenfrequenz  $\nu_i + \nu_j$  führt zu einer Kopplung der beiden Bewegungen  $i$  und  $j$  mit einem Übergang zwischen den einzelnen Niveauschemata. Da die Eigenfrequenzen zum Teil massenabhängig sind (Gl. (2.1), Gl. (2.6)), lassen sich somit gespeicherte Ionenwolken manipulieren bzw. einzelne Ionenspezies nach ihrer Masse selektieren.

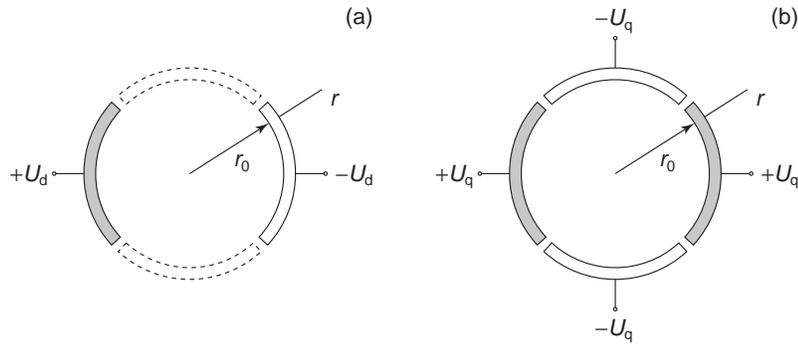


Abbildung 2.4: Radiale Segmentierung der Ringelektrode zur Einstrahlung eines elektromagnetischen Wechselfeldes. (a) Das Einstrahlen einer Radiofrequenz an zwei gegenüberliegenden Ringsegmenten führt zu einem Dipolfeld. (b) Ein Quadrupolfeld lässt sich durch eine Anregung zwischen den jeweils gegenüberliegenden Segmenten eines viergeteilten Ringes erzeugen.

### 2.3.1 Dipolanregung

Eine Dipolanregung bei einer bestimmten Eigenfrequenz wird im Experiment angewendet, wenn die *einzelne* Eigenbewegung einer Ionensorte manipuliert werden soll. Dies kann dazu dienen, die Bewegungsamplitude bewusst zu vergrößern, oder um schließlich unerwünschte, kontaminierende Ionensorten aus der Falle zu entfernen. Zuvor muss die Eigenfrequenz über die resonante Anregung bestimmt werden. Sie kann beispielsweise durch eine Minimierung der Ionenzählrate nach dem Ausschuss aus der Penningfalle erkannt werden. Das Einstrahlen eines Dipolfeldes  $E_x$  für die radiale  $x$ -Komponente

$$\vec{E}_x = \frac{U_d}{a} \cdot \cos(\omega_{\text{RF}}t - \phi_{\text{RF}}) \cdot \hat{x}, \quad (2.22)$$

geschieht über eine Wechselspannung der Amplitude  $U_d$  beim Radius  $a$  und der Frequenz  $\omega_{\text{RF}}$ . Sie wird an zwei gegenüberliegenden Ringsegmenten der Falle (siehe Abb. 2.4 (a)) angelegt. Wird die Wechselspannung über die Endkappen eingestrahlt, so wirkt sie auf die axiale Bewegung. Bei geeigneter Phasenbeziehung zwischen Ionenbewegung  $\phi_{\text{ion}}$  und anregendem Feld  $\phi_{\text{RF}}$  erhält man ein Anwachsen der Bewegungsamplitude, die der Dauer der Anregung  $T_{\text{RF}}$  und der Anregungsamplitude  $E_d$  proportional ist.

### 2.3.2 Quadrupolanregung

Die Quadrupolanregung bei der Summe von einzelnen Eigenfrequenzen kann zur Kopplung von Eigenbewegungen wie zur Frequenzbestimmung benutzt werden. Möchte man z.B. zusammengesetzte Frequenzen messen, wie die zur Massenbestimmung verwendete reine Zyklotronfrequenz  $\omega_c = \omega_+ + \omega_-$  (Gl. (2.9)), so erfolgt die Anregung über ein azimutales Quadrupolfeld mit der Frequenz  $\omega_{\text{RF}}$ , das an den jeweils gegenüberliegenden Segmenten der vierfach geteilten Ringelektrode eingestrahlt wird (siehe Abb. 2.4 (b)):

$$\vec{E}_x = \frac{2U_q}{a^2} \cdot \cos(\omega_{\text{RF}}t - \phi_{\text{RF}}) \cdot y\hat{x}, \quad (2.23)$$

$$\vec{E}_y = \frac{2U_q}{a^2} \cdot \cos(\omega_{\text{RF}}t - \phi_{\text{RF}}) \cdot x\hat{y}. \quad (2.24)$$

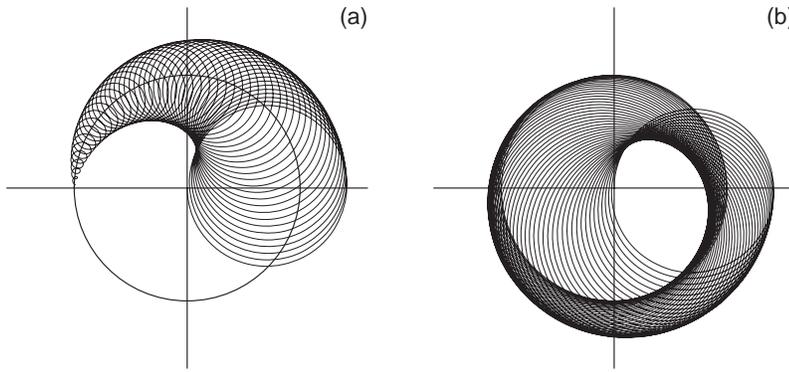


Abbildung 2.5: Konversion einer reinen Magnetronbewegung in eine reine Zyklotronbewegung aufgrund der Anregung durch ein azimutales Quadrupolfeld der Zyklotronfrequenz  $\omega_c = \omega_+ + \omega_-$ . Teil (a) und (b) zeigen die erste und die zweite Hälfte der Konversion. Die durchgezogene Kreislinie in (a) deutet den Startradius der Magnetronbewegung an (aus [Boll1990]).

Dies bewirkt eine Kopplung der beiden Radialbewegungen, die im Resonanzfall  $\omega_{\text{RF}} = \omega_c$  zu einer vollständigen periodischen Konversion zwischen den beiden Bewegungsradien  $\rho_+$  und  $\rho_-$  führt [Köni1995a, Köni1995b]. Abbildung 2.5 zeigt die berechnete Entwicklung der Bewegungsradien einer vollständigen Konversion einer anfangs reinen Magnetronbewegung in eine reine reduzierte Zyklotronbewegung. Die radiale kinetische Energie (ohne Dämpfung)  $E_{\text{rad}}$  ändert sich wegen  $E_{\text{rad},i} \sim \rho_i^2 \cdot \omega_i^2$  ebenfalls periodisch mit  $T = 2 T_{\text{conv}}$ , wobei

$$T_{\text{conv}} = \pi \cdot \frac{m}{q} \cdot \frac{a^2}{2U_q} (\omega_+ - \omega_-) \approx \pi \frac{a^2}{2U_q} B. \quad (2.25)$$

Mit  $\omega_+ \gg \omega_-$  und somit  $(\omega_+ - \omega_-) \approx \omega_c$  ist die notwendige Anregungsdauer  $T_{\text{RF}}$  in erster Näherung nur durch das Magnetfeld  $B$  und die eingestrahlte Amplitude  $U_q$  bestimmt.

## 2.4 Kühlmethoden für gespeicherte Ionen

Ein Kühlen der Ionenbewegung bedeutet eine Reduzierung der Bewegungsamplituden und somit auch eine Verminderung von Einflüssen elektrischer und magnetischer Feldfehler (Kap. 2.2.1 und 2.2.2) auf die Eigenfrequenzen. Zusätzlich ist der Transfer eines gekühltes Ionenensembles zwischen zwei Penningfallen durch die resultierende, geringere zeitliche Verteilung erleichtert [Beck1997a]. In beiden Experimenten ISOLTRAP und SHIPTRAP kommt das Puffergaskühlen zum Einsatz, während die Anwendbarkeit des Widerstandskühlens nur für SHIPTRAP erörtert wird.

### 2.4.1 Puffergaskühlen

Unter Anwesenheit eines leichten Puffergases verlieren die Ionen der Masse  $m$  mit der Geschwindigkeit  $\vec{v}$  durch mehrfache Stöße mit den Gasmolekülen an kinetischer Energie. Dies wird durch eine geschwindigkeitabhängige Dämpfungskraft

$$\vec{F} = -\delta \cdot m \cdot \vec{v}, \quad (2.26)$$

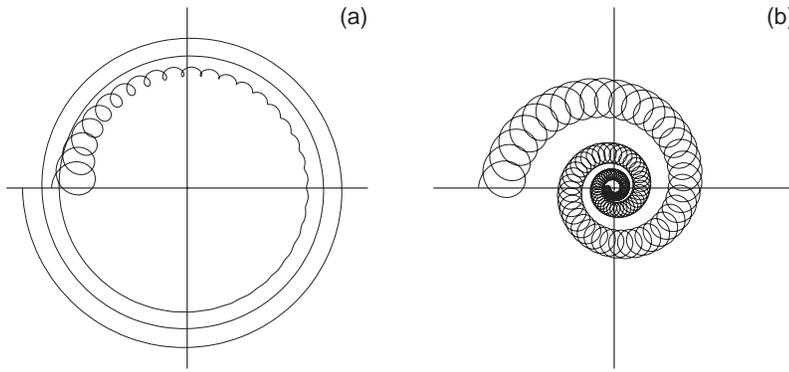


Abbildung 2.6: Radiale Ionenbewegung in einer puffergas-gefüllten Penningfalle. Der Kreuzungspunkt stellt den Mittelpunkt der Falle dar. (a) Unter Einfluss der geschwindigkeitsabhängigen Dämpfung beobachtet man eine schnelle Reduzierung des Zyklotronradius sowie ein langsames Anwachsen des Magnetronradius, das letztendlich zum Ionenverlust führt. (b) Die zusätzliche Anregung durch ein resonantes Quadrupolfeld bei  $\omega_c = \omega_+ + \omega_-$  bewirkt eine langsamere Abnahme des Zyklotronradius mit einer Verringerung des Magnetronradius und damit das massenselektive Zentrieren *einer* Ionensorte zum Fallenzentrum hin.

mit dem Dämpfungskoeffizienten

$$\delta = \frac{q}{m} \cdot \frac{1}{M_{\text{ion}}} \cdot \frac{p/p_N}{T/T_N} \quad (2.27)$$

beschrieben, wobei Druck  $p$  und Temperatur  $T$  des Gases in Einheiten von Normaldruck und Normaltemperatur gegeben sind.  $M_{\text{ion}}$  stellt die reduzierte Mobilität der Ionen im Gas dar. Dies führt für die axiale und die reduzierte Zyklotronbewegung – die beide von der Ionenmasse abhängig sind – zu einer Reduzierung der Amplituden, während sich der Magnetronradius aufweitet [Sava1991, Köni1995a]. Ein Verlust der Ionen kann durch eine Ankopplung der Magnetronbewegung an eine der beiden anderen Eigenbewegungen verhindert werden. Wie in Kap. 2.3.2 beschrieben, bewirkt die zusätzliche Quadrupolanregung bei dem Seitenband  $\omega_+ + \omega_- = \omega_c$  eine starke Kopplung der beiden Radialbewegungen. Da  $\omega_+ \gg \omega_-$  wird die reduzierte Zyklotronbewegung schneller gekühlt (Gl. (2.26)). Dies ist in Abb. 2.6 (a) dargestellt. Unter Anwesenheit eines Puffergases beobachtet man eine schnelle Reduzierung des Zyklotronradius  $\rho_+$ , während der Magnetronradius  $\rho_-$  langsam anwächst. Die Kopplung durch das Quadrupolfeld kann bei geeigneter Wahl von Druck und Anregungsamplitude zu einer Reduktion der Bahnampplituden aller Freiheitsgrade führen [Sava1991]. Ist die Anregung mit der wahren Zyklotronfrequenz  $\omega_c = qB/m$  zu einer Masse  $m$  resonant, bewirkt dies ein massenselektives Zentrieren *einer* Ionensorte, wie in Abb. 2.6 (b) dargestellt. Der Ausschuss von gespeicherten Ionen durch ein Diaphragma an der Ausgangsseite der Falle stellt somit eine Selektionsmöglichkeit für einzelne Ionensorten dar. Bei ISOLTRAP wird das massenselektive Puffergaskühlen zur Trennung von Isobaren mit einem Auflösungsvermögen von bis zu  $R = 10^5$  verwendet [Raim1997].

## 2.4.2 Widerstandskühlen

Da das SHIPTRAP-Experiment einen elektronischen Ionennachweis in einem kryogenen Fallenaufbau mit einem auf 4 K gekühlten Schwingkreis vorsieht, wird hier allgemein die Methode

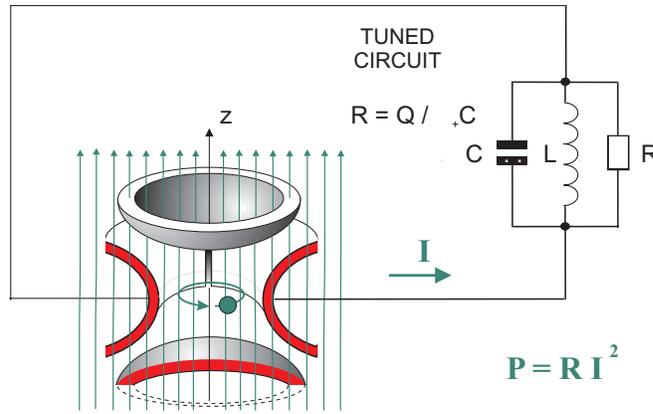


Abbildung 2.7: Die Energie der reduzierten Zyklotronbewegung ( $\omega_+$ ) kann an einen abgestimmten Schwingkreis der Güte  $Q = \omega/\Delta\omega$  abgegeben werden.

des Widerstandskühlens analog [Ghos1995] dargestellt. Diese Beschreibung bezieht sich auf den vereinfachten Fall eines Plattenkondensators mit dem Elektrodenabstand  $d$ . Betrachtet man das Kühlen der axialen oder der radialen Ionenbewegung mit der entsprechenden Geschwindigkeitskomponente  $v$  in der Penningfalle, werden die folgenden Beziehungen lediglich durch einen Geometriefaktor modifiziert. Oszilliert eine Ladung  $q$  zwischen den Platten eines Kondensators, die über einen Widerstand  $R$  verbunden sind, so fließt der Strom

$$i = \frac{qv}{d}. \quad (2.28)$$

Die im ohmschen Widerstand dissipierte Leistung  $P = dE/dt$  beträgt

$$\frac{dE}{dt} = -R \cdot i^2 = -R \cdot \frac{q^2 v^2}{d^2} = -R \cdot \frac{q^2 E}{md^2} = -\frac{1}{\tau} E. \quad (2.29)$$

Die hieraus ersichtliche Zeitkonstante  $\tau$  des Kühlprozesses:

$$\tau = \frac{md^2}{Rq^2}, \quad (2.30)$$

macht deutlich, dass das Widerstandskühlen für Ionen mit einem großen Ladungs-zu-Masse-Verhältnis gut geeignet ist. Der Kühlprozess lässt sich durch einen großen Widerstand  $R$  maximieren. Wie in Kap. 3.2.6 beschrieben, geschieht dies durch die Ankopplung eines auf die Eigenfrequenz der Ionen abgestimmten Parallelschwingkreises.

Abbildung 2.7 stellt das Prinzip des Widerstandskühlens für die radiale Bewegung mit einem angeschlossenen Nachweiskreis dar. Dies wird für die axiale und die reduzierte Zyklotronbewegung am  $g$ -Faktor Experiment [Häff2003] an der Universität Mainz angewendet. Man erreicht z.B. für ein einzelnes mehrfach geladenes Sauerstoffion ( $^{16}\text{O}^{7+}$ ) mit einem angepassten Schwingkreis ( $Q = 2000, T = 4K$ ) eine Kühlzeit von  $\tau = 132$  ms [Häff2003]. Am SHIPTRAP-Experiment mit einfach geladenen schweren Ionen ( $A = 250$ ) sind die resultierenden langen Kühlzeiten für die Untersuchung von kurzlebigen Radionukliden nicht praktikabel, und es wird deshalb das Puffergaskühlen angewandt.

<sup>1</sup>Ausgehend von einer harmonischen Schwingung  $v = v_0 \cdot \cos\omega t$  ist  $\langle mv^2 \rangle = mv_0^2 \langle \cos^2\omega t \rangle = \frac{1}{2}mv_0^2 = E$ .

## Kapitel 3

# Nachweismethoden gespeicherter Ionen

Es existieren zwei verschiedene Methoden eine Frequenzbestimmung an gespeicherten Ionen durchzuführen: die Flugzeitmethode (TOF-ICR) und die Fouriertransformation-Ionenzyklotronresonanz (FT-ICR) Methode. Beiden Nachweismethoden liegen die folgenden, gemeinsamen Prinzipien zugrunde:

1. Die Ionen können für lange Zeiten in der Falle gespeichert werden.
2. Ihre Eigenbewegungen lassen sich einzeln oder aneinander gekoppelt manipulieren. Eine mögliche Massenabhängigkeit der Anregung (Kap. 2.3) oder des Kühlprozesses (Kap. 2.4) kann zur Selektion einzelner Ionensorten ausgenutzt werden.
3. Die Detektion (= Frequenzmessung) wird nach einer vorhergehenden Anregung durchgeführt und prüft deren Auswirkung nach.

Die erste Methode ist destruktiv, d.h. nach dem Ausschuss der Ionen aus der Falle wird deren Flugzeit zu einem Detektor aufgenommen. Kombiniert man diese Flugzeitmessung mit einem Frequenzdurchlauf um die Resonanzfrequenz herum, so zeigt sich die resonante Anregung als Variation der Flugzeit der Ionen<sup>1</sup>. Diese in der Massenbestimmung verwendete Methode [Gräf1980] zur Messung der reinen Zyklotronfrequenz  $\omega_c$  ist in Kap. 3.1 kurz beschrieben.

Die zweite Methode ist zerstörungsfrei, d.h. die Ionen bleiben während der Messung gespeichert. Durch ihre periodische Bewegung werden in den Fallenelektroden Spiegelströme induziert. Dieses Wechsellspannungssignal wird aufgenommen und verstärkt. Eine anschließende Fourier-Transformation liefert das dem Zeitsignal äquivalente Frequenz- bzw. Massenspektrum. Die in Kap. 3.2 beschriebenen Techniken sind durch die Einführung der Fouriertransformation-Ionenzyklotronresonanz (FT-ICR) begründet [Comi1974, Comi1978].

Existierende Penningfallen-Massenspektrometer für on-line produzierte Radionuklide sind nicht kryogen, d.h. bei Raumtemperatur aufgebaut. Die Nachweisgrenze zur zerstörungsfreien Detektion einfach geladener Ionen wird hier erst ab Ionenzahlen von  $N \approx 100$  erreicht [Mars1998]. Daher wird für Radionuklide bisher ausschließlich die Flugzeitmethode (TOF-ICR) angewendet.

### 3.1 Destruktiver Ionennachweis mit der Flugzeitmethode

#### 3.1.1 Motivation für den Flugzeitnachweis

Handelt es sich bei den zu untersuchenden Ionen um kurzlebige Nuklide, ist eine sensitive Nachweismethode, die durchaus destruktiver Art sein kann, ideal. Die Zyklotronfrequenz  $\omega_c$  lässt sich mit der Flugzeitmethode bestimmen, indem sukzessive Messungen an mehreren, wenigen Ionen

---

<sup>1</sup>Daher die Bezeichnung TOF-ICR.

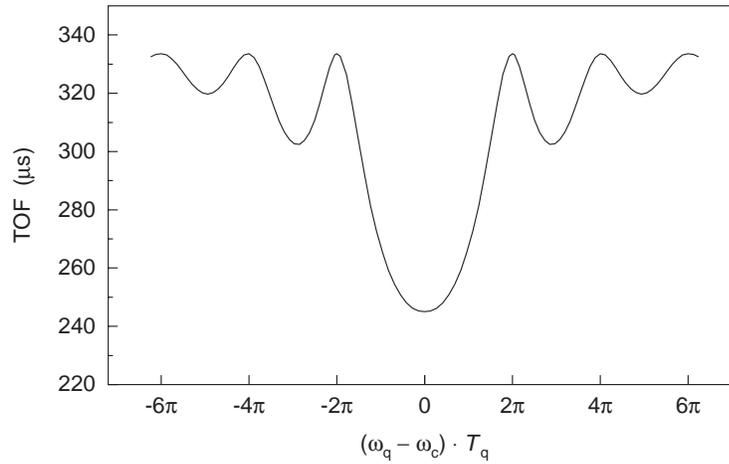


Abbildung 3.1: Theoretisches Linienprofil einer Zyklotronresonanz, wie sie bei dem Flugzeitnachweis erwartet wird. Ihre Form ergibt sich aus der Fouriertransformation der rechteckförmigen Quadrupolanregung  $\omega_q$  im Zeitraum.

unter Ausschuss aus der Falle durchgeführt werden. Mit einer angenommenen, idealen Nachweiseffizienz von 100 %, wäre jeweils ein einzelnes, gespeichertes Ion in der Falle ausreichend.

### 3.1.2 Grundprinzip des Flugzeitnachweises

Das Prinzip des Flugzeitnachweises zur Bestimmung der reinen Zyklotronfrequenz, das z.B. am ISOLTRAP-Experiment verwendet wird, ist ausführlich in [Köni1995a] und [Boll1996] beschrieben. Grundlegend ist dabei der indirekte Nachweis des Energiegewinns der radialen Bewegung. Mit Hilfe einer geeigneten Quadrupolanregung (Kap. 2.3.2) lässt sich eine vollständige Konversion der anfangs reinen Magnetronbewegung ( $\rho_-(t_0), \rho_+(t_0) = 0$ ) in die reduzierte Zyklotronbewegung ( $\rho_+(t) = \rho_-(t_0), \rho_-(t) = 0$ ) erzielen. Eine schrittweise Anregung um  $\omega_c$  wird durchgeführt, wobei in Resonanz  $\omega_{RF} = \omega_c$  die Zunahme an radialer Energie  $E_{rad}$  maximal wird. Das damit verbundene magnetische orbitale Moment  $\vec{\mu}(RF) = (E_{rad}(RF)/B)\hat{z}$  der gespeicherten Ionen wird ebenso maximiert. Nach dem Ausschuss aus der Falle driften die Ionen zu einem Detektor, der sich im Randfeld des Magneten befindet. Sie erfahren daher eine axiale Kraft  $\vec{F}(z)$  im inhomogenen Teil des Magnetfelds  $\vec{B}(z)$

$$\vec{F}(\omega_{RF}, z) = -\vec{\mu}(\omega_{RF}) \cdot \nabla \vec{B}(z), \quad (3.1)$$

die von der Größe des magnetischen Moments  $\vec{\mu}$  abhängt. Infolgedessen wird die resonante Anregung bei der Frequenz  $\omega_c$  über eine verkürzte Flugzeit der Ionen registriert [Gräf1980]. Abbildung 3.1 zeigt ein Beispiel für die theoretische Linienform einer Zyklotronresonanz, die sich über die Fouriertransformation aus dem zeitlichen Anregungsprofil eines Rechteckpulses ergibt.

### 3.1.3 Auflösungsvermögen des Flugzeitnachweises

Das Auflösungsvermögen  $R$  des Flugzeitnachweises, mit dem zwei benachbarte Massen im Abstand  $\Delta m = m_i - m_j$  voneinander getrennt werden können, ergibt sich aus der vollen Halbwertsbreite  $\Delta\nu_c(FWHM)$  der Zyklotronresonanz

$$R = \frac{m}{\Delta m} = \frac{\nu_c}{\Delta\nu_c(FWHM)}, \quad (3.2)$$

mit

$$\Delta\nu_c(FWHM) \approx 1/T_{RF} \quad (3.3)$$

[Köni1995a]. Es kann durch die Dauer der Anregung  $T_{RF}$  individuell gewählt werden. In der Untersuchung von kurzlebigen Radionukliden stellt deren Halbwertszeit jedoch oft eine Limitierung der erreichbaren Auflösung  $\Delta m$  dar.

### 3.1.4 Experimentelles Verfahren des Flugzeitnachweises

Das experimentelle Verfahren des destruktiven Flugzeitnachweises erfolgt schrittweise. Es beginnt mit dem Einfangen von Ionen in die Falle. Diese besitzen im Idealfall verschwindende radiale Amplituden. Um eine maximale Radialenergieänderung zu erzielen, werden sie durch Einstrahlung eines Dipolfeldes zuerst in einer Bewegung mit einem reinen Magnetronradius ( $\rho_-(t_0), \rho_+(t_0) = 0$ ) präpariert. Anschließend erfolgt die Quadrupolanregung *schmalbandig* in diskreten Frequenzschritten um  $\omega_c$ . Die resonante Anregung wird über eine verkürzte Flugzeit nachgewiesen. Kontaminierende Ionensorten können zusätzlich durch resonante Dipolanregung aus der Falle entfernt werden. Ein detaillierter zeitlicher Ablauf des gesamten Messzyklus, wie er an ISOLTRAP angewendet wird, ist in Kapitel 5.3.2 beschrieben.

Bisher wird in der Massenbestimmung von *kurzlebigen* Nukliden ausschließlich die Flugzeitmethode verwendet. Die ersten on-line Massenmessungen von einfach geladenen Rubidium- und Strontium-Isotopen wurde am ISOLTRAP-Experiment durchgeführt [Boll1987]. Weitere konzeptionell ähnliche Experimente für Radionuklide, die die Flugzeitmethode benutzen, sind die Canadian Penning Trap (CPT) am Argonne National Laboratory (ANL)/USA [Sava2001], JYFL-TRAP in Jyväskylä/Finnland [Niem2001, Kolh2003] und SHIPTRAP an der GSI in Darmstadt [Dill2000, Schö2002]. Ebenfalls zum Einsatz kommt dieser Flugzeitnachweis an SMILETRAP in Stockholm [Berg2002]. Es ist ein Penningfallen-Massenspektrometer für Präzisionsmessungen an stabilen, hochgeladenen Ionen.

## 3.2 Nichtdestruktiver Ionennachweis mittels FT-ICR

### 3.2.1 Motivation für den nichtdestruktiven Nachweis

Eines der Argumente für einen Ionennachweis mittels FT-ICR ist die mögliche Wiederholbarkeit des Experiments mit demselben Falleninhalte. Speziell für Anwendungen in der Metrologie und der Bestimmung fundamentaler Konstanten, sind hochpräzise Frequenzmessungen an einzelnen, stabilen Ionen notwendig [DiFi1994]. Ein weiterer Vorteil wird durch den *breitbandigen* Nachweis ausgenutzt, indem man mit nur einer Fallenladung zeitgleich die Informationen über einen weiten Massenbereich erhält.

Am SHIPTRAP-Experiment, wo erstmals ein nicht-destruktiver Nachweis für instabile Nuklide vorgesehen ist, plant man eine Nachweisempfindlichkeit für einzelne schwere Ionen. Dies ist in den Kapiteln 3.2.6 und 4.3 beschrieben. Zusätzlich können die Ionen, eine ausreichend lange Lebensdauer vorausgesetzt, aus der Falle extrahiert werden, um weitere Experimente mit ihnen durchzuführen. Die Zielsetzungen des SHIPTRAP-Aufbaus werden in Kap. 4.1 näher beschrieben.

### 3.2.2 Grundprinzip des nichtdestruktiven Nachweises

Das Grundprinzip des nichtdestruktiven Nachweises ist in Abb. 3.2 schematisch dargestellt. Ein gespeichertes Ion der Ladung  $q$  bzw. eine Ionenwolke mit  $N$  Einzelladungen ( $Q = N \cdot q$ ) wird

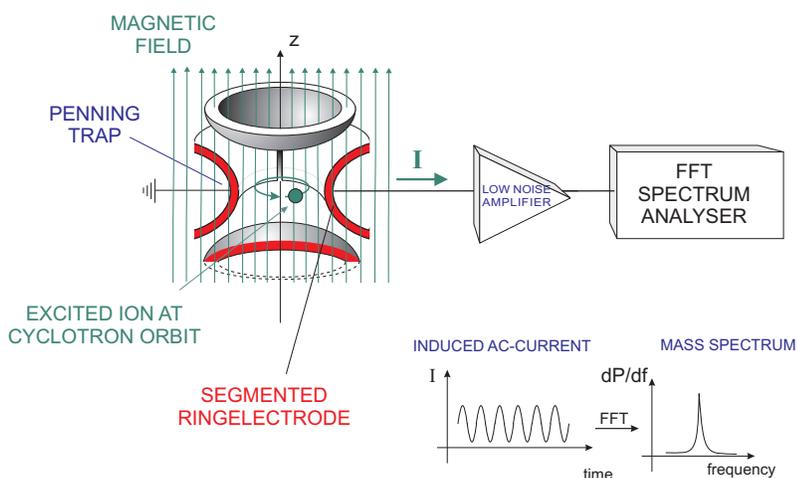


Abbildung 3.2: Prinzipieller Aufbau für eine nichtdestruktive Bestimmung von Eigenfrequenzen. Gespeicherte Ionen werden durch ein Radiofrequenzsignal zu einer kohärenten Bewegung angeregt. Nach der Verstärkung der in den Elektroden induzierten Spiegelströme erhält man die für einzelne Ionensorten charakteristische Frequenzinformation durch eine Fourieranalyse.

zu einer kohärenten Bewegung mit einem bestimmten Radius angeregt (siehe Kap. 2.3). Dies geschieht durch ein kurzes, resonantes Radiofrequenz (RF)–Signal, das dipolartig an zwei gegenüberliegenden Fallenelektroden angelegt wird. In Abb. 3.2 sind dies die geteilten Hälften der Ringelektrode, was der Beobachtung der reduzierten Zyklotronbewegung dient. Die sich bewegendende Ladung  $Q$  induziert in den Metallelektroden der Penningfalle eine zeitlich veränderliche Ladungsverteilung. Sind die Elektroden mit einem Widerstand  $R$  verbunden, fällt dort ein Wechselspannungssignal ab, das die Frequenzanteile aller kohärent angeregten Ionen enthält. Das Spannungssignal, auch als Transient bezeichnet, wird nach seiner Verstärkung aufgenommen, indem man es in diskreten Zeitschritten mit der Abtastfrequenz (engl.: sampling frequency)  $\nu_s$  digitalisiert. Eine Fouriertransformation in den Frequenzbereich liefert das Frequenz- oder Massenspektrum, das die relativen Anteile der einzelnen Ionensorten wiedergibt.

Bei der Aufnahme des Transienten gelten die folgenden Gesetzmäßigkeiten: Nach dem Abtasttheorem (Nyquist–Theorem) muss ein Signal der Frequenz  $\nu_i$  mit mindestens der zweifachen Frequenz  $\nu_s \geq 2\nu_i$  abgetastet werden, um es korrekt zu reproduzieren. Daher ist bei vorgegebener Abtastfrequenz die maximale Frequenz festgelegt, die noch bestimmt werden kann. Sind höhere Frequenzen im Transienten enthalten, die die Abtastbedingung nicht erfüllen, so erscheinen diese fälschlicherweise bei einer geringeren Frequenz (engl.: aliasing). Ein Tiefpassfilter schränkt daher das zu betrachtende Frequenzband ein (engl.: anti-aliasing).

Die Menge an diskreten Datenpunkten im Zeitbereich (engl.: samples), die während der Abtastdauer  $T_d$  mit einem Analog–Digital–Converter (ADC) aufgenommen werden, bilden einen Datensatz bestehend aus  $N = T_d \cdot \nu_s$  Daten. Soll das Frequenzspektrum on–line ausgewertet werden, so ist die erreichbare Auflösung bzw. die Breite des Frequenzbereichs der Fouriertransformation durch die Kapazität in der Signalverarbeitung begrenzt. Ein Signal einer Frequenz von 500 kHz müsste nach der Abtastbedingung mit einer Frequenz von einem MHz aufgenommen werden. Um eine Auflösung im  $10^6$ –Bereich zu erzielen, wäre ein Transient der Länge von 2 s erforderlich, was einem Speicherbedarf von mehr als 970k–Worten ( $1k = 1024$ ) entspräche. Als Lösung werden durch eine Frequenzmischung mit einem festen Oszillatorsignal die interessanten Frequenzen

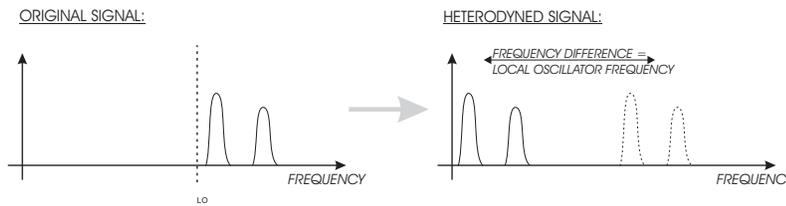


Abbildung 3.3: Prinzip der Frequenzumsetzung. Durch das Mischen mit dem Signal des Lokaloszillators  $\nu_{LO}$  wird das Originalsignal zu kleineren Frequenzwerten verschoben, ohne die im Spektrum enthaltene Information zu verändern.

auf einen niedrigeren, begrenzten Bereich, z.B. kleiner als 100 kHz, heruntergesetzt (engl.: Heterodyning). Abbildung 3.3 zeigt das Prinzip der Frequenzumsetzung. Das Sinussignal konstanter Frequenz  $\nu_{LO}$  wird durch Mischen von der eigentlichen Signalfrequenz abgezogen. Das Spektrum erscheint in seiner ursprünglichen Form, jedoch um die Lokaloszillatorfrequenz  $\nu_{LO}$  vermindert. Dadurch wird der Speicherbedarf drastisch reduziert.

### 3.2.3 Auflösungsvermögen des nichtdestruktiven Nachweises

Das Auflösungsvermögen  $R$  der Fouriertransformationsspektroskopie ist identisch definiert wie das des Flugzeitnachweises (Gl. (3.2)). Unter der Voraussetzung eines Ultrahochvakuums in der Falle und damit einer zeitlich ungedämpften Schwingung der Ionen ist die erreichbare volle Halbwertsbreite des Signals  $\Delta\nu(FWHM)$  durch die Aufnahmedauer  $T_d$  des Transienten gegeben (Fourier-Limit)

$$\Delta\nu(FWHM) \approx 1/T_d. \quad (3.4)$$

Wird z.B. in einer chemischen Analyse, die Wechselwirkung in der Reaktion mit einem Gas untersucht, so ist die Messdauer und damit das Auflösungsvermögen durch die Speicherzeit der Ionen durch Kollisionswechselwirkung bei dem vorliegenden Gasdruck eingeschränkt. Bei Messungen an Radionukliden ist die Speicherzeit der Ionen durch deren radioaktiven Zerfall begrenzt.

### 3.2.4 Experimentelles Verfahren des nichtdestruktiven Nachweises

Das experimentelle Verfahren eines FT-ICR-Nachweises ist in einem vereinfachten Zeitschema in Abb. 3.4 skizziert. Es beginnt mit dem Einfang der Ionen in die Falle bzw. deren Ionisation (1). Durch Einstrahlung ihrer reduzierten Zyklotronfrequenz als Dipolfeld können unerwünschte Ionensorten aus der Falle entfernt werden (2). Durch Anregung werden die Ionen auf eine Bahn mit großem Zyklotronradius gebracht (3). Der Nachweis erfolgt, wie in Kap. 3.2.2 beschrieben, durch die Aufnahme eines Transienten bestimmter Zeitdauer (4). Die letzten beiden Schritte (3) und (4) können mit demselben Falleninhalte mehrfach wiederholt werden. Hierbei wird die kohärente Ionenbewegung immer wieder neu hergestellt.

Eine wesentliche Charakteristik der FT-ICR ist durch die *Bandbreite* gegeben, in der Frequenzspektren analysiert werden können. Im Folgenden soll der breit- und der schmalbandige Nachweis unterschieden werden. Beim Ionen-Nachweis gehören die Anregung der zu untersuchenden Ionen und ihre Detektion eng zusammen. Sollen mit einem breitbandigen Nachweis mehrere Massen gleichzeitig bestimmt werden, sind alle Ionensorten mit Hochfrequenz, die ihre reduzierte Zyklotronfrequenz enthält, anzuregen. Ist die hochgenaue Bestimmung der Masse eines einzelnen Ions das Ziel, so gilt es die Bahn des Ions für eine höhere Nachweisempfindlichkeit aufzuweiten.

### SIMPLIFIED FT-ICR DETECTION SEQUENCE

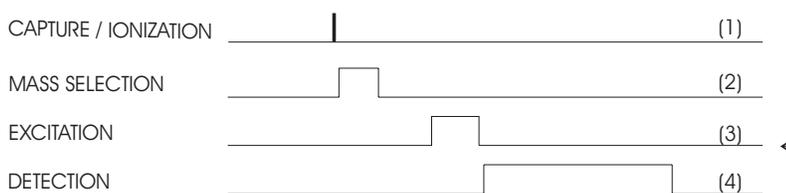


Abbildung 3.4: Zeitschema zur FT-ICR Detektion. Nach der Speicherung und einer Massenselektion wird der Falleninhalte analysiert. Dieses Schema kann sukzessive wiederholt werden.

Die kurze Anregung mit einem 'Burst', einem Wellenzug einer festen Frequenz  $\nu$ , für den die genaue Anzahl der Perioden festgelegt wird, erreicht durch ihre Zeitdauer bestimmt, nur einen begrenzten Frequenzbereich. Sie ist zur resonanten, schmalbandigen Anregung geeignet. Mit einem schnellen Frequenzdurchlauf (engl.: chirp) werden diskrete Frequenzen eines definierten Bereichs in einer vorgegebenen Zeit durch einen Funktionsgenerator 'arbitrary function generator' wiedergegeben. Auf diese Weise lassen sich Ionen in einem weiten Massenbereich präparieren. Eine weitere, technisch ausgefeilte Methode ist die SWIFT-Anregung (Stored Waveform Inverse Fourier Transform), die vielfach in der analytischen Chemie genutzt wird und zeitweise auch an ISOLTRAP zur Entfernung unerwünschter Ionen in der Messfalle eingesetzt wird [Kuck2002]. Hier wird das *optimierte* Anregungsspektrum für den zu untersuchenden Falleninhalte verwendet [Mars1985]. Das gewünschte Frequenzspektrum wird zuvor festgelegt. Über die inverse Fouriertransformation in den Zeitbereich wird das zeitliche Anregungssignal berechnet. Somit können gleichzeitig unerwünschte Ionensorten durch ein starkes Anregungssignal aus der Falle entfernt werden, während man die Ionen der gewünschten Masse lediglich auf einen großen Zyklotronradius präpariert.

Der Vorteil der langen Speicherzeiten in der FT-ICR kann auf zwei Arten ausgenutzt werden. Transienten können mehrfach, wiederholt gemessen werden, um durch Mittelungen, das Signal-Rausch-Verhältnis zu erhöhen. Die Kohärenz ist zwischenzeitlich immer wieder neu herzustellen. Dabei wird eine feste Phasenbeziehung zwischen Anregung und Signalaufnahme in jedem Messzyklus vorausgesetzt.

In der Massenspektrometrie wird der FT-ICR-Nachweis bisher hauptsächlich zu der hoch präzisen Massenbestimmung von einzelnen, stabilen Ionen oder Protonen angewendet. Das Ausnutzung der Invarianzbeziehung (Gl. (2.10)) erfordert die Messung aller drei Eigenfrequenzen. Im Experiment an der Universität von Washington wird die axiale Schwingung sowie ihre resonante Abhängigkeit der über elektrische Feldfehler angekoppelten Radialbewegungen detektiert [Moor1992]. Die erreichte (Gesamt-)Genauigkeit in der Massenbestimmung eines Protons bzw. eines Sauerstoffions ( $^{16}\text{O}^+$ ) wird mit 0,14 ppb bzw. 0,01 ppb angegeben [VanD2001].

Am MIT geschieht die Messung der reduzierten Zyklotronfrequenz ebenso über den Nachweis der axialen Bewegung mit einem DC-SQUID (engl.: Superconducting Quantum Interference Device). Dazu wird zuerst die reduzierte Zyklotronbewegung durch die Umkopplung aus der Axialbewegung mit einem  $\pi$ -Puls, gekühlt und mit definierter Phase präpariert. Nach dem Rückkoppeln der Bewegungen mit einem zweiten  $\pi$ -Puls wird die Phasenänderung pro Wartezeit, und damit der Frequenzunterschied zwischen Anregungs- und wahrer Zyklotronfrequenz  $\omega_+$  detektiert [Corn1990], [Rain2001]. Die erreichten Genauigkeiten für die stabilen Alkali-Ionen Natrium, Rubidium und Cäsium betragen zwischen 0,12 ppb und 0,20 ppb.

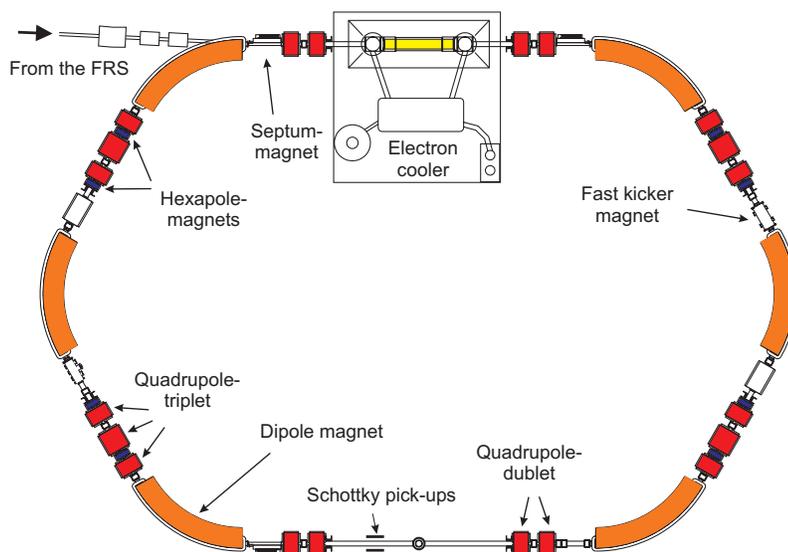


Abbildung 3.5: Aufbau des Experimentier-Speicherrings (ESR) der GSI Darmstadt. Die umlaufenden Ionen werden im Elektronenkühler auf nahezu gleiche Geschwindigkeit gebracht. Die Ionensignale werden an den 'Schottky pick-up' Elektroden aufgenommen.

Ein weiteres Beispiel nach dem Prinzip der FT-ICR-Massenspektroskopie, das nicht in einer Penningfalle, sondern in einem Speicherring durchgeführt wird, ist die sogenannte Schottky-Massenbestimmung am Experimentierspeicherring (ESR) der GSI Darmstadt [Fran1987, Rado2000]. Dieser experimentelle Aufbau ist im Kontext dieser Arbeit wichtig, da sich die Experimentiertechnik der FT-ICR-Technik des geplanten SHIPTRAP-Aufbaus ähnelt, und die in letzter Zeit am ESR durchgeführten Massenbestimmungen [Litv2003] die gleiche Massenregion wie die in Kap. 5 beschriebenen ISOLTRAP-Messungen zum Ziel hatten. Der Nachweis der Ionen erfolgt durch die Messung ihrer Umlauffrequenzen im Ring. Die Ionensignale werden an einer Stelle des Rings an gegenüberliegenden Elektroden ('Schottky pick-ups') aufgenommen. Abbildung 3.5 zeigt den Experimentierspeicherring mit seinen wesentlichen Komponenten. Zahlreiche Nuklide, die am **F**Ragment **S**eparator (FRS) über Projekttilfragmentation produziert wurden, werden in den Speicherring eingeschossen. Ihre anfängliche Geschwindigkeitsverteilung von  $\Delta v/v \approx 10^{-3}$  wird durch Elektronenkühlung auf  $\Delta v/v \approx 5 \times 10^{-7}$  reduziert. Damit haben die Ionen nahezu die gleiche Geschwindigkeit, was zu einer Übereinstimmung zwischen deren Umlauffrequenz  $\nu$  und ihrem Masse-zu-Ladungs-Verhältnis  $m/q$  führt.

In der Detektion des Schottky-Rauschens werden die 30. bis 34. Harmonische der Umlauffrequenz registriert und 'off-line' analysiert. Beginnend ab Ladungszuständen von  $q = 30^+$  wird somit eine Nachweisempfindlichkeit für einzelne Ionen erreicht [Litv2003]. Beobachtet man die Frequenzspektren zeitaufgelöst, lassen sich mit dieser zerstörungsfreien Methode der  $\beta$ -Zerfall einzelner, gespeicherter Ionen direkt beobachten.

### 3.2.5 Motivation: Der Einzelionennachweis

Am SHIPTRAP-Experiment der GSI Darmstadt soll die nichtdestruktive FT-ICR-Methode erstmals in einer Penningfalle zur Frequenzbestimmung von Radionukliden eingesetzt werden. Da Produktionsquerschnitte zur Erzeugung der schwersten Elemente ( $Z \geq 100$ ) oftmals im Bereich von nur wenigen nb ( $1 \text{ b} = 10^{-24} \text{ cm}^2$ ) liegen, führt dies zu einer produzierten Ionenrate von

weniger als einem Ion pro Stunde. Mit einem destruktiven Nachweis, wie der in Kap. 3.1 beschriebenen Flugzeitmethode, müssten typischerweise mehr als einige hundert Ionen der gewünschten Sorte sukzessive gespeichert und deren Flugzeit bestimmt werden. Dies erfordert eine durchgehende Messzeit von mehreren Tagen. Die beschriebene FT-ICR-Methode (Kap. 3.2.2) ermöglicht im Idealfall eine Frequenzmessung in einem einzigen Messzyklus, d.h. mit einem einmaligen Laden der Falle. Die Nachweisgrenze einer ICR-Detektion bei Raumtemperatur *ohne* abgestimmten Schwingkreis liegt jedoch bei einem Minimum von ca. 100 einfach geladenen Ionen [Mars1998]. Daher ist ein Aufbau hoher Nachweissensitivität für einzelne, einfach geladene Ionen erforderlich.

### 3.2.6 Abschätzung des Signal-Rausch-Verhältnisses für den Einzelionennachweis bei SHIPTRAP

Modellbeschreibungen von gespeicherten Ionen in einer Penningfalle sowie Abschätzungen des Signal-Rausch-Verhältnisses sind in der Vergangenheit mehrfach durchgeführt worden [Wine1975, Comi1978, Stah1998]. Das Spannungssignal

$$U_{\text{det}} = I_{\text{ion}} \cdot Z(\omega_{\text{ion}}), \quad (3.5)$$

das durch ein einzelnes Ion hervorgerufen wird, ist durch den influenzierten Ionenstrom  $I_{\text{ion}}$  und den komplexen Widerstand  $Z(\omega_{\text{ion}})$  bestimmt. Entlang der Beobachtungsrichtung, die durch die Anordnung der Nachweiselektroden vorgegeben ist, gleicht die bewegte Ionenladung  $q$  einem elektrischen Strom der Stärke

$$I_{\text{ion}} = q \cdot \frac{v_{\text{ion}}}{D} = q \cdot \frac{\omega_{\text{ion}} \cdot r_{\text{ion}}}{D}, \quad (3.6)$$

mit der Geschwindigkeitskomponente  $v_{\text{ion}}$  in  $\hat{z}$ - bzw.  $\hat{r}$ -Richtung, dem radialen Ionenabstand  $r_{\text{ion}}$  zum Fallenzentrum und dem effektiven Elektrodenabstand  $D$ . Dieser ist wegen der Form und der endlichen Ausdehnung der Nachweiselektroden gegenüber dem Abstand unendlich ausgedehnter Kondensatorplatten durch einen charakteristischen Geometriefaktor vergrößert. Der influenzierte Ionenstrom besitzt einen Effektivwert von

$$I_{\text{eff}} = \sqrt{2} \cdot \pi \cdot \frac{r_{\text{ion}}}{D} \cdot q \cdot v_{\text{ion}}. \quad (3.7)$$

Eine deutliche Steigerung in der Nachweisempfindlichkeit lässt sich durch die Detektion mit einem auf die Ionenfrequenz *abgestimmten* Parallelschwingkreis  $\omega_{\text{LC}} = 1/\sqrt{LC} = \omega_{\text{ion}}$  erzielen. Abbildung 3.6 zeigt eine solche Anordnung, in der gegenüber dem Aufbau in Abb. 3.2 ein LC-Kreis hinzugefügt ist. Der Gesamtwiderstand  $Z$  des angeschlossenen Parallelschwingkreises, bestehend aus der Induktivität  $L$ , der Kapazität  $C$  und dem Widerstand  $R$ , beträgt

$$Z_{\text{LC}}^{-1} = \frac{1}{i\omega L} + i\omega C + \frac{1}{R}. \quad (3.8)$$

Ist die Ionenbewegung mit der Schwingkreisfrequenz resonant, heben sich die komplexen Widerstandsbeiträge von Induktivität und Kapazität auf, und  $Z$  wird zu einem rein ohmschen Widerstand  $R$  maximiert, so dass gilt:

$$R = \frac{Q}{\omega C} = Q\omega L, \quad (3.9)$$

wobei  $Q = \omega/\Delta\omega$  die Güte des Schwingkreises ist. Ein Signal bestimmter Frequenz  $\omega$  nimmt an Stärke zu, je größer die Güte, je geringer die Kapazität und je höher die Induktivität ist. Diese Signalzunahme kann je nach verwendeter Technologie des Schwingkreises zwischen ein und

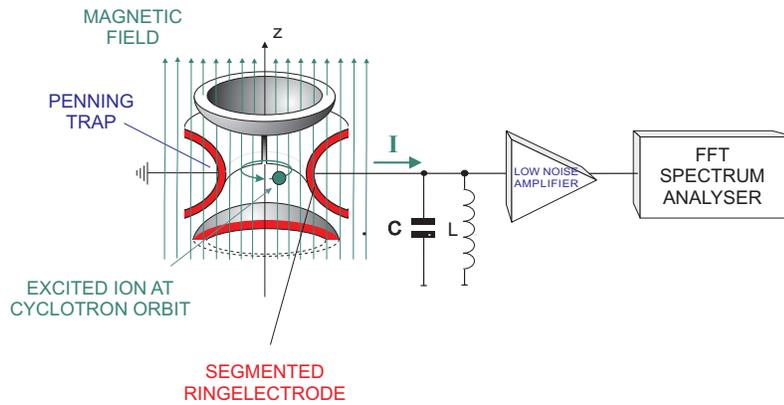


Abbildung 3.6: Experimenteller Aufbau zur sensitiven, schmalbandigen Detektion eines einzelnen Ions. Durch den auf die Ionenfrequenz abgestimmten Schwingkreis wird eine erhöhte Nachweisempfindlichkeit erzielt.

drei Größenordnungen betragen [Stah1999]. Zur gesamten Abschätzung muss auch das störende thermische Rauschen des Widerstands  $R$  in Betracht gezogen werden. Für dessen Effektivwert gilt

$$U_{\text{noise}} = \sqrt{4kT \cdot R \cdot \Delta\nu}, \quad (3.10)$$

wobei  $T$  die Temperatur des gesamten Nachweissystems, und  $\Delta\nu$  der betrachtete spektrale Bereich ist. Letzteres lässt sich ausnutzen, indem die Breite eines Frequenzkanals der Fouriertransformations-Messung so klein wie möglich gewählt wird. Im Idealfall entspricht diese Kanalbreite genau der spektralen Breite des Ionensignals, die nach Gl. (2.1) durch die Magnetfeldinhomogenität bestimmt ist. Damit wird ein wesentlicher Designparameter des Penningfallenaufbaus festgelegt (siehe Kap. 4.3.2). Um das störende Rauschen bis auf ein Minimum zu reduzieren, ist es nötig, die Dimension der Falle so gering zu wählen, dass sich die Ionen selbst mit den angeregten, großen Bewegungsradien von z.B.  $r_{\text{ion}} = 5 \text{ mm}$  noch im homogenen Teil des Magnetfeldes aufhalten. In der weiteren Berechnung wird die Breite der Resonanzlinie mit

$$\frac{\Delta\nu}{\nu} = \frac{\Delta B}{B} = 10^{-6} \quad (3.11)$$

konservativ abgeschätzt. Das resultierende Signal-Rausch-Verhältnis kann durch

$$\frac{S}{N} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \cdot \frac{r_{\text{ion}}}{D} \cdot q \cdot \sqrt{\frac{\nu}{\Delta\nu}} \cdot \sqrt{\frac{Q}{kT \cdot C}} \quad (3.12)$$

ausgedrückt werden. Ausgehend von einfach geladenen Ionen bestimmter Masse (= Frequenz) folgt: Die Nachweisempfindlichkeit hängt von der relativen Aufweitung des Ionenradius  $r_{\text{ion}}$  in der Falle, der Güte des Nachweisschwingkreises, der Temperatur und der Kapazität des Systems ab. Werden die parasitären Kapazitäten der Fallenelektroden zueinander berücksichtigt, wird der externe LC-Kreis durch das Hinzuzufügen einer geeigneten Induktivität gebildet. In der Konstruktion der Elektrodengeometrie der Falle sollten Streukapazitäten weitestgehend vermieden werden.

### 3.3 Vergleich beider Nachweismethoden

Der Vergleich der beiden Nachweismethoden Flugzeitnachweis (TOF-ICR) und FT-ICR zeigt, dass sie sich hinsichtlich ihres Auflösungsvermögens  $R$  nicht unterscheiden, da das zu erreichende  $R_{\text{max}}$  letztlich durch das Fourier-Limit  $\Delta\nu \approx 1/T$ , d.h. die Zeitdauer  $T$  des Messprozesses

gegeben ist. Im Flugzeitnachweis ist dies die Wechselwirkungszeit mit dem anregenden Quadrupolfeld  $T_{RF}$ . Bei der FT-ICR ist die Abtastdauer  $T_S$  der Transientenaufnahme bestimmend. Das erreichbare Auflösungsvermögen ist daher durch die Halbwertszeit des zu untersuchenden Nuklids begrenzt. Die erreichbare statistische Genauigkeit in der Massenbestimmung  $\delta m/m$  ist zusätzlich von der *Anzahl* der registrierten Ionen  $N_{ion}$  abhängig. Sie kann durch die Beziehung

$$\left(\frac{\delta m}{m}\right)_{stat} = \frac{c}{R \cdot \sqrt{N_{ion}}}, \quad (3.13)$$

beschrieben werden [Kell2003], wobei  $c$  eine dimensionslose Konstante ist. Bei der TOF-ICR ist  $N_{ion}$  die Anzahl der Ionen, die in *einem* Frequenzspektrum akkumuliert wird. Ein solches Spektrum besteht typischerweise aus 41 Frequenzstützpunkten. In der Praxis müssen hier mindestens ca. 300 Ionen beitragen, um eine Linienanpassung durchführen zu können. In der FT-ICR kann *ein* Frequenzspektrum mit nur *einem* Ion aufgenommen werden. Hier kann die Massenungenauigkeit durch die Mittelwertbildung aus mehreren ( $N_{ion}$ ) Messungen mit insgesamt  $N_{ion}$  Ionen verringert werden. Der genaue Vorfaktor in Gl. (3.13) ist von den Experimentbedingungen, wie z.B. dem Detektionsschema abhängig. In der folgenden Betrachtung wird er als nahezu gleich angenommen, wobei dies in zukünftigen Messungen noch zu verifizieren ist. Abbildung 3.7 zeigt den Zusammenhang zwischen der erreichbaren statistischen Genauigkeit der Massenbestimmung und der Beobachtungsdauer für verschiedene Ionenzahlen. Dabei werden nur die Ionen betrachtet, die erfolgreich in der Messfalle untersucht werden können. Die Gesamteffizienz des Ionentransports von der Erzeugung bis zur Messfalle ist nicht berücksichtigt. Die Detektionseffizienz betrage für beide Methoden 100 %. Betrachtet man die ISOL-Isotopentrenntechnik (siehe auch Kap. 5.2.1), so ist die produzierte Ionenrate von exotischen Nukliden weitab der Stabilität im Allgemeinen mit ihrer Halbwertszeit korreliert. Das heißt, dass bei wenigen verfügbaren Ionen keine langen Messzeiten möglich sind und ein destruktiver Nachweis demzufolge keine Einschränkung bedeutet. Dieser Zusammenhang ist im Bereich der transuranen Elemente anders. Dort werden Elemente mit geringen Raten produziert, haben jedoch (wesentlich) längere Halbwertszeiten. Oberhalb von Uran ( $Z \geq 92$ ) sind 173 Nuklide mit einer Halbwertszeit von mehr als einer Minute bekannt; oberhalb von Fermium ( $Z \geq 100$ ) sind es noch 37 Nuklide. Hier werden durch die FT-ICR-Methode Messungen möglich, die jeweils an einzelnen Ionen durchgeführt werden können. Der Bereich in Abb. 3.7 zwischen einem und ca. 100 verfügbaren Ionen ist somit ausschließlich über die FT-ICR-Methode zugänglich. Selbst mit nur einem einzigen Ion der Masse  $A = 250$  und  $T_{1/2} = 4$  s liesse sich die Masse mit einer statistischen Unsicherheit von  $5 \times 10^{-7}$  bestimmen. Dies halbiert die Unsicherheit der z.Zt. aus systematischen Trends abgeschätzten Massenwerte für Nuklide mit  $A = 250$ .

Die Eigenschaft des FT-ICR-Nachweises zerstörungsfrei zu sein, kann für Ionen mit einer Halbwertszeit von  $\geq 1$  min auf eine weitere Art ausgenutzt werden. Transienten können mehrfach, wiederholt gemessen werden, um durch Mittelungen das Signal-Rausch-Verhältnis zu erhöhen. Dabei wird eine feste Phasenbeziehung zwischen Anregung und Signalaufnahme in jedem Messzyklus vorausgesetzt.

Der sensitive, abgestimmte FT-ICR-Nachweis hat jedoch auch einen wesentlichen Nachteil. Er benötigt einen abgestimmten Schwingkreis hoher Güte, der die gleichzeitige Messung eines weiten Massenbereichs einschränkt. Macht man den Nachweis durch eine variable Kapazität abstimmbare, geht ein großer Abstimmbereich wegen Gl. (3.12) auf Kosten des Signal-Rausch-Verhältnisses. Es muss ein Kompromiss zwischen Abstimbarkeit und Signal-Rausch-Verhältnis gefunden werden. Bei SHIPTRAP ist eine Nachweispule mit einem Abstimmbereich von  $\Delta m = +/ - 10$  u vorgesehen. Alternativ können zielgerecht weitere Nachweispulen hergestellt werden. Wegen ihrer schlechten Zugänglichkeit im Zentrum des mit flüssigem Helium

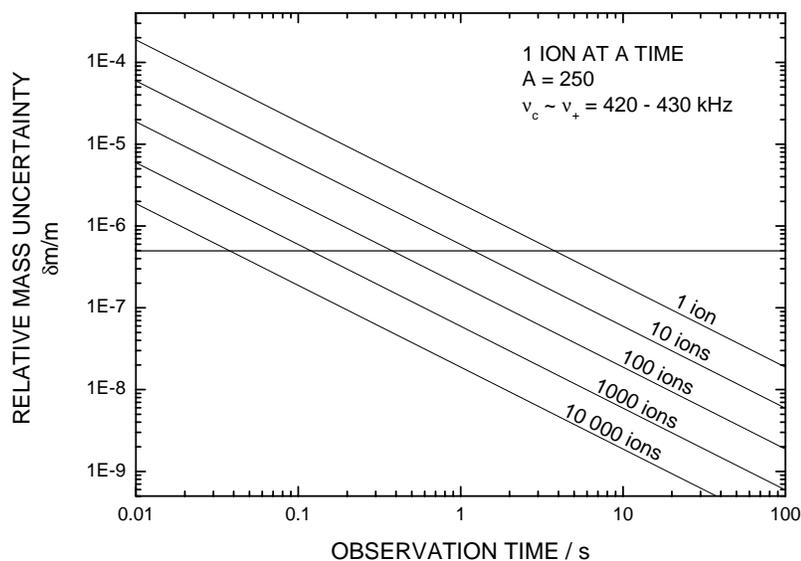


Abbildung 3.7: Angenommene statistische Unsicherheit in der Massenbestimmung mit TOF-ICR und FT-ICR in Abhängigkeit von Beobachtungsdauer und Ionenanzahl. Es wird zu jedem Zeitpunkt nur ein Ion in der Falle gespeichert. Die eingezeichnete Linie bei  $\delta m/m = 5 \times 10^{-7}$  gibt etwa die zweifache Genauigkeit der aus systematischen Trends abgeschätzten Massenwerte für Nuklide mit der Masse  $A = 250$  an. Der Bereich zwischen einem Ion und 100 Ionen ist ausschließlich mit der FT-ICR-Methode zugänglich.

gekühlten Aufbau (siehe Kap. 4.3) ist ein Spulentauch mit großem Aufwand verbunden. Das Penningfallensystem von SHIPTRAP besteht aus zwei Fallen, einer Reinigungsfalle und einer Messfalle (Kap. 4.2.4 und 4.3.2). Ein Breitbandnachweis eignet sich zur schnellen Erfassung eines weiten Massenbereichs. Diese Technik bietet eine ideale Ergänzung zum Einionennachweis in der Messfalle, da die Diagnose des Falleninhalts Auskunft über mögliche kontaminierende Ionen gibt. Eine solche Anwendung ist in der SHIPTRAP-Reinigungsfalle denkbar. Abschließend kann man festhalten, dass keine generelle Aussage möglich ist, welche der beiden Methoden besser geeignet ist. Abhängig von dem zu untersuchenden Nuklid sind die gewünschte Präzision in der Massenbestimmung, die Lebensdauer und die Produktionsrate die wesentlichen Kriterien für die Methode der Wahl. Der im folgenden Kapitel beschriebene SHIPTRAP-Aufbau für Experimente an transuranen Elementen soll daher beide Techniken zur Massenbestimmung implementieren.



## Kapitel 4

# Das Penningfallen–Massenspektrometer SHIPTRAP und Konzeption eines kryogenen Fallensystems

### 4.1 Motivation für Massenmessungen an SHIPTRAP

Neben der Erzeugung der schwersten Elemente mit den Ordnungszahlen  $Z = 107 - 118$ , auch **Superheavy Elements** (SHE) genannt, ist die Untersuchung ihrer Eigenschaften von größter Bedeutung. Wesentliche Fragestellungen richten sich an die chemischen Eigenschaften, z.B. ihre Einordnung in das Periodensystem der Elemente [Düll2002] sowie an die physikalischen Eigenschaften, z.B. ihre Halbwertszeiten und damit die Frage nach den Ursachen ihrer Instabilität bzw. Stabilität. Durch die hohe Zahl von Protonen und Neutronen ist die Kernstruktur dieser Nuklide komplex und macht die Vorhersage von Massenwerten aus theoretischen Modellbeschreibungen ungenau. Die Abweichungen von berechneten zu experimentellen Massenwerten liegen im Bereich zwischen 700 keV und 1 MeV [SHIP1998]. Die Kenntnis experimenteller Massenwerte erlaubt den Test von Massenmodellen und die Berechnung von Schalenkorrekturen im Bereich der schalenstabilisierten, deformierten Region um  $Z = 108$ ,  $N = 162$  sowie des superschweren Schalenabschlusses [Nils1969], der entweder bei  $Z = 114$  oder bei  $Z = 126$  liegt.

Abbildung 4.1 zeigt die gesamte Nuklidkarte experimentell nachgewiesener Kerne nach der Präzision des Massenwertes und der Halbwertszeit in einer Farbkodierung dargestellt. Dabei handelt es sich um empfohlene Massenwerte der atomaren Massenauswertung AME [NUCL2003] (siehe auch Kap. 5.5). Die meisten Massenwerte jenseits von  $Z = 92$  sind extrapolierte Werte (in rot dargestellt) oder indirekt bestimmte Werte. Diese sind an die Endpunkte langer  $\alpha$ -Zerfallsketten angehängt. In Abb. 4.1 (oben) erkennt man solche  $\alpha$ -Ketten durch die hellgrün markierten Nuklide, die gegenüber den umliegenden Kernen eine höhere Präzision in der Massenbestimmung aufweisen. Bei Kernen mit gerader Protonen- bzw. Neutronenzahl ist dies ohne die Unsicherheit in den Niveauschemata möglich. Für die meisten der Nuklide bis zu Lawrencium ( $Z = 103$ ) sind Halbwertszeiten im Bereich von Sekunden bis zu mehreren Minuten beobachtet (siehe auch Abb. 3 in [Hofm2000]), was die Untersuchung in einer Ionenfalle wie der in der SHIPTRAP-Anlage mit typischen Messzykluszeiten von  $T \approx 1$  s realisierbar macht.

Mögliche Kandidaten für eine Massenbestimmung aus der Region der transuranen Elemente mit den dazugehörigen Produktionsquerschnitten an SHIP sind in [Dill2001] aufgelistet. Die Nuklide wurden nach den Kriterien einer ausreichend langen Halbwertszeit von  $T_{1/2} \geq 500$  ms und einer Massenunsicherheit von  $\delta m \geq 50$  keV ausgewählt. Ein weiterer Zielbereich für erste

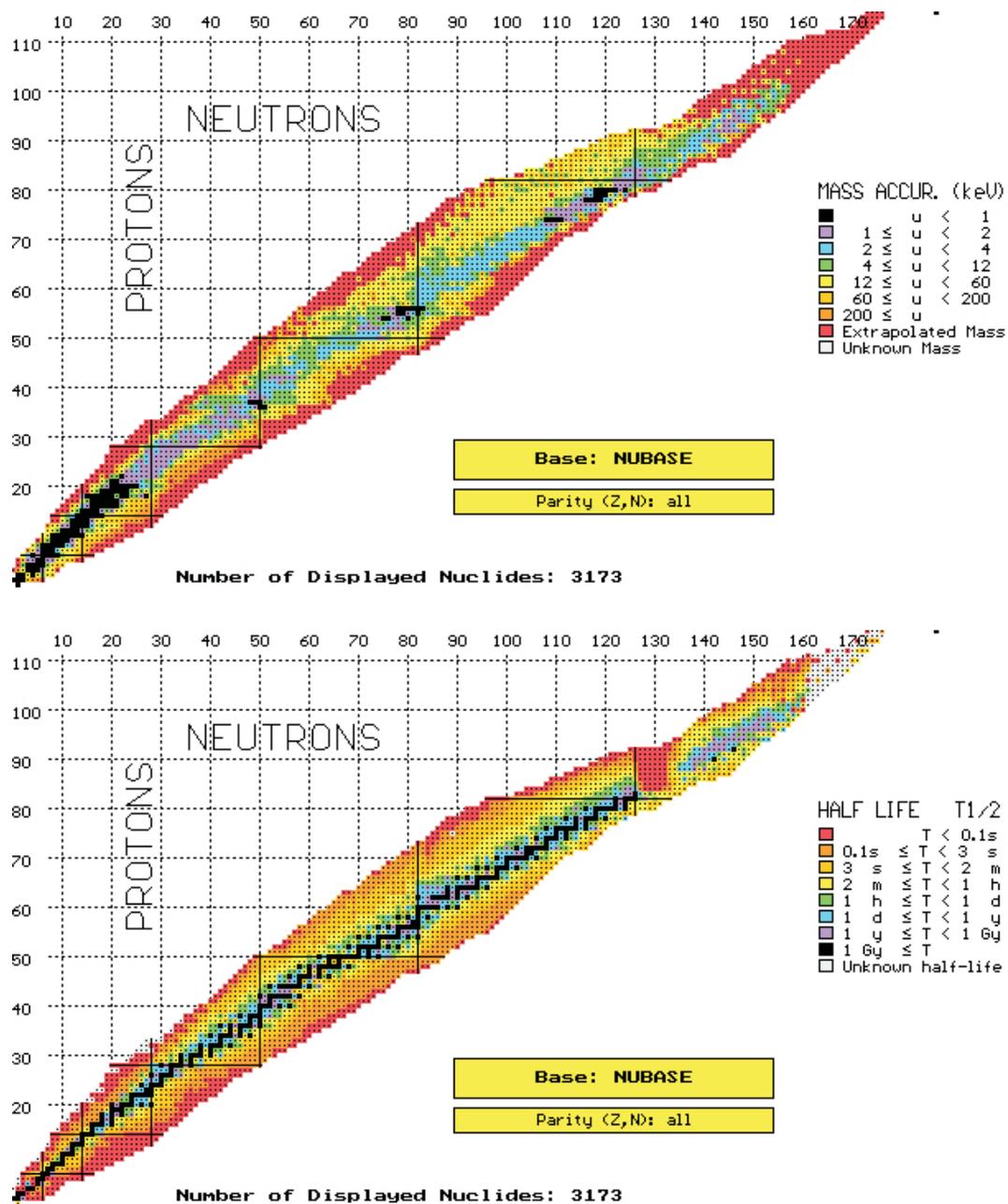


Abbildung 4.1: Genauigkeit der empfohlenen Massenwerte nach der AME [NUCL2003] (oben) und Halbwertszeiten (unten) für alle bekannten Nuklide. Diskussion im Text.

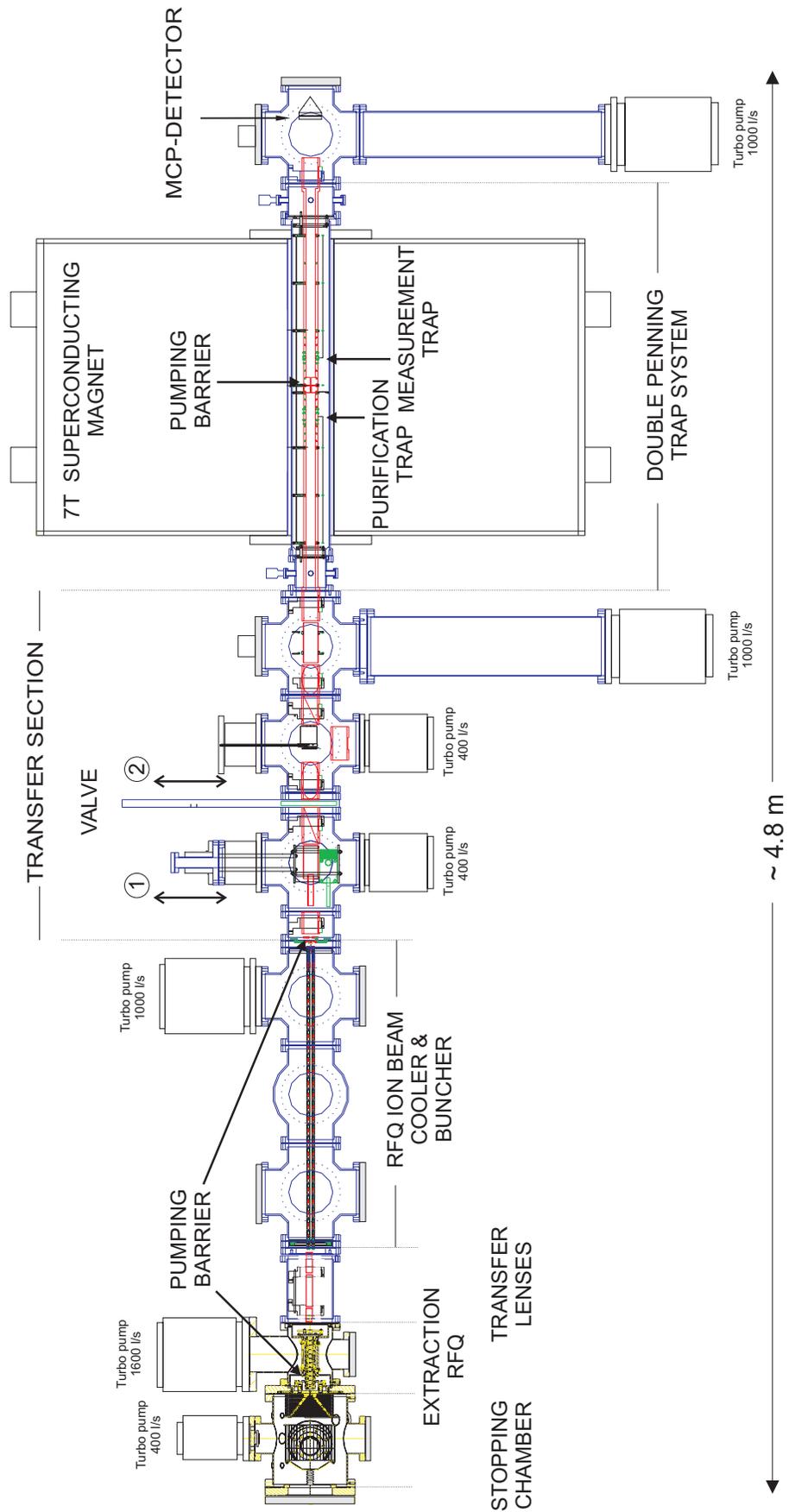


Abbildung 4.2: Aufbau des SHIPTRAP-Experiments. Erläuterungen im Text.

Messungen mit SHIPTRAP wäre auch die neutronenarme Region  $Z = 70 - 80$ , in der nur extrapolierte Massenwerte vorliegen (siehe Abb. 4.1), die Produktionsquerschnitte an SHIP jedoch mit einigen  $\mu\text{b}$  bis  $\text{mb}$  deutlich größer sind als im Bereich bei  $Z \geq 103$ . Der Betrieb einer Penningfalle als Massenspektrometer an SHIP setzt voraus, dass die kontaminierenden Ionensorten separiert und unterdrückt werden können. Die besondere Herausforderung liegt bei solchen Nukliden mit geringen Produktionsraten nahe des Detektionslimits. Dies erfordert einen Nachweis hoher Sensitivität wie die beschriebene Flugzeitmethode (TOF-ICR) oder die schmalbandige FT-ICR, die in Kap. 3.2.5 und 3.2.6 vorgestellt wurde und deren Realisation für den Aufbau an SHIPTRAP in Kap. 4.3 beschrieben wird.

## 4.2 Der experimentelle Aufbau von SHIPTRAP

Das Ziel der SHIPTRAP-Anlage [SHIP1998, Dill2000, Schö2002] ist die Bereitstellung gekühlter und von Kontaminationen gereinigter Ionen zur Durchführung von Präzisionsexperimenten. Neben der Massenbestimmung von transuranen Elementen sind zukünftig auch Untersuchungen zur Kernspektroskopie, Chemie [Dret2001] und optischen Spektroskopie geplant.



Abbildung 4.3: Photo des SHIPTRAP-Experiments mit den Elementen: Gaszelle (1) mit Extraktions-RFQ (2), Buncher-RFQ (3), verschiebbare Detektor-Ionenquellen-Einheit (4), supraleitender Magnet mit Reinigungsfalle (5) und Präzisionsfalle (6) und MCP-Detektor (7).

Der experimentelle Aufbau zur Massenbestimmung ist in Abb. 4.2 schematisch dargestellt. Ein Photo des ca. 4,8 m langen Aufbaus zeigt Abb. 4.3. Das Geschwindigkeitsfilter SHIP liefert durch Fusion entstandene schwere Nuklide bei einer Energie von bis zu  $100 \text{ keV/u}$ . Diese werden in einer Gaszelle [Neum2004] gestoppt und als einfach geladene Ionen mit Hilfe elektrischer Felder und des Gasflusses durch eine Düse in den Extraktions-RFQ (**R**adio-**F**requenz-**Q**uadropol) geleitet. Dort werden sie von dem umgebenden Gas getrennt und weiter transportiert. Der Buncher-RFQ kühlt die Ionenbewegung und akkumuliert den quasi-kontinuierlichen Strahl für einen gepulsten Ausschuss. Die erste Penningfalle (Reinigungsfalle) dient der Isobarenselktion und arbeitet bei

$p \sim 10^{-5}$  mbar Helium-Druck. In der zweiten Falle (Messfalle) findet die Massenmessung über die Bestimmung der Zyklotronfrequenz (Gl. (2.1)) der gespeicherten Ionen statt. Damit fällt über die gesamte Länge des SHIPTRAP-Experiments der Druck von  $p \sim 50$  mbar Helium in der Gaszelle bis hin zu  $p \sim 10^{-7}$  mbar in der Präzisionsfalle. In der Transferstrecke zwischen RFQ-Buncher und Penningfallen befindet sich ein MCP-Detektor (microchannel plate) und eine Ionenquelle auf einer verschiebbaren Durchführung (siehe Abb. 4.2, (2)). Sie erlauben einen off-line Test und die Optimierung der angeschlossenen Teilsysteme. Erste Ergebnisse nach Inbetriebnahme des RFQ-Bunchers sind in [Marx2001, Rodr2003] und erste durchgeführte on-line Tests der Gaszelle in [Sikl2003b] beschrieben. In den folgenden Unterkapiteln werden die einzelnen Teilsysteme des aktuellen Aufbaus unter Angabe der wichtigsten Referenzen diskutiert.

#### 4.2.1 Das Geschwindigkeitsfilter SHIP

Das Geschwindigkeitsfilter SHIP (Separator for **H**eavy **I**on **R**eaction **P**roducts) [Münz1979] befindet sich am Linearbeschleuniger UNILAC der GSI Darmstadt. Hier gelang die Erzeugung und der Nachweis der schwersten Elemente  $Z = 107 - 112$  [Hofm2000], was sich auch in der Namensgebung von Hassium (Hs,  $Z = 108$ ) und Darmstadtium (Ds,  $Z = 110$ ) widerspiegelt. Oberhalb des Fermiums ( $Z = 100$ ) werden Elemente durch Fusionsreaktionen zwischen schweren, stabilen Targetatomen (z.B. Pb, Bi) mit beschleunigten Projektilionen der Masse  $A = 40 - 80$  produziert. Die Projektilenergie ( $E \approx 5$  MeV/u) muss dabei so eingestellt werden, dass die Ionen die Coulombbarriere der Targetatome durchdringen, ohne jedoch dem entstehenden Verbundkern (engl.: compound nucleus) eine zu große Anregungsenergie zu übertragen (sogenannte kalte Fusion). Dieser kann durch den übertragenen Impuls die dünne Targetfolie ( $d = 1$  mg/cm<sup>2</sup>) verlassen.

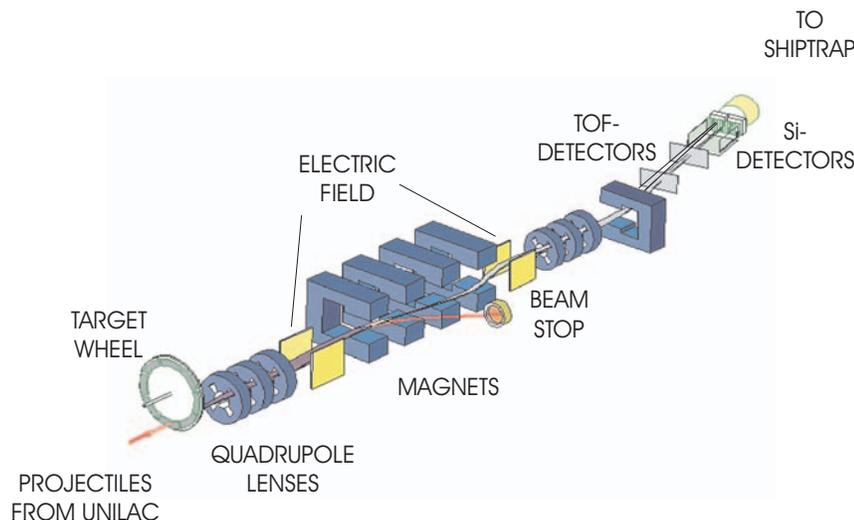


Abbildung 4.4: Geschwindigkeitsfilter SHIP. Seine Gesamtlänge beträgt ca. 11 m. Im rotierenden Targetrad finden die Fusionsreaktionen zwischen Projektil- und Targetkernen statt. Das Wien-Filter trennt die leichteren Projektilionen von den Fusionsprodukten. Deren Identifikation erfolgt aus einer Flugzeitmessung und dem Nachweis des Zerfalls der Nuklide. Der verwendete Si-Detektor wird bei dem gemeinsamen Betrieb mit SHIPTRAP entfernt.

Das Geschwindigkeitsfilter ist in Abb. 4.4 dargestellt. Es besteht aus einem doppelten Wien-Filter. Die Geschwindigkeitsklasse der Fusionsprodukte wird selektiert und der Primärstrahl der leichteren Projektilionen an der Mittelebene des Filters abgetrennt. Magnetische Quadrupollinsen

dienen der Strahlfokussierung. Nach der schnellen Trennung innerhalb einiger  $\mu\text{s}$  und der Massenbestimmung im Flugzeitdetektor werden die Fusionsprodukte in ortsempfindliche Si-Zähler implantiert. Über die korrelierte Abfolge von  $\alpha$ -Zerfällen bestimmter Zerfallsenergien und Halbwertszeiten erfolgt der eindeutige Nachweis des produzierten Mutternuklids.

#### 4.2.2 Die Gaszelle mit Extraktions-RFQ

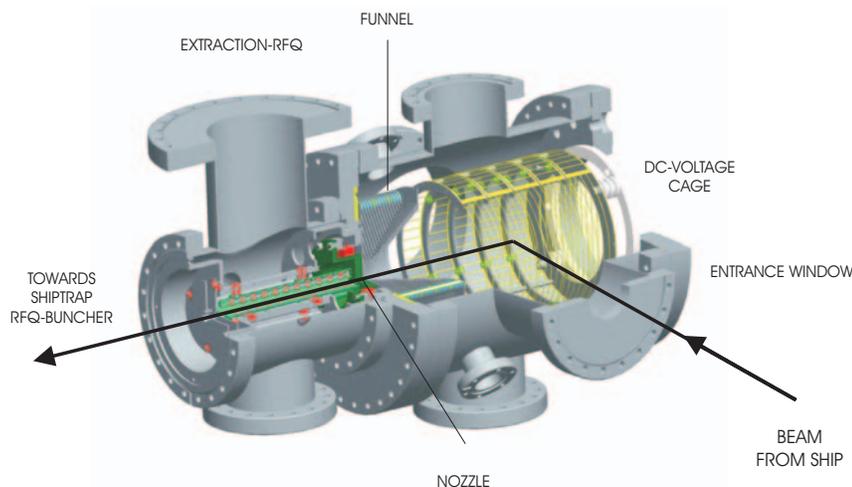


Abbildung 4.5: SHIPTRAP-Gaszelle mit Extraktions-RFQ. Das Stoppvolumen ist mit den transparenten Gleichspannungselektroden des sog. DC-VOLTAGE-CAGE umschlossen. Die fünffache longitudinale Unterteilung dient der Bildung eines Potentialgefälles. An den Elementen der trichterförmigen Funnel-Elektrode werden zur Führung und Fokussierung kombinierte DC- und RF-Spannungen angelegt. Nach dem Austritt durch eine Düse mit 0,6 mm Durchmesser werden die Ionen im Extraktions-RFQ weitergeleitet. Die Gesamtlänge der Vakuumkammern beträgt ca. 60 cm.

Die Entwicklung der Gaszelle für das SHIPTRAP-Experiment wurde im Rahmen der Dissertation von J. Neumayr [Neum2004] durchgeführt. Sie enthält die zugrunde liegenden Simulationsrechnungen, die Beschreibung der technischen Realisierung des Zellaufbaus sowie durchgeführte Messungen am Tandem-Beschleuniger in München als auch am SHIP-Filter der GSI. Abbildung 4.5 zeigt den aktuellen Zellaufbau. Die von SHIP separierten Fusionsprodukte treten durch ein Eintrittsfenster in die Gaszelle. Das Fenster, eine dünne Metallfolie (Durchmesser = 60 mm,  $d = 4 \mu\text{m} \hat{=} 1,8 \text{ mg/cm}^2$ ), trennt den Druckbereich der Zelle vom Vakuum des Beschleunigers. In mehrfachen Stößen mit dem Puffergas (Helium,  $p \approx 50 \text{ mbar}$ ) werden die Nuklide gestoppt. Zusammen mit dem Gasfluss werden sie als einfach geladene Ionen durch elektrische Gleichspannungsgradienten in Richtung der Ausgangsdüse ( $ID = 0,6 \text{ mm}$ ) geleitet. Um die Molekülbildung zu vermeiden, muss dabei auf eine höchstmögliche Gasreinheit geachtet werden. Vor der Düse befindet sich eine trichterförmige Elektrode (engl.: funnel) aus konzentrischen Ringscheiben. Eine RF-Spannung ( $V_{\text{RF}} = 160 - 200 \text{ V}_{\text{pp}}$ ,  $\nu_{\text{RF}} = 700 \text{ kHz}$ ) an den Ringscheiben dient der Fokussierung der Ionen und verhindert ihr Auftreffen auf die immer enger zulaufenden Elektrodendurchmesser der Funnel-Elektrode (siehe auch [Neum2003]). Der Extraktions-RFQ besteht aus vier kreisrunden Stäben, die in longitudinaler Richtung in 12 Segmente unterteilt sind. Sie haben eine Gesamtlänge von 18 cm bei einem minimalen Elektrodenabstand von  $2\eta_0 = 10 \text{ mm}$ . Hier werden die Ionen vom Puffergas getrennt. Eine Radiofrequenz an gegenüberliegenden Stäben

( $V_{RF} = 120 V_{pp}$ ,  $\nu_{RF} = 800 \text{ kHz}$ ) fokussiert sie in Richtung der Strahlachse und transportiert sie entlang des Gleichspannungsgradienten zum SHIPTRAP RFQ–Buncher.

In kürzlich durchgeführten Messungen am Tandem–Beschleuniger–Laboratorium in München wurde die Abbrems- und Extraktionseffizienz der Zelle mit Hilfe von radioaktiven Testionen untersucht und eindeutig bestimmt. Der  $\alpha$ –Strahler  $^{152}\text{Er}$  ( $E_{\alpha} = 4,8 \text{ MeV}$ ) wurde in der Reaktion  $^{35}\text{Cl} + ^{121}\text{Sb} \rightarrow ^{152}\text{Er} + 4n$  durch den Beschuss von beschleunigten Chlorionen ( $E = 150 \text{ MeV}$ ) auf ein Antimon(Sb)–target erzeugt. Hinter der Targetfolie wurden die Sekundärionen in einer Kohlenstoff–Folie in bestimmten Ladungszuständen präpariert und durch einen  $90^\circ$ –Magneten abgelenkt und damit vom Primärstrahl getrennt. Zur Bestimmung der Effizienz wird die Intensität des Eingangs- mit der des Ausgangsstrahls verglichen. Hierzu wird die Intensität der  $\alpha$ –Spektren mit Si–Detektoren direkt vor der Zelle und nach dem Extraktions–RFQ aufgenommen. In  $0^\circ$ –Geometrie (der Eingangsstrahl tritt von der hinteren Seite in die Zelle ein und wird gerade durch sie hindurch geleitet) wurde für das Abbremsen und die Extraktion eine Gesamteffizienz von 6 – 8% bestimmt [Neum2004]. Der Vorteil dieser Geometrie ist, dass Ionen direkt auf der Strahlachse zur Extraktion gestoppt werden, während bei einer Geometrie im rechten Winkel (siehe Abb. 4.5), wie sie im aktuellen SHIPTRAP–Aufbau vorgesehen ist, die optimalen Parameter zum Abstoppen auf dieser Achse noch bestimmt werden müssen. Eine Angabe zur Effizienz in der  $90^\circ$ – Geometrie kann zum jetzigen Zeitpunkt nicht gemacht werden.

### 4.2.3 Der SHIPTRAP RFQ–Kühler

Die Aufgabe des RFQ–Kühlers ist die Präparation des Ionenstrahls für einen optimierten Einfang in das nachfolgende Penningfallensystem. Dabei wird die Ionenbewegung gekühlt, um eine geringere Strahlemittanz ( $\epsilon_{trans} = 20 \pi \text{ mm mrad}$  bei 2,5 keV,  $\epsilon_{long} = 5 \text{ eV}/\mu\text{s}$  für  $\text{Ar}^+$  – Ionen) zu erzielen, zusätzlich erfolgt ein Bündeln (engl.: bunchen) des quasi–kontinuierlichen Ionenstrahls, um ihn als zeitlich definierten Puls ( $\Delta t \approx \mu\text{s}$ ) zu extrahieren. Typische Akkumulationszeiten liegen im Bereich von 5 – 10 ms.

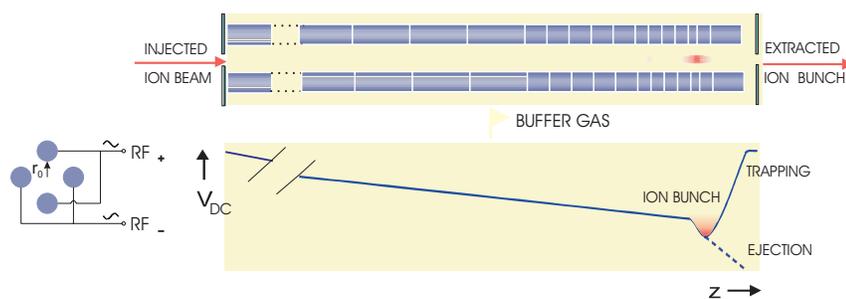


Abbildung 4.6: Prinzip eines RFQ–Bunchers. Ionen werden mittels hochfrequenter elektrischer Felder ( $V_{RF} = 950 \text{ kHz}$ ) durch die lineare Quadrupolstruktur geleitet. Die Versorgung mit der Radiofrequenz (RF) ist im linken Teilbild dargestellt. Die Struktur ist gasgefüllt um die Ionenbewegung zu kühlen. Durch die longitudinale Unterteilung der Elektroden kann ein Potentialgefälle mit anschließendem Minimum zur Speicherung der Ionen gebildet werden. Die Dimensionen des SHIPTRAP RFQ–Bunchers sind  $l = 1 \text{ m}$  und  $2r_0 = 7,8 \text{ mm}$ .

Der Aufbau ähnelt dem einer linearen Paul–Falle, wie sie häufig in Quadrupolmassenspektrometern oder Restgasanalysatoren verwendet wird. Abbildung 4.6 zeigt den prinzipiellen Aufbau eines RFQ–Bunchers. Er besteht aus vier gegenüberliegenden Stäben, zwischen denen in radialer

Richtung ein elektrisches Quadrupolpotential gebildet wird. Die Besonderheit liegt in der Unterteilung der vier parallelen Stäbe in longitudinaler Richtung und in der Anwesenheit eines Puffergases. Ionen werden durch Stöße in dem leichteren Puffergas (Helium oder Neon) gekühlt, so dass sich ihre radiale Amplitude verringert und eine Fokussierung zur Strahlachse hin resultiert [Herf2001a, Herf2001b]. In longitudinaler Richtung ist die ca. 1 m lange Struktur in 29 Segmente unterteilt. An der Eingangsseite sind die Segmente gleich groß ( $l_{\max} = 40$  mm), zur Ausgangsseite hin werden sie kleiner ( $l_{\min} = 4$  mm). Dies dient der Erzeugung eines linearen Gleichspannungsgradienten mit einem Potentialminimum am Ende des RFQ's (Abb. 4.6 unten). Ionen verlieren im Verlauf des Kühlprozesses an longitudinaler Energie und werden im Potentialminimum akkumuliert. Zu ihrer Extraktion wird die DC-Spannung der letzten Elektrode herunter geschaltet. Eine detaillierte Beschreibung des Buncher-Aufbaus an SHIPTRAP mit seinen Arbeitsparametern und Kenngrößen ist in [Rodr2003] gegeben.

#### 4.2.4 Die SHIPTRAP Penningfallen

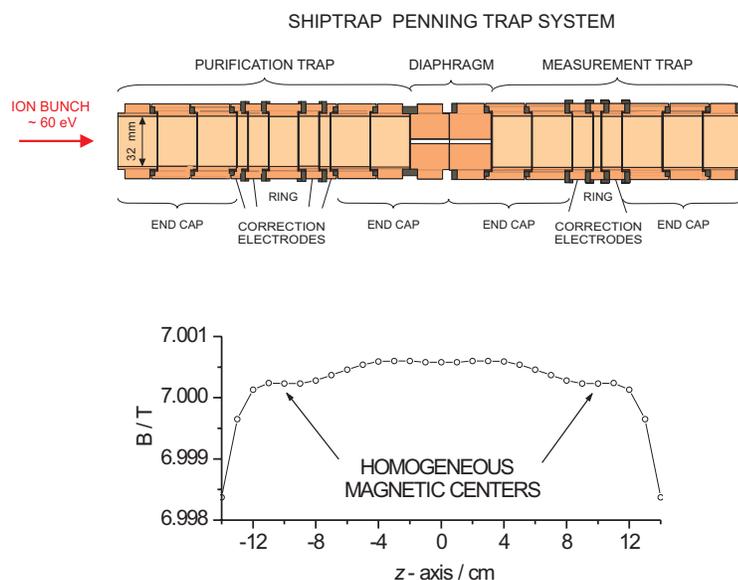


Abbildung 4.7: Schematische Ansicht der SHIPTRAP-Penningfallen des Raumtemperaturaufbaus. Oben: Die 7-polige Kühlerfalle ist durch ein Diaphragma (ID = 3 mm, L = 52 mm) von der 5-poligen Messfalle getrennt. Unten: Magnetfeldverlauf am Fallenort.

Beide Penningfallen, die *Reinigungsfalle* und die *Messfalle*, sind in demselben supraleitenden Magneten untergebracht. Das Feld des Magneten hat eine Stärke von 7 T und besitzt am Ort der Fallenzentren,  $z = \pm 10$  cm von der (geometrischen) Magnetmitte entfernt, eine besonders hohe Homogenität. Die Abweichung  $\Delta B/B$  über einen Volumenbereich von  $1 \text{ cm}^3$  beträgt 1 ppm am Ort der Reinigungsfalle und 0,1 ppm am Ort der Messfalle [Magn1999]. Die Elektrodenanordnung der Fallen des Raumtemperaturaufbaus ist zusammen mit dem Feldverlauf in Abb. 4.7 skizziert. Beide Fallen sind als zylindrische Fallen aufgebaut. Die Zylinderelemente der Falle lassen sich einfacher konstruieren und erlauben einen leichteren Zugang zum Einfang von Ionen, haben einen besseren Pumpquerschnitt und erleichtern den Zugang für die Einkopplung von Laser- oder Mikrowellenstrahlung im Vergleich zu der Elektrodengeometrie der hyperbolischen Form [Gabr1989], wie sie z.B. an ISOLTRAP für die Präzisionsfalle eingesetzt wird [Boll1996]. Gegenüber der in

Abb. 2.1 (b) dargestellten 3-poligen Falle besitzen beide Fallen zusätzliche Korrektorelektroden. Bei bestimmten Längenverhältnissen der zylindrischen Elektroden führt das Anlegen optimierter Spannungen zu einer Kompensation von Anharmonizitäten im Potential (Gl. (2.13)). Damit lässt sich die ideale Potentialform der hyperbolischen Elektrodengeometrie auf einen begrenzten Raumbereich annähern [Gabr1989]. Technische Details der Raumtemperaturfallen einschließlich der Zeichnungen sind in [Sikl2003a] gegeben.

In der *Reinigungsfalle* werden die Ionen vom RFQ-Buncher eingefangen und für die darauf folgende präzise Frequenzmessung vorbereitet. Eine ausgewählte Ionensorte wird selektiert und zugleich gekühlt. Dies geschieht mit Hilfe des in Kap. 2.4.1 beschriebenen Puffergaskühlverfahrens [Sava1991], das mit einem Auflösungsvermögen von  $R = 10^5$  eine Selektion einzelner, isobarer Massen erreicht [Raim1997]. Die Anforderungen an die Potentialform und damit die Elektrodenstruktur dieser Falle sind durch eine hohe Einfangeffizienz und Harmonizität im Fallenzentrum bestimmt. Dies ist durch eine 7-polige Zylinderfalle (siehe Abb. 4.7) nach dem Design der ISOLTRAP-Kühlerfalle [Raim1997] (siehe auch Kap. 5.2.3) realisiert. Sie besteht aus einer achtfach segmentierten Ringelektrode und je einem Paar von inneren und äußeren Korrektorelektroden. Die Endkappen sind axial in drei Segmente unterteilt. Die Falle hat eine Gesamtlänge von  $l = 212,5$  mm und einen Innendurchmesser von  $\rho_0 = 32$  mm. Nach Wahl geeigneter Spannungen zur Bildung eines harmonischen Potentials im Zentrum wird eine charakteristische Fallendimension von  $d = 26,8$  mm (Gl. (2.3)) erreicht [Sikl2003a]. Ein Diaphragma ( $ID = 3$  mm,  $l = 52$  mm) an der Ausgangsseite dient als differentielle Pumpsperre zwischen beiden Fallen und erlaubt ausschließlich den Ausschuss von auf Achse zentrierten, gekühlten Ionen.

In der *Messfalle* erfolgt die Massenmessung der gespeicherten Ionen über die Zyklotronfrequenzbestimmung. Dazu wird am SHIPTRAP-Raumtemperaturaufbau die Flugzeitmethode (Kap. 3.1) angewendet. Abbildung 4.7 rechts zeigt die 5-polige orthogonalisierte Falle. Bei idealer Wahl der relativen Größe des Radius  $\rho_0/z_0$  zur relativen Länge der Korrektorelektrode  $z_c/z_0$  erreicht man, dass die angelegte Korrekturspannung  $V_c$  keinen Einfluss auf die axiale Frequenz  $\omega_z$  hat. Wird  $z_c/z_0 = 0,835$  festgelegt, so lassen sich die Terme höherer Ordnung,  $C_4$  und  $C_6$  (Gl. (2.13)), gleichzeitig zu null kompensieren [Gabr1989].

#### 4.2.5 Die Driftstrecke zum Flugzeitnachweis

Mit der Flugzeitmethode (Kap. 3.1) werden die Ionen aus der Falle ausgeschossen und driften bis zum ca. 80 cm entfernten Flugzeitdetektor. Dieser befindet sich im Randfeld des Magneten ( $B_z \leq 0,067$  T), so dass die Ionen den inhomogenen Teil des Magnetfeldes durchlaufen. Hier findet die Konversion ihrer radialen Energie (bei  $B_0$ ) in axiale Energie statt, die letztendlich für resonant angeregte Ionen zu einer Verkürzung ihrer Flugzeit zum Detektor führt. Diese Flugzeitunterschiede erkennt man besonders deutlich, wenn die Ionen langsam durch den inhomogenen Teil des Magnetfeldes driften. Währenddessen bleibt das magnetische Bahnmoment  $\vec{\mu}$  der Ionen erhalten, was mit einer Aufweitung des Bahnradius einhergeht.

$$r_z = r_0 \sqrt{\frac{B_0}{B_z}} \quad (4.1)$$

Die Driftelektroden der Flugzeitstrecke leiten die Ionen zum Detektor und bieten die Möglichkeit ihre Geschwindigkeit anzupassen und sie zu fokussieren. Hierzu ist die Strecke in verschiedene Driftröhren unterschiedlicher Länge unterteilt. In Simulationsrechnungen für Ionen der Masse  $A = 100$  und  $A = 250$  wurden die Flugzeiten zum Detektor, der Flugzeiteffekt und die Ionenradien in Abhängigkeit von ihren Startenergien berechnet [Schö1999]. Abbildung 4.8 zeigt den

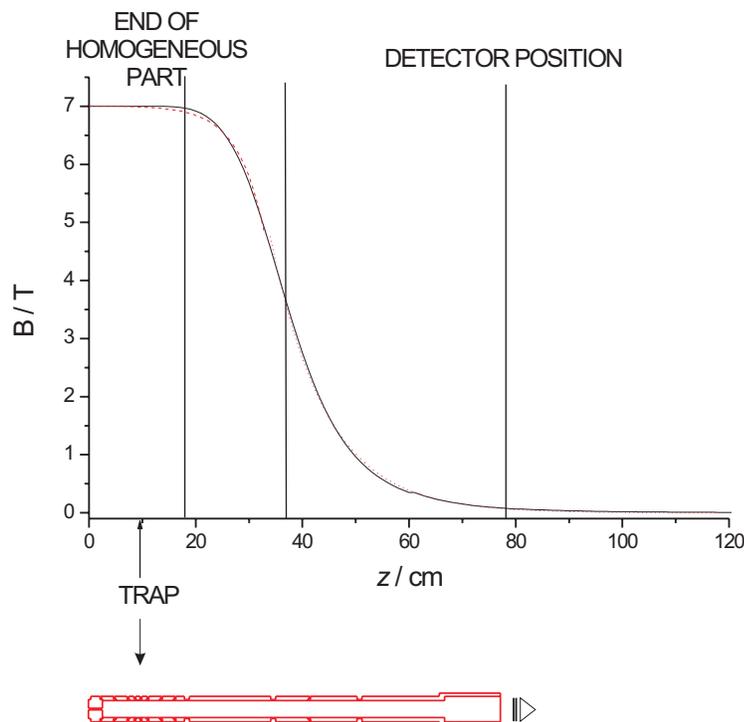


Abbildung 4.8: Oben: Magnetfeldverlauf des SHIPTRAP-Magneten. Die gestrichelte Kurve zeigt den berechneten Magnetfeldverlauf zur Simulation der Flugzeiten. Unten: Einteilung der Driftstrecke und Detektorposition.

Magnetfeldverlauf des SHIPTRAP-Magneten und die Segmentierung der Elektroden der Driftstrecke, um die Ionen beim Verlassen des Magnetfeldes durch eine elektrostatische Linse fokussieren zu können.

### 4.3 Der kryogene Penningfallenaufbau von SHIPTRAP

Das Signal-Rausch-Verhältnis (Gl. (3.12)), das sich theoretisch für den Nachweis eines einzelnen Ions der Masse  $A = 250$  und einer Resonanzfrequenz von  $\nu_+ = 420$  kHz (Speicherspannung  $V_0 = 10$  V) mit dem SHIPTRAP-Raumtemperaturaufbau erzielen lässt, liegt mit  $S/N \approx 0,9$  gerade unterhalb der Nachweisgrenze. In dieser Abschätzung wird das Ion bis zur Hälfte des Fallradius angeregt, so dass  $r_{\text{ion}}/D \approx 1/4$  gilt. Der Schwingkreis setzt sich hier aus der Streukapazität der Falle von  $C \approx 20$  pF und der hinzugefügten Induktivität von  $L = 7,2$  mH zusammen. Für eine normalleitende Spule wird ein Gütefaktor von  $Q = 50$  angenommen, so dass ein Widerstand von  $R = 950$  k $\Omega$  (Gl. (3.9)) folgt. Mit dem Ziel, eine höhere Nachweisempfindlichkeit zu erreichen, werden im Folgenden alternative Aufbaukonzepte einer FT-ICR Detektion mit abgestimmten Resonanzkreis betrachtet. Als Kenngröße wird der Ausdruck  $\sqrt{Q/(TC)}$  aus Gl. (3.12) verglichen, der proportional dem  $S/N$ -Verhältnis ist. Die Ergebnisse für verschiedene Konzepte sind in Tab. 4.1 zusammengefasst. Der Nachweiskreis setzt sich aus den Komponenten der Falle, den Zuleitungen und der Nachweisspule zusammen. Da der Ausschuss der Ionen möglich bleiben soll, wird die Nachweisspule aus Platzgründen in allen Lösungen außerhalb des Magnetfeldes platziert. Die Kapazität von Spule und Zuleitungen ist daher für die betrachteten Aufbaukonzepte gleich und wird mit  $C \approx 25$  pF bzw.  $C \approx 60$  pF (1 pF/cm) abgeschätzt. Die wesentlichen Unterschiede

Tabelle 4.1: Vergleich verschiedener kryogener Aufbaukonzepte zum FT-ICR-Nachweis und erwartetes Signal-Rausch-Verhältnis relativ zu dem eines Raumtemperaturaufbaus. Abhängig von der Temperatur der einzelnen Nachweiskomponenten, d.h. Falle, Zuleitungen und Induktivität, wurde eine effektive Temperatur des Gesamtnachweises und ein Gütefaktor abgeschätzt. Die Gesamtkapazität beträgt für alle Lösungen einheitlich  $C = 85$  pF.

Kryogenes Konzept #	Temperatur $T$ / K			$T_{\text{eff}}$ / K	Gütefaktor $Q$	$S/N$ willk. Einheiten
	Falle	Zuleitungen	Spule			
(1)	300	300	300	300	200	1
(2)	300	300	77	155	200	1,4
(3)	77	77	77	77	200	2
(4)	300	300	4	108	2000	3,9
(5)	77	77	4	30	2000	7,1

folgen aus der Temperatur der einzelnen Komponenten und der Technik der Spule. Die Temperaturangabe zeigt, ob und auf welche Art die jeweilige Komponente gekühlt wird. 300 K bedeutet keine Kühlung, 77 K sieht eine Kühlung mit flüssigem Stickstoff ( $\text{LN}_2$ ,  $T_{\text{STP}} = 77,3$  K) und 4 K die Kühlung mit flüssigem Helium (LHe,  $T_{\text{STP}} = 4,22$  K) vor. Im Fall einer LHe-Kühlung ist der zu erwartende Gütefaktor  $Q$  bei Verwendung einer supraleitenden Nachweispule deutlich höher. Die Kenngröße  $\sqrt{Q/(TC)}$  ist für das Raumtemperaturkonzept (1) auf eins normiert. In der letzten Spalte ist der Gewinn an Signal-Rausch-Verhältnis für die verschiedenen kryogenen Aufbaukonzepte dargestellt.

Die Ideallösung für eine *maximale* Nachweisempfindlichkeit wäre eine vollständige Heliumkühlung für Falle und Nachweisspule, die dann sehr nahe bei der Penningfalle platziert werden müsste. Dies ist unter Berücksichtigung der Ausschussmöglichkeit der Ionen in dem Vakuumrohr ( $ID = 130$  mm) aus Platzgründen nicht möglich. Wegen des begrenzten Massenbereichs  $\Delta m$ , in dem die Spule sehr hoher Güte  $\omega/\Delta\omega$  empfindlich ist, ist die Alternative eines gleichzeitigen Flugzeitnachweises erwünscht. Daher wurde an SHIPTRAP im Rahmen dieser Arbeit das Konzept (5) verfolgt, das sich durch eine Penningfalle bei einer Umgebungstemperatur von 77 K und einen externen Nachweiskreis mit einer Nachweisinduktivität bei 4,2 K kennzeichnet.

### 4.3.1 Die kryogene Vakuumapparatur

Die kryogene Vakuumapparatur besteht aus zwei Hauptkomponenten: Einem horizontalen Fallenvakuumrohr, das mit flüssigem Stickstoff ( $\text{LN}_2$ ) gekühlt wird und einem Helium-Kryostaten, der zum Betreiben der supraleitenden Induktivität und der Verstärkerelektronik erforderlich ist. Der schematische kryogene Fallenaufbau ist in Abb. 4.9 dargestellt. Wegen des starken Magnetfeldes wurden die verwendeten Standardbauteile als auch die kundenspezifisch gefertigten Vaku-

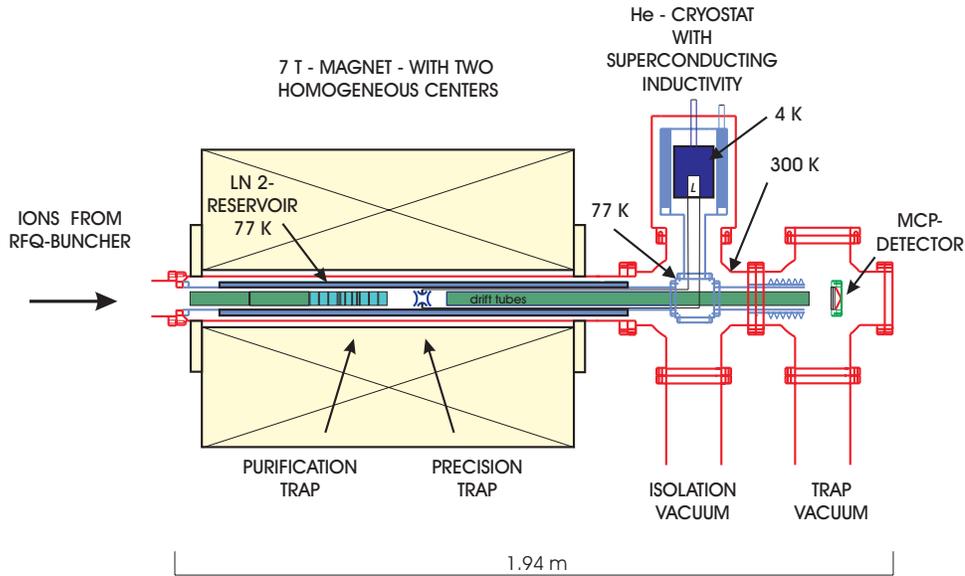


Abbildung 4.9: Schema des kryogenen Fallenaufbaus an SHIPTRAP. Beide Penningfallen befinden sich in einem auf 77 K gekühlten Vakuumrohr. Der Nachweis der Ionenbewegung erfolgt mit Hilfe einer abgestimmten, supraleitenden Spule  $L$  in einem externen Helium–Dewar bei 4,2 K. Ein Mebranbalg (rechts) kompensiert die Längenänderung des Vakuumrohres beim Herunterkühlen. Die Driftstrecke und der microchannel plate (MCP)–Detektor ermöglichen den Ausschuss der Ionen mit einer Flugzeitbestimmung.

umkammern aus Materialien geringer magnetischer Permeabilität  $\mu$ , wie Edelstahl (z.B. 316LN) ( $\mu \leq 1,0045$ ) und Kupfer ( $\mu \geq 0,99999$ ) bzw. ( $\chi = 7,7 \times 10^{-7}$ ) gefertigt.

In der Planung des Kryostaten muss die von außen einwirkende Wärmelast  $Q$  berücksichtigt werden, um den Verbrauch an Kühlmitteln gering zu halten. Die Hauptmechanismen des Wärmeeintrags sind Konvektion, Wärmeleitung und Strahlungswärme [Whit1979]. Die Wärmelast durch die Konvektion eines Gases (oder einer Flüssigkeit) bei einem Druck  $p$  auf eine Fläche  $A$  ist durch

$$\dot{Q}_{\text{Konvektion}} \simeq A p (T_{>} - T_{<}), \quad (4.2)$$

und die Wärmeleitung fester Stoffe der Querschnittsfläche  $A$  und der Länge  $l$  mit einer charakteristischen integralen Wärmeleitfähigkeit  $K$  in [W/cm] durch

$$\dot{Q}_{\text{Leitung}} = \frac{A}{l} \int K dT \quad (4.3)$$

gegeben. Die Last durch thermische Strahlung zwischen Oberflächen der Größe  $A$  mit Emissionsgrad  $\varepsilon$  und verschiedener Temperatur  $T_{>}$  und  $T_{<}$  beträgt

$$\dot{Q}_{\text{Strahlung}} \simeq \sigma A \varepsilon (T_{>}^4 - T_{<}^4). \quad (4.4)$$

Das horizontale Vakuumrohr, in dem die Penningfallen untergebracht sind, ist auf der Seite der Reinigungsfaller an das Zuleitungs–Steckersystem des existierenden Aufbaus angepasst. Wegen der Notwendigkeit, die Apparatur innerhalb des Magneten zu justieren, um damit die Lage der

<sup>1</sup>Die im Folgenden aufgeführten Gleichungen sind Näherungen.

Fallenachse relativ zur Magnetfeldachse zu überprüfen (siehe Kap. 2.2.3), ist das äußere Isolationsvakuumrohr kleiner als die Abmessungen der Raumtemperaturbohrung des supraleitenden Magneten (ID = 155 mm). Es besteht aus einem Edelstahl geringer magnetischer Permeabilität und ist besonders dünnwandig gefertigt (AD = 134 mm, ID = 130 mm, L = 1150 mm). Im Rohrrinnern wurde es gehont und zur Verminderung des Emissionsgrads  $\varepsilon$  die Oberfläche elektroliert.

Das Fallenvakuumrohr (AD = 64 mm, ID = 60 mm, L = 1,30 m) ist aus Kupfer gefertigt und besitzt auf einem Teil seiner Gesamtlänge einen konzentrischen Kühlmantel, der auf der rechten Unterseite mit flüssigem Stickstoff befüllt wird und auf dessen Oberseite das verdampfende Gas entweichen kann. Die Teile aus Kupfer sind hochglanzvergoldet. Der Übergang auf Raumtemperatur ist auf der linken Seite des Fallenrohres durch ein dünnwandiges Edelstahlrohrstück ( $d = 0,5$  mm) und auf der rechten Seite durch ein angeschlossenes langes Rohrstück mit anschließenden Mebranbalg in einer Zentrierhalterung gelöst. Der Mebranbalg dient gleichzeitig zur Kompensation der Längenänderung beim Abkühlen des Rohres von ca. 1,75 mm am Ort der Messfalle. Hier ist ein Temperatursensor (Si-Diode) angebracht. Unterhalb des Helium-Dewars ist das Rohr durch eine würfelförmige Vakuumkammer unterbrochen, über die elektrische Zuführungen der Falle aus dem Ultra-Hoch-Vakuum durch das Isoliervakuum nach draußen geführt werden. Das Isoliervakuum von  $p \leq 10^{-6}$  mbar dient zur Vermeidung von Konvektion.



Abbildung 4.10: Helium-Dewar nach der Fertigung. Die äußeren Abmessungen des Dewars betragen AD = 250 mm und  $L = 760$  mm. Der Raum für den Einsatz der supraleitenden Nachweispule ragt über den unteren Rand des Dewars in die benachbarte Vakuumkammer hinein.

Der Helium-Kryostat besteht im Innern aus einem Edelstahl-Helium-Tank (ca. 6,3 l), an dessen Unterseite die Nachweisinduktivität eingesetzt und von einer Kupferplatte gehalten wird. Er ist durch ein Strahlungsschild  $T \simeq 20$  K aus Aluminium umgeben, das durch das verdampfende Helium gekühlt wird. Die schichtweise Anordnung von Strahlungsschildern bei verschiedenen Temperaturen: 4 K – 20 K – 77 K – 300 K dient der Reduzierung der Wärmelast durch thermi-

sche Strahlung. Der Stickstofftank des Dewars (ca. 13,5 l) dient gleichzeitig als Reservoir für das gekühlte Vakuumrohr der Penningfallen. Er wird durch eine automatische Nachfüllvorrichtung mit  $\text{LN}_2$  versorgt. Ein äußerer Rezipient aus Edelstahl mit einem Durchmesser von  $AD = 250$  mm umgibt den Dewar und ist zur Montage des Dewars auf einen Bodenflansch (DN250CF) aufgebaut. Abbildung 4.10 zeigt ein Photo des Helium–Kryostaten. Zur Temperaturmessung ist am Ort der Nachweispule  $L$  ein Temperatursensor (Si–Diode) installiert.

### 4.3.2 Die kryogenen SHIPTRAP–Penningfallen

Verglichen mit dem Aufbau bei Raumtemperatur ist der verfügbare freie Rohrdurchmesser für den Einbau der Penningfallen nun 60 mm statt 125 mm groß. Die kryogene, 7–polige zylindrische Reinigungsfaller ist in ihren charakteristischen Abmessungen identisch zur Raumtemperaturfaller. Ein Foto der kryogenen Reinigungsfaller ist in Abb. 4.11 abgebildet. Alle Fallen- bzw. Driftelektroden die sich im  $\text{LN}_2$  gekühlten Bereich des Vakuumrohres befinden, sind wegen der guten Wärmeleitfähigkeit aus elektrolytischem Kupfer ( $K = 1620$  W/cm) gefertigt. Im Übergang zum Raumtemperaturbereich wurde Edelstahl wegen seiner schlechteren Wärmeleitfähigkeit ( $K = 30$  W/cm) verwendet<sup>2</sup>. Speziell das OFE–Kupfer (Oxygen–Free–Electrolytic) der Fallenelektroden sorgt durch seine hohe Reinheit (99,99 % Mindestanteil an Kupfer) für eine äußerst geringe Beeinträchtigung der Homogenität des Magnetfeldes. Die Elektroden sind vergoldet, um die Oxidation ihrer Oberfläche zu verhindern und eine gute elektrische Leitfähigkeit zu gewährleisten.

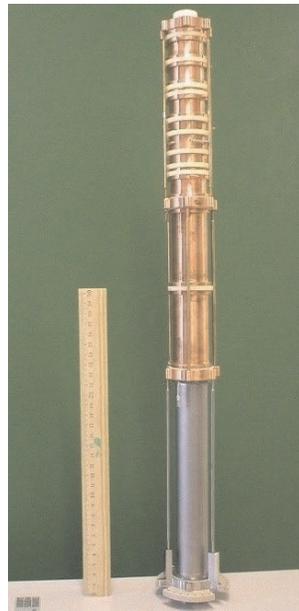


Abbildung 4.11: Reinigungsfaller des kryogenen Aufbaus. Die charakteristischen Fallendimensionen sind identisch mit denen des Raumtemperaturaufbaus (Kap. 4.2.4). Die größte radiale Ausdehnung der Halterungen beträgt 60 mm. Die Driftröhre auf der Eingangsseite ist wegen der geringeren Wärmeleitfähigkeit aus Edelstahl gefertigt, die Elektroden aus vergoldetem Kupfer.

Im Folgenden ist der Aufbau der Messfallenseite beschrieben: Die Driftelektroden sind durch Rin-

<sup>2</sup>Integrale Wärmeleitfähigkeit  $K$  aus Gl. (4.3) bei Abkühlung von 300 K auf 77 K.

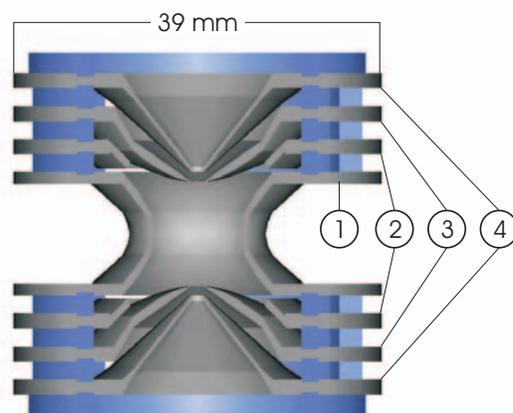


Abbildung 4.12: Querschnitt der kryogenen hyperbolischen Messfalle. Neben Ring (1) und Endkappen (3), ist die Falle mit den dazugehörigen Korrektur Elektroden (2) und (4) ausgestattet. Die dreidimensionale Zeichnung gibt keine Details, wie z.B. die radiale Segmentierung, wieder. Diese ist aus den technischen Zeichnungen in Anhang A ersichtlich.

ge aus Aluminiumoxid ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) voneinander isoliert und werden zwischen zweigeteilten Halterungen aus Kupfer eingespannt. In den zweigeteilten Halterungen befindet sich ein Macorring, der die elektrischen Zuleitungen an den Elektroden entlang nach außen führt. Macorrings und Halterungen sind mit Bohrungen versehen, zum Zwecke eines großen Pumpquerschnitts bis hin zur Fallenregion. Die Längenänderung unter Abkühlung mit flüssigem Stickstoff wurde berücksichtigt, so dass die Falle bei Raumtemperatur 1,75 mm vom homogenen Zentrum versetzt montiert wird. Das zu erreichende Signal-Rausch-Verhältnis des FT-ICR Nachweises ist das Hauptkriterium im Design der Messfalle. Von den Größen in Gl. (3.12) ist hauptsächlich die Kapazität zwischen den Elektroden und die Geometrie der Falle von Bedeutung. Da das Ion vor der Detektion auf einen großen Bahnradius  $r_{\text{ion}}$  angeregt wird, hat die Magnetfeldinhomogenität  $\Delta B$  bei  $r_{\text{ion}}$  einen Einfluss auf die Linienbreite  $\Delta\nu$  des Ionensignals. Diese möchte man aus Gründen der Rauschminimierung (siehe Kap. 3.2.6) und zum Erzielen einer hohen Messgenauigkeit so schmal wie möglich halten. Die Falle wurde daher so klein gewählt, dass sich ein Ion bei angenommenen 80 % des Fallenradius, d.h. bei ca. 5 mm, noch in dem als besonders homogen spezifizierten Bereich des Magneten befindet.

Die Falle besteht aus hyperbolisch geformten Elektroden, um auch bei *großem*  $r_{\text{ion}}$  noch ein harmonisches Quadrupolpotential zu gewährleisten. Dies ist bei einer zylindrischen Falle in diesem Maße nicht möglich. Damit bleiben die Eigenfrequenzen weitestgehend von den Bewegungsamplituden unabhängig. Es handelt sich um eine orthogonalisierte hyperbolische Falle mit einem optimalen Radius-zu-Endkappenabstand-Verhältnis von  $\rho_0 \approx 1,16 z_0$  [Gabr1983]. Ein Querschnitt der hyperbolischen Falle ist in Abb. 4.12 dargestellt. Die Materialverteilung der hyperbolischen Fallenelektroden führt durch die Suszeptibilitäten der Materialien zu einer Verschlechterung der Homogenität des Magnetfeldes (siehe auch Kap. 2.2.2). Abhängig vom Polarwinkel  $\theta$  trägt sie mit verschiedenem Vorzeichen zu einem magnetischen Quadrupolpotential bei [Brow1986], das zu unerwünschten Frequenzverschiebungen führt. Die durch das starke Magnetfeld hervorgerufene Magnetisierung der Fallenmaterialien wurde für verschiedene Formen der Elektrodenrückseiten und Halterungen berechnet und dementsprechend optimiert. Abbildung 4.13 stellt den Querschnitt der Messfalle in der  $(r, z)$ -Ebene dar. Auf der rechten Seite sind die Beiträge  $\Delta B/B$  der eingezeichneten Bauteile zum Magnetfeld dargestellt. Die resultierende Größe von  $\beta_2 = -1,3 \cdot 10^{-8} / \text{mm}^2$

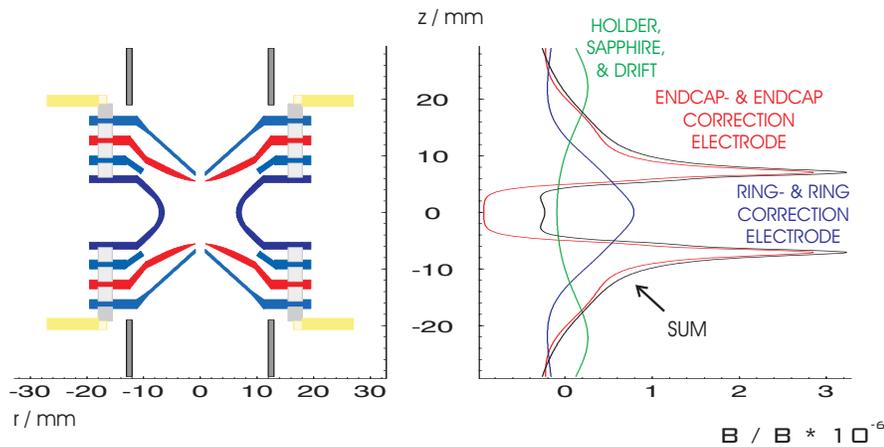


Abbildung 4.13: Magnetfeldverlauf, hervorgerufen durch die Magnetisierung der Fallenmaterialien. Die Beiträge der einzelnen Elektroden sind getrennt eingezeichnet. Eine Linienanpassung an den Summenbeitrag liefert den Koeffizienten  $\beta_2$  aus Gl. (2.15).

(siehe Gl. (2.16)) des Summenbeitrags führt für Ionen bis zu einer Masse von  $A = 250$  mit den Bewegungsamplituden  $z = 2$  mm,  $\rho_+ = 5$  mm und  $\rho_- = 1$  mm zu einer relativen Frequenzverschiebung von kleiner als

$$\frac{\Delta\omega_c}{\omega_c} = -5 \cdot 10^{-8}. \quad (4.5)$$

Die Teilung der Ringelektrode zur Detektion des Ionenstromes ist asymmetrisch ( $2 \times 14^\circ$  und  $2 \times 40^\circ$ ), um ein hohes Signal-Rausch-Verhältnis zu erzielen. Ein Photo der hyperbolischen Messfalle ist in Abb. 4.14 gezeigt. Die einzelnen Elektroden sind durch kleine maßgefertigte Saphirstücke voneinander isoliert. Die dadurch entstehenden offenen 'Sektoren' zwischen den Elektroden garantieren einen großen Pumpquerschnitt des Fallenninneren und minimieren die Menge an dielektrischem Material zwischen den Elektroden und damit die Kapazität. Weiterhin hat Saphir eine hohe Wärmeleitfähigkeit von  $\lambda = 400$  W/(cm · K) und einen geringen elektrischen Verlustwinkel von  $\tan \delta = 3 - 8,6 \times 10^{-5}$ . Dieser wirkt sich wegen

$$Q = \frac{1}{\tan \delta}, \quad (4.6)$$

günstig auf die Güte des Nachweiskreises aus.<sup>3</sup>

### 4.3.3 Die Driftstrecke zum Flugzeitnachweis

Die Driftstrecke des kryogenen Aufbaus ist wegen der Ankopplung des Helium-Kryostaten und der erforderlichen Längenkompensation des Fallenvakuumrohres um ca. 31 cm länger als im Raumtemperaturaufbau (Kap. 4.2.5). Die verfügbaren Elektrodendurchmesser sind im kryogenen Aufbau kleiner. Zwecks eines höheren Pumpquerschnitts bis hin zur Falle sind alle Elektroden mit Bohrungen versehen. Die Unterteilung der Flugzeitstrecke ist in Abb. A.1 in Anhang A dargestellt. Die Elektroden 'drift3', 'drift4' und 'drift5' im Randfeld des Magneten (555 mm von der Magnetmitte entfernt) können als Einzellinse genutzt werden. Unter Berücksichtigung der Aufweitung

<sup>3</sup>Der Verlustwinkel ist damit um einen Faktor 10 größer als der von Macorkeramiken [Stah1998].

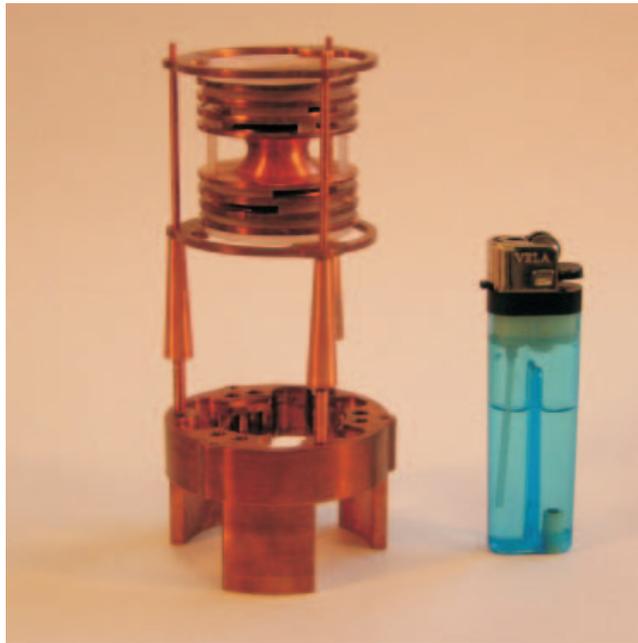


Abbildung 4.14: Hyperbolische Messfalle. Die Falle wird durch eine separate Haltestruktur aus Kupfer-Berylliumstäben gehalten und ist damit frei von mechanischer Belastung beim Einbau der gesamten Elektrodenstruktur in die Vakuumapparatur.

der Bahnradien der Ionen nach Gl. (4.1) haben die hinteren Drietelemente einen größeren Innendurchmesser. Eine Drietelektrode (‘drift 6’) enthält integrierte Ablenkerplatten in horizontaler und vertikaler Richtung.

#### 4.3.4 Das elektronische Nachweissystem

Das Schema des elektronischen Nachweissystems ist in Abb. 4.15 skizziert. Der zeitliche Ablauf der Messung wird durch einen Zeitgeber (1) gesteuert. Die reduzierte Zyklotronbewegung<sup>4</sup> der Ionen wird nach der Anregung mit einem Signalgenerator (2) durch die Nachweisspule detektiert und in einem rauscharmen Verstärker verstärkt. Im Mischer (3) wird das Signal um die Frequenz des Lokaloszillators vermindert (4) und mit dem FFT-Analysator (5) analysiert. Ein Rechner (6) dient zur Datenaufnahme und -auswertung.

Die Nachweisspule zur Detektion der reduzierten Zyklotronbewegung ist nach den Erfahrungen des  $g$ -Faktor Experiments [Häff2003] mit supraleitenden Spulen aus Niob-Titan(NbTi)-Draht auf einem Teflon-Spulenkernel aufgebaut [Stah1998]. Bei diesem Material handelt es sich um einen Typ-II-Supraleiter, der unterhalb der Temperatur  $T = 12$  K und der kritischen Feldstärke von  $B_{\text{krit}} = 10,6$  T supraleitend wird. Der Draht mit einer Dicke von  $d = 250$   $\mu\text{m}$  wurde auf einen Spulenkernel mit 42 mm Durchmesser aufgebracht. Die projektierte Induktivität  $L = 700$   $\mu\text{H}$  ist auf die Resonanzfrequenz von  $\nu_+ = 540$  kHz (entsprechend der Massenzahl  $A = 200$ ) angepasst und erlaubt daher Testmessungen an dem Ion des stabilen Isotops  $^{197}\text{Au}^+$ . Die Spule ist in ein zylindrisches Gehäuse aus Niob-Titan ( $AD = 80$  mm,  $l = 112,5$  mm) eingebaut und damit ge-

<sup>4</sup>Im Unterschied zur TOF-ICR wird die reduzierte Zyklotronfrequenz  $\nu_+$  bei verschiedenen Speicherspannungen  $V_0$  gemessen. Die reine Zyklotronfrequenz  $\nu_c$  kann wegen Gl. (2.8) aus der Extrapolation auf ein verschwindendes Speicherpotential gewonnen werden.

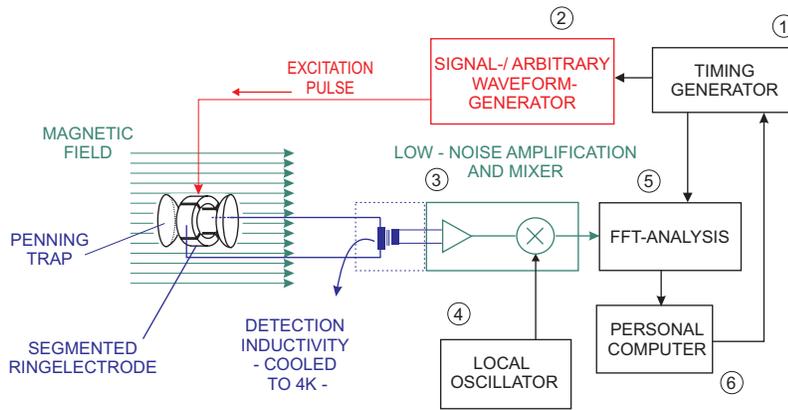


Abbildung 4.15: Elektronischer Gesamtaufbau zur schmalbandigen FT-ICR Detektion in der Messfalle. Ein Timing Generator (1) gibt den zeitlichen experimentellen Ablauf vor. Die Anregung der Ionen geschieht mit einem Signalgenerator (2). Das verstärkte Ionensignal (3) wird vor der Fouriertransformation (5) durch Verminderung um die Lokaloszillatortfrequenz (4) in einen kleineren Frequenzbereich von 100 kHz umgesetzt. Der PC (6) dient zur Datenspeicherung und Auswertung.

gen induktive Verluste in den umgebenden metallischen Materialien abgeschirmt. Abbildung 4.16 zeigt ein Foto der Nachweispule und des Resonatorgehäuses. In der folgenden Übersicht sind die wichtigsten Anforderungen zu den genannten Komponenten aus Abb. 4.15 aufgelistet. Sie wurden während der Machbarkeitsstudien vor der Planung des Aufbaus in Zusammenarbeit mit S. Stahl [Stah1999] definiert.

Der Timing Generator (1), der den Messablauf koordiniert, muss eine zeitliche Mindestauflösung haben: Möchte man z.B. die aufgenommenen Transienten mitteln, so ist eine wohldefinierte Phasenlage zwischen dem Startpunkt des Anregungssignals und der Fourieranalyse notwendig, da sich die Ionensignale sonst zum Teil auslöschen könnten. Die maximale zeitliche Ungenauigkeit, die tolerierbar ist, wird mit etwa  $1/10$  der Periodendauer angesetzt, so dass eine Auflösung von ca.  $\leq 100$  ns notwendig ist. Beim Funktionsgenerator (2), der zur Anregung der Ionenbewegung dient, ist es wichtig, dass die Amplitude nach der Anregung um mindestens sieben bis acht Größenordnungen (140 – 160 dB) abnimmt, da sie sonst bei der Transientenaufnahme stört. Hierzu ist die übliche Amplitudenmodulation gängiger Signalgeneratoren nicht ausreichend. Eine Anregung im 'Burst'-Modus, die einen Wellenzug mit definierter Zahl von Perioden ausgibt, garantiert ein 'Erlöschen' des Signals am Ende der Anregung. Die Frequenz des Ionensignals wird um die Lokaloszillatortfrequenz  $\nu_{LO}$  vermindert. Der hierfür verwendete Signalgenerator (4) muss ein spektralreines Signal mit einer hohen Frequenzkonstanz (z.B.  $\Delta\nu \leq 0,02$  ppm) liefern, wie sie mit einem integrierten, temperaturstabilisierten Referenzoszillator oder durch Anbindung an eine externe Zeitbasis eines Referenznormals erreicht wird. Bei dem FFT-Analysator (5) ist eine Auflösung von mindestens 800 Linien pro Spektrum zur präzisen Frequenzmessung und ein großer Dynamik-Bereich von 70 – 90 dB sinnvoll. Dies macht ein Nachregeln des Vorverstärkers bei einer Änderung der Ionenzahl oder einer Variation des Anregungssignals überflüssig.



Abbildung 4.16: Supraleitende Nachweisinduktivität bestehend aus einer Spule (Niob–Titan–Draht, NbTi) und einem Resonatorgehäuse aus Nb–Ti. Das Foto zeigt die Spule auf dem Gehäuse stehend. Die Primär- und Sekundärwicklungen der Spule sind auf einen Teflonkern aufgebracht und gegen Verrutschen fixiert.



## Kapitel 5

# Massenbestimmung instabiler Nuklide um $^{208}\text{Pb}$ mit ISOLTRAP

### 5.1 Motivation für Massenmessungen in der Region um $^{208}\text{Pb}$

Das Interesse an präzisen Massenwerten in der Umgebung um den doppelt magischen Kern  $^{208}\text{Pb}$  ist vielseitig. Die *neutronenarme* Seite von  $Z = 77$  bis  $Z = 84$  ist durch die Anwesenheit starker Kernstruktureffekte gekennzeichnet. Durch laserspektroskopische Messungen der optischen Isotopieverschiebung konnten die relativen Veränderungen der mittleren quadratischen Kernladungsradien  $\delta\langle r^2 \rangle$  zu einem sphärischen Referenzkern ermittelt werden [Otte1989]. Diese zeigen für Isotope von Iridium ( $Z = 77$ ), Platin ( $Z = 78$ ), Gold ( $Z = 79$ ), Quecksilber ( $Z = 80$ ) und Thallium ( $Z = 81$ ) markante Unregelmäßigkeiten, die etwa an der zur Hälfte gefüllten Neutronenschale ( $N = 104$ ) auftreten. Einerseits setzt dort z.B. bei den Kernradien der Quecksilberisotope ein gerade–ungerade Effekt (engl.: odd even staggering) ein, andererseits beobachtet man z.B. bei Gold- und Iridiumisotopen einen Formübergang durch den Sprung von kleiner zu großer Kerndeformation. Dieses Phänomen wurde erstmals für Quecksilberisotope durch die Existenz zweier Minima in der Potentialenergiefläche bei oblater und stärkerer prolater Deformation (Formkoexistenz) erklärt [Frau1975]. Bei ungeraden Massenzahlen ( $A \leq 185$ ) ist durch das ungepaarte Neutron die stärker deformierte, prolater Kernform stabilisiert.

Zusätzlich zeigen sich in den Kernanregungsspektren von z.B. Blei, Quecksilber und Platin neben einer nahezu sphärischen Kernform auch Rotationszustände, die auf einen prolater deformierten Kern hinweisen. Eine Übersicht der Formkoexistenz von gerade–gerade Kernen ist in [Wood1992] dargestellt. Im Nuklid  $^{186}\text{Pb}$  ist sogar erstmals die Koexistenz von drei Kernformen (engl.: triple shape coexistence) beobachtet worden [Andr2000]. Hier liegen die drei niedrigsten  $0^+$ -Zustände in sphärischer, oblater und prolater Form vor. Diese deformierten Kernzustände lassen sich hier durch die Anregung von Protonenpaaren über die abgeschlossene Schale hinweg erklären (engl.: particle–hole excitation) [Heyd1983, Heyd1990]. Speziell die Wechselwirkung zwischen den zusätzlichen Protonen- und Lochpaaren und den verfügbaren Valenzneutronen führt in der Nähe der halb gefüllten Neutronenschale (engl.: mid shell) zu einem Minimum der Energie dieser Zustände. Liegen die Energien des Grundzustands und der sogenannten 'intruder'-Zustände dicht nebeneinander, so führt dies zu einer Absenkung der Grundzustands- bzw. der Bindungsenergie des Nuklids. Die Systematik der Energien der 'intruder'-Zustände sind für Thallium- und Wismutisotope ungerader Massenzahl, wie auch für Bleiisotope gerader Massenzahl in [Batc1999] aufgetragen.

---

<sup>1</sup>Teilchen unterhalb einer abgeschlossenen Schale werden über die Schale hinweg angeregt. Ihre Energieniveaus dringen aufgrund ihrer Deformation in den niedrigen Energiebereich der nicht deformierten, sphärischen Zustände ein.

Solche feinen Effekte der Bindungsenergie werden durch Massenbestimmungen dieser Nuklide mit sehr hoher Präzision ( $\delta m \approx 10 - 20$  keV) sichtbar. Dies wurde durch ISOLTRAP-Messungen an neutronenarmen Quecksilberisotopen demonstriert, die in dem resultierenden Verlauf der Zweineutronenseparationsenergien  $S_{2n}$  (abzüglich der globalen linearen Trends) von Platin und Quecksilber Minima an der zur Hälfte gefüllten Neutronenschale aufweisen [Schw1998, Schw2001, Foss2002]. Neben den oben genannten Messungen an Nukliden mit gerader Protonenzahl  $Z = 80$  haben die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen der benachbarten Thallium- ( $Z = 81$ ) und Wismutisotope ( $Z = 83$ ) das Ziel, die Kenntnis der atomaren Massen in der Region um den magischen Schalenabschluss zu vervollständigen. Durch die Anbindung über  $\alpha$ -Zerfallsketten werden hierzu komplementär die Massen von weiteren Nukliden bis  $Z \approx 92$  präzise bestimmt. Eine besondere Herausforderung ist die Existenz von zwei oder drei isomeren Zuständen mit Anregungsenergien von zum Teil weniger als 100 keV, jedoch mit vergleichbar langen Halbwertszeiten. Dadurch können Mischungen von isomeren Zuständen vorliegen, die ein hohes Auflösungsvermögen erfordern. Dies lässt sich durch die Dauer der Zyklotronanregung in der Präzisionsfalle einstellen (siehe Kap. 3.1.3).

Die *neutronenreiche* Seite des doppelt magischen Schalenabschlusses  $^{208}\text{Pb}$  ist für Vorhersagen zur Stabilität von superschweren Elementen bedeutend [ISOL1997]. Diese sind in erster Näherung durch eine Schalenkorrektur stabilisiert [Paty1989]. Eine Abweichung dieser Korrektur um 1 MeV führt zu Veränderungen der berechneten Halbwertszeiten von Spontanspaltung und  $\alpha$ -Zerfall von mehreren Größenordnungen. Da keine experimentellen Massenwerte vorliegen, können Modelle zur Berechnung der Schalenkorrektur an dem nächstgelegenen Schalenabschluss bei  $Z = 82$  überprüft werden.

Weiterhin sind *genaue* Massenwerte zur Kalibration von ESR-Massendaten [Rado2000, Litv2003] notwendig. In den ESR-Messungen von neutronenarmen Nukliden [Litv2003] wurden z.B. 117 Referenzen zur Kalibration der 466 direkt bestimmten Massenwerte herangezogen. Auf der neutronenreichen Seite ist jedoch die Zahl der verfügbaren Referenzmassen mit großer Genauigkeit weitab der Stabilität klein. Wo ausschließlich über  $Q_{\beta}$ -Werte extrapoliert werden kann, können sich die Unsicherheiten akkumulieren. Die im Rahmen dieser Arbeit bestimmte neutronenreiche  $^{145}\text{Cs}$ -Masse ist eine von wenigen verfügbaren Referenzmassen für die neuen ESR-Massendaten in dieser Region [Novi2003].

## 5.2 Der Aufbau des ISOLTRAP-Experiments

Der Aufbau von ISOLTRAP am Isotopenseparator ISOLDE/CERN in Genf ist grundlegend in [Boll1996] und [Herf2001b] beschrieben. In den folgenden Abschnitten werden die einzelnen Elemente des Experiments mit weiterführenden Literaturverweisen vorgestellt. Eine Übersicht der bisher erzielten experimentellen Ergebnisse kann den Veröffentlichungen [Boll2001] und [Herf2003] entnommen werden.

Abbildung 5.1 zeigt das ISOLTRAP-Massenspektrometer in einer schematischen Ansicht und in Abb. 5.2 ist die gesamte Anlage als Photographie zu sehen. Der RFQ-Kühler und Buncher bremst den kontinuierlichen 60 keV ISOLDE-Ionenstrahl ab und stellt einen gekühlten Ionenpuls für den Einfang in die Kühlerfalle bereit. Diese dient der weiteren Kühlung sowie der Isobarensparation als Vorbereitung für die nun folgende Frequenzmessung in der Präzisionsfalle. Dort wird die Masse der gespeicherten Ionen über die Messung der Zyklotronfrequenz mit der Flugzeitmethode bestimmt (siehe Kap. 3.1).

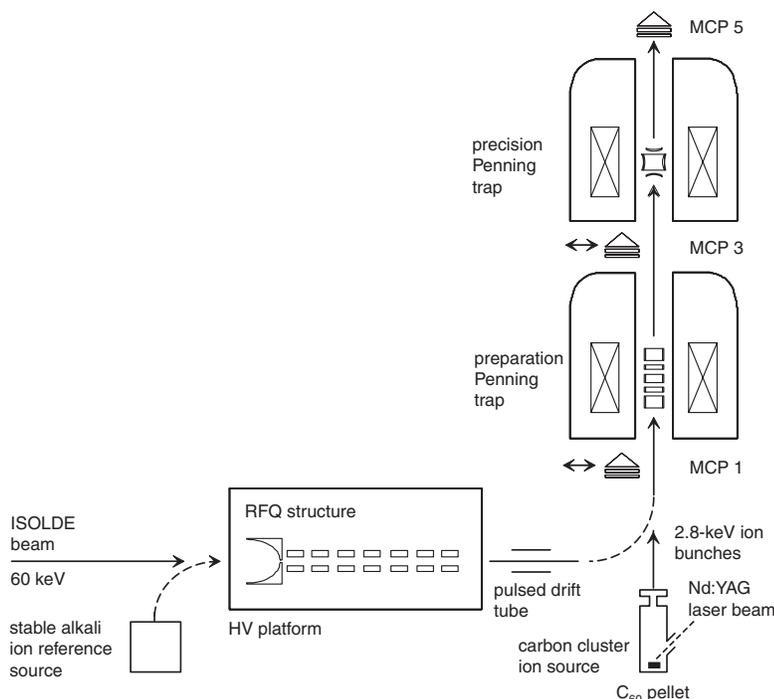


Abbildung 5.1: Ansicht des ISOLTRAP-Experiments bestehend aus den drei Fallenelementen: Dem RFQ-Kühler und -Buncher (RFQ structure) zur Akkumulation der Ionen und Bereitstellung eines gekühlten Ionenpulses, der Kühlerfalle (preparation Penning trap) zur Isobarenselktion und der Präzisionsfalle zur Frequenzmessung. Ionen können sowohl von ISOLDE als auch von der off-line Ionenquelle (stable alkali reference source) geliefert werden. Für systematische Untersuchungen wurde eine Kohlenstoffclusterquelle installiert.

### 5.2.1 Der On-Line Isotopenseparator ISOLDE

Der on-line Isotopenseparator ISOLDE [Kugl2000] am CERN in Genf ist eine Anlage zur Erzeugung und Bereitstellung radioaktiver Nuklide für etwa 30 verschiedene Experimentiergruppen mit dem Schwerpunkt auf atom- und kernphysikalischen Fragestellungen. Mehr als 700 Radionuklide (70 chemische Elemente), von denen sich einige weitab der Stabilität ( $T_{1/2} \approx \text{ms}$ ) befinden, werden nach ihrer Massenzahl separiert und als Ionenstrahlen bei einer Energie von 60 keV zur Verfügung gestellt. Eine Übersicht der ISOLDE-Einrichtung ist in Abb. 5.3 gegeben. Durch den Beschuss eines dicken Targets mit einem gepulsten Protonenstrahl einer mittleren Stromstärke von bis zu  $2,1 \mu\text{A}$  und einer Energie von 1,4 GeV des Protonen-Booster-Synchrotron (PSB) werden exotische Kerne durch Spallation, Spaltung oder Fragmentationsreaktionen erzeugt. Diese diffundieren durch Heizen des Targets mit Stromstärken von bis zu 850 A und einer Temperatur von maximal 2600 K über ein geheiztes Transferrohr in den verbundenen Ionenquellenbereich, wo sie durch Oberflächen- bzw. Elektronenstoßionisation in einem Plasma oder über schrittweise resonante Laseranregung ionisiert werden. Besonders die letztere Methode erlaubt aufgrund der hohen Selektivität eine Reduzierung des oberflächenionisierten Untergrundes. Desweiteren ist durch die Wahl der Targetmaterialien sowie z.B. durch das Beeinflussen der temperaturabhängigen Diffusions- und damit der Freisetzungzeiten für einzelne Nuklide eine zusätzliche Möglichkeit gegeben, elementspezifisch zu selektieren [Bjør1986].

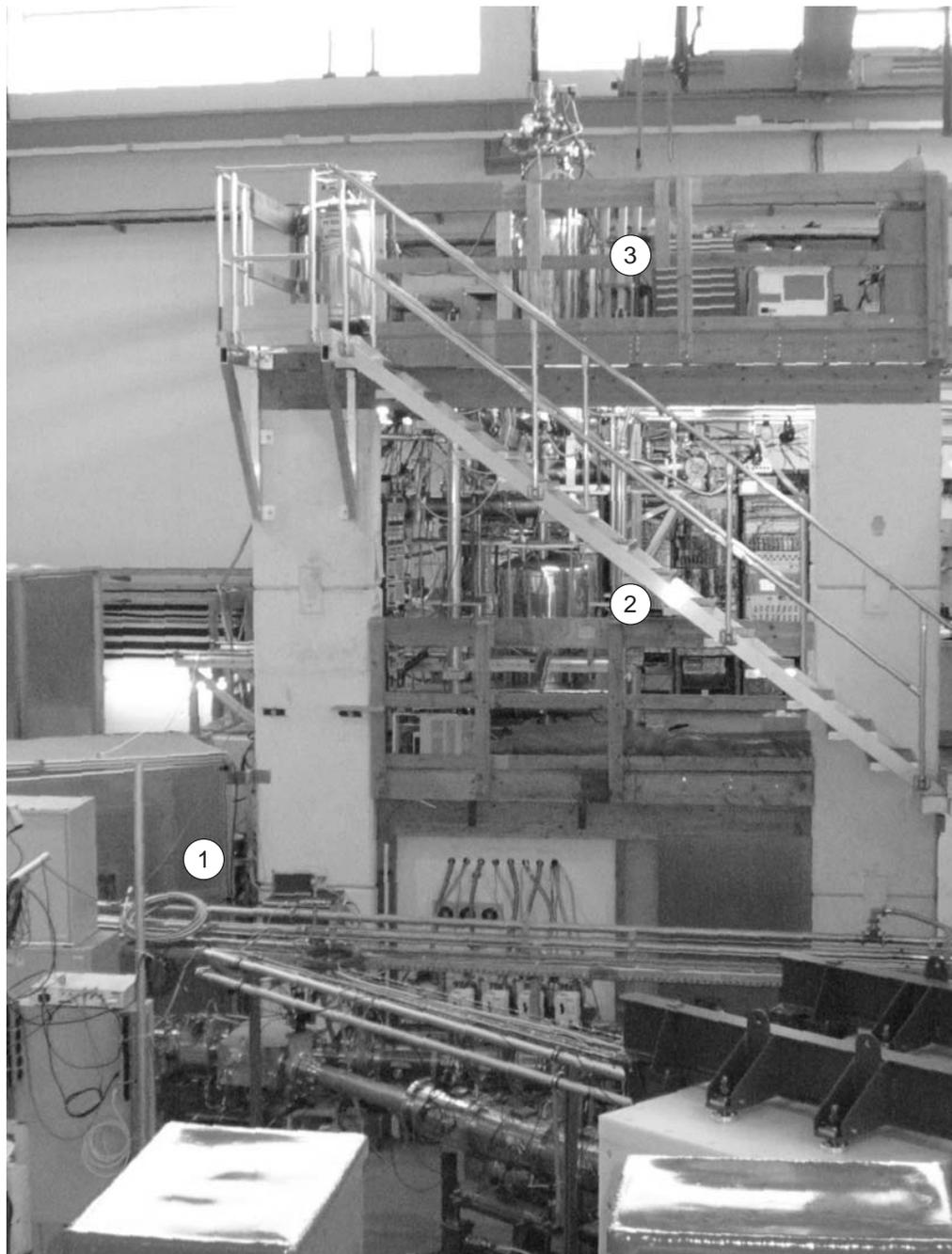


Abbildung 5.2: Photo des ISOLTRAP-Experiments. Die eingefügten Zahlen zeigen die zentralen Fallenelemente: Hochspannungskäfig mit dem RFQ-Kühler (1), supraleitender Magnet der Kühlerfalle (2) und supraleitender Magnet der Präzisionsfalle (3).

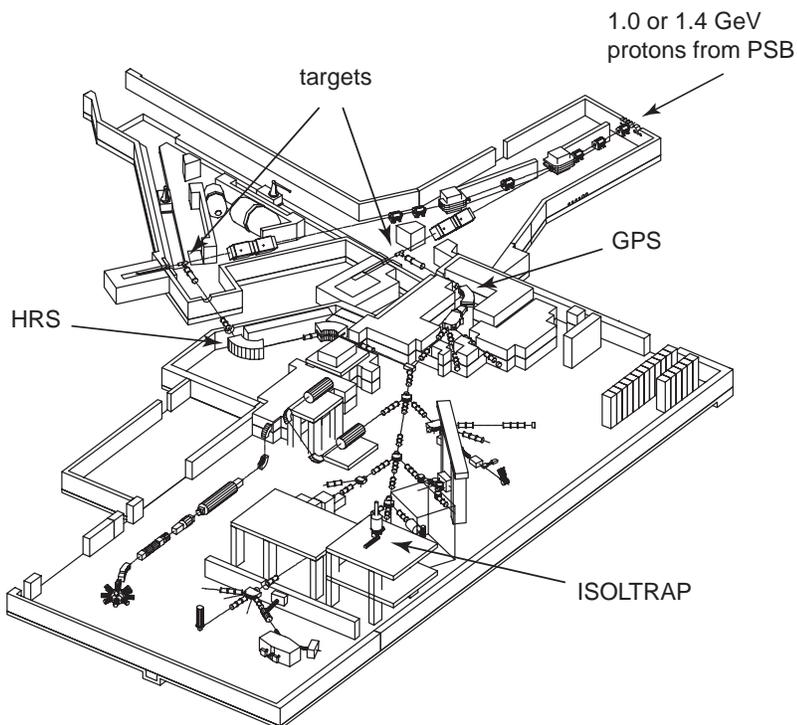


Abbildung 5.3: Ansicht der ISOLDE-Experimentierhalle am CERN. Der gepulste Protonenstrahl vom PS-Booster (PSB) wird auf eines der Targets des **General Purpose Separator (GPS)** bzw. des **High Resolution Separator (HRS)** geleitet. Das **ISOLTRAP**-Experiment befindet sich am zentralen Strahlrohr und ist über drei Etagen aufgebaut.

Es existieren zwei verschiedene Targetbereiche auf einem Potential von 60 kV mit je einer magnetischen Separatoreinheit mit verschiedenem Massenauflösungsvermögen: Der **General Purpose Separator (GPS)** mit einem derzeitigen Auflösungsvermögen von  $m/\Delta m \approx 1000$  und der **High Resolution Separator (HRS)**, der eine maximale Auflösung von bis zu  $m/\Delta m \approx 10000$  erreichen kann. Der kontinuierliche Ionenstrahl wird auf die einzelnen Verzweigungen der Strahlführung verteilt und damit für die Experimente zur Verfügung gestellt.

### 5.2.2 Der ISOLTRAP RFQ-Kühler bei 60 kV

Der ISOLTRAP RFQ-Kühler [Herf2001a, Herf2001b] hat die Aufgabe, den von ISOLDE gelieferten kontinuierlichen Strahl bei 60 keV zu kühlen und für den Einschuss in die erste Penningfalle vorzubereiten. Das Prinzip wurde im Zusammenhang mit dem SHIPTRAP RFQ-Kühler und -Buncher (Kap. 4.2.3) erläutert, eine schematische Ansicht des Kühlers ist in Abb. 5.4 dargestellt. Die Quadrupolstruktur, bestehend aus 26 Elektrodensegmenten, hat eine Gesamtlänge von 88,15 cm und einen Elektrodenabstand von  $2r_0 = 12$  mm. Die wesentlichen Unterschiede zum Aufbau des SHIPTRAP-RFQ's sind eine speziell auf die Akzeptanz des Kühlers angepasste Eingangselektrode [Kell2001] und seine Lage auf einer Hochspannungsplattform bei 60 kV. Auf der Extraktionsseite befindet sich eine Einzellinse sowie ein Satz von Ablenkerplatten für die horizontale und die vertikale Richtung. Nachdem ein Ionenpuls (zeitliche Ausdehnung  $1\mu\text{s}$ ) den Kühler verlassen hat, durchfliegt er mit einer kinetischen Energie von 2,5 keV ein ca. 40 cm langes Driftrohr. Während des Durchflugs wird die potentielle Energie der Ionen durch schnelles

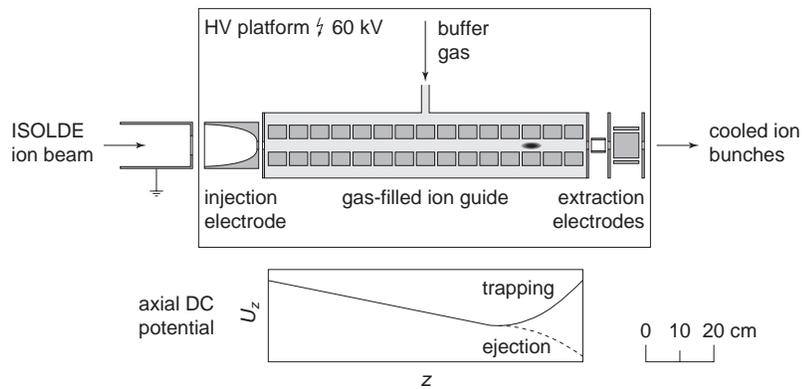


Abbildung 5.4: Schematische Ansicht des RFQ-Kühlers und -Ionenakkumulators. Der kontinuierliche Ionenstrahl wird in der Eingangselektrode (injection electrode) abgebremst und fokussiert. Beim Passieren des Kühlers verlieren die Ionen an kinetischer Energie aufgrund von Stößen mit dem Puffergas. Sie werden in dem axialen Potentialminimum für kurze Zeit (5 – 10 ms) akkumuliert und als Ionenpuls ausgeschossen.

Herunterschalten der anliegenden Gleichspannung von 57,5 kV auf 0 kV abgesenkt.

### 5.2.3 Die ISOLTRAP Kühlerfalle

Die ISOLTRAP-Kühlerfalle hat die gleichen Aufgaben, wie sie im Zusammenhang mit der SHIPTRAP-Reinigungs-falle<sup>2</sup> (Kap. 4.2.4) beschrieben sind. Sie umfassen ein Akkumulieren, Kühlen und Selektieren der vom RFQ-Buncher gelieferten Ionen. Die Isobarentrennung durch massenselektives Puffergaskühlen (Kap. 2.4.1) wurde hier erstmals demonstriert [Raim1997]. Der Aufbau der 7-poligen Kühlerfalle ist detailliert in [Raim1997] beschrieben. Die Endkappen sind zur Erzeugung eines zusätzlichen kastenförmigen Potentials für den Einfang von Ionen hoher Energieunschärfe jeweils in vier Segmente unterteilt. Abbildung 5.5 zeigt den Querschnitt der Falle mit dem dazugehörigen Potentialverlauf in longitudinaler Richtung zur Speicherung der Ionen. Im Gegensatz zum SHIPTRAP-Experiment befindet sich diese Falle in einem eigens dafür vorgesehenen supraleitenden Magneten mit einer Feldstärke von 4,7 T.

### 5.2.4 Die ISOLTRAP Präzisionsfalle

In der Präzisionsfalle des ISOLTRAP-Experiments wird die Zyklotronfrequenz  $\omega_c$  nach der Flugzeitmethode (Kap. 3.1) bestimmt. Die Falle [Stol1992, Boll1996] befindet sich in einem supraleitenden Magneten mit einer Feldstärke von 5,9 T. Abbildung 5.6 zeigt die Anordnung der hyperbolischen Fallenelektroden. Die charakteristischen Dimensionen  $\rho_0$  und  $z_0$  sind hier etwa um die Hälfte größer als bei der SHIPTRAP-Messfalle. Ihre Ringelektrode ist in vier gleich große Segmente unterteilt. Hier wird das azimuthale Quadrupolfeld mit  $\nu_{RF} \approx \nu_c$  eingestrahlt; ein elektronischer Nachweis der Spiegelströme ist nicht vorgesehen. Über die Zeitdauer der Quadrupolanregung  $T_{RF}$  lässt sich das Auflösungsvermögen  $R$  einstellen. Dies kann zur Trennung von isomeren Zuständen ausgenutzt werden, was in der Massenspektrometrie erstmalig an ISOLTRAP

<sup>2</sup>Die unterschiedliche Bezeichnung dieser beiden Fallen ist historisch bedingt. Es handelt sich jeweils um etwa den gleichen prinzipiellen Aufbau sowie um einen vergleichbaren Messablauf.

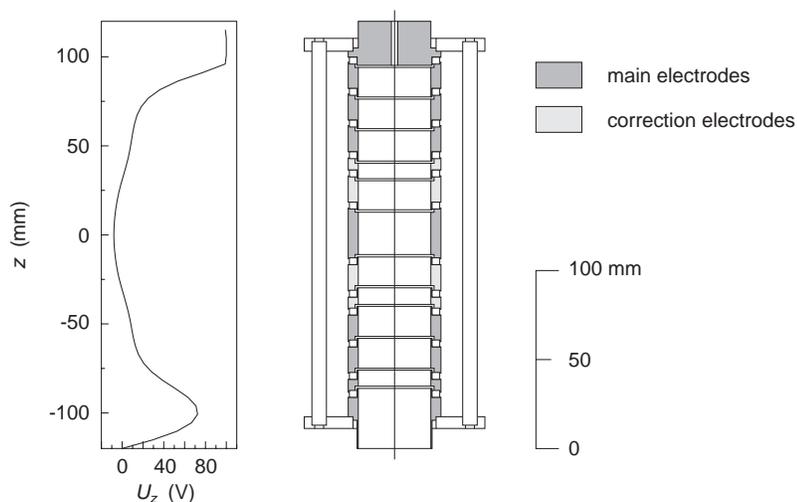


Abbildung 5.5: Schematische Ansicht der 7-poligen ISOLTRAP-Kühlerfalle (Innendurchmesser = 40 mm, Länge = 240 mm). Die einzelnen Segmente der zylindrischen Falle sind nach ihrer Funktion in verschiedenen Graustufen dargestellt. Links im Bild ist der longitudinale Potentialverlauf zur Speicherung eingezeichnet. Die Endkappen sind zur Erzeugung eines zusätzlichen Potentials unterteilt (siehe Text).

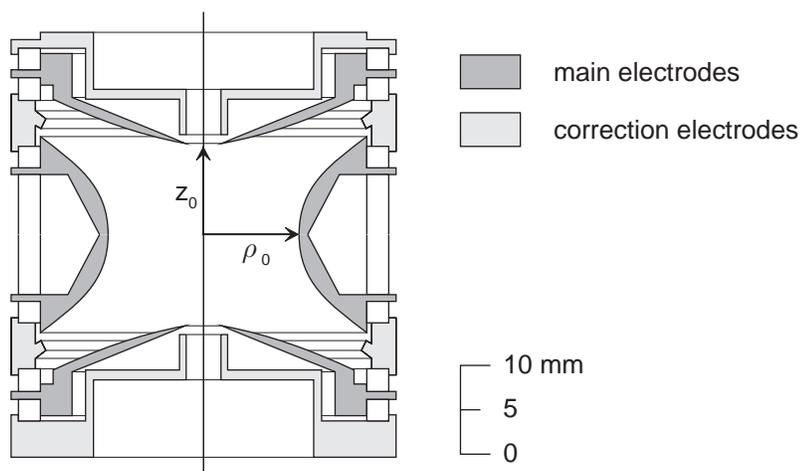


Abbildung 5.6: Schematische Ansicht der hyperbolischen ISOLTRAP-Präzisionsfalle (Innenradius  $\rho_0 = 13$  mm, Abstand zur Endkappe  $z_0 = 11,18$  mm). Die einzelnen Elektroden sind nach ihrer Funktion in verschiedenen Graustufen dargestellt.

demonstriert wurde [Boll1992a]. Bei 3 s Anregungsdauer wird z.B. für eine Masse  $A = 187$  eine Auflösung  $\Delta m$  von ca. 110 keV erreicht. Möchte man isomere Zustände geringerer Anregungsenergie auflösen, so ist dies besonders im schweren Massenbereich nur bei entsprechend langlebigen Zuständen möglich.

## 5.3 Massenmessungen mit der Flugzeitmethode an ISOLTRAP

### 5.3.1 Die Strahlzeit zur Bereitstellung der radioaktiven Nuklide

In der Strahlzeit vom 20.07.02 bis 28.07.02 wurden Radionuklide der Elemente Cäsium, Thallium, Blei, Wismut, Francium und Radium an ISOLTRAP durch den Beschuss eines Thoriumcarbidtargets ( $\text{ThC}_2$ ) mit einem 1,4 GeV Protonenstrahl vom PS-Booster durch protoneninduzierte Spallations- bzw. Fragmentationsreaktionen erzeugt. Für Blei und Wismut kam die Laserionenquelle zum Einsatz, für Cäsium, Thallium, Francium und Radium erfolgte die Ionisation an der heißen Oberfläche des Transferrohrs. Nach Separation am ISOLDE-Massenseparator HRS mit einer gewählten Auflösung  $m/\Delta m \approx 1000$  wurden die einzelnen Nuklide zur Verfügung gestellt. Eine detaillierte Liste der Parameter mit dem jeweiligen Ionisationsmechanismus kann Tab. 5.1 entnommen werden.

Tabelle 5.1: (A) ISOLDE-Betriebsparameter für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen. (B) Untersuchte Elemente an ISOLTRAP (Spalte 1) während der Strahlzeit vom 21.07.02 - 28.07.02. Die jeweiligen Isotope sind in Spalte 2, der verwendete Ionisationsmechanismus ist in Spalte 3 angegeben.

(A)	Target:	# 229, Thoriumcarbid, $\text{ThC}_2$ , Targetdicke: 51 g/cm <sup>2</sup>	
	Protonen:	$3 \times 10^{13}$ Protonen pro Puls Pulsabstand 1,2 s bei 1,4 GeV Pulsenergie	
	Ionisation:	Oberflächen (O) – und Laserionisation (L)	
(B)	Element	Massenzahl $A$	Ionisationsmechanismus
	Cs	145, 147	O
	Tl	181, 183, 186, 187, 196	O
	Pb	187, 197	L
	Bi	190 - 197, 215, 216	L
	Fr	203, 205, 229	O
	Ra	214, 228, 229, 230	O

### 5.3.2 Zeitlicher Ablauf einer Frequenzbestimmung

Das Prinzip zur Bestimmung der Zyklotronfrequenz  $\nu_c$  nach der Flugzeitmethode ist in Kapitel 3.1.2 beschrieben. Der verwendete zeitliche Ablauf gliedert sich in einzelne Messzyklen, die für jeden Frequenzwert der aufzubauenden Resonanzkurve (Abb. 3.1) in gleicher Weise durchlaufen werden. Die zeitliche Abfolge eines Messzyklus ist in Abb. 5.7 dargestellt. Er startet jeweils mit dem Protonenpuls auf das ISOLDE-Target (1). Nach einer Wartezeit von typischerweise 50 ms für die Diffusion (2) und anschließender Ionisation wird der quasi-kontinuierliche 60 keV Ionenstrahl zum RFQ-Buncher transportiert. Dort wird er für die Zeit von 5 – 10 ms akkumuliert und gekühlt (3), um die Ionen zeitlich gepulst zu extrahieren (4). Beim Durchflug der Ionen durch ein Driftrohr wird deren potentielle Energie von 60 keV auf 2,7 keV abgesenkt, indem die anliegende Spannung heruntergeschaltet wird (5). Nach der Ablenkung um  $90^\circ$  in die Vertikale werden die Ionen dem Potential der Kühlerfalle entsprechend abgebremst. Dem Einfang in die Kühlerfalle (6) folgt eine Wartezeit von 80 ms, in der die Ionen axial kühlen und sich in dem kleineren, harmonischen Potentialminimum ansammeln (7). Durch die Anregung mit der Magnetronfrequenz  $\nu_-$ , die in erster Näherung massenunabhängig ist (Gl. (2.7)), wird die Magnetronbahn aller Ionen auf einen Durchmesser der größer ist als das Ausschussloch der Falle aufgeweitet (8). Die darauffolgende Quadrupolanregung bei der Zyklotronfrequenz  $\nu_c$  dient dazu, nur die *gewünschten* Ionen *massenselektiv* wieder zu zentrieren (9). Während einer weiteren Wartezeit von einigen 10 ms kühlt die axiale - und die Zyklotronbewegung weiter ab (10). Anschließend werden die Ionen von der Kühlerfalle in die Präzisionsfalle transferiert (11 und 12).

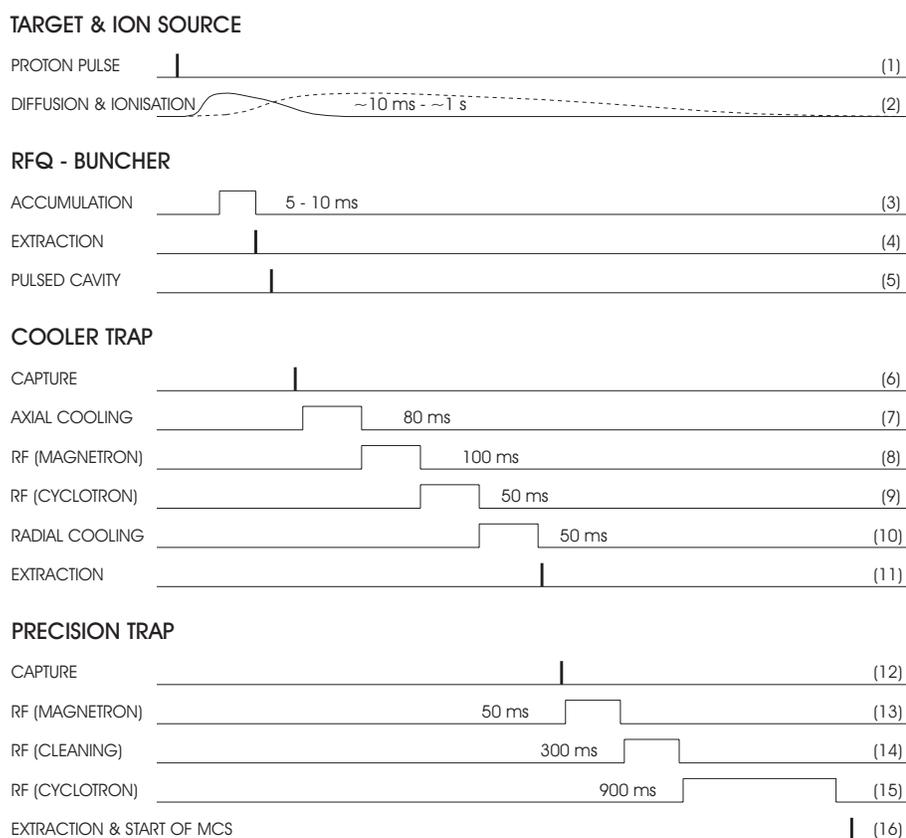


Abbildung 5.7: Zeitlicher Ablauf eines Messzyklus zur Frequenzbestimmung. Beschreibung im Text.

Dort werden zunächst, in analoger Weise zur Kühlerfalle, die Magnetronbahnen aller Ionen aufgeweitet (13). Gleichzeitig kann man bei Bedarf die Möglichkeit ausnutzen, durch Dipolanregung mit der reduzierten Zyklotronfrequenz noch verbliebene isobare oder isomere Kontaminationen zu entfernen (14). Mit der Quadrupolanregung bei verschiedenen Radiofrequenzen um die Zyklotronfrequenz  $\nu_c$  der zu bestimmenden Ionenmasse findet die eigentliche Frequenzmessung statt (15). Dabei wird über die Anregungsdauer  $T_{RF}$  das Auflösungsvermögen der Messung gewählt (Kap. 3.1.3). Nach dem Ausschuss der Ionen aus der Falle wird ihre Flugzeit (16) bestimmt. Das Ergebnis eines solchen Zyklus ist ein Punkt in der Resonanzkurve (siehe Abb. 5.9). Diesen Ablauf wiederholt man für typischerweise 41 Frequenzwerte in aufeinanderfolgenden Durchläufen. Ein solcher Frequenzscan wird solange wiederholt, bis eine ausreichende Statistik erreicht ist.

In gleicher Weise wird bei den zur Kalibration des magnetischen Feldes notwendigen Referenzmessungen mit stabilen Ionen verfahren, die entweder von ISOLDE oder von der internen ISOLTRAP-Ionenquelle für oberflächenionisierbare Elemente geliefert werden. In dieser Strahlzeit wurde stabiles  $^{133}\text{Cs}$  aus der internen Quelle als Referenzmasse verwendet. Diese ist frei von isobaren Kontaminationen und daher ideal als Referenzquelle geeignet.

## 5.4 Experimentelle Ergebnisse

### 5.4.1 Bestimmung der Frequenzverhältnisse und deren Fehler

Als experimentelles Ergebnis einer ISOLTRAP-Messung erhält man das Frequenzverhältnis

$$r = \frac{\nu_{c, \text{ref}}}{\nu_c}, \quad (5.1)$$

der Zyklotronfrequenzen des Referenzions mit präzise bekannter Masse zu der des zu untersuchenden Ions. Hiermit bleibt die Angabe der Messergebnisse unabhängig von der experimentellen Unsicherheit in der Bestimmung der Referenzmasse  $m_{\text{ref}}$ . Die aus dem Frequenzverhältnis resultierende atomare Masse ergibt sich zu

$$m = \frac{\nu_{c, \text{ref}}}{\nu_c} (m_{\text{ref}} - m_e) + m_e, \quad (5.2)$$

wobei die Masse der einfach geladenen Ionen jeweils um die Masse eines Elektrons  $m_e$  vermindert ist. Die Bindungsenergie des Elektrons von typischerweise einigen eV ist bei den hier beschriebenen Messungen vernachlässigbar. Eine spezifiziertere Angabe der atomaren Masse von Nukliden ist in Form des Massenüberschusses (engl.: **mass excess**)

$$ME = [m \text{ (in u)} - A] \text{ (in keV)} \quad (5.3)$$

gegeben, bei dem der jeweilige konstante Massenanteil von  $A$  Nukleonen abgezogen und in Einheiten von keV umgerechnet wird.

Ein Schritt zum verbesserten Verständnis des ISOLTRAP-Spektrometers sind die detaillierten, systematischen Untersuchungen der verschiedenen Fehlerquellen zur gesamten Messungsgenauigkeit einer Massenbestimmung. Im Rahmen der Dissertation von A. Kellerbauer [Kell2002], (siehe auch [Kell2003]) wurden unter Verwendung von einfach geladenen Kohlenstoffclustern  $^{12}\text{C}_n^+$ , ( $3 \leq n \leq 20$ ) Kreuzkorrelationsmessungen durchgeführt. D.h. die Masse von Kohlenstoffclustern  $^{12}\text{C}_m^+$  der Größe  $m$  wird gegen die Masse der Kohlenstoffcluster  $^{12}\text{C}_n^+$  der Größe  $n$  gemessen. Da die atomare Masseneinheit  $u$  als 1/12 der Masse des  $^{12}\text{C}$ -Atoms definiert ist, sind die untersuchten Massen- bzw. Frequenzverhältnisse exakt bekannt.

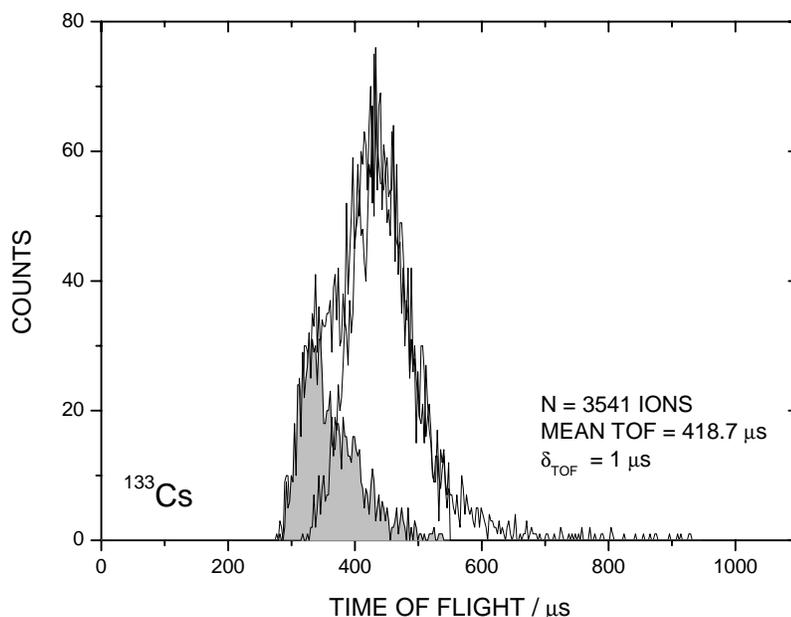


Abbildung 5.8: Flugzeitverteilung (grau umrandet) von  $^{133}\text{Cs}$ -Ionen nach Ausschuss aus der Präzisionsfalle. Man erkennt zwei Verteilungen, die aus den nicht angeregten Ionen (schwarz umrandet) und dem Anteil der resonant angeregten Ionen (grau hinterlegt) mit resultierender verkürzter Flugzeit bestehen. In dieser Darstellung wurden die Flugzeitspektren zu Frequenzwerten in Resonanz und außerhalb der Resonanz aus Abb. 5.9 getrennt summiert.

Die untersuchten Cluster bis zu einer Größe von  $n = 20$  erstrecken sich über einen Massenbereich von 240 Masseneinheiten, weshalb man sie auch für zukünftige, *absolute* Massenmessungen als Referenzionen benutzen möchte. Darüberhinaus besitzen die Kohlenstoffcluster als Referenzionen den Vorteil, dass die maximale Differenz zwischen der zu untersuchenden Masse und der Referenzmasse lediglich sechs atomare Masseneinheiten beträgt und damit der massenabhängige systematische Fehler immer klein ist (s. unten).

Wurde in der Vergangenheit aus konservativen Abschätzungen ein Fehler von  $1 \times 10^{-7}$  zum statistischen Fehler hinzuaddiert [Boll1996], [Beck1997b], so ergaben die erwähnten Untersuchungen eine systematische (Rest-)Unsicherheit von

$$\left(\frac{\delta m}{m}\right)_{\text{res}} \leq 8 \times 10^{-9}. \quad (5.4)$$

Im Folgenden sind die wesentlichen Schritte der Auswerteprozedur [Kell2003] mit den neuen Modifikationen kurz dargestellt.

#### *Fehler in der Flugzeitbestimmung*

Bei einer Zyklotronfrequenzmessung wird, wie in Kap. 3.1.2 beschrieben, jeweils die Flugzeit der Ionen in Abhängigkeit der eingestrahlten Radiofrequenz gemessen. Die resonante Anregung der Ionen kommt in einer verkürzten Flugzeit zum Ausdruck. Die Frequenzbestimmung erfolgt aus

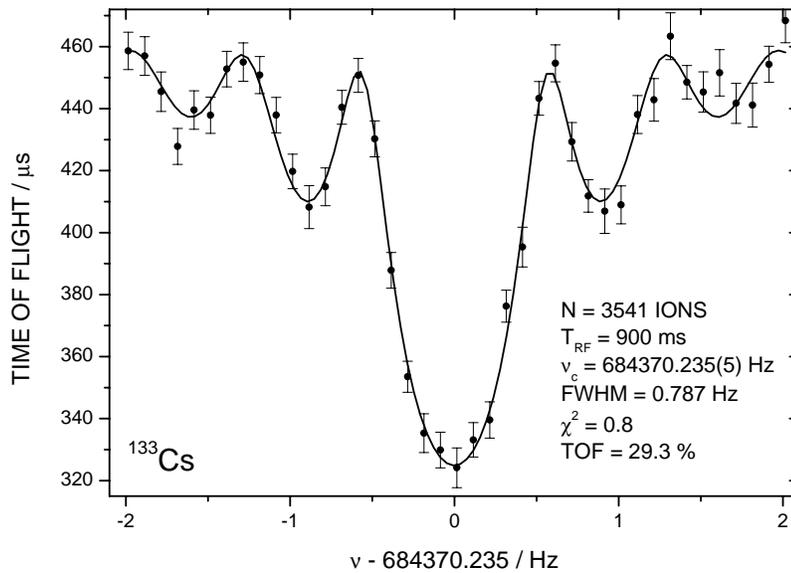


Abbildung 5.9: Zyklotronresonanzkurve von  $^{133}\text{Cs}$ -Ionen für die in Abb. 5.8 gegebene Flugzeitverteilung. Die durchgezogene Linie ist die an die Messwerte angepasste theoretische Linienform [Köni1995a].

der Anpassung des theoretischen Linienprofils an die einzelnen Datenpunkte der Messung. Jeder dieser Datenpunkte stellt die mittlere Flugzeit der im Flugzeitspektrum ausgewählten Ionen dar. Zur besseren Anschauung ist in Abb. 5.8 und Abb. 5.9 ein typisches Flugzeitspektrum mit dem dazugehörigen Frequenzspektrum von stabilen  $^{133}\text{Cs}$ -Ionen dargestellt. Die Spektren setzen sich aus insgesamt 20 Frequenzdurchläufen zusammen, in denen ca. 3500 Ionen detektiert wurden. Für den Fehler der mittleren Flugzeit eines jeden Frequenzpunktes  $\sigma_{\text{stat}}$  in der Messung der Zyklotronfrequenz wird der Fehler der Flugzeitverteilung  $\sigma_{\text{TOF}} = \delta_{\text{TOF}} \times \sqrt{N}$  durch die Anzahl  $N_i$  der bei diesem Frequenzwert detektierten Ionen geteilt [Beck1997a],

$$\sigma_{\text{stat}} = \frac{\sigma_{\text{TOF}}}{\sqrt{N_i}}. \quad (5.5)$$

Die Anpassung der theoretischen Linienform an die Messwerte einer Zyklotronresonanzkurve (Abb. 5.9) ist in [Köni1995a], [Beck1997a] beschrieben.

#### Anwesenheit von Ionen anderer Masse

Ein wichtiges Hilfsmittel in der Datenanalyse ist die Untersuchung der Lage der Linienmitte in Abhängigkeit von der Anzahl der nachgewiesenen Ionen pro Messzyklus. Wenn eine weitere Ionensorte in der Falle gespeichert ist, beobachtet man bei ausreichend gewählter Auflösung und Statistik eine Verschiebung der Zyklotronfrequenz in Abhängigkeit von der Ionenanzahl (Kap. 2.2.4). Es erfolgt eine Einteilung *aller* nachgewiesenen Ionen in mindestens drei Zählklassen möglichst gleicher Zählstatistik mit der Bestimmung der Zyklotronfrequenz pro Zählklasse. Die Kontrolle einer eventuellen systematischen Verschiebung ermöglicht es, bei ausreichend gewählter Auflösung eine Aussage darüber zu treffen, ob bei der Messung eine weitere Ionensorte anderer Masse als Kontamination vorhanden war. Eine Verschiebung aufgrund von *Kontamination* wird daher korrigiert, indem man auf die *reine* Zyklotronfrequenz  $\nu_c$  bei verschwindender Ionenanzahl extrapoliert.

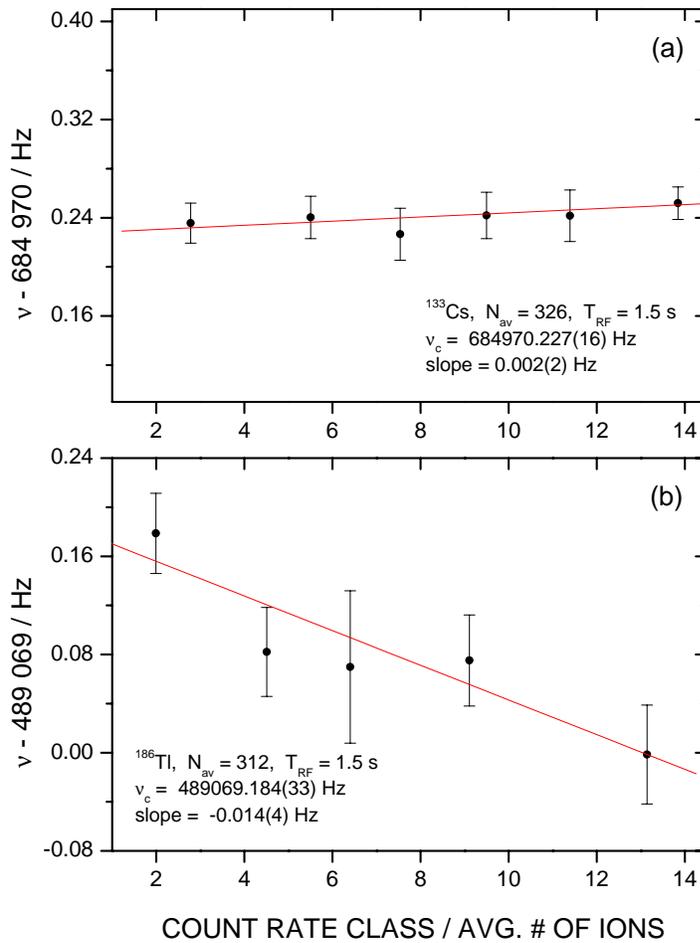


Abbildung 5.10: Zählklassenabhängigkeit der Zyklotronfrequenz von (a)  $^{133}\text{Cs}$ - und (b)  $^{186}\text{Tl}$ -Ionen in einer Messung mit der Anregungsdauer  $T_{\text{RF}} = 1,5 \text{ s}$ . Die ermittelten Zentrumsfrequenzen  $\nu$  sind gegen den Schwerpunkt der jeweiligen Zählklasse mit einer mittleren Ionenzahl  $N_{\text{av}}$  aufgetragen. Die Gerade zeigt den Verlauf der linearen Regression unter Gewichtung der Einzelfehler. Die auf verschwindende Zählrate extrapolierte Frequenz  $\nu_c$  und deren Fehler gibt hiermit die wahre Zyklotronfrequenz an.

Als Beispiel sind in Abb. 5.10 die Ergebnisse zweier Zählklassenanalysen mit vergleichbarer mittlerer Ionenanzahl  $N_{\text{av}}$  dargestellt. Dabei wurden jeweils die Zentrumsfrequenzen als Funktion des Schwerpunktes der Zählratenverteilung in der jeweiligen Zählklasse aufgetragen. Der Verlauf in Teil (a) zeigt eine Messung von stabilen  $^{133}\text{Cs}$ -Ionen aus der internen Ionenquelle. Selbst mit hohen, nachgewiesenen Ionenzahlen pro Messzyklus wurde kein zählklassenabhängiger Effekt beobachtet. Abbildung 5.10 (b) zeigt eine Zählklassenanalyse für das von ISOLDE gelieferte Radionuklid  $^{186}\text{Tl}$ . Mit steigender Ionenzahl pro Messzyklus, d.h. mit größer werdender Zählklasse, ist eine Frequenzverschiebung zu niedrigeren Werten zu beobachten. Es handelt sich wahrscheinlich um einen Anteil von Ionen im angeregten isomeren Zustand, die als störende Kontamination anzusehen sind (siehe auch Diskussion zu  $^{186}\text{Tl}$ ).

*Einfluss der magnetischen Feldstärke*

Da die Feldstärke eines supraleitenden Magneten zeitlichen Veränderungen unterliegt, muss zur Bildung des Frequenzverhältnisses (Gl. (5.1)) die Zyklotronfrequenz des Referenzions zum Zeitpunkt der eigentlichen Frequenzmessung ermittelt werden. Aus den Ergebnissen der beiden zeitlich am nächsten liegenden Referenzmessungen vor und nach der eigentlichen Messung wird die Zyklotronfrequenz des Referenzions auf den Zeitpunkt der Messung des zu untersuchenden Ions interpoliert. Dabei ist in allen drei Messungen Referenz – zu untersuchendes Ion – Referenz, die Mitte des Zeitintervalls, in dem eine Messung vorgenommen wurde, ausschlaggebend. Systematische Untersuchungen mit stabilen  $^{85}\text{Rb}$ -Ionen [Kell2003] über den Langzeitverlauf des Magnetfeldes der ISOLTRAP-Präzisionsfalle zeigen einen linearen Abfall der relativen Feldstärke von

$$\frac{\delta B}{\delta t} \cdot \frac{1}{B} = -2,30(3) \cdot 10^{-8}/\text{h}. \quad (5.6)$$

Zusätzlich wurden die kurzzeitigen Feldfluktuationen um den linearen Verlauf quantifiziert.<sup>3</sup> Sie haben ihre Ursache in den Druckschwankungen der Heliumrückführleitung des Magneten sowie in Temperaturschwankungen der Umgebung und den damit veränderten magnetischen Suszeptibilitäten der im starken Magnetfeld untergebrachten Apparaturbauteile. Die Unsicherheit, die durch die lineare Extrapolation der Referenzfrequenz auf den Zeitpunkt der eigentlichen Messung einhergeht, kann wegen der Abhängigkeit  $\nu \sim B$  (Gl. (2.1)) mit

$$\frac{\sigma_B(\nu_{\text{ref}})}{\nu_{\text{ref}}} = 6,35(45) \cdot 10^{-11} \cdot \Delta T, \quad (5.7)$$

angegeben werden. Hierbei bezeichnet  $\Delta T$  den zeitlichen Abstand zwischen den beiden Referenzmessungen und ist in Minuten angegeben. Zur Unsicherheit eines individuellen Frequenzverhältnisses wird daher der Fehler aufgrund der Magnetfelddrift zwischen den beiden Referenzmessungen quadratisch hinzuaddiert.

Liegen mehrere Messungen vor, so wird der endgültige Wert eines Frequenzverhältnisses aus dem gewichteten Mittelwert der Einzelmessungen bestimmt. Die Anzahl der individuellen Messungen sowie Beispiele von Zyklotronresonanzkurven eines jeden Nuklids finden sich im Anhang B.

*Korrektur der massenabhängigen systematischen Frequenzverschiebung*

Bei der Angabe der Frequenzverhältnisse von Kohlenstoffclustern verschiedener Größe beobachtet man einen massenabhängigen systematischen Effekt, der von der Differenz der zu bestimmenden Masse  $m$  zu der Masse des Referenzions  $m_{\text{ref}}$  abhängt. Die Größe dieses Effekts wurde durch die lineare Abhängigkeit

$$\frac{r - r_{\text{th}}}{r} = -1,6(4) \cdot 10^{-10}/\text{u} \cdot (m - m_{\text{ref}}), \quad (5.8)$$

angenähert [Kell2003], wobei  $r - r_{\text{th}}$  die Differenz des gemessenen Frequenzverhältnisses zum wahren Frequenzverhältnis ist. Das wahre Frequenzverhältnis kennt man, weil die Massen der Kohlenstoffcluster bekannt sind. Ursachen für diese Abhängigkeit von der Massendifferenz ( $m - m_{\text{ref}}$ ) liegen in den in erster Näherung *massenunabhängigen* Frequenzverschiebung aufgrund elektrischer Feldfehler sowie einer Fehljustage der Magnetfeldachse mit der Achse des elektrischen

<sup>3</sup>Der Verlauf der Magnetfeldstärke während dieser Strahlzeit ist in Abb. B.1 in Anhang B abgebildet.

Speicherfeldes [Boll1996]. Die obere Grenze dieses Effektes wurde früher zu  $2 \times 10^{-9}/u \cdot (m - m_{\text{ref}})$  abgeschätzt [Beck1997b]. Nach Anwendung der Korrektur (Gl. (5.8)) wird ein zusätzlicher Fehler

$$\frac{\sigma_m(\nu_{\text{ref}})}{\nu_{\text{ref}}} = 1,6 \cdot 10^{-10}/u \cdot (m - m_{\text{ref}}) \quad (5.9)$$

von gleicher Größe quadratisch hinzuaddiert. Bei den vorliegenden Messungen im schweren Massenbereich von  $A = 180$  bis  $A = 230$  ist die verwendete Referenzmasse von  $^{133}\text{Cs}$ -Ionen durchschnittlich 70 Masseneinheiten von der zu bestimmenden Masse entfernt. Daher resultiert aus oben beschriebener Korrektur ein zusätzlicher Fehler von 1 bis 2 keV bei der Angabe des Massenüberschusses. Eine permanent installierte Kohlenstoff-Clusterquelle zur Magnetfeldkalibration würde diese Unsicherheit - bei einer maximalen Differenz von sechs Masseneinheiten - auf  $\leq 0,13$  keV reduzieren. Die nach der Betrachtung und Quantifizierung aller Fehlerquellen in den Clustermessungen verbleibende Restunsicherheit von  $8 \times 10^{-9}$  (Gl. (5.4)) wird zum gesamten Fehler quadratisch hinzuaddiert.

## 5.4.2 Zuordnung der Massenwerte zu den isomeren Zuständen

Eine eindeutige Massenzuordnung zu dem Grund- oder einem langlebigen isomeren Zustand ist nicht in jedem Fall direkt möglich. Oftmals liegt ein nicht aufgelöstes Mischungsverhältnis aus mehreren isomeren Zuständen vor. Ist dieses Mischungsverhältnis  $R$  (isomerer Zustand zu Grundzustand) bekannt, so lässt sich die Masse des Grundzustandes  $M$  unter Kenntnis der isomeren Anregungsenergie  $E$  aus der gemessenen Schwerpunktsmasse  $M^*$  bestimmen [Audi1982].

$$M^* = M + \frac{R}{R+1}E. \quad (5.10)$$

Das Vorhandensein eines *unbekannten* Mischungsverhältnisses kann durch zwei Kriterien ausgeschlossen werden: Wird die Auflösung im Experiment ausreichend hoch gewählt, um beide isomere Zustände im Frequenzspektrum als separate Zyklotronresonanzen zu trennen, so kann eine Kontamination erkannt und schon *während* der Messung selektiv entfernt werden (siehe Abb. 5.7 Punkt (14)). Dies stellt jedoch bei isomeren Zuständen eine zeitaufwendige Maßnahme dar, die nur bei regelmäßig eintreffender Ionenzählrate praktikabel ist. Das entscheidende Kriterium in der *Datenauswertung* ist die Zählklassenanalyse in der Frequenzanpassung, wie sie im vorigen Abschnitt beschrieben ist. Zeigt das Resultat der Zählklassenanalyse bei ausreichender Auflösung, d.h.  $\Delta m \geq E$  keinen Einfluss der Ionenanzahl auf die Lage der Frequenzmitte, so hat man nur solche Ionen in der Präzisionsfalle gespeichert die sich alle innerhalb einer Linienbreite befinden. In Tab. 5.2 sind die Daten über die Halbwertszeiten  $T_{1/2}$ , Spinzustände  $J^{\Pi}$  und Anregungsenergien  $E$  der untersuchten Nuklide zusammengestellt. Existieren mehrere isomere Zustände, so sind nur diese mit einer Halbwertszeit von  $T_{1/2} \geq 500$  ns<sup>4</sup> aufgelistet. Die Zuordnung der Massenwerte ist jeweils unter der Annahme gemacht, dass die isomeren Zustände wie in Tab. 5.2 angegeben auftreten. Da die in der Messung gewählte Auflösung  $\Delta m$  ein wichtiges Entscheidungskriterium hierfür ist, wurde sie ebenfalls in der Tabelle mit aufgenommen.

---

<sup>4</sup>Dieser Wert ist zur vollständigen Beschreibung der Spinsystematik in die Tabelle aufgenommen worden. Nuklide mit  $T_{1/2} \leq 50$  ms kommen in den Messungen dieser Arbeit als Kontamination nicht in Betracht.

Tabelle 5.2: Übersicht über Halbwertszeiten  $T_{1/2}$ , Spinzustände  $J^\Pi$  und Anregungsenergien  $E$  der untersuchten Nuklide (aus NUBASE [Audi1997, Audi2003a]). Die in der Messung eingestellte maximale Auflösung  $\Delta m$  ist in der letzten Spalte aufgelistet.

Nuclide	Half-Life $T_{1/2}$	Spin/Parity $J^\Pi$	Excitation energy E / keV	Resolution $\Delta m$ / keV
$^{145}\text{Cs}$	582 ms	$3/2^+$		220
$^{147}\text{Cs}$	225 ms	$(3/2^+)$		660
$^{181}\text{Tl}$	3.4 s	$1/2^+\#$		
$^{181m}\text{Tl}$	2.7 ms	$9/2^-\#$	850 (30)	340
$^{183}\text{Tl}$	6.9 s	$1/2^+\#$		
$^{183m}\text{Tl}$	60 ms	$9/2^-\#$	625 (17)	340
$^{186}\text{Tl}$ *&	40# s	$(2^-)$		
$^{186m}\text{Tl}$ *&	27.5 s	$(7^+)$	40 (190)	
$^{186n}\text{Tl}$	2.9 s	$(10^-)$	420 (190)	210
$^{187}\text{Tl}$	51 s	$(1/2^+)$		
$^{187m}\text{Tl}$	15.6 s	$(9/2^-)$	332 (4)	540
$^{196}\text{Tl}$	1.84 h	$2^-$		
$^{196m}\text{Tl}$	1.41 h	$(7^+)$	394.2 (0.5)	120
$^{205}\text{Tl}$	stable	$1/2^+$		430
$^{187}\text{Pb}$	15.2 s	$(3/2^-)$		110
$^{187m}\text{Pb}$	18.3 s	$(13/2^+)$	60 (40)#	110
$^{197}\text{Pb}$	8 m	$3/2^-$		
$^{197m}\text{Pb}$	43 m	$13/2^+$	319.3 (0.7)	120
$^{208}\text{Pb}$	stable	$0^+$		270
$^{190}\text{Bi}$ *	6.3 s	$(3^+)$		
$^{190m}\text{Bi}$ *	6.2 s	$(10^-)$	150 (190)	
$^{190n}\text{Bi}$	$\geq 500$ ns	$7^+\#$	420 (190)	560
$^{191}\text{Bi}$	12.3 s	$(9/2^-)$		
$^{191m}\text{Bi}$	128 ms	$(1/2^+)$	242 (7)	110
$^{192}\text{Bi}$	34.6 s	$(3^+)$		
$^{192m}\text{Bi}$	39.6 s	$(10^-)$	210 (50)#	110
$^{193}\text{Bi}$	67 s	$(9/2^-)$		
$^{193m}\text{Bi}$	3.2 s	$(1/2^+)$	308 (7)	110
$^{194}\text{Bi}$ *	95 s	$(3^+)$		
$^{194m}\text{Bi}$ *	125 s	$(6^+, 7^+)$	100 (70)#	580
$^{194n}\text{Bi}$ *	115 s	$(10^-)$	230 (310)	
$^{195}\text{Bi}$	183 s	$9/2^-\#$		

Tabelle 5.2: (Continued).

Nuclide	Half-Life $T_{1/2}$	Spin/Parity $J^{\Pi}$	Excitation energy $E$ / keV	Resolution $\Delta m$ / keV
$^{195m}\text{Bi}$	87 s	$1/2^{+\#}$	399 (6)	120
$^{196}\text{Bi}$	5.1 m	$(3^+)$		
$^{196m}\text{Bi}$	0.6 s	$(7^+)$	167 (3)	590
$^{196n}\text{Bi}$	4 m	$(10^-)$	270 (4)	
$^{197}\text{Bi}$	9.3 m	$(9/2^-)$		
$^{197m}\text{Bi}$	5.04 m	$(1/2^+)$	350 (160)	600
$^{209}\text{Bi}$	19 Ey	$(9/2^-)$		270
$^{215}\text{Bi}$	7.6 m	$(9/2^-)$		
$^{215m}\text{Bi}$	36.4 m	$(25/2^-)$	1347.5 (2.5)	470
$^{216}\text{Bi}$	2.17 m	$1^{-\#}$		480
$^{203}\text{Fr}$	550 ms	$9/2^{-\#}$		420
$^{205}\text{Fr}$	3.85 s	$(9/2^-)$		260
$^{229}\text{Fr}$	50.2 s	$1/2^{+\#}$		810
$^{214}\text{Ra}$	2.46 s	$0^+$		470
$^{229}\text{Ra}$	4.0 m	$5/2^{(+)}$		810
$^{230}\text{Ra}$	93 m	$0^+$		330

Isomeric assignment:

\* In case the uncertainty  $\sigma$  on the excitation energy  $E$  is larger than half the energy ( $\sigma \geq E/2$ ) an asterisk has been added.

& In case the ordering of the ground and isomeric states have been reversed compared to ENSDF (Evaluated Nuclear Structure Data Files), an '&' sign has been added.

Half-life:

# values estimated from systematic trends in neighbouring nuclides with the same  $Z$  and  $N$  parities.

Ey 1 Ey =  $10^{18}$  y, 1 exayear.

Spin and parity:

() uncertain spin and/ or parity.

# values estimated from systematic trends in neighbouring nuclides with the same  $Z$  and  $N$  parities.

#### *Einflüsse auf das Mischungsverhältnis*

Der Anteil einer möglichen Beimischung eines Ions einer anderen Masse wird im Experiment durch verschiedene Prozesse bestimmt. Bei den vorliegenden Messungen handelt es sich bis auf die Ausnahme der Isobare  $^{229}\text{Fr}$  und  $^{229}\text{Ra}$  um weitere *isomere* Zustände, die aufgrund

ihrer kleinen Massendifferenz nicht in der Kühlerfalle separiert werden konnten. Bei der Bildung der Radionuklide im ISOLDE-Target spielt der Produktionsmechanismus eine wesentliche Rolle für das Auftreten langlebiger isomerer Zustände. Beim Spallationsprozess, der unter Abdampfen von Neutronen geschieht, wird kein Drehimpuls an die Produktkerne mitgegeben. Daher werden zum größten Teil die niedrigeren Spinzustände erzeugt. Bei der Fragmentation hingegen kann durch die Übergabe von Drehimpuls ein Zustand mit höherem Kernspin produziert werden. Durch die anschließenden Freisetzungzeiten aus dem Target werden für Halbwertszeiten von unterhalb 500 ms die Nuklide der isomeren Zustände mit den kürzeren Halbwertszeiten zu deutlich geringerem Anteil bis zum Experiment transportiert. Eine weitere Selektion von isomeren Zuständen ist möglich, wenn bei der resonanten Laseranregung in der ISOLDE-Laserionenquelle durch geeignete Wahl der Laserwellenlängen und -bandbreiten ein Zustand selektiv angeregt und ionisiert wird. Aufgrund der unterschiedlichen Hyperfeinstrukturaufspaltungen für die verschiedenen Kernspins und der Isomerieverschiebung zwischen Grund- und isomeren Zustand kann eine zusätzliche Selektivität im Ionisationsprozess erzielt werden. In dieser Strahlzeit wurde für Blei und Wismut die RILIS-Ionenquelle [Mish1993] (**R**esonance **I**onisation **L**aser **I**on **S**ource) eingesetzt. Der breitbandige Modus von 10 GHz führt bei Blei zu keiner Selektion eines isomeren Zustandes, da die einzelnen Hyperfeinstrukturkomponenten zu dicht beieinander liegen. Durch die Verwendung eines Etalons kann die Bandbreite auf etwa 1,5 GHz reduziert werden, was für eine selektive Ionisation der jeweiligen isomeren Zustände ausreicht [Köst2000, Köst2002]. Dies wurde im Fall von  $^{185}\text{Pb}$  gezeigt [Andr2002a] und konnte auch bei dieser Strahlzeit im Fall von  $^{187}\text{Pb}$  erfolgreich angewendet werden. Hierbei wurden die resultierenden Produktionsverhältnisse parallel zu der Massenmessung mittels Kernspektroskopie bestimmt [Witt].

Bei Wismut wurden die Laser ausschließlich im Breitbandmodus betrieben. Da für den mittleren Spinzustand (z.B.  $J = 9/2, J = 6, J = 7$  im Vergleich zu  $J = 1/2, J = 3/2, J = 10$ ) die Hyperfeinstrukturaufspaltung um einen Faktor drei bis fünf größer ist als für die übrigen Kernspins, bestand bei den Wismutisotopen die Möglichkeit, über die Anregung von *nur einer* Hyperfeinkomponente eine selektive Ionisation zu erreichen [Fedo2003]. Aus diesem Grund konnten bei der Zuordnung der Massenwerte keine Produktionsverhältnisse aus früheren Messungen an ISOLDE herangezogen werden, die für eine konventionelle Ionenquelle bestimmt wurden.

### *Experimentelle Ergebnisse*

Tabelle 5.3 gibt alle bestimmten Frequenzverhältnisse relativ zur Zyklotronfrequenz des  $^{133}\text{Cs}$ -Referenzions an. Dabei wird zu jedem Frequenzverhältnis der statistische Fehler  $\sigma_{\text{stat}}$ , der Gesamtfehler  $\sigma_{\text{tot}}$  und die relative Größe des Gesamtfehlers  $\sigma_{\text{rel}}$  angegeben. Die gemachten Zuordnungen der Nuklide kennzeichnen, welcher isomere Zustand gemessen worden ist, bzw. ob es sich um die Messung einer nicht aufgelösten Mischung handelt. In diesem Fall ist das betreffende Nuklid durch  $^{A_x}\text{El}$  markiert.

In den folgenden Abschnitten werden nur die Nuklide im einzelnen diskutiert, bei denen ein isomerer Zustand existiert oder eine gesonderte Beschreibung erforderlich ist. Die Reihenfolge ist hierbei so gewählt, dass systematische Vergleiche und Schlussfolgerungen leicht möglich sind. Hierzu sind in Tab. 5.4 die aus den Frequenzverhältnissen abgeleiteten Massenüberschüsse angegeben. Zur Interpretation der Messdaten ist der Vergleich mit den Werten der von Georges Audi bislang durchgeführten Atomaren Massenauswertung (AME: Atomic Mass Evaluation) sinnvoll. Im Verlauf dieses Kapitels geschieht dies in den Abb. 5.11, 5.12 und 5.19. Das Prinzip der AME ist in Kap. 5.5 ausführlich dargestellt.

Tabelle 5.3: Frequenzverhältnisse  $r$  der Zyklotronfrequenzen der  $^{133}\text{Cs}$ -Referenzen  $\nu_{\text{c,ref}}$  zu  $\nu_{\text{c}}$  der untersuchten Nuklide. Die Indizes  $m$  und  $x$  kennzeichnen, ob der angeregte isomere Zustand (m) oder eine Mischung (x) aus mehreren Zuständen gemessen wurde.  $\sigma_{\text{stat}}$  gibt den statistischen Fehler,  $\sigma_{\text{tot}}$  den Gesamtfehler inklusive systematischer Unsicherheiten an. Der Fehler bezieht sich jeweils auf die letzten Stellen im Frequenzverhältnis. In der letzten Spalte ist die relative Größe des Gesamtfehlers  $\sigma_{\text{rel}}$  gegeben.

Nuclide	Frequency ratio $r = \frac{\nu_{\text{c,ref}}}{\nu_{\text{c}}}$	$\sigma_{\text{stat}}$	$\sigma_{\text{tot}}$	$\sigma_{\text{rel}}$
$^{145}\text{Cs}$	1.0905164435	(90)	(91)	$8.3 \times 10^{-8}$
$^{147}\text{Cs}$	1.1056297549	(481)	(481)	$4.3 \times 10^{-7}$
$^{181}\text{Tl}$	1.3617684751	(81)	(82)	$6.0 \times 10^{-8}$
$^{183}\text{Tl}$	1.3767862171	(80)	(81)	$5.9 \times 10^{-8}$
$^{186m}\text{Tl}$	1.3993322342	(68)	(69)	$5.0 \times 10^{-8}$
$^{187x}\text{Tl}$	1.4068379986	(183)	(184)	$1.3 \times 10^{-7}$
$^{196m}\text{Tl}$	1.4745156168	(97)	(98)	$6.7 \times 10^{-8}$
$^{205}\text{Tl}$	1.5422597393	(80)	(82)	$5.3 \times 10^{-8}$
$^{187}\text{Pb}$	1.4068958785	(46)	(105)	$7.5 \times 10^{-8}$
$^{187m}\text{Pb}$	1.4068960803	(85)	(104)	$7.4 \times 10^{-8}$
$^{197m}\text{Pb}$	1.4820613863	(42)	(45)	$3.0 \times 10^{-8}$
$^{208}\text{Pb}$	1.5648490383	(38)	(42)	$2.7 \times 10^{-8}$
$^{190x}\text{Bi}$	1.4295043842	(204)	(204)	$1.4 \times 10^{-7}$
$^{191}\text{Bi}$	1.4370066689	(63)	(64)	$4.5 \times 10^{-8}$
$^{192m}\text{Bi}$	1.4445296049	(71)	(72)	$5.0 \times 10^{-8}$
$^{193}\text{Bi}$	1.4520337812	(82)	(84)	$5.8 \times 10^{-8}$
$^{194m}\text{Bi}$	1.4595579325	(116)	(117)	$8.0 \times 10^{-8}$
$^{195}\text{Bi}$	1.4670647753	(43)	(45)	$3.1 \times 10^{-8}$
$^{196m}\text{Bi}$	1.4745902081	(115)	(116)	$7.9 \times 10^{-8}$
$^{197x}\text{Bi}$	1.4820996656	(88)	(89)	$6.0 \times 10^{-8}$
$^{209}\text{Bi}$	1.5724013842	(30)	(35)	$2.2 \times 10^{-8}$
$^{215}\text{Bi}$	1.6177072134	(116)	(118)	$7.3 \times 10^{-8}$
$^{216}\text{Bi}$	1.6252655202	(91)	(93)	$5.7 \times 10^{-8}$
$^{203}\text{Fr}$	1.5274107347	(130)	(131)	$8.6 \times 10^{-8}$
$^{205}\text{Fr}$	1.5424415612	(71)	(73)	$4.7 \times 10^{-8}$
$^{229}\text{Fr}$	1.7233216824	(297)	(298)	$1.7 \times 10^{-7}$
$^{214}\text{Ra}$	1.6101705297	(164)	(165)	$1.0 \times 10^{-7}$
$^{228}\text{Ra}$	1.7157427009	(261)	(262)	$1.5 \times 10^{-7}$
$^{229}\text{Ra}$	1.7232954991	(156)	(157)	$9.1 \times 10^{-8}$
$^{230}\text{Ra}$	1.7308353734	(98)	(101)	$5.8 \times 10^{-8}$

Tabelle 5.4: Berechnete Massenüberschüsse (Gl. (5.3)) der im Rahmen dieser Arbeit direkt vermessenen Nuklide an ISOLTRAP unter Verwendung der Referenzmasse  $m_{\text{ref}}$  von  $^{133}\text{Cs}$  [Brad1999]. Die Werte mit einem Fehler  $\sigma_{\text{tot}} \leq 10$  keV sind sie auf die erste Dezimalstelle gerundet.

Nuclide	Mass excess / keV	$\sigma_{\text{tot}}$ / keV
$^{145}\text{Cs}$	-60052	11
$^{147}\text{Cs}$	-52011	60
$^{181}\text{Tl}$	-12802	10
$^{183}\text{Tl}$	-16592	10
$^{186m}\text{Tl}$	-19874.4	8.6
$^{187x}\text{Tl}$	-22154	23
$^{196m}\text{Tl}$	-27103	12
$^{205}\text{Tl}$	-23818	10
$^{187}\text{Pb}$	-14988	13
$^{187m}\text{Pb}$	-14963	13
$^{197m}\text{Pb}$	-24429.5	5.5
$^{208}\text{Pb}$	-21742.2	5.2
$^{190x}\text{Bi}$	-10535	25
$^{191}\text{Bi}$	-13244.9	8.0
$^{192m}\text{Bi}$	-13398.5	9.0
$^{193}\text{Bi}$	-15875	10
$^{194m}\text{Bi}$	-15878	14
$^{195}\text{Bi}$	-18023.7	5.6
$^{196m}\text{Bi}$	-17868	14
$^{197x}\text{Bi}$	-19690	11
$^{209}\text{Bi}$	-18254.9	4.3
$^{215}\text{Bi}$	1648	15
$^{216}\text{Bi}$	5873	11
$^{203}\text{Fr}$	861	16
$^{205}\text{Fr}$	-1308.6	9.0
$^{229}\text{Fr}$	35816	37
$^{214}\text{Ra}$	100	20
$^{228}\text{Ra}$	29031	32
$^{229}\text{Ra}$	32575	19
$^{230}\text{Ra}$	34518	12

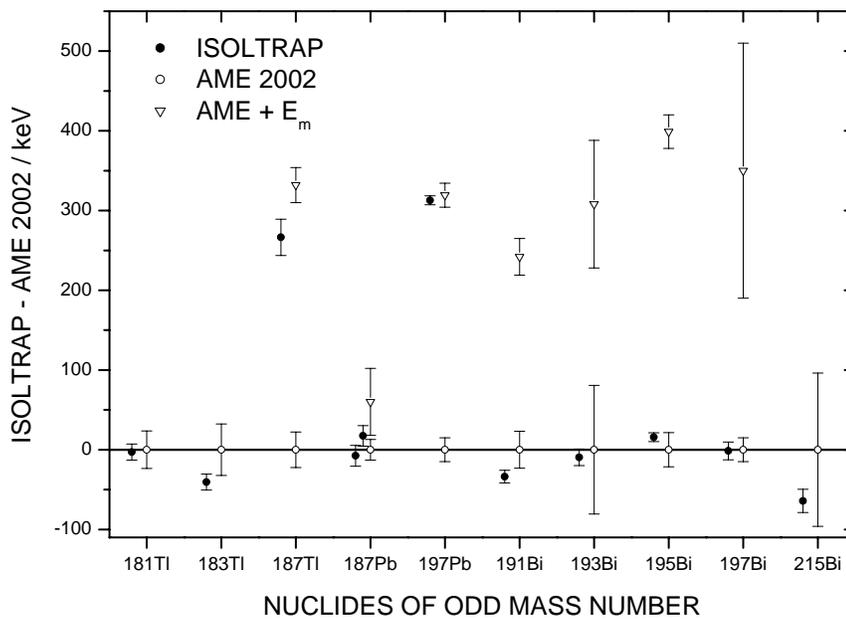


Abbildung 5.11: Vergleich der ISOLTRAP-Massenwerte für ug- und gu-Nuklide mit den Werten der AME2002. Die Nulllinie stellt die AME-Grundzustandsmassen mit ihren Fehlern dar. Angeregte, langlebige Zustände, die in NUBASE [Audi1997, Audi2003a] tabelliert sind, sind durch offene Dreiecke symbolisiert. Der Vergleich der Werte kann zur Zuordnung der isomeren Zustände herangezogen werden. Detaillierte Diskussion im Text.

#### Diskussion der Nuklide ungerader Massenzahl

Es wird zuerst auf die Nuklide ungerader Massenzahl eingegangen, bei denen ein angeregter, langlebiger Zustand bekannt ist. Für  $^{181,183,187}\text{Tl}$  und  $^{187,197}\text{Pb}$  ist dem Grundzustand laut Tab. 5.2 immer der niedrigere Kernspin zugewiesen. Die Wismutisotope  $^{191-197}\text{Bi}$  hingegen haben einen Grundzustand mit einem höheren Spin. Die Massenüberschüsse  $ME$  in Tab. 5.4 dienen als Hilfe für die Zuordnung von Grundzustand und Isomer. Der Vergleich zu den AME-Werten mit einer für diese Massenregion hohen Genauigkeit von  $\alpha_{\text{tot}} \leq 25$  keV kann ein Hinweis sein, welcher der möglichen Kernzustände im Experiment bevorzugt auftrat.

Dazu sind diese Werte im Vergleich zu der AME2002 [Audi2003a] in Abb. 5.11 dargestellt. Diese Atomare Massenauswertung enthält alle bis Ende 2002 publizierten Massenwerte, aber nicht die in dieser Arbeit bestimmten. Die Nulllinie fixiert den jeweiligen Wert der Grundzustandsmasse mit ihrem Fehler. Die Lage der angeregten Kernzustände ist aus dem aktuellen NUBASE-Datenfile (Tab. 5.2) [Audi2003a] ermittelt. Ihre Unsicherheit errechnet sich quadratisch aus den Fehlern von Grundzustandsmasse und Anregungsenergie.

#### $^{181}\text{Tl}$ und $^{183}\text{Tl}$

Bei den Nukliden  $^{181}\text{Tl}$  und  $^{183}\text{Tl}$  sind die Halbwertszeiten der angeregten Kernzustände ( $J^\pi = 9/2^+$ ) mit 2,7 ms bzw. 60 ms im Vergleich zur Länge des Messzyklus von  $\sim 1$  s so kurz,

dass die gemessenen Frequenzverhältnisse eindeutig dem jeweiligen Grundzustand zuzuordnen sind. Die ISOLTRAP-Masse stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit dem Wert aus AME2002 überein (siehe Abb. 5.11).

### <sup>187</sup>Tl

Für das Nuklid <sup>187</sup>Tl wurde die Messung mit einer Auflösung von 540 keV durchgeführt, die nicht ausreichte, um eine eventuelle Mischung beider Zustände ( $E = 332$  keV) zu trennen. Daher kann diese Beimischung auch in der Zählklassenanalyse nicht erkannt werden. Der gemessene Wert von ISOLTRAP deutet auf eine bevorzugte Produktion des Isomers hin.

### <sup>197</sup>Pb

Die Massenwerte beider Zustände des Nuklids <sup>197</sup>Pb sind nach der AME2002 mit einer Unsicherheit von jeweils 15 keV bekannt. Der aus den ISOLTRAP-Daten ermittelte Wert mit einem Gesamtfehler von 5,5 keV stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit dem Massenwert des um 319,3 keV angeregten  $J^\Pi = 13/2^+$ -Zustandes überein und wird diesem zugeordnet.

### <sup>191–197</sup>Bi, <sup>215</sup>Bi

Es wurde eine Reihe von Wismutisotopen ungerader Massenzahlen  $A = 191$  bis  $197$  und  $A = 215$  untersucht. Da die gewählte Auflösung  $\Delta m$  außer bei <sup>197</sup>Bi die Massendifferenz beider Zustände für alle Isotope um mindestens das Zweifache übersteigt, kann durch die Zählklassenanalyse eine isomere Kontamination des jeweils anderen Zustands zweifelsfrei ausgeschlossen werden. Es bleibt die Frage offen, *welcher* der Zustände gemessen worden ist. Die Bestimmung der Ionenausbeute isomerer Zustände von Blei und Wismut an ISOLDE zeigte, dass meist die Zustände mit höherem Kernspin produziert wurden [Köst2003]. Der Vergleich der ISOLTRAP-Ergebnisse liefert in allen Fällen eine gute Übereinstimmung mit den AME2002-Werten der Grundzustände (höherer Kernspin von  $J^\Pi = 9/2^-$  für die Isotope <sup>191–197</sup>Bi).

Für <sup>191</sup>Bi beträgt die Halbwertszeit des angeregten Zustandes lediglich  $T_{1/2} = 128$  ms, was diesen nach einer möglichen Produktion im ISOLDE-Target gegenüber dem Grundzustand stark unterdrücken müsste. Die Unsicherheit der Grundzustandsmasse von <sup>195</sup>Bi in der AME2002 beträgt nur 21 keV und der gemessene ISOLTRAP-Wert stimmt mit dieser innerhalb  $0,7 \sigma$  überein. Aufgrund der guten Übereinstimmung der Massenwerte wird davon ausgegangen, dass die Wismutisotope ungerader Massenzahl an ISOLDE bevorzugt im Grundzustand produziert und geliefert wurden. Dies wird auch für das Isotop <sup>197</sup>Bi angenommen, wo eine isomere Kontamination aufgrund der gewählten Auflösung von 600 keV nicht von vorneherein ausgeschlossen werden kann. Der ISOLTRAP-Wert stimmt in diesem Fall innerhalb von 1,5 keV mit der AME2002 überein. Eine Ausnahme bildet <sup>215</sup>Bi, das einen über 1 MeV angeregten Zustand mit einem Spin von  $25/2^-$  besitzt. Hier wurde ebenso die Masse des  $9/2^-$ -Grundzustandes gemessen.

Die Betrachtung aller Nuklide ungerader Massenzahl zeigt im Auftreten isomerer Zustände ein einheitliches Muster. Abgesehen von den Nukliden, bei denen ein Zustand aufgrund zu kurzer Halbwertszeit ausgeschlossen werden kann, wurden bevorzugt die höheren Kernspins produziert. Bei <sup>187</sup>Tl und <sup>197</sup>Pb sind dies die *angeregten* Zustände mit Spins von  $9/2^-$  und  $13/2^+$ . Die Wismutisotope haben im Grundzustand den höheren Spinwert von  $9/2^-$ . Zusätzlich können

die aus systematischen Trends gewonnenen Spinzuzuweisungen in der NUBASE-Datenbank (Tab. 5.2) anhand der ISOLTRAP-Daten überprüft werden. Die Spinzuzuweisung für  $^{195}\text{Bi}$  kann daher bestätigt werden. Eine Fehlzuzuweisung für  $^{181}\text{Tl}$  und  $^{183}\text{Tl}$  kann aufgrund der vorliegenden ISOLTRAP-Ergebnisse nicht ausgeschlossen werden.

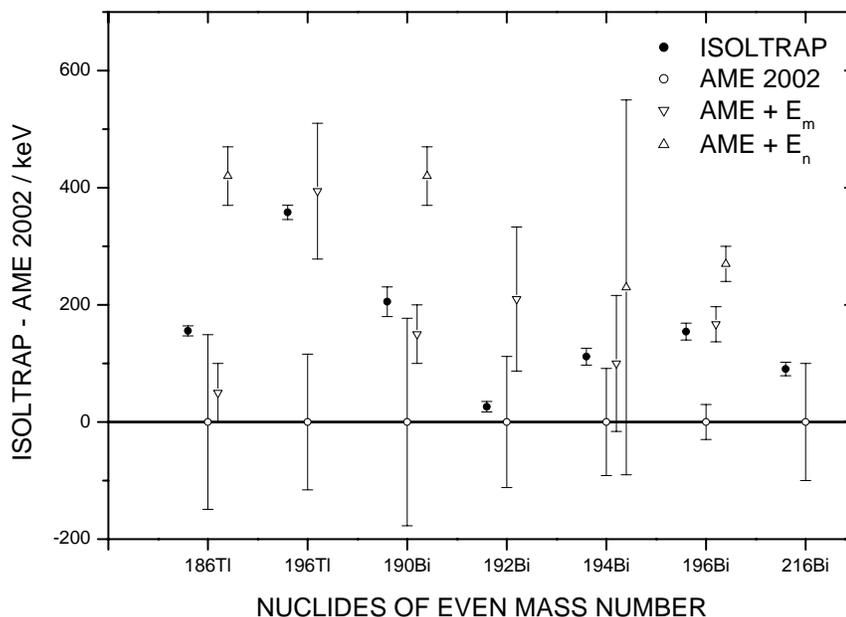


Abbildung 5.12: Analog Abb. 5.11 jedoch für uu-Nuklide. Für energetisch am höchsten liegende isomere Zustände zeigt die Spitze der Dreiecke nach oben.

#### Diskussion der Nuklide gerader Massenzahl

Für Nuklide gerader Massenzahl ist die Lage der Energieniveaus der isomeren Zustände relativ zur Grundzustandsmasse zusammen mit den ISOLTRAP-Daten in Abb. 5.12 aufgetragen. Bei den untersuchten Nukliden gerader Massenzahl treten oftmals *zwei* angeregte, langlebige Kernzustände auf (siehe auch Tab. 5.2). Die Nulllinie stellt den jeweiligen Wert der Grundzustandsmasse mit ihrem Fehler dar. Die Massenwerte angeregter Kernzustände ab einer Halbwertszeit von 500 ns sind wenn notwendig nach Addition der Anregungsenergie aus dem aktuellen NUBASE-Datenfile (Tab. 5.2) [Audi2003a] eingetragen. Mit Ausnahme des 500 ns-Zustandes von  $^{190}\text{Bi}$  sind alle Halbwertszeiten lange genug ( $\geq 50$  ms), um Ionen in den dazugehörigen Zuständen im ISOLTRAP Penningfallen Massenspektrometer zu untersuchen. Da Ergebnisse der parallel durchgeführten spektroskopischen Untersuchungen über Mischungsverhältnisse zum Zeitpunkt der Massenauswertung nicht vorlagen, kann auch hier nur bedingt aus dem systematischen Vergleich der Daten auf die Produktionsverhältnisse geschlossen werden. Analog zu den Nukliden *ungerader* Massenzahl wird erwartet, dass niedrige Spinzustände - falls sie auftreten - nur zu geringem Anteil produziert wurden.

$^{196}\text{Tl}$ 

In der Messung von  $^{196}\text{Tl}$  war die gewählte Auflösung von 120 keV ausreichend, um beide Zustände zu trennen. Der gemessene ISOLTRAP-Wert stimmt innerhalb der Fehlergrenzen ( $\leq 0,2 \sigma$ ) mit dem Wert für den angeregten  $^{196m}\text{Tl}$ -Zustand ( $T_{1/2} = 1,84 \text{ h}$ ,  $J^\pi = 2^-$ ) überein.

 $^{186}\text{Tl}$ 

Die Zuweisung des ISOLTRAP-Wertes zu einem der isomeren Zustände von Nuklid  $^{186}\text{Tl}$  ist nicht eindeutig durchzuführen. Auch ist die in NUBASE (Tab. 5.2) gemachte Spinzunordnung anders als die in den Evaluated Nuclear Structure Data Files (ENSDF). Die Massen der angeregten Zustände sind mit 50 keV Unsicherheit angegeben. Die Energiedifferenz zwischen  $^{186m}\text{Tl}$  und  $^{186n}\text{Tl}$  beträgt 373,9(0,5) keV. Der Versuch, die Massenmessung mit extrem hoher Auflösung von  $\Delta m = 33 \text{ keV}$ , bei einer Anregungsdauer von 9 s durchzuführen, war nicht möglich. Man beobachtete schon ab Anregungszeiten von mehr als 3 s den Zerfall der Ionen (siehe Halbwertszeiten in Tab. 5.2). Dies äußert sich im Flugzeitspektrum dahingehend, dass ein weiteres Maximum bei der etwa um die Hälfte verkürzten Flugzeit und ein scharfer 'Peak' bei einer Flugzeit von  $164 \mu\text{s}$  erscheint (siehe Abb. 5.13). Vergleicht man weitere Flugzeitspektren aus Messungen an anderen Nukliden, bei denen ebenfalls die Anregungsdauer größer als die Halbwertszeit gewählt wurde, dann zeigen diese durchweg eine solche Peakstruktur. Der genaue Mechanismus hierfür ist noch ungeklärt, allerdings erscheint eine durch den Zerfall induzierte Ionisation des Restgases bzw. des Heliums aus der Kühlerfalle als wahrscheinlichste Möglichkeit. Durch eine Serie von fünf Testmessungen bei verschiedener Anregungsdauer von 100 ms bis 9 s, in denen das Größenverhältnis der beiden Peakflächen zueinander genommen wurde,

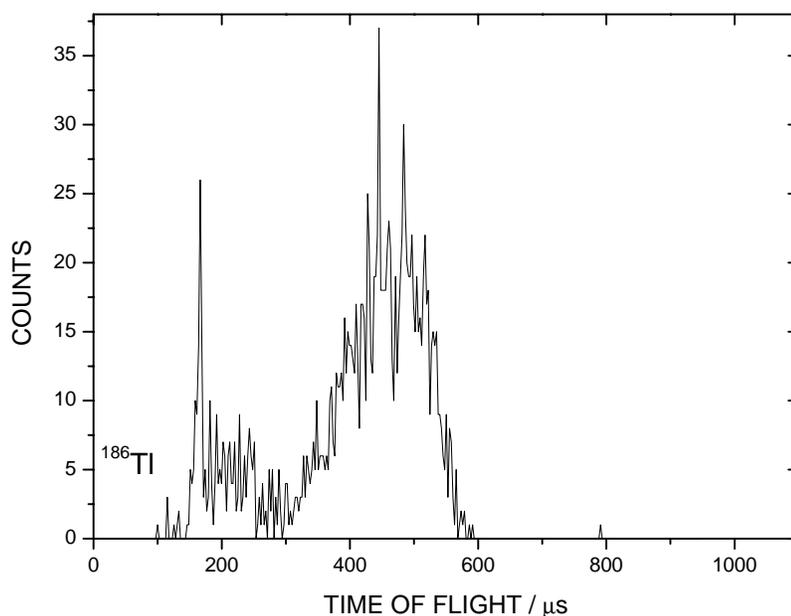


Abbildung 5.13: Flugzeitspektrum einer  $^{186}\text{Tl}$ -Messung, in der die Speicherzeit in der Falle in der Größenordnung der Halbwertszeit  $T_{1/2}$  liegt. Es erscheint eine weitere Verteilung bei etwa der halben Flugzeit und ein scharfes Maximum bei einer Flugzeit von  $\approx 164 \mu\text{s}$ . Erklärung im Text.

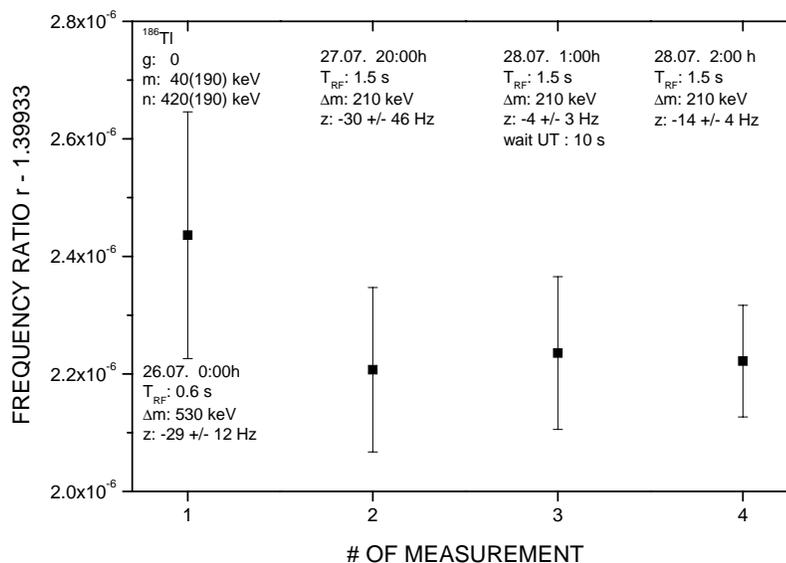


Abbildung 5.14: Vier Einzelmessungen des Frequenzverhältnisses für das Nuklid  $^{186m}\text{Tl}$  mit zwei verschiedenen Anregungsdauern  $T_{RF}$ .

konnte eine Halbwertszeit von etwa 3 s abgeschätzt werden. Dies deutet darauf hin, dass der höchst angeregte  $^{186m}\text{Tl}$ -Zustand mit  $T_{1/2} = 2,3$  s produziert wurde. Abbildung 5.14 zeigt die Ergebnisse vierer erfolgreicher durchgeführter Frequenzmessungen. Mit einer Auflösung von 210 keV kann die Mischung der  $^{186m}\text{Tl}$  und  $^{186n}\text{Tl}$ -Zustände getrennt werden. Eine Messung der Zyklotronfrequenz, in der eine zusätzliche Wartezeit in der Messfalle von 10 s hinzugefügt wurde (Abb. 5.14, 3. Punkt), zeigt in der Zählklassenanalyse *keine* Kontamination. Aus weiteren Messungen erhält man eine mit Hilfe der Zählklassenanalyse korrigierte Frequenz. Zur Bestimmung des Frequenzverhältnisses wurden daher nur die drei Messungen mit der höheren Auflösung herangezogen. Aus Vergleichen der Spinsystematik und der besseren Übereinstimmung mit dem AME2002-Wert wird der gemessene Wert dem  $^{186m}\text{Tl}$ -Zustand zugewiesen. Es kann jedoch nicht ausgeschlossen werden, dass eine geringe Beimischung des Grundzustandes ( $\Delta E = 40$  keV) vorliegt.

### $^{190}\text{Bi}$ , $^{194}\text{Bi}$ und $^{196}\text{Bi}$

Diese genannten Wismutisotope besitzen *drei* beobachtete isomere Zustände. Diese Spinsystematik wurde durchgehend bei Bi- Isotopen gerader Massenzahl bis hin zum Isotop  $^{206}\text{Bi}$  beobachtet. Die Anregungsenergien von ca. 150 keV sind bis auf die von  $^{196}\text{Bi}$  nur auf ca. 70 keV bekannt (Abb. 5.12). Da Daten über isomere Mischungsverhältnisse an dem parallel durchgeführten Spektroskopieexperiment gewonnen wurden, war es nicht das vorrangige Ziel, alle isomeren Zustände aufzulösen. Das verwendete Auflösungsvermögen von ca.  $3,1 \times 10^6$  während der Messung an diesen Isotopen entspricht einer Massenauflösung von etwa 560 – 590 keV. Um eine Massenauflösung von 50 keV zu erzielen, wäre eine Anregungsdauer von 7 s erforderlich gewesen.

Für  $^{196}\text{Bi}$  stimmt der Massenwert sehr gut mit dem Wert des 0,6 s-Zustandes ( $^{196m}\text{Bi}$ ) überein. Eine mögliche Kontamination kann jedoch nicht ausgeschlossen werden. Aufgrund der Übereinstimmung wird auch für das Isotop  $^{194}\text{Bi}$  gefolgert, dass der mittlere Spinzustand bevorzugt produziert wurde. Bei  $^{190}\text{Bi}$  hat der mittlere Spinzustand eine Halbwertszeit im Nano-

sekundenbereich. Der gemessene Wert von ISOLTRAP mit 25 keV Unsicherheit stimmt mit dem Wert des 6,2 s-Zustandes  $^{190}\text{Bi}$  innerhalb von  $1\sigma$  überein. Aufgrund der zu geringen Auflösung während der Messung, kann ein Gemisch der um 150(190) keV voneinander entfernten Zustände  $^{190}\text{Bi}$  und  $^{190m}\text{Bi}$  vorliegen.

### $^{192}\text{Bi}$

Im Vergleich zu den übrigen Wismutisotopen gerader Massenzahl wurde bei  $^{192}\text{Bi}$  das Auftreten eines Kernspins mittlerer Drehimpulsquantenzahl von z.B.  $J = 6$  oder  $7$  experimentell bisher nicht beobachtet. Der allgemeine Trend der Messungen dieser Strahlzeit weist allerdings auf eine bevorzugte Produktion der mittleren Spinzustände (z.B.  $J = 9/2$  oder  $7$ ) hin. Daher bleibt zunächst die Frage offen, in welchem Verhältnis der  $3^+$ -Grundzustand und der angeregte  $10^-$ -Zustand produziert wurden. Die Messungen an diesem Nuklid zeigen zwei Besonderheiten. Zum einen wird durch die Zählklassenanalyse eine Kontamination erkannt, die mit zunehmender Ionenanzahl eine Frequenzverschiebung zu größeren Werten hin zeigt. Abbildung 5.15 stellt eine der beiden Messungen mit signifikanter, positiver Geradensteigung dar. Die Möglichkeit eine positive Steigung in der Zählklassenanalyse zu beobachten, ist strenggenommen nicht möglich. Das Ergebnis von Computersimulationen der Wechselwirkung von zwei Ionen in einer Penningfalle [Köni1991] ergibt gemittelte Resonanzkurven, die eine charakteristische Frequenzverschiebung aufweisen (siehe auch Kap. 2.2.4). Ist das Auflösungsvermögen zu gering, um die einzelnen Massen zu trennen, so beobachtet man *eine* Resonanzlinie bei dem Schwerpunkt der Einzelmassen. Sobald die Auflösung ausreicht, die Massen zu trennen, wird jeweils eine zu niedrigerer Frequenz (= höherer Masse) verschobene Resonanzkurve errechnet. Da die Zählklassenanalyse nur bei ausreichender Auflösung eine Aussage geben kann, sollten die beobachteten Geradensteigungen ausschließlich negatives Vorzeichen haben. Zum anderen beobachtet man hier auch das für den Fall  $^{186}\text{Tl}$  diskutierte zerfallstypische Flugzeitspektrum 5.13. Dass der Zerfall die Ursache für das Auftreten der positiven Geradensteigung ist, konnte widerlegt werden.

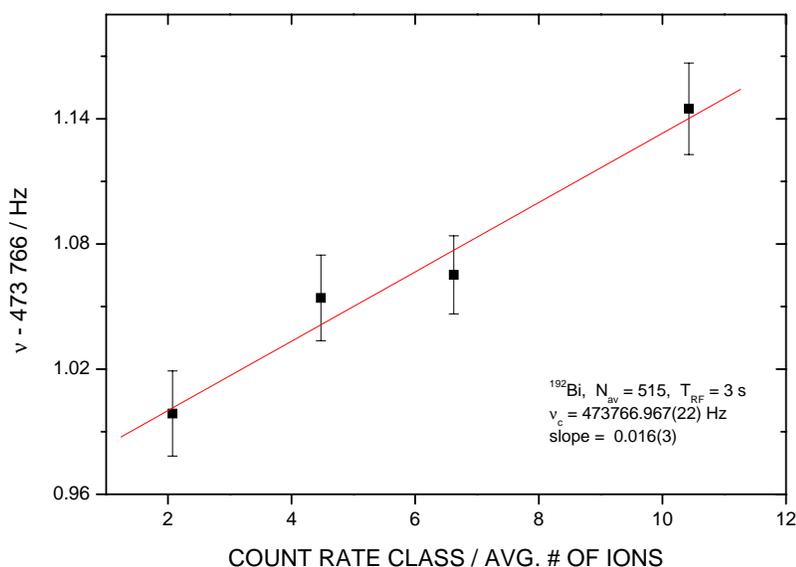


Abbildung 5.15: Zählklassenanalyse einer  $^{192}\text{Bi}$ -Messung mit einer Massenauflösung von  $\Delta m = 110$  keV. Die positive Steigung der Frequenzabhängigkeit ist noch ungeklärt. Diskussion im Text.

Die zeitnah durchgeführten Messungen an den Nachbarisotopen  $^{191}\text{Bi}$  und  $^{193}\text{Bi}$  mit 3 s Anregungsdauer zeigen bedingt durch die kurze Halbwertszeit eines ihrer Isomere ebenso ein solches Flugzeitspektrum, jedoch keine Zählklassenabhängigkeit. Beobachtet man in einer Messung von  $^{192}\text{Bi}$  mit ca. 3 s Speicherdauer ein zerfallstypisches Flugzeitspektrum, kann dies nicht durch die beiden bekannten isomeren Zustände mit Halbwertszeiten von mehr als 30 s hervorgerufen werden. Es könnte jedoch durch einen weiteren, bisher nicht beobachteten isomeren Zustand mit einer kürzeren Halbwertszeit bedingt sein. Bei allen ungerade-ungerade Wismutisotopen von  $^{190}\text{Bi}$  bis  $^{206}\text{Bi}$  sind *drei* isomere Zustände bekannt. Bei  $^{192}\text{Bi}$  sind es bisher nur zwei. Dies wird in Kap. 5.5.1 weiter diskutiert.

#### Die Isomere $^{187}\text{Pb}$ und $^{187m}\text{Pb}$

In diesem Fall ist die Hyperfeinstrukturaufspaltung der beiden isomeren Kernzustände ausreichend verschieden, um über die Laseranregung im schmalbandigen Modus eine selektive Ionisation zu erreichen. Mit dem Ziel, einen möglichst hohen relativen Anteil *eines* isomeren Zustandes zu produzieren, wurde die Laserwellenlänge des ersten Anregungsschrittes des dreistufigen Ionisationsschemas variiert. Dabei wurde die Ionenausbeute beider Kernzustände über das Verhältnis der dem  $\beta^+/\text{EC}$ -Zerfall folgenden charakteristischen  $\gamma$ -Strahlung kontrolliert. Abbildung 5.16 zeigt das Resultat der selektiven Laserionisation. Für die Durchführung der Massenbestimmung wurden die Lasereinstellungen zur maximalen Produktion eines Zustandes gewählt. Die Laseranregung vom atomaren Grundzustand zum ersten angeregten Zustand mit einer Wellenzahl von  $\tilde{\nu}_1 = 17643,29 \text{ cm}^{-1}$  zu Gunsten des  $3/2^-$ -Zustands und von  $\tilde{\nu}_2 = 17643,37 \text{ cm}^{-1}$  zu Gunsten des  $13/2^+$ -Zustands sind in der Abbildung durch Pfeile markiert. Da die Anregungsenergie von  $^{187m}\text{Pb}$  aus systematischen Abschätzungen nur mit 60(40) keV bekannt ist,

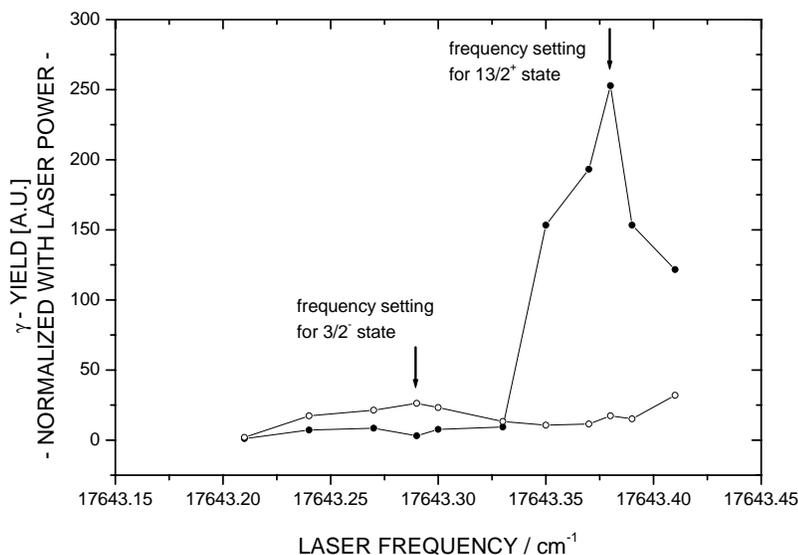


Abbildung 5.16: Selektive Ionisation der isomeren Zustände  $^{187}\text{Pb}$  ( $J^\Pi = 3/2^-$ ) und  $^{187m}\text{Pb}$  ( $J^\Pi = 13/2^+$ ). Die gemessene Ausbeute an charakteristischer  $\gamma$ -Strahlung aus den isomeren Zuständen diente der Überprüfung der Lasereinstellung. Die gewählten Lasereinstellungen während der Durchführung der Massenbestimmungen sind durch Pfeile markiert.

führt eine alleinige Messung mit anschließender Korrektur (Gl. (5.10)) auf die Grundzustandsmasse mit einer maximalen Genauigkeit von ca. 70 keV. Durch die ermittelten Mischungsverhältnisse  $R/(R + 1)$  von 0,382(6) zu Gunsten des Grundzustandes bzw. von 0,897(8) zu Gunsten des angeregten, isomeren Zustandes konnten aus zwei unabhängigen Messungen mit verschiedenen Mischungsverhältnissen beide Massenwerte bestimmt werden (siehe auch Tab. 5.4 oder den Vergleich zur AME2002 in Abb. 5.11). Die Anregungsenergie für den isomeren  $13/2^+$ -Zustand kann zu 25(24) keV bestimmt werden. Durch die Anordnung der Massenwerte kann hiermit auch die in Tab. 5.2 gemachte Spin-Zuweisung bestätigt werden. Diese stimmt nicht mit der aktuellsten Veröffentlichung überein. Entgegen einer früheren Veröffentlichung [Andr1999] wird dem Grundzustand in der neueren Veröffentlichung der höhere Spinwert zugewiesen [Andr2002b]. Trotz der daraus folgenden umgekehrten Niveaufolge, stimmen beide Werte für die Anregungsenergie innerhalb von weniger als  $1 \sigma$  überein.

### Die isobaren Nuklide $^{229}\text{Fr}$ und $^{229}\text{Ra}$

Die Nuklide  $^{229}\text{Fr}$  und  $^{229}\text{Ra}$  wurden gleichzeitig in der Präzisionsfalle gespeichert, da das gewählte Auflösungsvermögen der Kühlerfalle von  $R \approx 4 \times 10^4$  nicht in allen Fällen ausreichte, um die Isobare in diesem schweren Massenbereich  $A \geq 180$  zu trennen. Abbildung 5.17 zeigt eine Zyklotronresonanzkurve mit den gleichzeitig gespeicherten Isobaren. Die beiden Isobare mit einer Massendifferenz von mehr als 3,2 MeV konnten in der Präzisionsfalle mit einer Auflösung von  $R \approx 3 \times 10^6$  deutlich getrennt werden. An die Datenpunkte wurde eine Überlagerung zweier Zyklotronresonanzen angepasst, die nach dem relativen Anteil beider Zustände gewichtet sind. Das jeweilige erste Seitenband ist ebenfalls noch zu erkennen. Mit den in den Messungen mittleren nachgewiesenen Ionenzahlen  $N_{\text{av}}$  von ca. 2,5 Ionen und einer angenommenen Nachweiseffizienz des MCP-Detektors von 30 %, wurden im Durchschnitt acht Ionen in der Falle gespeichert. Die Möglichkeit einer systematischen Frequenzverschiebung aufgrund der Anwesenheit einer

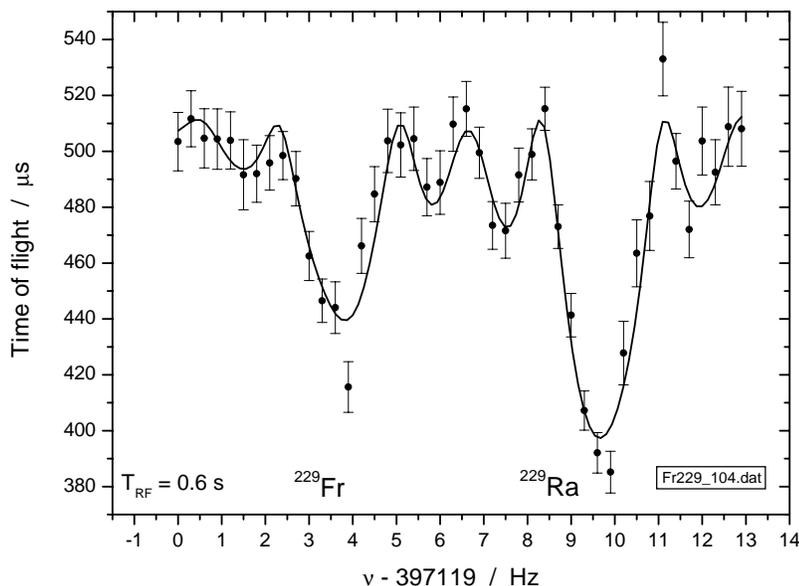


Abbildung 5.17: Zyklotronresonanzen der Isobare  $^{229}\text{Fr}$  und  $^{229}\text{Ra}$ , gemessen in der Präzisionsfalle. Das gewählte Auflösungsvermögen in der Kühlerfalle von  $R \approx 4 \times 10^4$  war nicht ausreichend, um die schweren Isobare zu trennen.

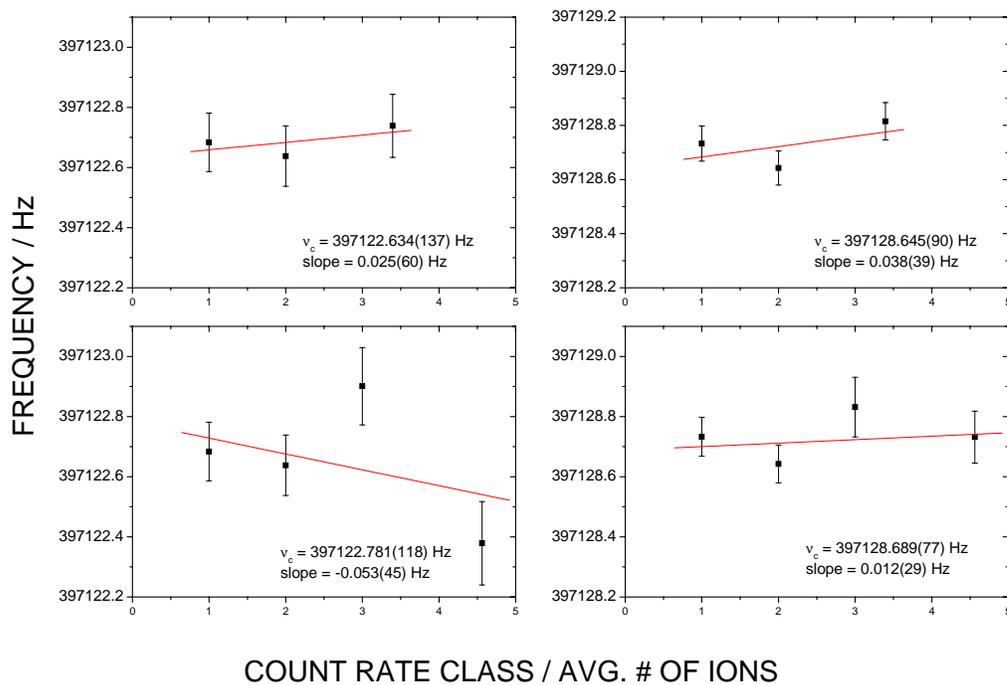


Abbildung 5.18: Zählklassenanalyse für die gleichzeitig in der Präzisionsfalle gespeicherten Isobare  $^{229}\text{Fr}$  (links) und  $^{229}\text{Ra}$  (rechts) aus Abb. 5.17. Bis zu  $N_{\max} = 9$  nachgewiesene Ionen wurden in drei bzw. vier Zählklassen eingeteilt. Keine der Einzelanalysen zeigt innerhalb der angegebenen Fehler einen signifikanten Einfluss der Ionenzahl auf die Zyklotronfrequenz.

weiteren Ionensorte anderer Masse (Kap 2.2.4) wurde in der Anpassung der überlagerten Zyklotronresonanzen durch eine gesonderte Zählklassenanalyse untersucht. Als Beispiel ist eine Messung mit einer nachgewiesenen maximalen Zählrate von neun Ionen aufgeführt. Die in der Summe registrierten 2340 Ionen wurden in drei bzw. vier Zählklassen eingeteilt. Die Unterteilung in eine verschiedene Anzahl von Klassen gewährleistet, dass eine evtl. statistisch zufällig erzeugte Struktur erkannt wird. Das Resultat dieser Untersuchung ist in Abb. 5.18 dargestellt. Die beiden Spalten der Abbildung geben die Zyklotronfrequenz in Abhängigkeit der Zählklasse für  $^{229}\text{Fr}$  und  $^{229}\text{Ra}$  wieder. Bei allen Klasseneinteilungen ist innerhalb der Fehler der Einzelfits von minimal  $1 \times 10^{-7}$  keine signifikante Abhängigkeit von der Ionenanzahl erkennbar. Daher wird auch eine unkorrigierte Frequenzverschiebung innerhalb dieses Fehlers liegen. Die endgültige Bestimmung der Zyklotronfrequenz erfolgte durch eine Anpassung mit minimierter, nachgewiesener Ionenanzahl von ein bis drei Ionen mit einem Fehler von ca.  $3 \times 10^{-7}$  für  $^{229}\text{Fr}$  und  $2 \times 10^{-7}$  für  $^{229}\text{Ra}$ . Damit soll der Einfluss einer möglichen Frequenzverschiebung weitestgehend ausgeschlossen werden.

Die Massenwerte der weiteren, in dieser Strahlzeit untersuchten Nuklide im Vergleich zu den Werten der AME2002 sind in Abb. 5.19 aufgetragen. Dazu gehören auch die stabilen Isotope von Thallium, Blei und Wismut. Sie stimmen im Mittel innerhalb einer Standardabweichung mit den AME2002–Werten überein. Die größten Diskrepanzen treten bei  $^{145}\text{Cs}$  ( $-2, 4 \sigma$ ),  $^{147}\text{Cs}$  ( $-1, 7 \sigma$ ) und  $^{229}\text{Ra}$  ( $-2, 0 \sigma$ ) auf. Diese Diskrepanzen werden im Kap. 5.5.1 bei der Betrachtung der Eingangsdaten in der atomaren Massenauswertung diskutiert.

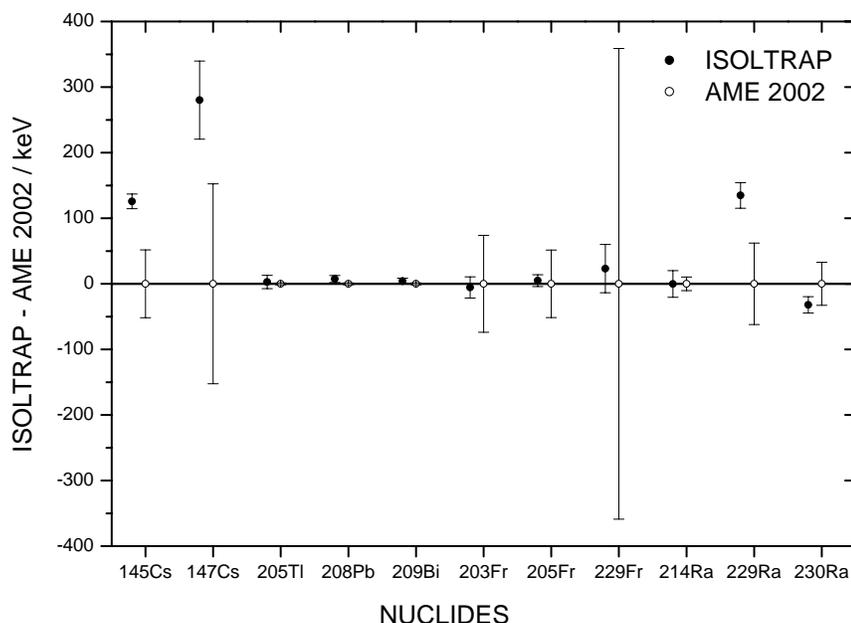


Abbildung 5.19: Vergleich der ISOLTRAP–Massenwerte der Isotope, die nicht in Abb. 5.11 und 5.12 dargestellt sind, mit den Werten der AME2002. Die Nulllinie stellt die AME-Grundzustandsmassen mit ihren Fehlern dar. Detaillierte Diskussion im Text.

## 5.5 Atomare Massenauswertung

Die atomare Massenauswertung AME (Atomic Mass Evaluation) ist eine durch ein Anpassungsverfahren gewonnene Datenbank, in der die Massenwerte aller Nuklide angegeben sind, von denen experimentelle Daten, wie z.B. Halbwertszeiten, vorliegen. Sie wird von Georges Audi (CSNSM) und Aaldert H. Wapstra (NIKHEF) aktualisiert und herausgegeben [Audi1993, Audi1995, Audi2003b]. In einer weiteren Datenbank (NUBASE) [Audi1997] werden neben den Massen auch weitere wesentliche Kerneigenschaften, wie z.B. Anregungsenergien, Halbwertszeiten, Spin und Parität für die beobachteten langlebigen, isomeren Kernzustände bereitgestellt. Bei der AME handelt es sich um das Ergebnis eines Anpassungsverfahrens, das die Werte der Grundzustandsmassen aus den existierenden experimentellen Daten aller beobachteten Nuklide ermittelt. Es liegen experimentelle Daten von etwa 2830 Nukliden vor, obwohl man für mehr als 6000 verschiedene Kombinationen aus Protonen- und Neutronenzahl eine mögliche Existenz vorhersagen kann [Audi2001].

Als Eingangswerte dieses Anpassungsverfahrens werden nur solche berücksichtigt, die die Bedingung erfüllen zuverlässig dokumentiert zu sein und eine Präzision zu haben, die eine ausreichende Gewichtung im Anpassungsverfahren garantiert. Man erhält sie zum einen aus  $Q$ -Wert-Bestimmungen, d.h. aus der Betrachtung der Energiebilanz von Kernreaktionen oder -zerfällen sowie aus den Ergebnissen direkter massenspektrometrischer Messungen. Liegen keine experimentellen Massenwerte von beobachteten Nukliden vor, werden diese aus der Abschätzung systematischer, experimenteller Trends gewonnen. Diese werden ebenso im Anpassungsverfahren verwendet, sie besitzen jedoch aufgrund ihrer größeren Unsicherheit einen geringeren Gewichtungswert. In allen Fällen lassen sich diese Ergebnisse als Beziehungen zwischen in der Regel zwei Nukliden angeben, so dass sich ein dichtes Netz von Verbindungen über den Bereich der heute bekannten Nuklidkarte erstreckt. Abbildung 5.20 zeigt einen Ausschnitt der existierenden

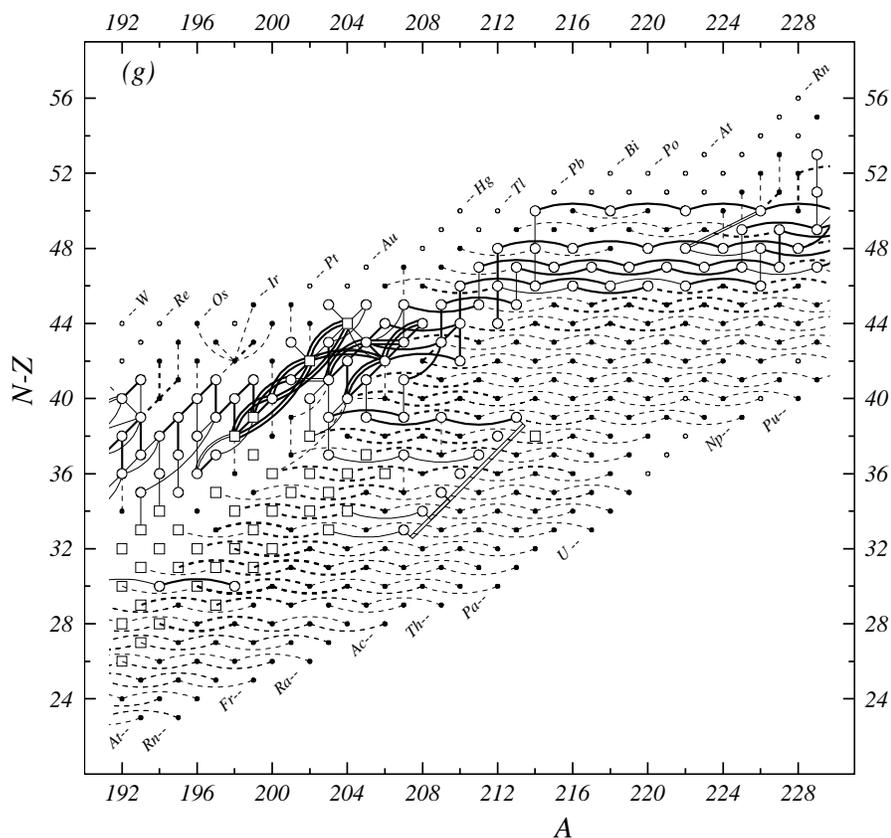


Abbildung 5.20: Verbindungen zwischen den verschiedenen Nukliden mit Massenzahl  $A$  und Neutronenüberschuss ( $N - Z$ ). Die Symbole für einzelne Nuklide deuten an, ob es sich um primäre (große Symbole) oder sekundäre (kleine Symbole) Nuklide handelt. Die letzteren sind nochmals in experimentell bestimmte (ausgefüllte Symbole) oder aus systematischen Trends abgeleitete Daten (offene Symbole) unterschieden. Primäre Verbindungen sind in durchgezogene Linien für massenspektroskopische Messungen (Doppel-  
linien) und Reaktionsdaten (gestrichelte Linien) unterteilt. Dabei zeigen dicker gezeichnete Linien Messungen mit höherer Präzision an. Sekundäre Nuklide sind durch gestrichelte Linien verbunden. Diese Darstellung ist der AME2003 entnommen [Audi2003b].

Verbindungen für den Massenbereich  $A = 192$  bis  $A = 229$ . Im Fall der vorliegenden ISOLTRAP-Daten, die jeweils das Frequenzverhältnis zu einer präzise bekannten atomaren Masse liefern, ist dies die Verbindung zur Masse von  $^{133}\text{Cs}$ , die mit einer Präzision von 0,2 ppb bestimmt ist [Brad1999].

Die Nuklide werden in primäre und sekundäre Nuklide unterschieden. Primäre Nuklide sind solche, die nach der Durchführung des Anpassungsverfahrens gegenüber der Massenbestimmung aus nur einer Bestimmungsgleichung ein verbessertes Ergebnis liefern. In der Regel ist die Masse dieser Nuklide über verschiedene Messmethoden bestimmt. Sekundäre Nuklide erfahren keine Verbesserung des Endergebnisses. Sie sind über genau eine Verbindungskette mit einem primären Nuklid verknüpft. Man unterscheidet sie weiter nach Nukliden verschiedenen Grades  $N \geq 2$ , um ihre Entfernung entlang dieser Verbindungskette bis zum nächsten primären Nuklid zu kennzeichnen. Als Beispiel ist für das Nuklid  $^{183}\text{Tl}$  ein Diagramm in Abb. 5.21 hinzugefügt. Die Masse dieses Nuklids wurde vor dem Hinzufügen des ISOLTRAP-Wertes über vier Grade an die  $^{12}\text{C}$ -Masse angeknüpft.

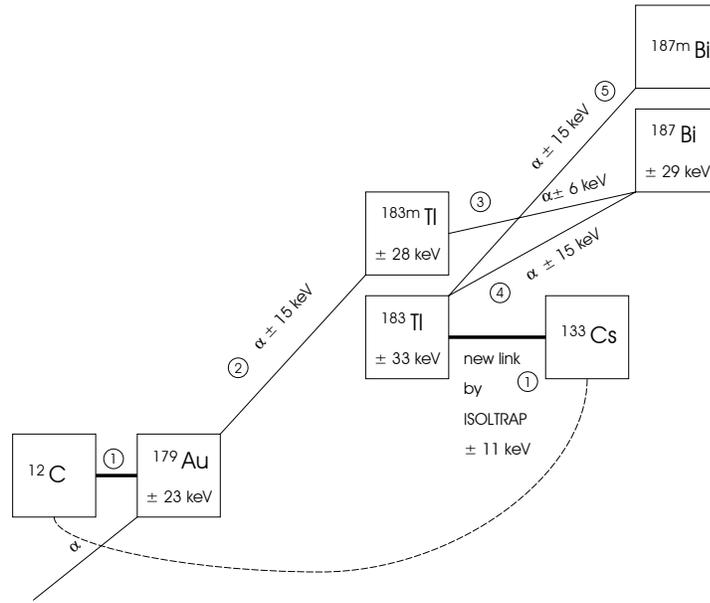


Abbildung 5.21: Verbindungsdiagramm zur Bestimmung der Masse von  $^{183}\text{Tl}$ . Die Nuklide sind jeweils durch  $Q_\alpha$ -Bestimmung mit der angegebenen Präzision in keV verbunden. Ohne die ISOLTRAP-Messung ist  $^{183}\text{Tl}$  ein Nuklid vierten Grades (④). Durch die direkte Anbindung an die  $^{133}\text{Cs}$ -Masse, werden auch  $^{183}\text{Tl}$  und die in der geschlossenen Masche liegenden Nuklide primär.

Die Eingangsdaten werden in ein System von linearen Gleichungen umgeformt. Für den Fall von Frequenzverhältnissen ist dies in [Beck2000] erläutert. Dieses überbestimmte System wird durch ein Anpassungsverfahren nach der Methode der kleinsten quadratischen Abweichungen gelöst [Audi2001]. Jeder Datenwert  $q_i$  mit einer Standardabweichung  $dq_i$  stellt eine Verbindung zwischen zwei, drei oder vier unbekanntem Massen  $m_\lambda$  dar. Dabei lässt sich das überbestimmte Gleichungssystem von  $Q$  Gleichungen für  $M$  Massen ( $Q > M$ ) als lineares Gleichungssystem mit  $M$  Parametern schreiben

$$\sum_{\lambda=1}^M k_i^\lambda m_\lambda = q_i \pm dq_i, \quad (5.11)$$

was in Matrixdarstellung kurz als  $\mathbf{K}|m\rangle = |q\rangle$  geschrieben werden kann. Die diagonale Gewichtungsmatrix  $\mathbf{W}$  ist durch ihre Elemente  $w_i^j = 1/(dq_i dq_i)$  definiert. Die Lösung des Ausgleichsverfahrens erhält man durch die Multiplikation mit der transponierten Matrix  ${}^t\mathbf{K}$ ,

$${}^t\mathbf{K}\mathbf{W}\mathbf{K}|m\rangle = {}^t\mathbf{K}\mathbf{W}|q\rangle. \quad (5.12)$$

Die Matrix  $\mathbf{A} = {}^t\mathbf{K}\mathbf{W}\mathbf{K}$  ist eine quadratische Matrix der Ordnung  $M$ , positiv-definit, symmetrisch und regulär und daher invertierbar. Deswegen folgt für die Ausgangsmassen  $|\bar{m}\rangle$  des Ausgleichsverfahrens

$$|\bar{m}\rangle = \mathbf{A}^{-1} {}^t\mathbf{K}\mathbf{W}|q\rangle. \quad (5.13)$$

Die Diagonalelemente der Matrix  $\mathbf{A}^{-1}$  sind die quadrierten Fehler  $(dm_i)^2$  der Massen nach dem Anpassungsverfahren  $|\bar{m}\rangle$ . Die Nichtdiagonalelemente sind die Korrelationskoeffizienten (Kovarianzen) zwischen verschiedenen Massen  $m_\lambda$  und  $m_\mu$ . Jedes bestimmte Frequenzverhältnis führt zu einer Zeile  $i$  in Gl. (5.11), da es zwei Massen miteinander verknüpft.

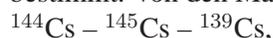
Die mit ISOLTRAP bestimmten Frequenzverhältnisse wurden zum größten Teil in die aktuelle Version der AME aufgenommen. Sie enthält damit zum Zeitpunkt der hier durchgeführten Anpassung Massendaten von 3476 verschiedenen Nukliden, wovon 866 dem primären Datensatz zugeordnet sind. Die restlichen, sekundären Nuklide verteilen sich auf verschiedene Grade bis zum Grad 15. Beim Hinzufügen der neuen im Rahmen dieser Arbeit gewonnenen ISOLTRAP-Daten wurde ein Vergleich durchgeführt, ob die darauf folgenden Veränderungen mit den schon existierenden experimentellen Ergebnissen konsistent sind. Im folgenden Kapitel sind diese Veränderungen für den Eingangsdatensatz beschrieben.

### 5.5.1 Die Eingangsdaten

Die Daten von 29 Frequenzverhältnissen aus Tab. 5.3 wurden in die AME2003 [Audi2003b] integriert. Dabei wurden die Daten für die stabilen Nuklide  $^{205}\text{Tl}$ ,  $^{208}\text{Pb}$  und  $^{209}\text{Bi}$  notiert, aber aufgrund ihrer zu geringen Gewichtung nicht im Anpassungsverfahren verwendet. Im Folgenden werden alle instabilen Nuklide in der Reihenfolge wachsender Kernladungszahl  $Z$  und wachsender Neutronenzahl  $N$  diskutiert.

#### $^{145}\text{Cs}$

Der Massenwert von  $^{145}\text{Cs}$  wurde bislang über vier Messungen von Massentriplets mit einem Mattauch-Herzog-Spektrometer [Audi1982] und den  $Q_{\beta}$ -Wert für den Zerfall  $^{145}\text{Cs}(\beta^-)^{145}\text{Ba}$  bestimmt. Von den Massentriplets



werden die ersten drei wegen ihrer zu großen Unsicherheit aus dem Anpassungsverfahren herausgenommen. Nach dem Hinzufügen des ISOLTRAP-Wertes ändert sich der  $^{145}\text{Cs}$ -Wert um ca. 120 keV. Der neue Massenwert wird nun zu 94 % durch den ISOLTRAP-Wert bestimmt.

#### $^{147}\text{Cs}$

Der Massenwert von  $^{147}\text{Cs}$  wurde durch eine Messung des Isotopen-Triplets  $^{143}\text{Cs} - ^{145}\text{Cs} - ^{147}\text{Cs}$  bestimmt. Das Hinzufügen des ISOLTRAP-Wertes resultiert in einer Verschiebung des Massenwertes um ca. 270 keV. Dies ist zum Teil durch den geänderten Wert von  $^{145}\text{Cs}$  bedingt. Die Veränderungen durch die Neubestimmung der Cäsiummassen sind im Einklang mit dem Wert des Massentriplets  $^{143}\text{Cs} - ^{145}\text{Cs} - ^{147}\text{Cs}$ . Der neue Massenwert wird nun zu 79 % durch den ISOLTRAP-Wert bestimmt.

Die ursprüngliche Diskrepanz der ISOLTRAP-Daten zur AME2002 (siehe auch Abb. 5.19) für diese Cäsiummassen, mehr als zehn Masseneinheiten von dem stabilen Cäsiumisotop entfernt, kann durch eventuell vorhandene systematische Fehler in den Triplettmessungen begründet sein. Da zur Bestimmung der unbekanntten Masse immer auf die Masse der benachbarten Isotope zunehmender Stabilität bezogen wird, können sich systematische Fehler weiter anhäufen.

#### $^{181}\text{Tl}$

Der Massenwert von  $^{181}\text{Tl}$  wurde bisher durch die beiden  $Q_{\alpha}$ -Werte der Zerfälle  $^{181}\text{Tl}(\alpha)^{177}\text{Au}$  und  $^{185m}\text{Bi}(\alpha)^{181}\text{Tl}$  bestimmt. Der ISOLTRAP-Wert von  $^{181}\text{Tl}$  mit einer Genauigkeit von 10 keV

stimmt besser als  $0,12 \sigma$  mit dem AME2002–Tabellenwert überein. Nach dem Hinzufügen des ISOLTRAP–Wertes bestimmt dieser den Massenwert von  $^{181}\text{Tl}$  mit einem Einfluss von 92 %.

### $^{183}\text{Tl}$

Der Massenwert von  $^{183}\text{Tl}$  wurde über eine Reihe von  $\alpha$ –Zerfällen zu  $^{179}\text{Au}$  bestimmt. Der Zusammenhang zwischen den Nukliden ist in Abb. 5.21 verdeutlicht. Vor dem Hinzufügen des ISOLTRAP–Wertes war  $^{183}\text{Tl}$  ein sekundäres Nuklid vierten Grades und mit einer Genauigkeit von 33 keV bestimmt. Durch die direkte Anbindung an die präzise bestimmte  $^{133}\text{Cs}$ –Masse wurde auch  $^{183}\text{Tl}$  primär, weil die dazwischen liegende Masche geschlossen wird. Im neuen Anpassungsverfahren wurden daher auch die Daten der ebenfalls in der Masche liegenden Nuklide  $^{183m}\text{Tl}$  und  $^{187}\text{Bi}$  als primäre Nuklide behandelt.  $^{187m}\text{Bi}$  dagegen wurde zum sekundären Nuklid zweiten Grades. Nach der Anpassung besitzt der ISOLTRAP–Wert eine Signifikanz von 91 %.

### $^{186m}\text{Tl}$

Der Massenwert von  $^{186m}\text{Tl}$  wurde über zwei  $Q_\alpha$ –Messungen zu  $^{182}\text{Au}$  und zu  $^{178}\text{Ir}$  bestimmt. Die erstgenannte  $Q_\alpha$ –Verbindung besitzt aufgrund der unzureichenden Kenntnis des Niveauschemas eine Unsicherheit von 50 keV. Dieser Verbindungsweig wurde durch die ISOLTRAP–Messung ersetzt.

### $^{187x}\text{Tl}$

Da eine nicht aufgelöste Mischung zweier isomerer Zustände vorliegen könnte, wurde der gemessene Wert von ISOLTRAP für  $^{187m}\text{Tl}$  in der AME notiert, aber nicht weiter im Anpassungsverfahren verwendet.

### $^{196m}\text{Tl}$

Die Massenwerte der isomeren Zustände von  $^{196}\text{Tl}$  sind aus der Abschätzung systematischer Trends mit einer Unsicherheit von 100 keV bzw. 140 keV bekannt. Der ISOLTRAP–Wert von  $^{196m}\text{Tl}$  mit 12 keV Genauigkeit wurde als erste experimentelle Bestimmung gegen den Eintrag aus systematischen Abschätzungen ersetzt. In die atomare Massen Anpassung ging der um 394,2(0,5) keV geringere Wert für die Grundzustandsmasse ein.

### $^{187}\text{Pb}$ und $^{187m}\text{Pb}$

Der Massenwert von  $^{187}\text{Pb}$  ist durch den  $\alpha$ –Zerfall an das Nuklid  $^{183}\text{Hg}$  angeknüpft. Dessen Masse wurde in einer ISOLTRAP–Messung bestimmt [Schw2001]. Der isomere Zustand  $^{187m}\text{Pb}$  ist durch zwei  $Q_\alpha$ –Messungen über  $^{191}\text{Po}$  an den Grundzustand  $^{187}\text{Pb}$  angeknüpft. Durch die Aufnahme der beiden ISOLTRAP–Werte in die AME wurden diese Nuklide mit den zusätzlich in der geschlossenen Masche liegenden Nuklide  $^{183}\text{Hg}$  und  $^{191}\text{Po}$  primär.

### $^{197m}\text{Pb}$

Der Massenwert von  $^{197m}\text{Pb}$  ist durch die genaue Kenntnis der Übergangsenergie von 319,3(0,7)keV zum  $^{197}\text{Pb}$ –Grundzustand bestimmt. Da die hierzu herangezogenen direkten Massenmessungen von  $^{197}\text{Pb}$  [Litv2003] und  $^{201}\text{Po}$  [Litv2003] Ungenauigkeiten von 30 keV

besitzen, wurden sie aus der AME herausgenommen und stattdessen durch den um den Faktor fünf genaueren ISOLTRAP-Wert für den angeregten Spinzustand ersetzt.

#### <sup>190x</sup>Bi

Der gemessene Wert von ISOLTRAP für <sup>190x</sup>Bi wurde in der AME notiert, aber nicht weiter im Anpassungsverfahren verwendet, da eine mögliche Beimischung der Grundzustandsmasse nicht aufgelöst werden konnte.

#### <sup>191</sup>Bi

Der ISOLTRAP-Wert für den Grundzustand <sup>191</sup>Bi wurde in die AME aufgenommen. Da <sup>191</sup>Bi zum primären Nuklid wurde und analog zu <sup>183</sup>Tl eine Verbindungsmasche zwischen mehreren Nukliden geschlossen wurde, gehen auch <sup>187</sup>Tl und <sup>187m</sup>Tl in den primären Datensatz über.

#### <sup>192m</sup>Bi

Weist man wegen eines noch nicht beobachteten  $7^+$ -Isomers den ISOLTRAP-Wert dem reinen  $10^-$ -Zustand <sup>192m</sup>Bi zu, dann erhält man nach dem Anpassungsverfahren als Veränderung dieses Massenwertes einen um ca.  $-180$  keV stärker gebundenen Zustand. Als Folge hiervon verändert sich auch der direkt über  $\alpha$ -Zerfall verbundene Massenwert des Tochternuklids. Der Wert des angeregten  $7^+$ -Zustand <sup>188m</sup>Tl verschiebt sich um den gleichen Betrag. Dessen Anregungsenergie relativ zum Grundzustand wird somit negativ werden. Die entsprechenden Term-/ Zerfallsschemata wurden in [VanD1991] untersucht. Abbildung 5.22 zeigt einen systematischen Vergleich der Anregungsenergien für gerade Massenzahlen von Wismutisotopen im  $10^-$ -Zustand und von deren Tochternukliden Thallium im  $7^+$ -Zustand vor der Anpassung mit den neuen ISOLTRAP-Daten. Zusätzlich ist für das Nuklid <sup>188m</sup>Tl die abgeschätzte Veränderung des Wertes eingetragen. Sie ergibt eine Anregungsenergie von etwa  $E = -80$  keV. Die großen Unsicherheiten in den Anregungsenergien speziell bei <sup>186</sup>Tl bis <sup>190</sup>Tl bedeuten, dass die negative Anregungsenergie von  $E = -80$  keV durchaus nicht im Widerspruch mit den systematischen Veränderungen zu den Nachbarisotopen steht. Daher wurde der gemessene Wert zum Zeitpunkt der atomaren Massen Anpassung dem <sup>192m</sup>Bi-Isomer zugewiesen. Die in Kap. 5.4.2 erwähnten Besonderheiten lassen jedoch den Schluss zu, dass statt des angeregten  $10^-$ -Isomers ein energetisch niedriger liegendes  $7^+$ -Isomer als Kontamination vorhanden war. Dies erklärt die Beimischung einer geringeren Masse wie auch die Beobachtung des Zerfalls. Dass der evtl. vorliegende kurzlebige  $7^+$ -Zustand energetisch oberhalb des  $10^-$ -Zustands anzuordnen ist, kann ausgeschlossen werden, da so die negative Anregungsenergie nicht erklärt werden kann.

Daher kann in diesem Fall die Zuordnung zu dem reinen isomeren Zustand <sup>192m</sup>Bi nicht endgültig sein. Wie auch bei <sup>190</sup>Bi wird eine Klärung des Problems erwartet, sobald die Kernspektroskopie einen präziseren Wert für die Anregungsenergien gibt oder eine Massenmessung mit höherer Auflösung durchgeführt wird. Werden isomere Zustände produziert und können sie beide in der Falle untersucht werden, so muss entschieden werden, welchem Zustand der Messwert zuzuweisen ist. Falls beide Zustände aufzulösen sind, sollten auch beide im Frequenzspektrum sichtbar sein und die energetische Anordnung ist bestimmt. Ist dies nicht der Fall, so kann die Zählklassenanalyse weitere Hinweise geben, da die Größe der Frequenzverschiebung mit wachsender Ionenanzahl zunimmt.

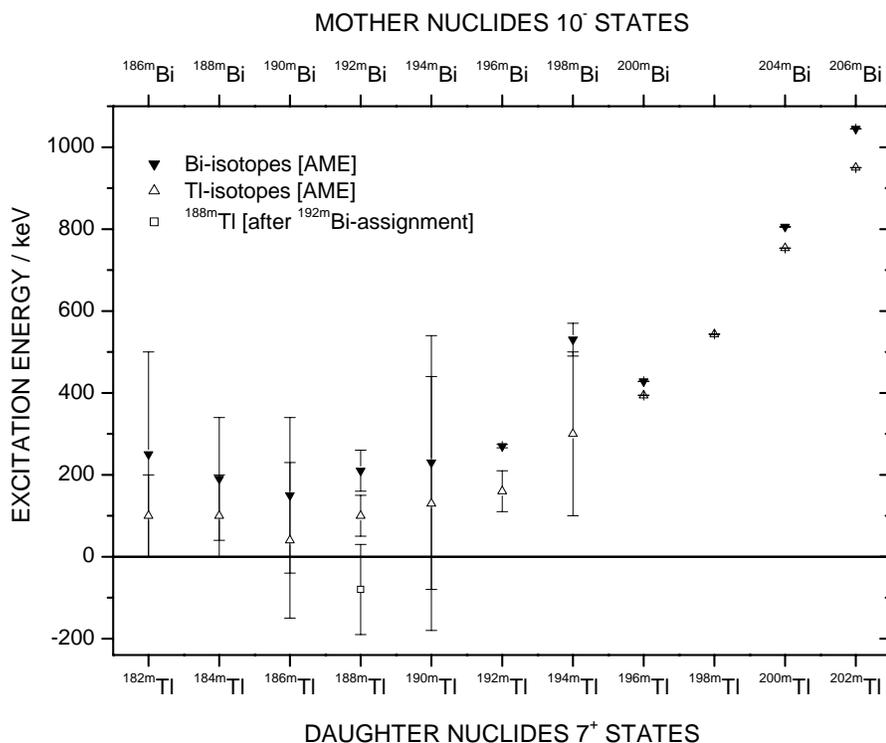


Abbildung 5.22: Systematischer Vergleich der Anregungsenergien von Mutter- und Tochternuklid für die  $10^-$ -Zustände von Wismut (gefüllte Dreiecke) und die  $7^+$ -Zustände von Thallium (offene Dreiecke) gerader Massenzahl. Weitere Diskussion im Text.

### $^{193}\text{Bi}$

Der Massenwert von  $^{193}\text{Bi}$  ist über eine  $Q_\alpha$ -Messung mit einem Fehler von  $\sigma \simeq 5$  keV an das Nuklid  $^{189}\text{Tl}$  angebunden. Dessen Masse ist wiederum durch zwei direkte Messungen bestimmt [Rado2000]. Diese Messungen mit Unsicherheiten von größer als 100 keV wurden aus dem Eingabedatensatz herausgenommen. Nach dem Einfügen des ISOLTRAP-Wertes für  $^{193}\text{Bi}$  mit 10 keV Unsicherheit wird nun auch die  $^{189}\text{Tl}$ -Masse durch diesen Wert bestimmt.

### $^{194m}\text{Bi}$

Der Massenwert von  $^{194m}\text{Bi}$  ist bisher nur aus systematischen Abschätzungen bekannt. Er wurde durch den ISOLTRAP-Wert als erste direkte experimentelle Bestimmung ersetzt. Da bei einer Auflösung von 580 keV eine Beimischung des um jeweils etwa 100 keV entfernten  $3^+$ - oder des  $10^-$ -Zustandes nicht ausgeschlossen werden kann, wurde der ursprüngliche Fehler von 14 keV in der AME auf 50 keV erhöht.

### $^{195}\text{Bi}$

Analog zu  $^{193}\text{Bi}$  erfolgte die Anbindung an die direkt gemessene Masse des Tochternuklids  $^{191}\text{Tl}$ . Da die neue Massenbestimmung von  $^{195}\text{Bi}$  mit ISOLTRAP eine Genauigkeit von  $\sigma = 5,6$  keV aufweist, wurden die Daten für  $^{191}\text{Tl}$  [Litv2003] mit einer Unsicherheit von  $\sigma = 30$  keV aus dem Anpassungsverfahren herausgenommen.

**<sup>196m</sup>Bi**

Der Wert von ISOLTRAP stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit dem Massenwert für <sup>196m</sup>Bi überein ( $0,4\sigma$ ). Analog zu <sup>194m</sup>Bi wurde wegen der eventuellen Beimischung des  $3^+$ - oder des  $10^-$ -Zustandes der ursprüngliche Fehler von 14 keV auf 50 keV erhöht. Wegen der genauen Kenntnis der Anregungsenergie  $E = 167(3)$  keV wurde in der AME der Wert des angeregten Isomers durch den Wert der Grundzustandsmasse ersetzt.

**<sup>197</sup>Bi**

Die Messungen wurden mit einer maximalen Auflösung von 600 keV durchgeführt, was eine Mischung der beiden isomeren Zustände mit 350(160) keV Anregungsenergie nicht von vorneherein ausschließen kann. Messungen der Nachbarisotope ungerader Massenzahl <sup>193</sup>Bi und <sup>195</sup>Bi mit ca. 115 keV Auflösung zeigen keine Kontamination der Grundzustandsmassen durch die angeregten Zustände. Daher wurde hier durch den systematischen Vergleich von Einzelmessungen grober (580 keV) und feiner (115 keV) Auflösung eine Korrektur für eine mögliche Kontamination durch den angeregten <sup>197m</sup>Bi-Zustand ermittelt. Diese Korrektur von  $-16(22)$  keV vergrößert die Unsicherheit des ISOLTRAP-Wertes in der AME von 11 keV auf 25 keV.

**<sup>215</sup>Bi**

Der ISOLTRAP-Wert mit einer Genauigkeit von 4,3 keV wurde in die AME aufgenommen. Er ersetzt die Verbindung <sup>223</sup>Fr( $\alpha$ )<sup>219</sup>At in der sequentiellen  $\alpha$ -Zerfallskette zu <sup>231</sup>Pa.

**<sup>216</sup>Bi**

Die Masse des Nuklids <sup>216</sup>Bi wurde zum ersten Mal experimentell direkt bestimmt. Der aus systematischen Abschätzungen erhaltene Wert für den Zerfall <sup>216</sup>Bi( $\beta$ )<sup>216</sup>Po mit 100 keV Unsicherheit wurde in der AME durch die ISOLTRAP-Wert mit einer Präzision von 11 keV ersetzt.

**<sup>203</sup>Fr**

Die Masse von <sup>203</sup>Fr wurde bisher über eine Serie von  $Q_\alpha$ -Übergängen zu <sup>195</sup>Bi bestimmt. Diese indirekte experimentelle Bestimmung mit 70 keV Unsicherheit wurde durch den ISOLTRAP-Wert mit einem Fehler von 16 keV ersetzt.

**<sup>205</sup>Fr**

Die Masse von <sup>205</sup>Fr wurde bisher mit mehr als 97 % aus der Messung der  $Q_\alpha$ -Übergangsenergie zu <sup>201</sup>At bestimmt. Die beiden Werte stimmen innerhalb ihrer Fehlergrenzen überein. Der ISOLTRAP-Wert mit nur 9 keV Fehler ersetzt diese aus mehreren  $Q_\alpha$ -Energie-Messungen gemittelte Bestimmung mit 50 keV Unsicherheit.

**<sup>214</sup>Ra**

Der Wert für <sup>214</sup>Ra ist ebenso über eine Folge von  $\alpha$ -Zerfällen an den Wert für <sup>202</sup>Pb angeknüpft. Daher ist dieser mit 10 keV bekannt. Der ISOLTRAP-Wert mit 20 keV Unsicherheit stimmt mit diesem innerhalb  $0,01 \sigma$  überein.

**<sup>228</sup>Ra**

Die Zyklotronfrequenz von <sup>228</sup>Ra wurde in nur einer Messung bestimmt, in der die Statistik von lediglich 300 Ionen nicht ausreichend war um das Resonanzprofil an der hochfrequenten Seite vollständig abzubilden (siehe Abb. in Anhang B). Daher ist die Diskrepanz von 90 keV ( $2,9 \sigma$ ) zu dem präzisen AME-Wert mit 2,4 keV Unsicherheit leicht erklärbar. Als Dokumentation sei erwähnt, dass in dieser Messung keine <sup>228</sup>Fr-Nuklide als isobare Kontamination von ISOLDE geliefert wurden. Der Versuch <sup>228</sup>Fr zu messen, schlug wegen der um zwei Größenordnungen höheren Anwesenheit von <sup>228</sup>Ra fehl.

**<sup>229</sup>Fr**

Die aus systematischen Abschätzungen gewonnene Verbindung <sup>233</sup>Ac( $\alpha$ )<sup>229</sup>Fr mit 200 keV Unsicherheit wurde durch den ISOLTRAP-Wert mit einem Fehler von 37 keV ersetzt.

**<sup>229</sup>Ra**

Die Masse von <sup>229</sup>Ra ist über zwei  $\beta^-$ -Zerfälle an das primäre Nuklid <sup>229</sup>Th angebunden. Durch das Hinzufügen des ISOLTRAP-Wertes wurden auch <sup>229</sup>Ra und das dazwischen liegende <sup>229</sup>Ac zu primären Nukliden. Die Diskrepanz zwischen ISOLTRAP-Wert und AME beträgt zwei Standardabweichungen. Dies lässt sich nicht durch die Tatsache erklären, dass bei der Messung eine weitere Ionensorte vorhanden war, da die mögliche gegenseitige Beeinflussung durch die Zählklassenanalyse ausgeschlossen werden konnte (siehe Kap. 5.4.2).

**<sup>230</sup>Ra**

Eine isobare Kontamination durch Francium kann auch in diesem Fall ausgeschlossen werden, da die entsprechende Ionenausbeute an ISOLDE um vier Größenordnungen geringer ist als für Radium. Der vormals durch ISOLTRAP bestimmte Wert für <sup>230</sup>Ra [Boll1992b] stimmt mit diesem innerhalb von ( $1 \sigma$ ) überein. Da dieser einen Fehler von 32 keV besitzt, wurde er durch die neue Messung mit  $\sigma = 12$  keV ersetzt.

## 5.5.2 Ergebnisse der atomaren Massen Anpassung

Die Ergebnisse des atomaren Massen Anpassungsverfahrens zeigen sich in den Veränderungen der von ISOLTRAP bestimmten Massenwerte sowie in Massenwerten verknüpfter Nuklide. Zur Übersicht sind in Abb. 5.23 die im Jahr 2002 mit ISOLTRAP gemessenen Nuklide um  $Z = 82$  mit den dazu angeknüpften Nukliden auf einem Ausschnitt der Nuklidkarte dargestellt. Speziell durch  $Q_\alpha$ -Ketten wird der Bereich von  $Z = 75$  bis  $Z = 92$  mit beeinflusst. Tabelle 5.5 listet diese ISOLTRAP-Daten und ihren Einfluss in der aktuellen Ausgabe der AME2003 [Audi2003b] auf. Daraus ist der Unterschied zwischen ISOLTRAP- und AME-Wert ersichtlich. Für die primären Nuklide (= solche, die direkt im Anpassungsverfahren teilnehmen, siehe Kap.

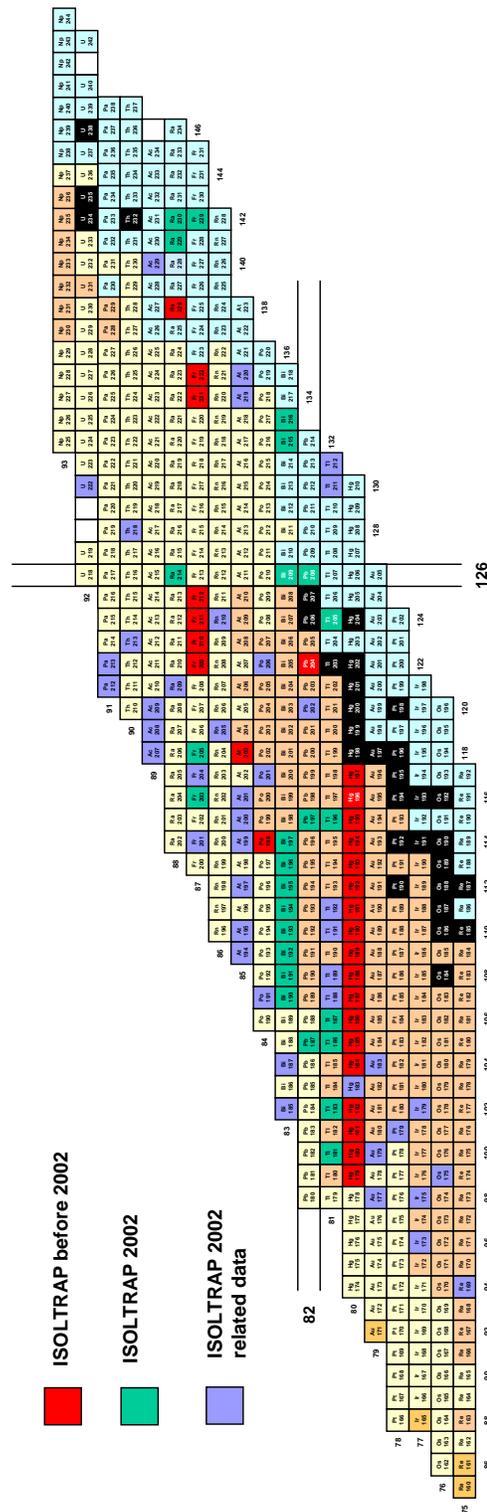


Abbildung 5.23: Ausschnitt der Nuklidkarte um  $Z = 82$ ,  $N = 126$  mit den von ISOLTRAP gemessenen Nukliden. Die aktuellen Messungen aus 2002 sind durch grüne Quadrate dargestellt. Nuklide, deren Massen durch diese ISOLTRAP-Daten beeinflusst wurden, sind in dunkelblau abgedruckt. Durch verbundene  $Q_{\alpha}$ -Beziehungen werden damit Massen weiterer Nuklide mit *ungerader* Protonenzahl in der Region von  $Z = 75$  bis  $Z = 92$  beeinflusst. Diese Daten sind daher zu früheren ISOLTRAP-Messungen (rot), speziell zu denen der Hg-Isotopenkette ( $Z = 80$ ) komplementär.

Tabelle 5.5: Ergebnis der AME für die ISOLTRAP-Daten. Aufgelistet sind die eingegangenen ISOLTRAP-Werte und das Ergebnis des Anpassungsverfahrens in der AME2003 [Audi2003b]. Die Signifikanz der primären Nuklide ist in Spalte 'Sign.' dargestellt. Spalte 'v/s' gibt die Abweichung zwischen Eingangswert und der AME2003 geteilt durch den Fehler des Eingangswertes an. Die restlichen Nuklide sind sekundäre Eingangsdaten. Die Kürzel 'U' und 'F' kennzeichnen die Nuklide, die aufgrund ihrer zu geringen Gewichtung bzw. der Anwesenheit einer möglichen Kontamination nicht im Anpassungsverfahren verwendet wurden. '\*': Der ISOLTRAP-Wert bestimmt den isomeren  $^{196m}\text{Tl}$ -Zustand mit einer Anregungsenergie von  $E = 394,2(0,5)$  keV, in der AME wurde die Grundzustandsmasse eingetragen. 'R': Der Wert wird aus rechen-technischen Gründen durch einen äquivalenten Wert mit gleichem Resultat ersetzt.

Nuclide	Mass excess / keV		Sign. %	v/s	remark
	ISOLTRAP	AME2003			
$^{145}\text{Cs}$	-60052.4 (11.3)	-60057.0 (10.8)	94	-0.4	
$^{147}\text{Cs}$	-52010.6 (59.5)	-52019.3 (53.1)	79	-0.1	
$^{181}\text{Tl}$	-12802.3 (10.1)	-12801.1 (9.4)	92	0.1	
$^{183}\text{Tl}$	-16592.0 (10.0)	-16587.3 (9.7)	91	0.4	
$^{186m}\text{Tl}$	-19874.4 (8.6)	-19874.4 (8.6)			
$^{187m}\text{Tl}$	-22153.9 (22.7)	-22108.7 (7.7)		2.0	F
$^{196(m)}\text{Tl}$	-27102.6 (12.2)	-27496.6 (12.1)			*
$^{205}\text{Tl}$	-23818.1 (10.1)	-23820.6 (1.3)		-0.3	U
$^{187}\text{Pb}$	-14988.4 (13.0)	-14979.9 (8.3)	40	0.6	
$^{187m}\text{Pb}$	-14963.4 (12.8)	-14969.0 (10.7)	67	-0.4	
$^{197m}\text{Pb}$	-24429.5 (5.5)	-24429.4 (5.6)			
$^{208}\text{Pb}$	-21742.2 (5.2)	-21748.5 (1.2)		-1.2	U
$^{190m}\text{Bi}$	-10534.6 (25.3)	-10482.6 (9.7)		2.1	F
$^{191}\text{Bi}$	-13244.9 (8.0)	-13240.1 (7.4)	86	0.6	
$^{192m}\text{Bi}$	-13398.5 (9.0)	-13398.5 (8.9)			
$^{193}\text{Bi}$	-15874.6 (10.3)	-15872.9 (9.6)		0.2	
$^{194m}\text{Bi}$	-15877.7 (14.5)	-15877.9 (50.3)			
$^{195}\text{Bi}$	-18023.7 (5.6)	-18023.7 (5.6)			
$^{196m}\text{Bi}$	-17868.2 (14.4)	-17842.4 (24.6)		0.5	
$^{197}\text{Bi}$	-19690.5 (11.1)	-19687.6 (8.4)		0.8	R
$^{209}\text{Bi}$	-18254.9 (4.3)	-18258.5 (1.4)		-0.8	U
$^{215}\text{Bi}$	1648.2 (14.6)	1648.5 (14.9)			
$^{216}\text{Bi}$	5873.5 (11.5)	5873.9 (11.2)			
$^{203}\text{Fr}$	861.3 (16.2)	861.3 (15.8)			
$^{205}\text{Fr}$	-1308.6 (9.0)	-1309.7 (7.8)		-0.1	
$^{229}\text{Fr}$	35816.2 (36.9)	35816.2 (37.3)			
$^{214}\text{Ra}$	99.9 (20.4)	100.5 (9.2)		0.0	R
$^{229}\text{Ra}$	32574.7 (19.5)	32562.8 (18.7)	91	-0.6	
$^{230}\text{Ra}$	34518.0 (12.5)	34517.8 (12.1)			

5.5) ist der Gesamteinfluss eines jeden Eingangswertes in der AME durch die *Signifikanz* (engl.: significance) in Prozent angegeben. Sie summiert damit die einzelnen Einflüsse (engl.: influence) auf einzelne Massenwerte  $m_\lambda$ . Die Größe 'v/s' gibt die Differenz zwischen den beiden Werten, geteilt durch die Unsicherheit des Eingangswertes an. Die letzte Spalte vermerkt Daten, die nicht im Anpassungsverfahren verwendet wurden. Dies ist der Fall, wenn z.B. die Kontamination durch einen weiteren isomeren Zustand nicht ausgeschlossen werden kann oder wie z.B. bei stabilen Nukliden, wo schon hochpräzise Massenbestimmungen vorliegen.

#### *Einfluss auf weitere Nuklide*

In Tabelle 5.6 sind die Nuklide aufgelistet, deren Werte durch die ISOLTRAP-Daten mit beeinflusst werden. Sie macht den Einfluss auf weitere Nuklide und deren Veränderung deutlich. Dazu ist der Stand der atomaren Massenauswertung vor dem Hinzufügen der ISOLTRAP-Daten mit den aktuellen Werten der AME2003 [Audi2003b] verglichen. Da noch weitere Eingangsdaten in die AME aufgenommen wurden, ist nicht jede Veränderung ausschließlich auf ISOLTRAP-Daten zurückzuführen. Die durch '&' gekennzeichneten Werte sind durch weitere Daten, z.B. aus der Kernspektroskopie mit bestimmt.

Tabelle 5.6: Ergebnis des atomaren Massen Anpassungsverfahrens. Für weitere, mit den ISOLTRAP-Daten verknüpften Nuklide (siehe Abb. 5.23) sind die jeweiligen Massenüberschüsse vor dem Hinzufügen der ISOLTRAP-Daten mit den Werten aus der AME2003 miteinander verglichen. Ihr Unterschied  $\Delta$  ist in der letzten Spalte aufgetragen. '#' kennzeichnet einen Wert, der bisher aus der Systematik abgeschätzt wurde, und '\*' einen Wert, der neu in die Massentabelle aufgenommen wurde. '&' kennzeichnet den Einfluss weiterer neuer Eingangsdaten (siehe Text). 'T' kennzeichnet die in dieser Arbeit untersuchten Nuklide.

Nuclide	Mass excess / keV		$\Delta$ / keV	
	AME without PT	AME2003		
<sup>143</sup> Cs	-67676.4 ( 23.5)	-67671.4 ( 23.7)	5.0	
<sup>144</sup> Cs	-63309.6 ( 28.8)	-63269.9 ( 26.3)	39.7	
<sup>145</sup> Cs	-60178.7 ( 51.6)	-60057.0 ( 10.8)	121.7	T
<sup>146</sup> Cs	-55738.1 ( 82.7)	-55620.0 ( 71.3)	118.1	
<sup>147</sup> Cs	-52291.7 (152.5)	-52019.3 ( 53.1)	272.4	T
<sup>148</sup> Cs	-47605.9 (588.8)	-47303.0 (575.7)	302.9	
<sup>143</sup> Ba	-73937.1 ( 13.2)	-73935.7 ( 13.2)	1.4	
<sup>144</sup> Ba	-71775.2 ( 13.5)	-71769.0 ( 13.3)	6.2	
<sup>145</sup> Ba	-68063.7 ( 60.6)	-67415.0 ( 70.8)	648.7	&
<sup>146</sup> Ba	-65105.3 ( 81.2)	-65000.1 ( 72.3)	105.3	
<sup>144</sup> La	-74895.6 ( 55.9)	-74892.4 ( 48.8)	3.2	
<sup>145</sup> La	-72988.7 ( 68.8)	-72986.8 ( 90.1)	1.9	&

Tabelle 5.6: (Continued).

Nuclide	Mass excess / keV		$\Delta$ / keV	
	AME without PT	AME2003		
<sup>146</sup> La	-69210.9 ( 77.5)	-69122.9 ( 71.4)	88.0	
<sup>145</sup> Ce	-77098.7 ( 39.6)	-77096.8 ( 41.5)	1.9	&
<sup>146</sup> Ce	-75742.2 ( 69.9)	-75675.5 ( 66.4)	66.7	&
<sup>146</sup> Pr	-76769.0 ( 64.1)	-76713.8 ( 61.7)	55.2	&
<sup>165</sup> Ta	-45852.3 ( 24.2)	-45855.1 ( 17.4)	-2.8	
<sup>165p</sup> Ta	-45808.0 ( 41.2)	-45800.0 ( 30.7)	8.0	&
<sup>169</sup> Re	-38393.9 ( 39.3)	-38385.8 ( 28.1)	8.1	&
<sup>169m</sup> Re	-38238.7 ( 24.3)	-38241.2 ( 17.1)	-2.5	
<sup>175</sup> Os	-40085.1 ( 13.3)	-40104.7 ( 13.5)	-19.6	&
<sup>173</sup> Ir	-30272.8 ( 24.9)	-30271.9 ( 13.7)	0.9	
<sup>173m</sup> Ir	-30027.1 ( 39.2)	-30019.1 ( 28.1)	8.0	&
<sup>175</sup> Ir	-33424.0 ( 23.2)	-33428.6 ( 19.8)	-4.6	&
<sup>175p</sup> Ir	-33342.5 ( 23.5)	-33356.8 ( 17.0)	-14.3	
<sup>179</sup> Ir	-38053.0 ( 22.5)	-38077.4 ( 10.9)	-24.4	
<sup>179</sup> Pt	-32264.7 ( 11.5)	-32263.8 ( 9.1)	0.9	
<sup>177</sup> Au	-21551.8 ( 25.0)	-21550.2 ( 12.9)	1.6	
<sup>177m</sup> Au	-21341.8 ( 39.0)	-21334.0 ( 27.9)	7.8	&
<sup>177n</sup> Au	-21101.0 ( 39.0)	-21093.2 ( 27.9)	7.8	&
<sup>179</sup> Au	-24937.1 ( 23.4)	-24952.1 ( 16.5)	-15.0	
<sup>179p</sup> Au	-24827.8 ( 29.3)	-24853.1 ( 18.0)	-25.3	
<sup>183</sup> Au	-30162.5 ( 22.3)	-30186.9 ( 10.5)	-24.4	
<sup>183</sup> Hg	-23800.8 ( 10.8)	-23799.8 ( 8.2)	1.0	
<sup>183p</sup> Hg	-23615.6 ( 21.6)	-23602.2 ( 12.5)	13.4	
<sup>181</sup> Tl	-12804.9 ( 25.3)	-12801.1 ( 9.4)	3.8	T
<sup>181m</sup> Tl	-11951.7 ( 40.1)	-11943.9 ( 29.4)	7.8	&
<sup>183</sup> Tl	-16549.9 ( 32.6)	-16587.3 ( 9.7)	-37.4	T
<sup>183m</sup> Tl	-15918.9 ( 28.0)	-15944.2 ( 15.8)	-25.3	
<sup>186m</sup> Tl	-19984.9 ( 54.4)	-19874.4 ( 8.6)	110.5	T
<sup>186n</sup> Tl	-19611.0 ( 54.4)	-19500.5 ( 8.6)	110.5	
<sup>187</sup> Tl	-22416.7 ( 21.5)	-22443.5 ( 8.1)	-26.8	
<sup>187m</sup> Tl	-22084.3 ( 21.1)	-22108.7 ( 7.7)	-24.4	
<sup>188m</sup> Tl	-22125.0 (122.0) #	-22306.6 ( 9.6)	-181.6	
<sup>188n</sup> Tl	-21857.0 (122.0) #	-22037.8 ( 9.6)	-180.8	
<sup>189</sup> Tl	-24594.4 ( 80.6)	-24602.2 ( 10.9)	-7.8	
<sup>189m</sup> Tl	-24311.0 ( 80.8)	-24318.9 ( 10.2)	-7.9	
<sup>191</sup> Tl	-26296.8 ( 20.9)	-26281.0 ( 7.6)	15.8	
<sup>191m</sup> Tl	-25999.5 ( 22.0)	-25983.8 ( 7.2)	15.7	

Tabelle 5.6: (Continued).

Nuclide	Mass excess / keV		$\Delta$ / keV		
	AME without PT	AME2003			
<sup>192p</sup> Tl	-25707.9 ( 30.2)	-25694.4 ( 25.0)	13.5		&
<sup>196</sup> Tl	-27474.0 (104.0) #	-27496.6 ( 12.1)	-22.6		T
<sup>211</sup> Tl	-6012.0 (222.0) #	-6076.0 (201.0)#	-64.0		
<sup>212</sup> Tl	-1741.0 (316.0) #	-1651.0 (300.0)#	90.0		
<sup>187</sup> Pb	-14980.2 ( 12.7)	-14979.9 ( 8.3)	0.3		T
<sup>187m</sup> Pb	-14978.2 ( 20.6)	-14969.0 ( 10.7)	9.2		T
<sup>197</sup> Pb	-24742.3 ( 14.9)	-24748.7 ( 5.6)	-6.4		
<sup>197m</sup> Pb	-24423.0 ( 14.9)	-24429.4 ( 5.6)	-6.4		T
<sup>202</sup> Pb	-25933.3 ( 9.5)	-25933.6 ( 8.2)	-0.3		
<sup>185m</sup> Bi	-2152.1 ( 21.0)	-2142.7 ( 18.3)	9.4		&
<sup>187</sup> Bi	-6346.3 ( 28.7)	-6373.4 ( 15.4)	-27.1		
<sup>187m</sup> Bi	-6234.9 ( 36.0)	-6272.4 ( 18.2)	-37.5		
<sup>190m</sup> Bi	-10593.0 ( 54.6)	-10482.6 ( 9.7)	110.4		
<sup>190n</sup> Bi	-10320.0 ( 54.6)	-10209.6 ( 9.7)	110.4		
<sup>191</sup> Bi	-13211.0 ( 22.1)	-13240.1 ( 7.4)	-29.1		T
<sup>191m</sup> Bi	-12968.5 ( 22.1)	-13000.0 ( 8.5)	-31.5		
<sup>192m</sup> Bi	-13217.0 (123.0) #	-13398.5 ( 8.9)	-181.5		T
<sup>193</sup> Bi	-15865.1 ( 80.7)	-15872.9 ( 9.6)	-7.8		T
<sup>193m</sup> Bi	-15556.6 ( 80.7)	-15564.4 ( 11.8)	-7.8		
<sup>194m</sup> Bi		-15877.9 ( 50.3)	*		T
<sup>195</sup> Bi	-18039.5 ( 21.5)	-18023.7 ( 5.6)	15.8		T
<sup>195m</sup> Bi	-17640.2 ( 21.1)	-17624.5 ( 8.3)	15.7		
<sup>196</sup> Bi	-18022.5 ( 29.8)	-18009.0 ( 24.4)	13.5		&
<sup>196m</sup> Bi	-17855.6 ( 30.0)	-17842.4 ( 24.6)	13.2	&, T	
<sup>196n</sup> Bi	-17752.3 ( 30.1)	-17739.1 ( 24.7)	13.2	&	
<sup>197</sup> Bi	-19688.7 ( 14.9)	-19687.6 ( 8.4)	1.1		T
<sup>215</sup> Bi	1713.3 ( 96.1)	1648.5 ( 14.9)	-64.8		T
<sup>216</sup> Bi	5784.0 (100.0) #	5873.9 ( 11.2)	89.9		T
<sup>191</sup> Po	-5062.2 ( 19.9)	-5053.8 ( 11.0)	8.4		
<sup>191m</sup> Po	-5020.3 ( 13.7)	-5020.0 ( 9.7)	0.3		
<sup>201</sup> Po	-16518.5 ( 15.0)	-16524.9 ( 5.8)	-6.4		
<sup>201m</sup> Po	-16094.4 ( 15.0)	-16100.8 ( 5.8)	-6.4		
<sup>206</sup> Po	-18181.5 ( 9.6)	-18181.7 ( 8.3)	-0.2		
<sup>194</sup> At	-1061.0 (160.0) #	-1120.5 (158.8)	-59.5		&
<sup>194m</sup> At	-811.2 ( 56.5)	-711.0 ( 17.4)	100.2		&
<sup>195</sup> At	-3429.9 ( 54.7)	-3442.7 ( 8.4)	-12.8		&
<sup>195m</sup> At	-3447.8 ( 37.7)	-3476.2 ( 9.1)	-28.4		

Tabelle 5.6: (Continued).

Nuclide	Mass excess / keV		$\Delta$ / keV	
	AME without PT	AME2003		
<sup>197</sup> At	-6337.1 ( 95.0)	-6344.2 ( 50.9)	-7.1	
<sup>197m</sup> At	-6285.5 ( 94.9)	-6293.3 ( 12.7)	-7.8	
<sup>199</sup> At	-8834.9 ( 54.4)	-8819.1 ( 50.3)	15.8	
<sup>200</sup> At	-9001.3 ( 29.8)	-8987.7 ( 24.5)	13.6	&
<sup>200m</sup> At	-8888.3 ( 30.0)	-8875.1 ( 24.6)	13.2	&
<sup>201</sup> At	-10790.5 ( 15.0)	-10789.5 ( 8.3)	1.0	
<sup>219</sup> At	10529.0 ( 81.5)	10397.0 ( 3.9)	-132.0	&
<sup>220</sup> At	14262.0 (112.0) #	14352.2 ( 51.2)	90.2	
<sup>205</sup> Rn	-7707.5 ( 52.2)	-7713.9 ( 50.3)	-6.4	
<sup>210</sup> Rn	-9597.6 ( 9.8)	-9597.9 ( 8.6)	-0.3	
<sup>201</sup> Fr	3625.8 (107.3)	3596.4 ( 71.4)	-29.4	&
<sup>203</sup> Fr	866.8 ( 73.9)	861.3 ( 15.8)	-5.5	T
<sup>204</sup> Fr	593.4 ( 30.0)	608.5 ( 24.6)	15.1	&
<sup>204m</sup> Fr	647.3 ( 30.3)	658.0 ( 24.7)	10.7	&
<sup>204n</sup> Fr	923.4 ( 30.3)	934.1 ( 24.7)	10.7	&
<sup>205</sup> Fr	-1313.1 ( 51.6)	-1309.7 ( 7.8)	3.4	T
<sup>229</sup> Fr	35793.0 (359.0) #	35816.2 ( 37.3)	23.2	T
<sup>207</sup> Ac	11156.1 ( 89.2)	11131.1 ( 52.4)	-25.0	&
<sup>208</sup> Ac	10739.0 ( 33.6)	10760.2 ( 55.7)	21.2	&
<sup>208m</sup> Ac	11249.5 ( 33.5)	11258.0 ( 28.3)	8.5	&
<sup>209</sup> Ac	8841.0 ( 71.9)	8844.4 ( 50.6)	3.4	
<sup>229</sup> Ac	30680.6 ( 47.5)	30753.5 ( 33.3)	72.9	
<sup>209</sup> Ra	1864.4 ( 72.3)	1855.0 ( 50.5)	-9.4	
<sup>214</sup> Ra	100.8 ( 10.4)	100.5 ( 9.2)	-0.3	T
<sup>229</sup> Ra	32440.6 ( 62.1)	32562.8 ( 18.7)	122.2	T
<sup>230</sup> Ra	34550.9 ( 32.7)	34517.8 ( 12.1)	-33.1	T
<sup>212</sup> Pa	21755.2 ( 60.3)	21614.5 ( 74.9)	-140.7	&
<sup>213</sup> Pa	19659.8 ( 87.5)	19663.2 ( 71.1)	3.4	
<sup>213</sup> Th	12128.3 ( 87.9)	12118.9 ( 71.0)	-9.4	
<sup>218</sup> Th	12374.7 ( 13.8)	12374.4 ( 13.0)	-0.3	
<sup>222</sup> U	24300.0 (101.0) #	24299.0 (101.0) #	-1.0	

## 5.6 Diskussion

### *Vergleich der ISOLTRAP-Daten mit Ergebnissen anderer Massenmessungen*

Die Massenwerte von einigen der hier beschriebenen Nuklide sind auch in der neuesten Auswertung der ESR–Massendaten bestimmt worden [Litv2003]. Die zerstörungsfreie Methode der Schottky–Analyse ist in Kap. 3.2.4 beschrieben. In Abb. 5.24 sind die Ergebnisse aus beiden Messungen im Vergleich zu den Werten der AME graphisch dargestellt. Um eine größere Anzahl von Nukliden zu vergleichen, wurden bei den ESR–Daten auch die indirekt über  $Q$ –Werte bestimmten Daten hinzugenommen. Die Genauigkeit der ESR–Messungen ( $\delta m \geq 28$  keV) wird durch die quadratische Addition der Fehler, die bei den verwendeten  $Q$ –Werten in den meisten Fällen (67%) unter 10 keV liegt ( $\delta m_{\text{ESR}} \geq \delta m_Q$ ), nicht erheblich vergrößert. Die Unsicherheit der aus ESR–Messungen indirekt bestimmten Nuklide wird durch die Unsicherheit der ESR–Messungen bestimmt. Bei den ISOLTRAP–Daten, die eine kleinste Unsicherheit von 5,2 keV haben, würde das den Fehler um mehr als 100 % vergrößern. Die Daten beider Messungen stimmen in den meisten Fällen innerhalb ihrer Fehlergrenzen miteinander überein. Eine Ausnahme ist das Nuklid  $^{181}\text{Tl}$ , wo beide Werte um mehr als  $4,3 \sigma$  voneinander abweichen. Da es sich bei dem ESR–Wert um einen indirekt bestimmten Wert handelt, kann die Diskrepanz ebenso auf den verwendeten  $Q_\alpha$ –Wert zurückzuführen sein. Weitere Abweichungen, speziell zu der AME, treten dann auf, wenn eine nicht-aufgelöste Mischung von isomeren Zuständen vorliegt. Durchschnittlich haben die ISOLTRAP–Daten im Vergleich zu den ESR–Daten eine um einen Faktor 3,7 höhere Massengenauigkeit.

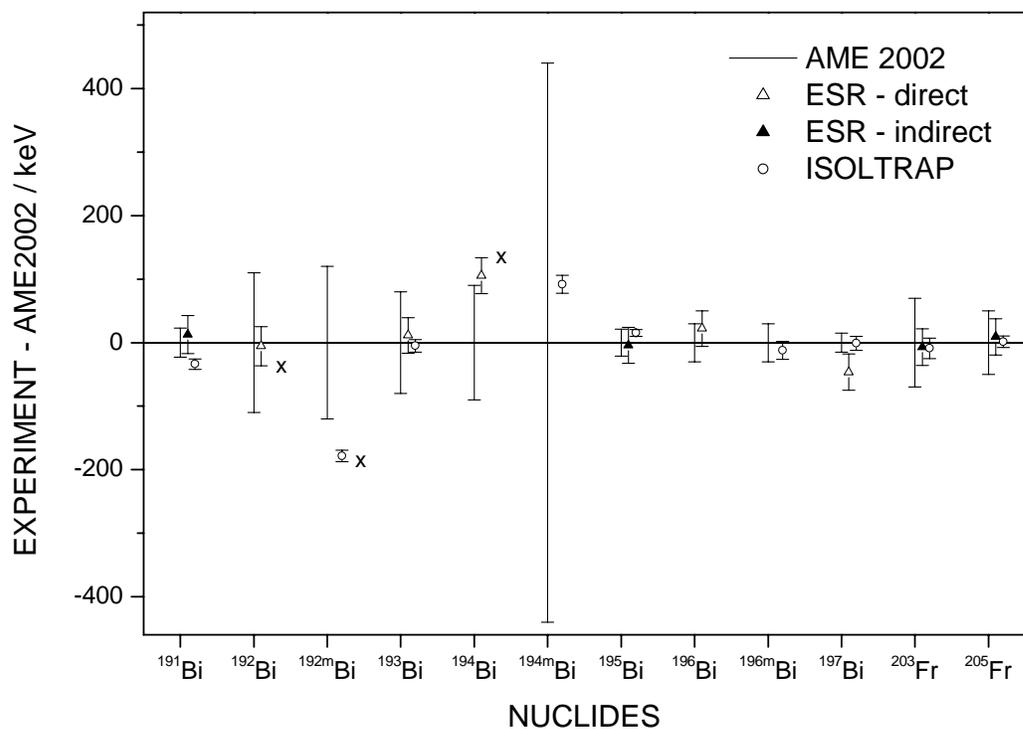
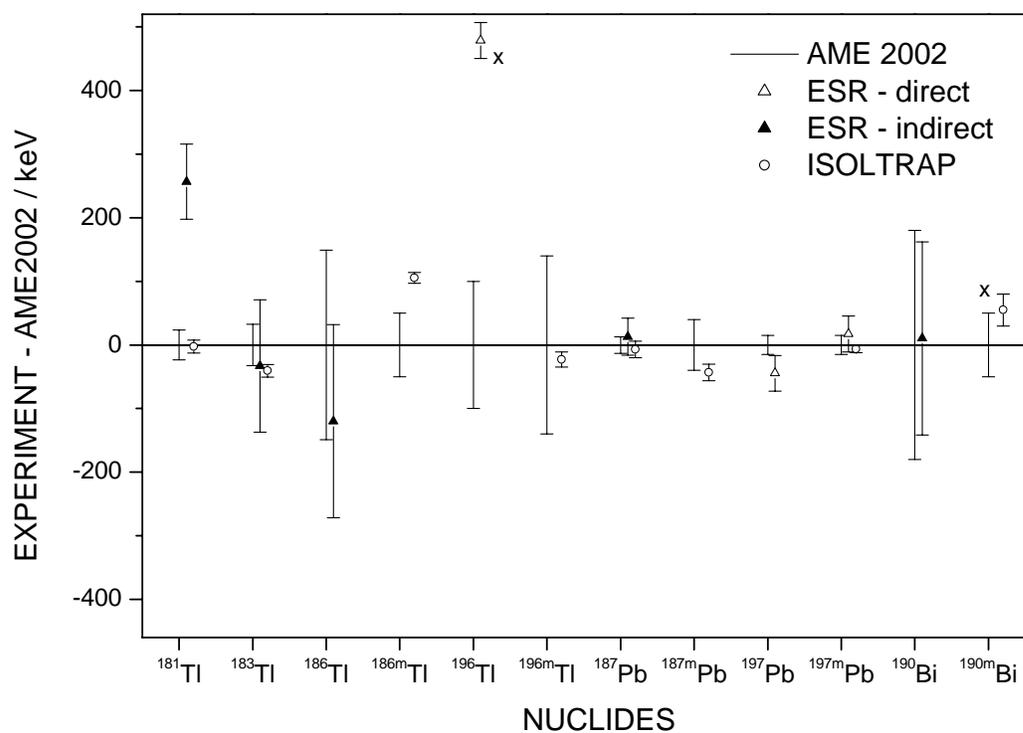


Abbildung 5.24: Vergleich von ISOLTRAP- und ESR-Daten [Litv2003] zu den Werten der AME2002 vor der neuen Anpassung. Die ESR-Daten sind als direkt (offenes Dreieck) und indirekt (geschlossenes Dreieck) bestimmte Werte unterschieden. Ein 'x' am Datenpunkt kennzeichnet, wenn der isomere Zustand nicht aufgelöst worden ist.

*Formung der Massenlandschaft, Beobachtung von Kernstruktureffekten*

Die erhaltenen Massenwerte geben die Kernbindungsenergie  $BE$  und damit die Summe aller im Kern wirkenden Kräfte wieder. Analog zur Ionisierungsenergie in der Atomhülle verdeutlicht die systematische Auftragung der Zweiprotonen-  $S_{2p}$  bzw. Zweineutronenseparationsenergien  $S_{2n}$  (Gl. (5.14) und Gl. (5.15)) die Schalenstruktur der Kerne. Die Betrachtung der Separationsenergie für *zwei* Nukleonen vermeidet das Auftreten von 'gerade-ungerade-Effekten', das sich durch eine erhöhte Paarungsenergie bei gerader Protonen- bzw. Neutronenzahl zeigt.

$$S_{2p} = BE(Z, N) - BE(Z - 2, N), \quad (5.14)$$

$$S_{2n} = BE(Z, N) - BE(Z, N - 2). \quad (5.15)$$

In den Abbildungen 5.25 und 5.26 ist der Verlauf der Zweiprotonen- bzw. Zweineutronenseparationsenergie gegen die Anzahl der Nukleonen aufgetragen. Es zeigt sich das globale Verhalten, dass die Separationsenergien mit zunehmender Nukleonenzahl im Kern stetig abnimmt. Beispielsweise kann das lineare Verhalten in der Zweineutronenseparationsenergie entlang einer Isotopenkette qualitativ auf den Asymmetrieterm des Tröpfchenmodells zurückgeführt werden [Foss2002].

Abweichungen von diesem globalen Verhalten treten an abgeschlossenen Schalen, in Gebieten mit lokalen Deformationen und durch Konfigurationsmischung auf. Der Schalenabschluss bei der magische Neutronenzahl  $N = 126$  ist in Abb. 5.25 deutlich durch Änderungen im linearen Trend erkennbar. Die Stärke des Protonenschalenabschlusses  $Z = 82$  (= Steigung der Zweiprotonenseparationsenergie zwischen  $Z = 82$  und  $Z = 84$  in Abb. 5.26) ist bei der magischen Neutronenzahl  $N = 126$  größer als im Bereich der halb gefüllten Schale  $N \geq 104$ . Eine Feinstruktur kann in der groben Darstellung der Abbildungen nicht erkannt werden. Die wesentlichen Unterschiede zwischen den jeweiligen Abbildungen, die den Stand der AME aus dem Jahr 1995 mit dem Stand von 2003 vergleichen, zeigen sich in einer deutlichen Reduzierung der Fehlerbalken. Dies ist auf eine Vielzahl von neuen Daten in der Massentabelle zurückzuführen. Von den massenspektrometrischen Daten sind dies z.B. Messungen von ISOLTRAP an Quecksilber (Hg), Platin (Pt), Blei (Pb), Polonium (Po), Radon (Rn) und Radium (Ra) [Schw1998, Kohl1999, Schw2001] sowie zahlreiche Daten aus ESR-Schottky-Massenmessungen [Rado2000, Litv2003]. Speziell die ISOLTRAP-Daten, die eine lange Kette von Quecksilberisotopen von  $^{179}\text{Hg}$  bis  $^{195}\text{Hg}$  beinhalten, ermöglichen durch ihre Genauigkeit von  $\delta m \approx 25$  keV (Hg), auch feinere Effekte der Kernstruktur, wie z.B. die Kernformkoexistenz und den Einfluss von niedrig angeregten Intruderzuständen zu untersuchen [Schw2001, Foss2002].

Auffallend ist jedoch die erhöhte Zweiprotonenseparationsenergie der Thalliumisotope ( $Z = 81$ ) bei geraden Neutronenzahlen von  $N = 98$  bis  $N = 108$ , die den Wert bei dem entsprechenden Nachbarisotop mit  $N + 1$  übersteigt. D.h. dass die Bindungsenergie der betreffenden Nuklide ( $A, Z$ ) zu groß bzw. ( $A - 2, Z - 2$ ) zu klein ist. Ein solcher Effekt tritt über die gesamte Nuklidkarte hinweg nur bei vereinzelten Nukliden auf, zu denen experimentelle Daten nicht vorliegen oder eine große Unsicherheit haben. Eine Erklärung wäre, dass die Werte der ungeraden Thalliumisotope durch systematische Fehler verschoben sind. In diesem Fall werden diese Daten jedoch durch verschiedene Experimente (ISOLTRAP & ESR &  $Q$ -Werte) bestimmt. Die in der AME2003 verwendeten ISOLTRAP-DATEN von  $^{181}\text{Tl}$  und  $^{183}\text{Tl}$  sind in der Auswertung eindeutig dem Grundzustand zugeordnet (Kap. 5.4.1). Der gemessene Massenwert ist im Vergleich zu den erwarteten Systematiken des  $S_{2p}$ -Diagramms jeweils zu klein. Eine falsche Zuordnung zu den isomeren Zuständen höherer Masse ( $E = 600$  keV bzw.  $E = 800$  keV) würde diese Abweichung weiter verstärken. Der Massenwert von  $^{187}\text{Tl}$  ist indirekt ebenso zu über 90 % durch den  $^{191}\text{Bi}$ -Wert der ISOLTRAP-Messungen bestimmt.

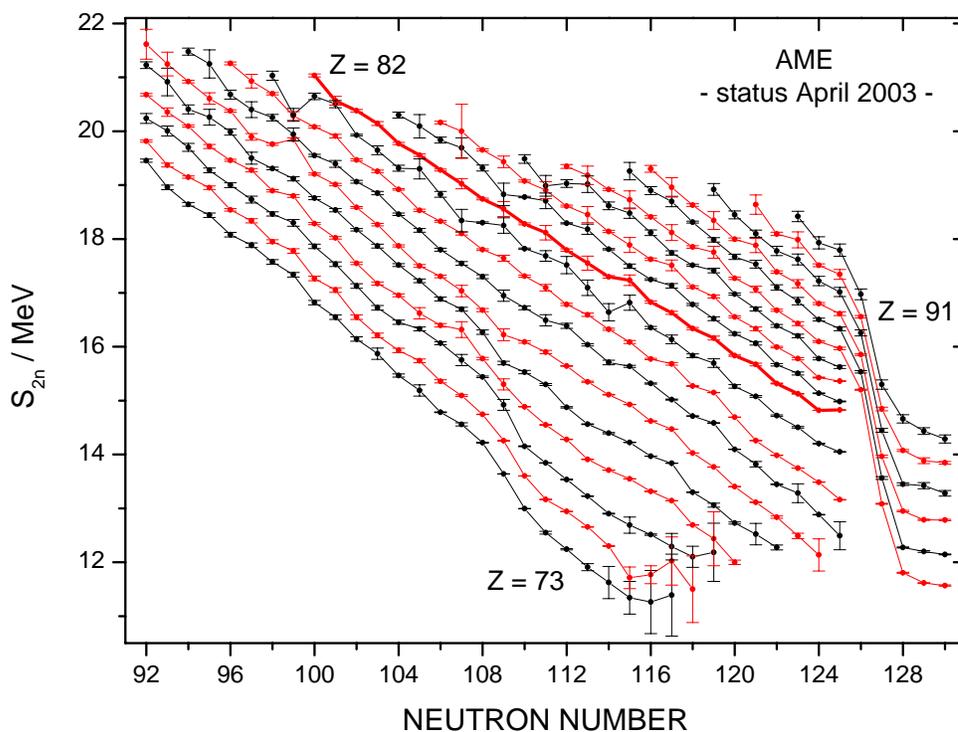
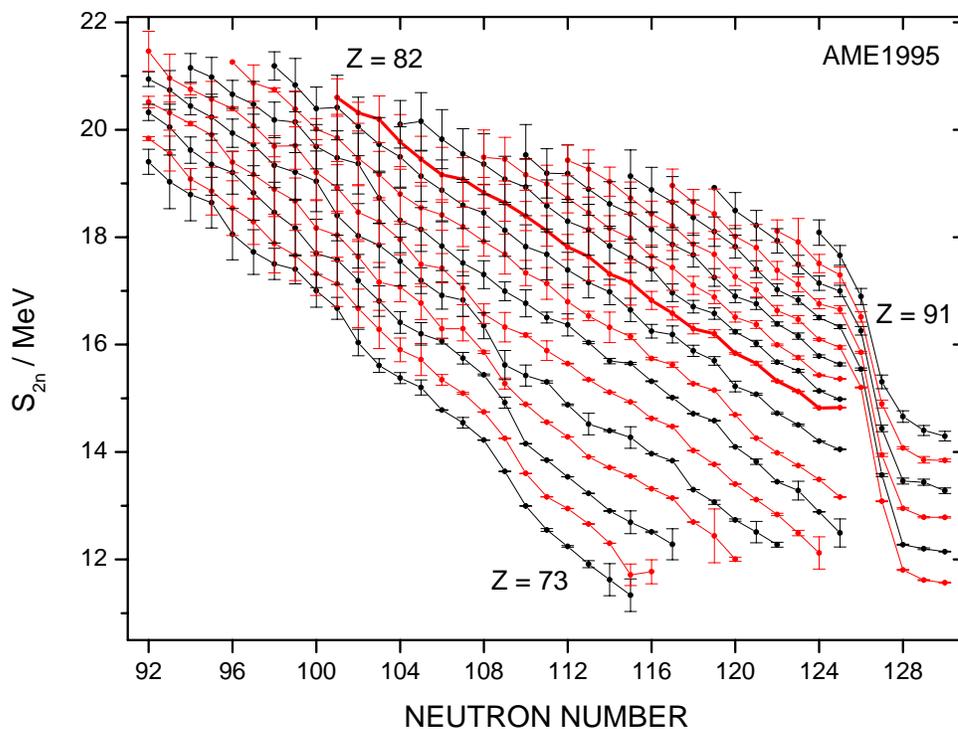


Abbildung 5.25: Vergleich der Zweineutronenseparationsenergien  $S_{2n}$  mit den Daten der AME aus 1995 und 2003.

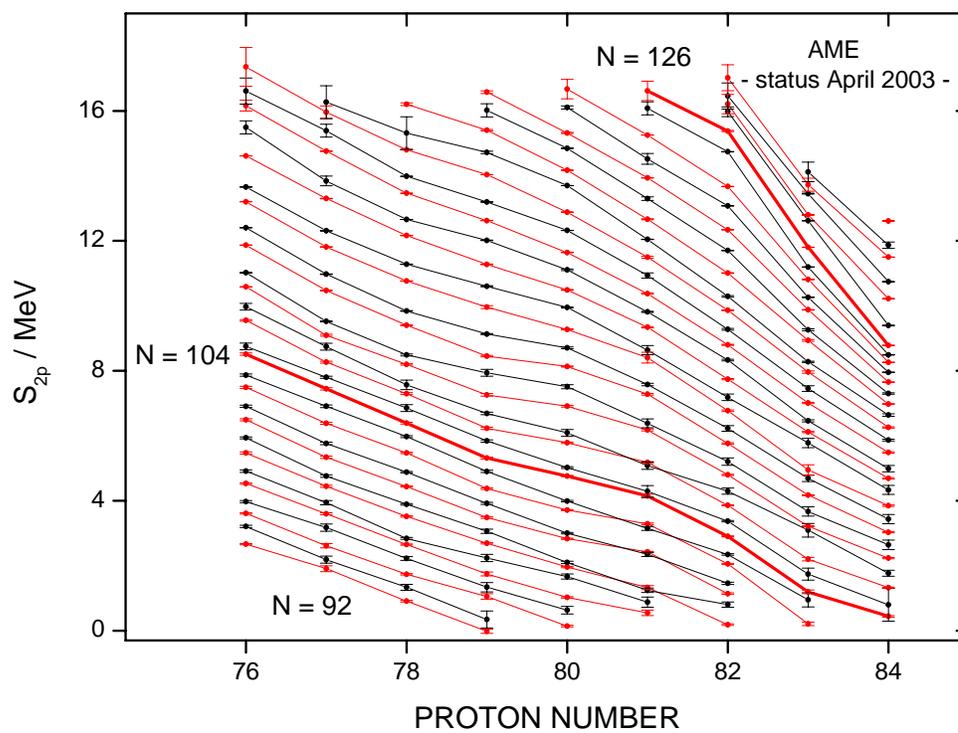
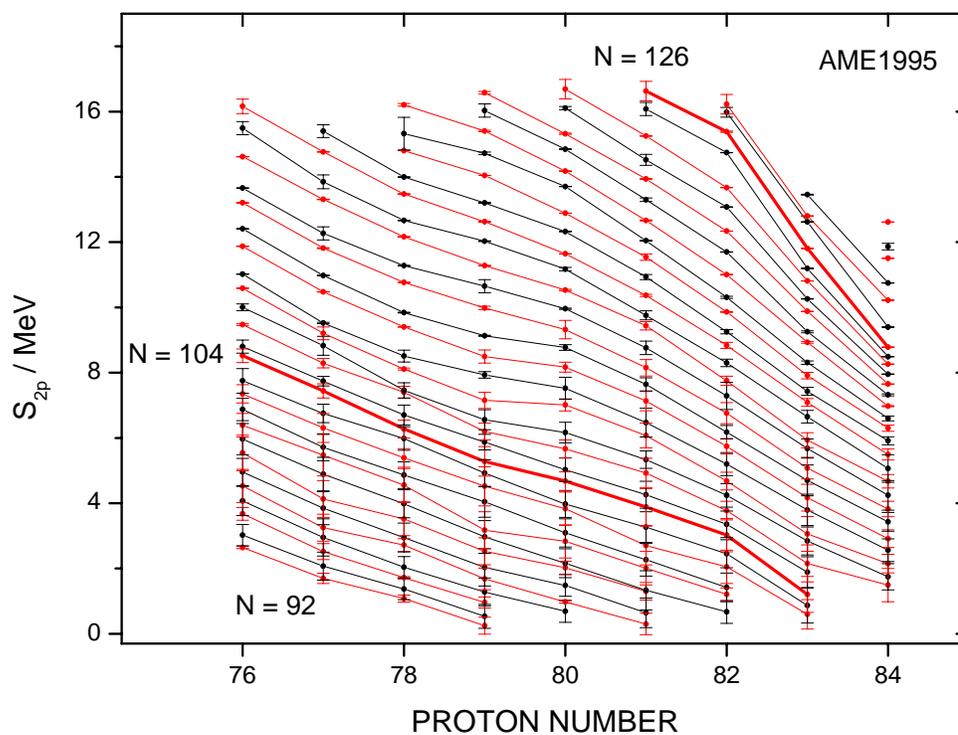


Abbildung 5.26: Vergleich der Zweiprotonenseparationsenergien  $S_{2p}$  mit den Daten der AME aus 1995 und 2003.

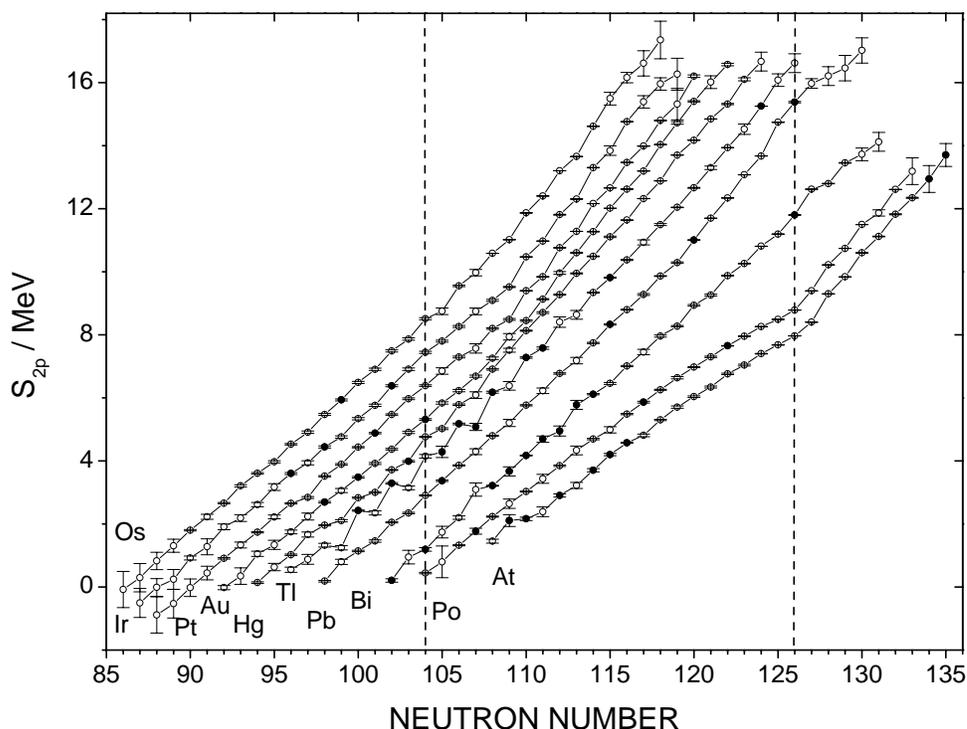


Abbildung 5.27: Verlauf der Zweiprotonenseparationsenergie in Abhängigkeit von der Neutronenzahl. Diskussion im Text.

Auch in diesem Fall konnte das Problem der Zuordnung zum isomeren Zustand durch ausreichende Auflösung und aufgrund der kurzen Halbwertszeit des angeregten Zustands ausgeschlossen werden. Die Betrachtung zeigt, dass dieser Effekt nicht plötzlich bei Thallium einsetzt, er tritt in verminderter Form auch bei den Quecksilber- und den Bleisotopen auf. Auf diese Isotope ist der Einfluss wegen der meist vorliegenden  $Q_{\alpha}$ -Verbindungen nur gering.

Um diesen Effekt zu untersuchen, ist der Verlauf der Zweiprotonenseparationsenergien in Abb. 5.27 in anderer Form dargestellt. Er wurde gegen die Neutronenzahl aufgetragen, die Isotope eines Elements sind durch Linien miteinander verbunden. Die Verstärkung des Protonenschalenabschlusses  $Z = 82$  von der halb gefüllten Schale bei  $N \geq 104$  bis hin zu der magischen Neutronenzahl  $N = 126$  ist auch hier zu erkennen. Die oben beschriebene Unregelmäßigkeit zeigt sich in dieser Darstellung als ein starker gerade-ungerade-Effekt bei Thallium und ebenso in abgeschwächter Form bei den Quecksilberisotopen. Zur genaueren Ansicht ist der Bereich bis  $N = 112$  in Abb. 5.28 weiter vergrößert dargestellt. Es folgen zwei einfache Interpretationsmöglichkeiten. Entweder liegen an einer Stelle falsche Messwerte zugrunde, oder es zeigt sich ein bisher unerwartetes Verhalten. In einer genauen Untersuchung sollten zuerst alle in diesem Bereich beitragenden Eingangsdaten in die AME überprüft werden. Da diese Abweichungen jedoch durch Experimente mit unterschiedlichen Methoden bestätigt wurden und nicht nur lokal an einem Messwert auftauchen, könnte dies auf einen überraschenden Kernstruktureffekt in dieser Region hindeuten.

## 5.7 Ausblick

Es besteht bei einigen der untersuchten Nuklide noch der Bedarf nach einer eindeutigen Zuordnung zu den isomeren Zuständen, bzw. der vollständigen Auflösung der Zustände während einer

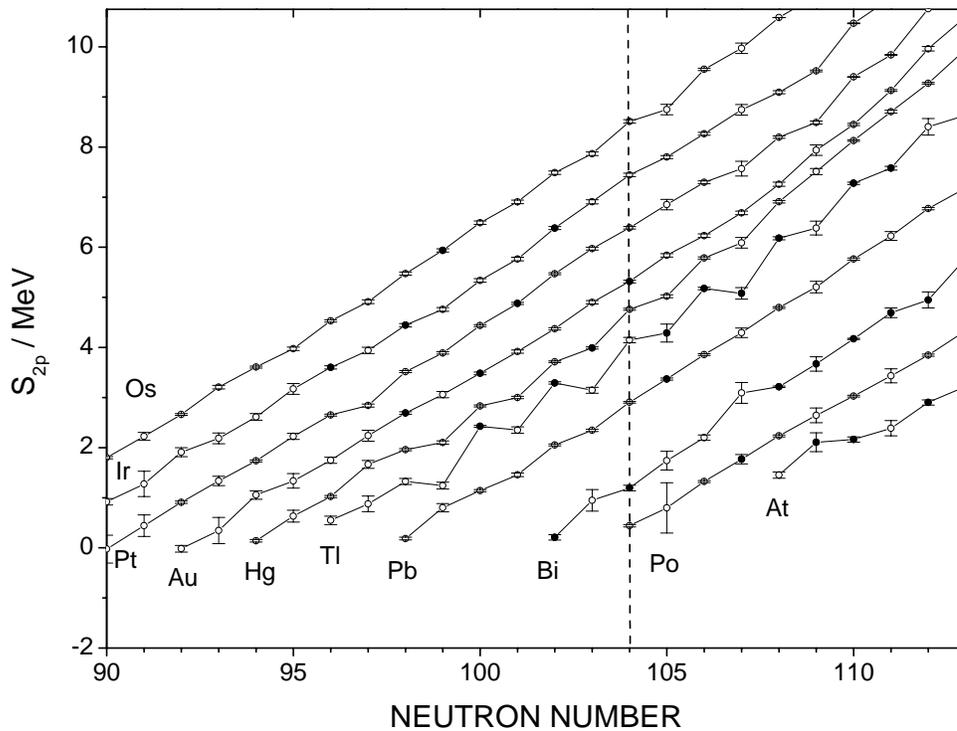


Abbildung 5.28: Vergrößerter Ausschnitt aus 5.27.

Messung. Dies sind die bisher nicht-aufgelösten isomeren Zustände der Nuklide  $^{187}\text{Tl}$ ,  $^{190}\text{Bi}$  und  $^{192}\text{Bi}$ . Hier könnten Spektroskopie-Daten nachträglich bei der Identifikation helfen, indem nach Gl. (5.10) auf die Grundzustandsmasse  $M$  korrigiert werden kann. Speziell in den untersuchten Wismutisotopen gerader Massenzahl (ungerade–ungerade Kerne) sind die Anregungsenergien der isomeren Zustände mit großen Unsicherheiten behaftet. Hier sollten in einer zukünftigen Messung drei mögliche Vorgehensweisen verfolgt werden. (I) Sind die zu untersuchenden Zustände jeweils langlebig genug, können Messungen mit sehr hoher Auflösung von z.B. 40 keV, was einer Anregungszeit von 10 s entspricht, durchgeführt werden. In diesem Fall ist auch die durchzuführende Zählklassenanalyse aussagefähig, d.h. eine Kontamination kann erkannt werden. (II) Ebenso könnte unter ähnlichen Bedingungen wie bei  $^{187}\text{Pb}$  im schmalbandigen Modus (Linienbreite ca. 1 GHz) eine selektive Laserionisation durchgeführt werden. Als Voraussetzung müsste hier die Hyperfeinstrukturaufspaltung zu den jeweiligen Isomeren mit unterschiedlichem Kernspin bekannt sein. (III) Ist die Halbwertszeit nicht ausreichend, um mit langer Anregungsdauer zu messen, kann in parallel durchgeführten Zerfallsmessungen eine eindeutige Identifikation isomerer Zustände vorgenommen werden. Ideal wäre hier ein  $\gamma$ -Detektor, mit dem der Zerfall der aus der Falle ausgeschossenen Ionen detektiert werden kann.



## Kapitel 6

# Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zwei verschiedene Penningfallen–Massenspektrometer zur präzisen Massenbestimmung von instabilen, exotischen Nukliden – SHIPTRAP/GSI und ISOLTRAP/CERN vorgestellt. Bei beiden wird die Masse der gespeicherten Ionen durch Messung der Zyklotronfrequenz in einem homogenen Magnetfeld bestimmt. Es wurde ein Überblick über zwei prinzipiell verschiedene Nachweismethoden gegeben: den destruktiven Nachweis mit der Flugzeitmethode (TOF–ICR) und den zerstörungsfreien Nachweis mit der Fouriertransformations–Ionenzyklotronresonanz (FT–ICR)–Methode. Mit dem ersten Nachweis wird eine Frequenzbestimmung mit mehreren, sukzessive gespeicherten Ionen durchgeführt, für die zweite Methode reicht im Prinzip ein Ion zu einer Frequenzbestimmung aus. Beide Methoden können ein Auflösungsvermögen  $m/\Delta m$  erreichen, das im Wesentlichen nur durch die Halbwertszeit des zu untersuchenden Nuklids limitiert ist.

Sollten längere Wechselwirkungszeiten aufgrund der Halbwertszeit eines Nuklids ausgeschlossen sein, ergeben sich trotzdem für beide Methoden weitere Maßnahmen, um die Sensitivität und die Genauigkeit in der Frequenzbestimmung zu erhöhen. Die Erste ist die Verwendung einer höheren Magnetfeldstärke  $B$ . So soll am LEBIT-Experiment (NSCL, East Lansing, USA) ein supraleitender Magnet mit einer Feldstärke von 9,4 T eingesetzt werden [Schw2003]. Die zweite Möglichkeit führt über eine Erhöhung des Ladungszustands  $q$  der gespeicherten Ionen. Dies ist durch die sukzessive Ionisation in einer EBIT (Electron Beam Ion Trap) möglich. Für stabile Nuklide wird dies am SMILETRAP-Experiment in Stockholm routinemäßig verwendet [Berg2002]. Am TITAN-Experiment (TRIUMF, Vancouver, Kanada) ist dies für sehr kurzlebige Nuklide ( $T_{1/2} \leq 50$  ms) geplant [Dill2003]. An der HITRAP-Anlage der GSI könnten Massenbestimmungen an stabilen Ionen bis zu  $U^{92+}$  durchgeführt werden [HITR2002].

Am SHIPTRAP-Experiment sind Experimente an transuranen Elementen geplant. Niedrige Erzeugungsraten für diese (super)schweren Nuklide schränken jedoch die Möglichkeit ihrer experimentellen Untersuchung ein. Der *empfindliche* zerstörungsfreie FT–ICR–Nachweis, bisher ausschließlich für Massenbestimmungen an stabilen Ionen verwendet, wird hier zur Methode der Wahl. Das Spiegelladungssignal, das von den in einer Penningfalle gespeicherten Ionen in den Elektrodensegmenten induziert wird, wird mittels eines auf deren Schwingungsfrequenz abgestimmten Resonanzschwingkreises aufgenommen und fourier-transformiert. Diese Technik erlaubt eine Identifizierung der gespeicherten Ionen sowie genaue Massenbestimmungen sogar an einem einzelnen einfach geladenen und schweren Ion. Ziel dieser Arbeit war es, ein kryogenes Penningfallensystem aufzubauen, das eine Nachweisempfindlichkeit für einzelne, schwere Ionen besitzt. Es besteht aus einer mit flüssigem Stickstoff gekühlten Vakuumapparatur für ein System aus zwei Penningfallen – Reinigungsfalle und Messfalle – und einem flüssig Helium–Dewar zum Betreiben der supraleitenden Nachweisinduktivität. Die Linienbreite der Ionenresonanz ist durch

die Inhomogenitäten der Speicherfelder begrenzt. Daher ist die Messfalle eine orthogonalisierte Falle mit hyperbolischer Elektrodenform, die bei den erforderlichen Experimentierbedingungen ein bestmögliches harmonisches Speicherpotential bietet. Die Messfalle des kryogenen Aufbaus ist dünnwandig aufgebaut, um durch ihre Suszeptibilität die Homogenität des Magnetfeldes nur minimal zu beeinträchtigen. Da diese Nachweismethode den Nachteil hat, nur für einen begrenzten Massenbereich extrem sensitiv zu sein, können Nuklide mit ausreichender Produktionsrate alternativ über die Flugzeitmethode untersucht werden. Daher bleibt in dem experimentellen Aufbau die Extraktion der Ionen aus der Falle möglich. Dies ist auch im Hinblick auf zukünftige geplante Experimente mit extrahierten, gekühlten Ionen von SHIPTRAP notwendig.

Am Penningfallen–Massenspektrometer ISOLTRAP am on–line Isotopenseparator ISOLDE/CERN erfolgt der Nachweis der resonanten Anregung der Zyklotronfrequenz mit der Flugzeitmethode. Hier reicht das Spektrum der bisher untersuchten Nuklide vom Element Neon ( $A = 18$ ) bis zu Radium ( $A = 232$ ). Im Rahmen dieser Arbeit wurden die atomaren Massen von 29 Radionukliden mit relativen Massenunsicherheiten von typischerweise einigen  $10^{-8}$  experimentell bestimmt. Sie umfassen die neutronenreichen Cäsiumisotope  $^{145}\text{Cs}$  und  $^{147}\text{Cs}$ , sowie Isotope der schweren Elemente Thallium, Blei, Wismut, Francium und Radium zu beiden Seiten des Tals der  $\beta$ –Stabilität. Eine besondere Schwierigkeit lag in der Zuordnung der gemessenen Werte zu den häufig auftretenden isomeren Zuständen, wenn die relativen Produktionsverhältnisse oder die Anregungsenergie unbekannt sind. Die neu gewonnen Messergebnisse wurden in die Datentabelle der AME integriert und eine atomare Massen Anpassung durchgeführt. Speziell auf der neutronenarmen Seite am  $Z = 82$  Schalenabschluss ist ein Auftreten starker Kernstruktureffekte bekannt. Die Auftragung des Verlaufs der Separationsenergien macht sowohl Schalenabschlüsse als auch Effekte in der Kernstruktur sichtbar. Global erhält man einen gleichmäßigen, linearen Verlauf; bei den Thalliumisotopen (und Quecksilberisotopen) ungerader Massenzahl werden Abweichungen von diesem linearen Verlauf sichtbar, deren Ursache zur Zeit noch nicht geklärt werden konnte. Da in dieser Region die Ergebnisse mehrerer Experimente eingehen, könnte dies einen unerwarteten Kernstruktureffekt andeuten. Eine Gewissheit kann letztlich nur durch weitere experimentelle Untersuchungen erbracht werden.

Die Messungen am ISOLTRAP–Experiment zeigen vier Notwendigkeiten für zukünftige Massenmessungen an schweren, instabilen Nukliden auf.

(I) Da bei den vorgestellten Messungen schwerer Nuklide (bis  $A = 230$ ) leichtere Referenzionen ( $A = 133$ ) verwendet wurden, treten wegen des großen Massenunterschieds systematische Fehler auf. Sie können durch eine fest installierte Kohlenstoffclusterquelle als Referenzionenquelle vermieden werden. Diese kann einen weiten Massenbereich bis  $A \geq 240$  abdecken und stellt eine Referenzmasse im maximalen Abstand von sechs atomaren Masseneinheiten von der zu bestimmenden Masse zur Verfügung. Dies gilt auch für SHIPTRAP, wo schwerere Massen untersucht werden sollen. Durch Korrelationsmessungen mit Kohlenstoffclustern verschiedener Clustergrößen, lassen sich, ähnlich wie an ISOLTRAP, die systematischen Fehler der neuen Apparatur untersuchen und quantifizieren.

(II) Ein Nachweis an einem *einzelnen* Ion bildet ein System, das frei von Wechselwirkungen mit weiteren gespeicherten Teilchen ist. Dies trifft auf beide Nachweismethoden gleichermaßen zu. Ein Flugzeitnachweis mit einer Detektionseffizienz von 100 % ist wünschenswert, was an ISOLTRAP durch einen Austausch des Microchannelplates (MCP–Detektor) gegen einen Channeltron–Detektor erreicht werden soll.

(III) In einigen Fällen kann im Experiment nicht vermieden werden, dass zwei Ionensorten gleichzeitig in der Messfalle gespeichert werden, bzw. beide Zyklotronresonanzen im gewählten Frequenzbereich auftreten. Zur exakten Linienanpassung ist es daher erforderlich, ein Auflösungsvermögen zu wählen, dass beide Linienprofile einschließlich ihres ersten Seitenbandes

trennt. Dies ist bei einer Auflösung  $\Delta m$  ab etwa der vierfachen Massendifferenz  $m_i - m_j$  erreicht. (IV) Bedingt durch den Produktionsmechanismus, bzw. durch die Nuklide, deren Massen es zu bestimmen gilt, sind die Schwerpunkte beider Experimente – SHIPTRAP und ISOLTRAP – verschieden. Am SHIPTRAP-Experiment, wo transurane Elemente erstmals massenspektrometrisch untersucht werden sollen, sind hochpräzise Massenwerte nicht notwendig. Geringe Produktionsraten erfordern hier einen Nachweis hoher Sensitivität, wie die FT-ICR-Methode mit abgestimmtem supraleitendem Resonanzkreis. Der damit verbundene experimentelle Aufwand, eine Messung an einem einzelnen Ion durchzuführen ist hoch. Für Nuklide, deren Masse mit extrem hoher Genauigkeit bestimmt werden soll und die mit hoher Rate produziert werden, ist der vom Aufwand her einfachere Flugzeitnachweis, wie er seit langem an ISOLTRAP angewendet wird, ideal.



## **Anhang A**

# **Die kryogene Penningfalle**

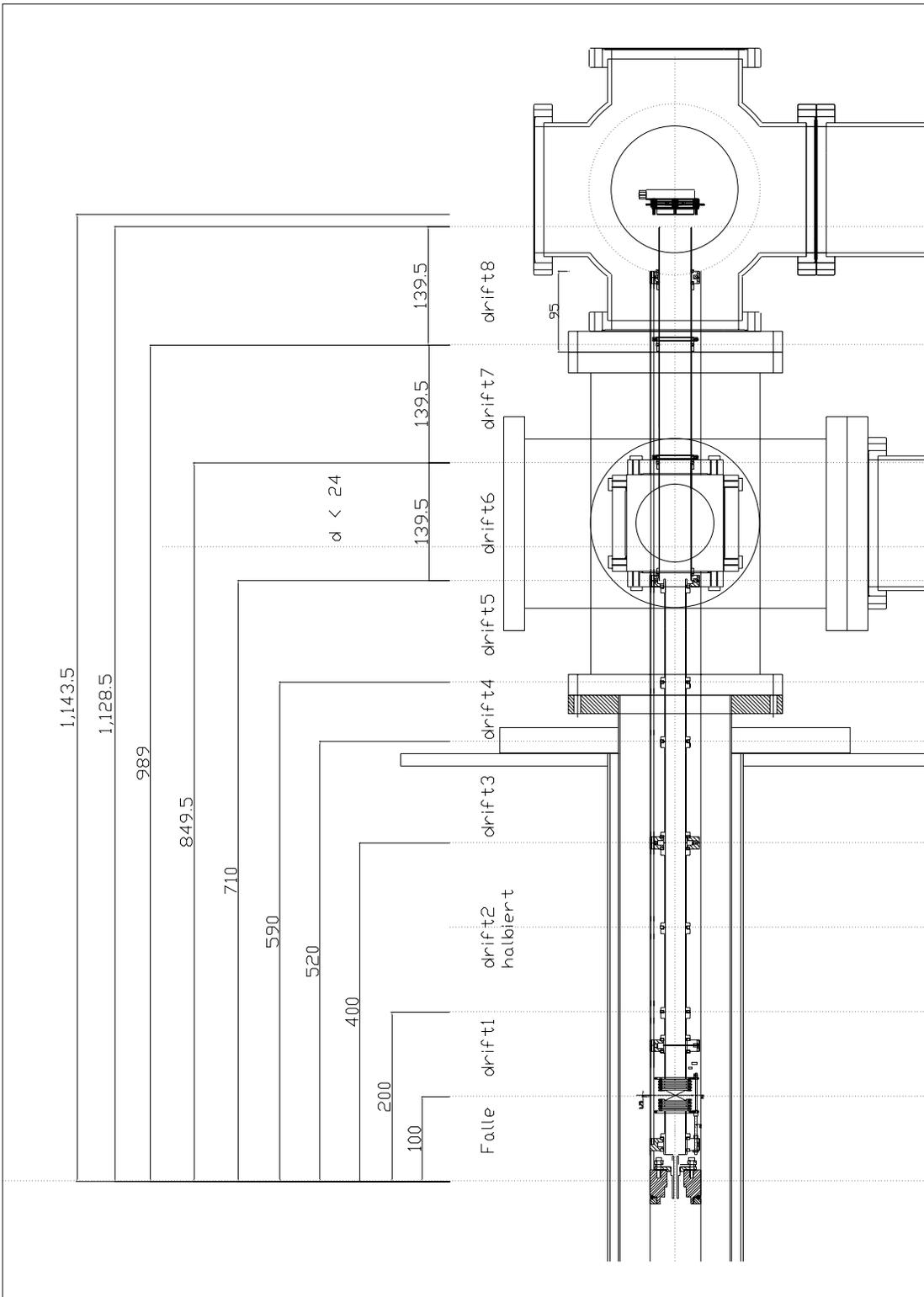


Abbildung A.1: Schematischer Aufbau der Messfallenseite mit Driftstrecke und Microchannel Plate (MCP)-Detektor.

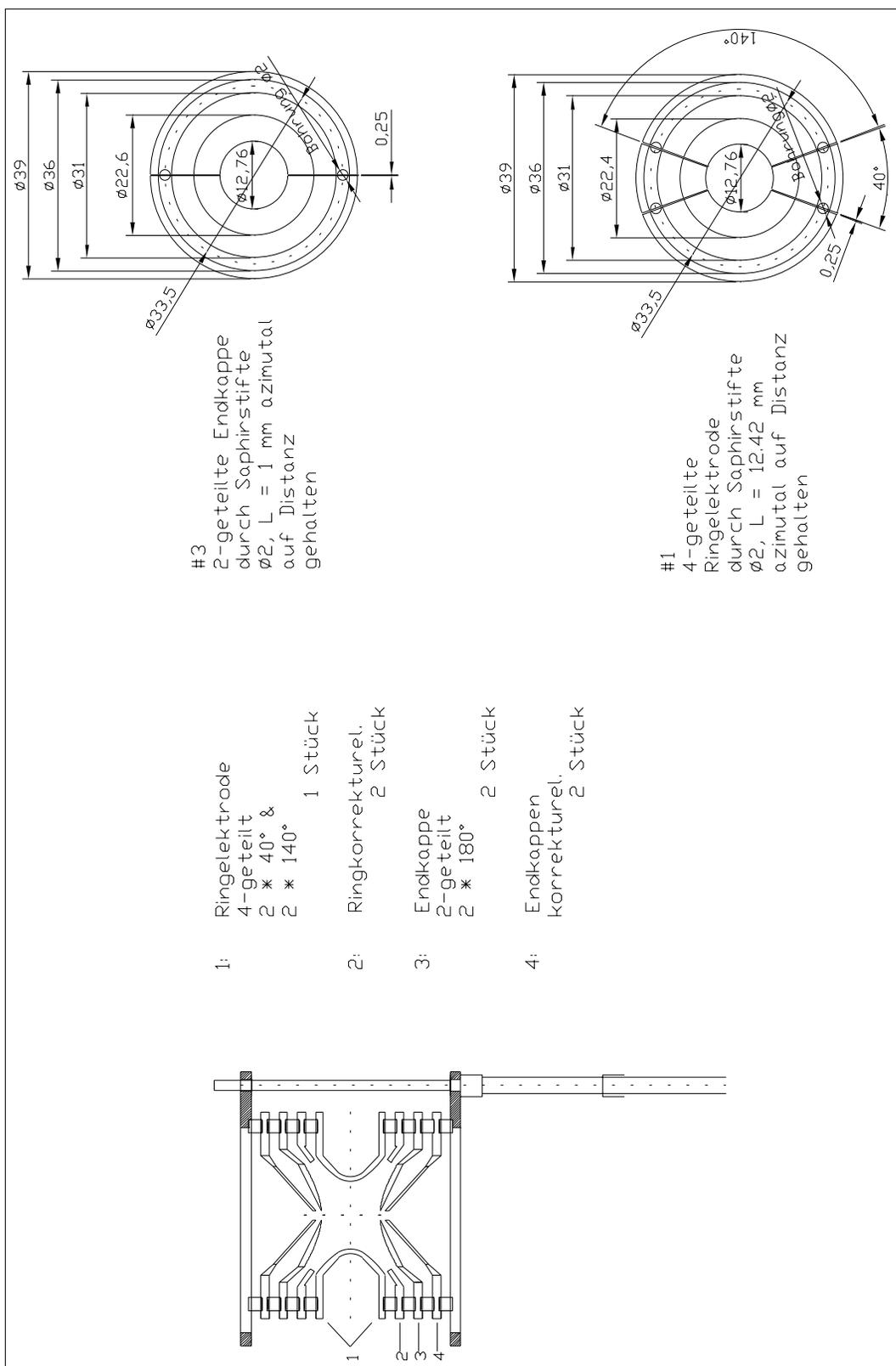


Abbildung A.2: Links: Zusammenbau der Messfalle. Rechts: Ansicht der geteilten Elektroden-elemente (siehe auch das Photo in Abb. 4.14).

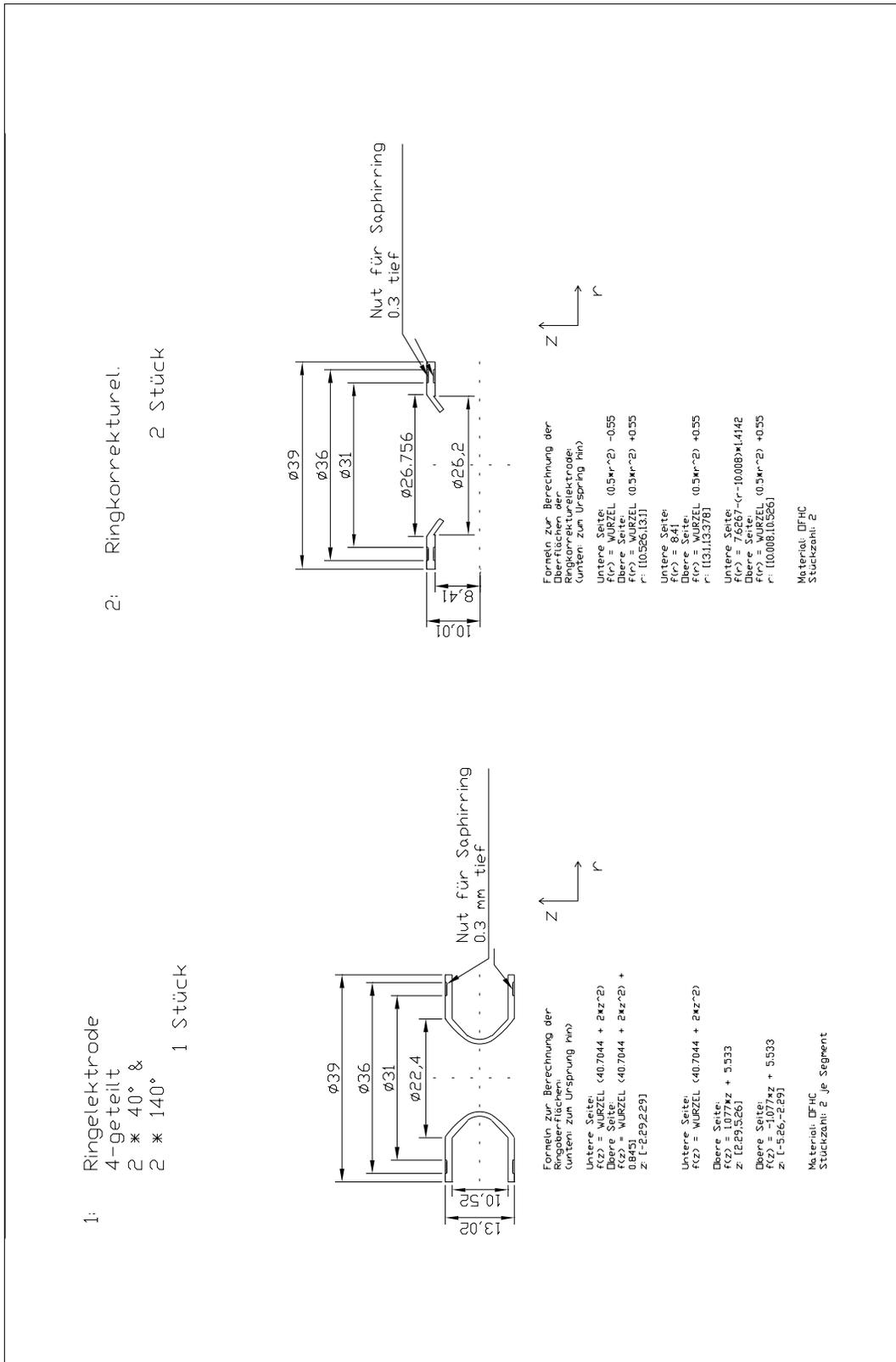


Abbildung A.3: Detailzeichnung der Ring- und Ringkorrekturodele inklusive Rechenvorschriften der Elektrodenoberflächen.

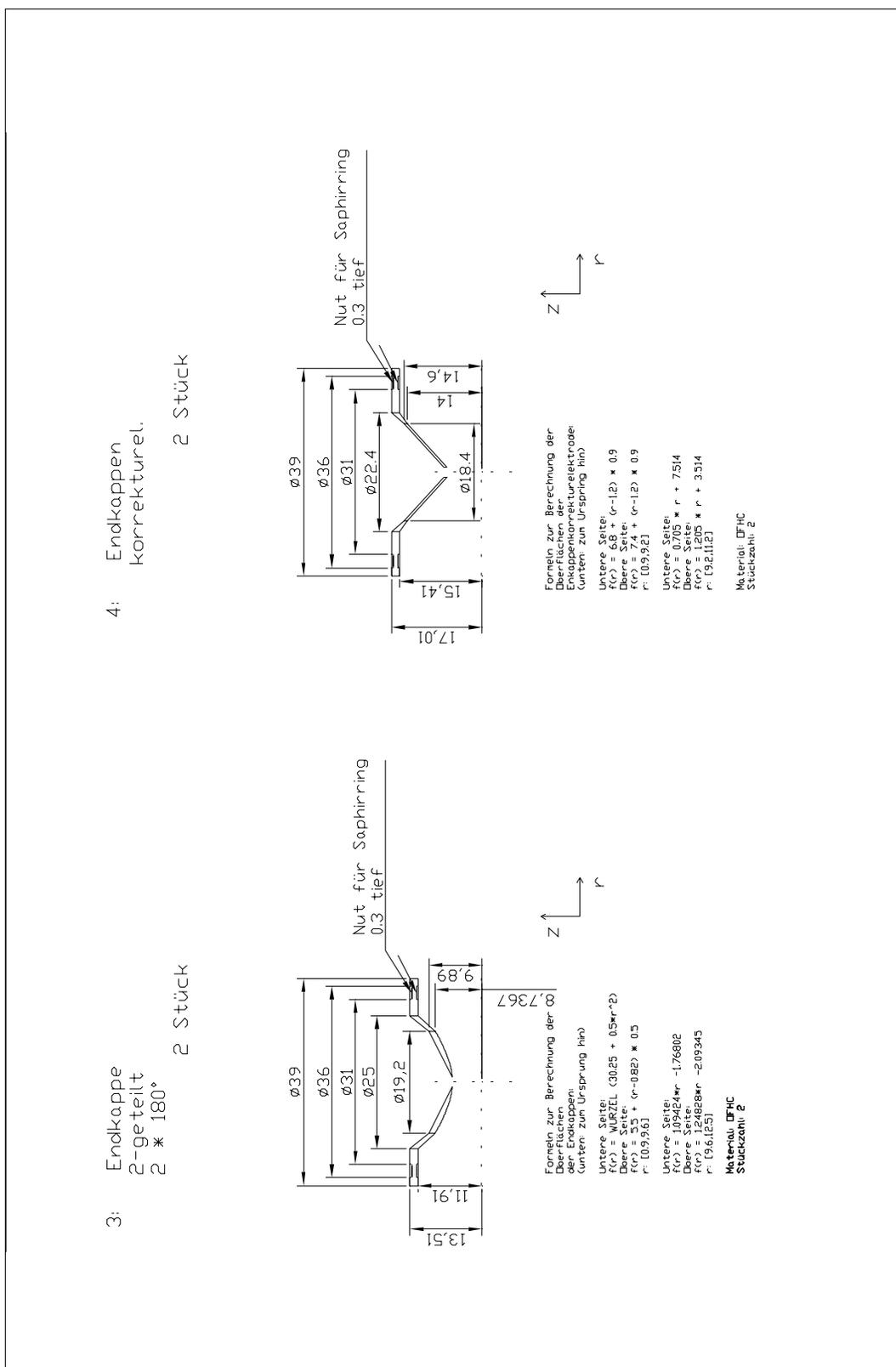


Abbildung A.4: Detailzeichnung der Endkappen- und Endkappenkorrekturteile inklusive Rechenvorschriften der Elektrodenoberflächen.

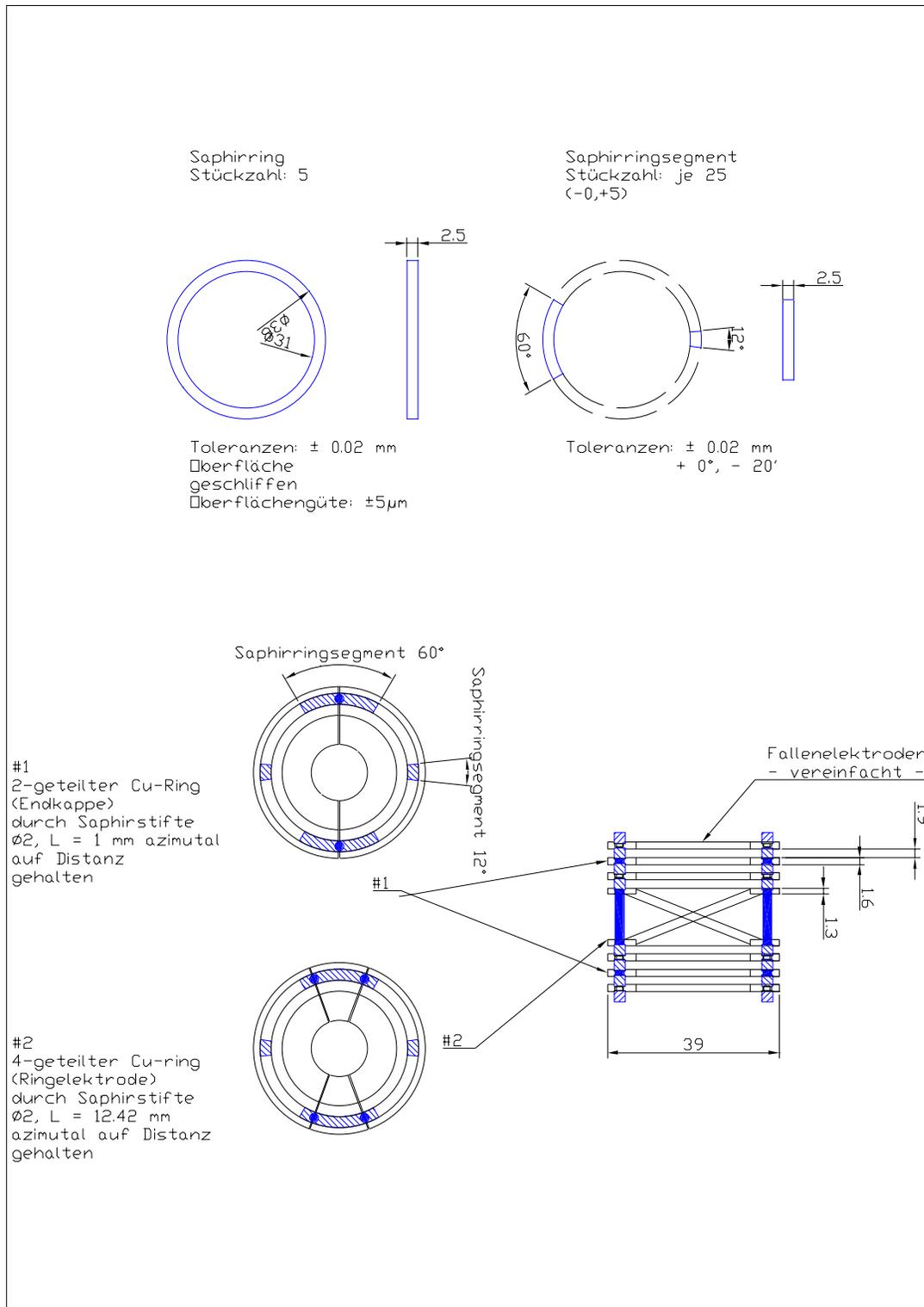


Abbildung A.5: Einbau der Isolier- und Distanzstücke aus Saphir. Ring und Ringsegmente dienen der Isolierung in axialer Richtung. Stifte und Rondellen dienen der azimuthalen Segmentierung von Ringelektrode und Endkappen.

## **Anhang B**

# **Zyklotronresonanzen**

Tabelle B.1: Aufstellung aller ISOLTRAP-Messungen im Rahmen dieser Arbeit. Die mit () versehenen Messungen wurden wegen zu geringer Statistik oder unzureichender Auflösung nach der Datenanalyse nicht weiter zur Bestimmung der Frequenzverhältnisse verwendet. Die Referenzmessungen mit  $^{133}\text{Cs}$ -Ionen sind in der Abb. B.1 dargestellt. Sie zeigen den Verlauf des Magnetfeldes. Beispiele von Zyklotronresonanzen für jedes einzelne Nuklid folgen in diesem Teil des Anhangs.

Nuclide	Number of single frequency scans
$^{145}\text{Cs}$	4
$^{147}\text{Cs}$	2
$^{181}\text{Tl}$	2
$^{183}\text{Tl}$	2
$^{186m}\text{Tl}$	3(1)
$^{187x}\text{Tl}$	2
$^{196m}\text{Tl}$	1
$^{205}\text{Tl}$	1
$^{187}\text{Pb}$	1
$^{187m}\text{Pb}$	2
$^{197m}\text{Pb}$	2
$^{208}\text{Pb}$	4
$^{190x}\text{Bi}$	1
$^{191}\text{Bi}$	2
$^{192m}\text{Bi}$	2(1)
$^{193}\text{Bi}$	3
$^{194m}\text{Bi}$	1
$^{195}\text{Bi}$	2
$^{196m}\text{Bi}$	1
$^{197x}\text{Bi}$	3
$^{209}\text{Bi}$	14
$^{215}\text{Bi}$	2
$^{216}\text{Bi}$	1
$^{203}\text{Fr}$	2
$^{205}\text{Fr}$	2
$^{229}\text{Fr}$	3(1)
$^{214}\text{Ra}$	2
$^{228}\text{Ra}$	(1)
$^{229}\text{Ra}$	3(1)
$^{230}\text{Ra}$	2

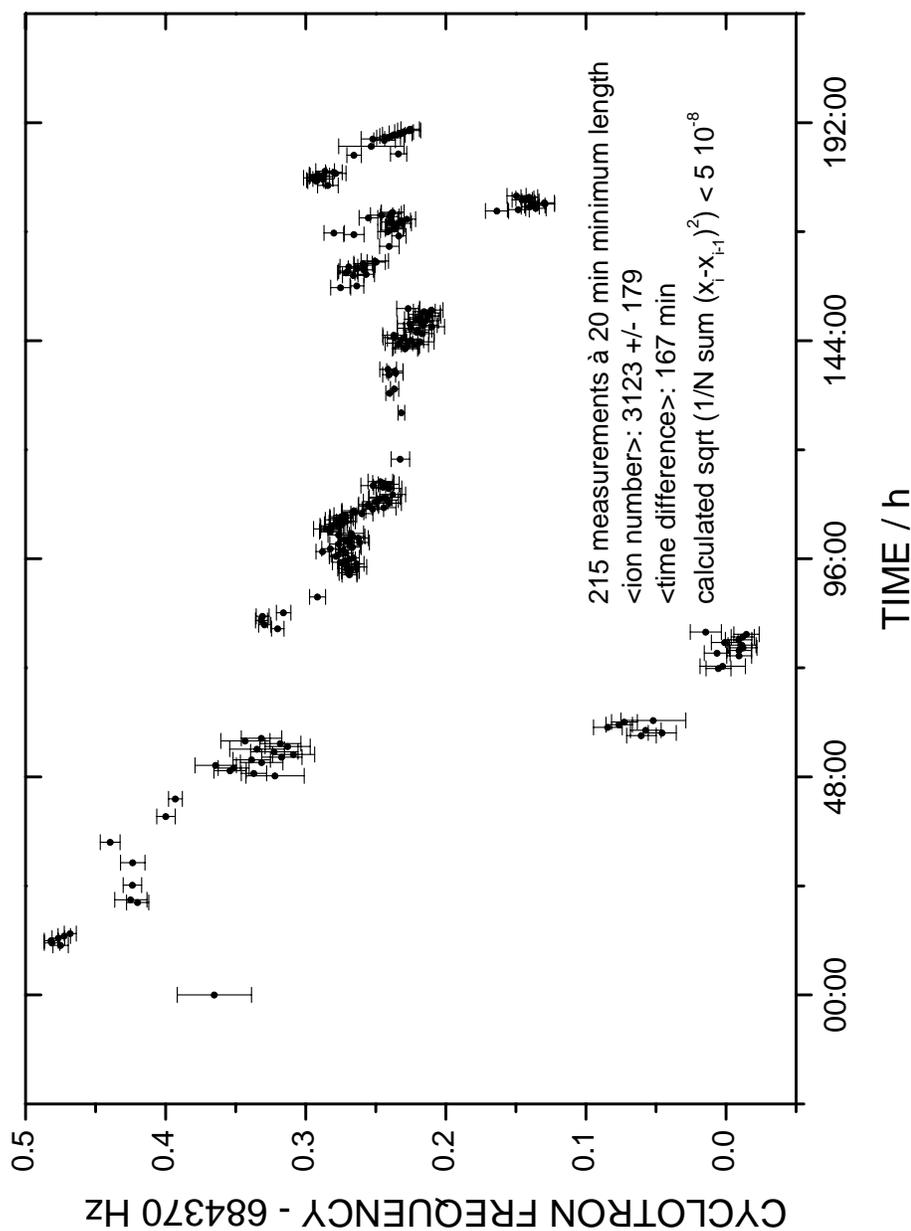
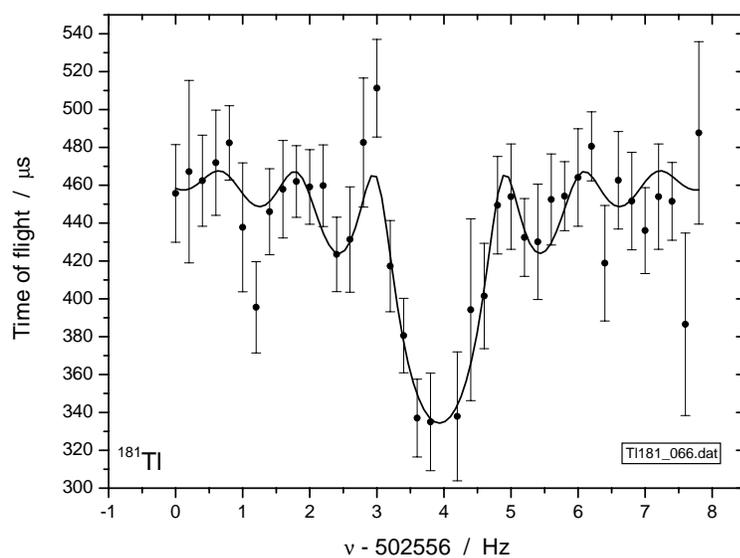
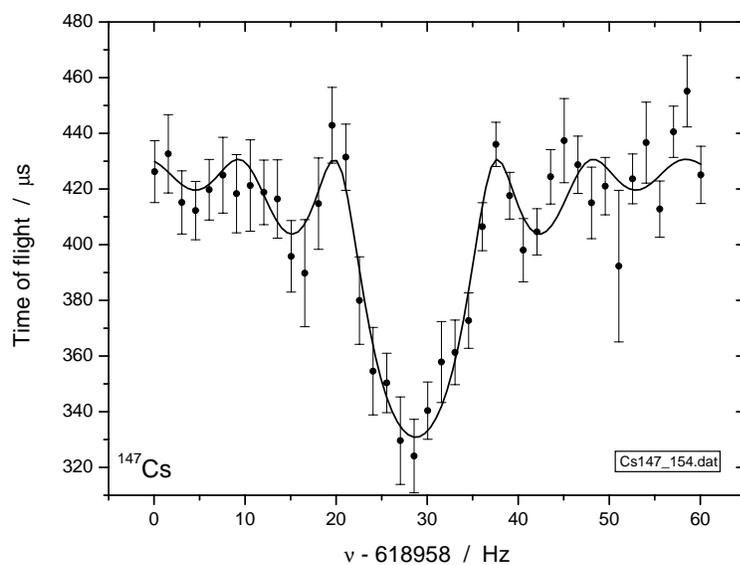
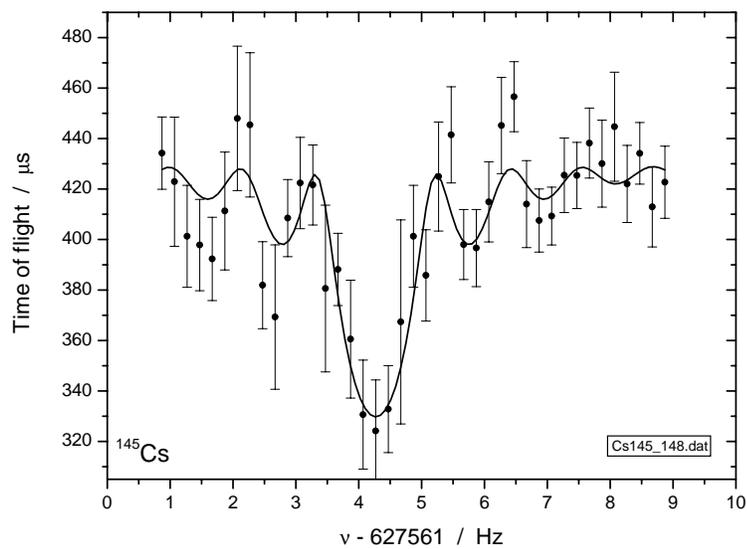
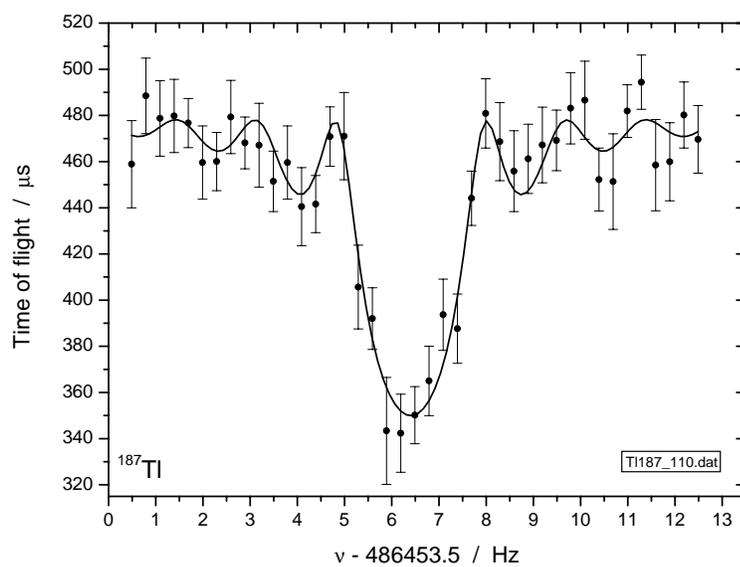
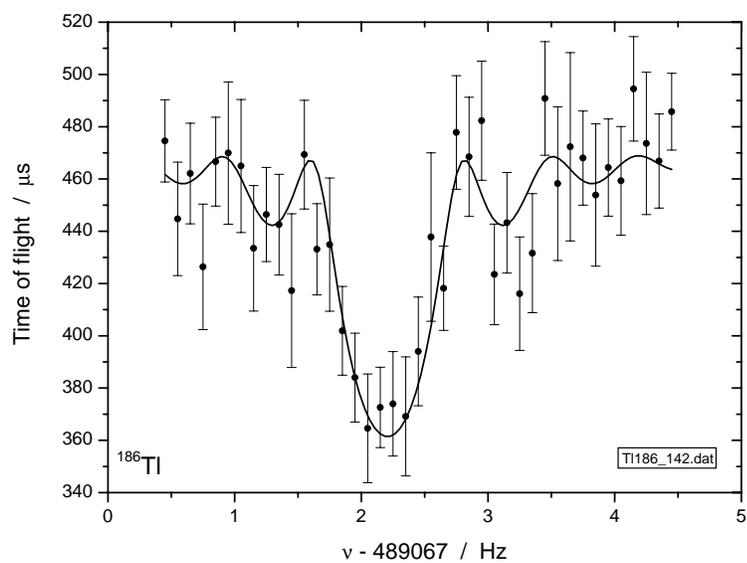
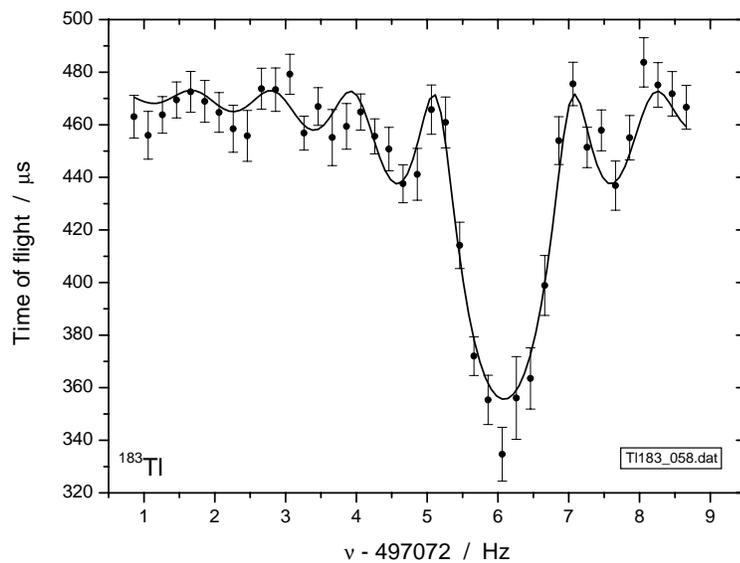
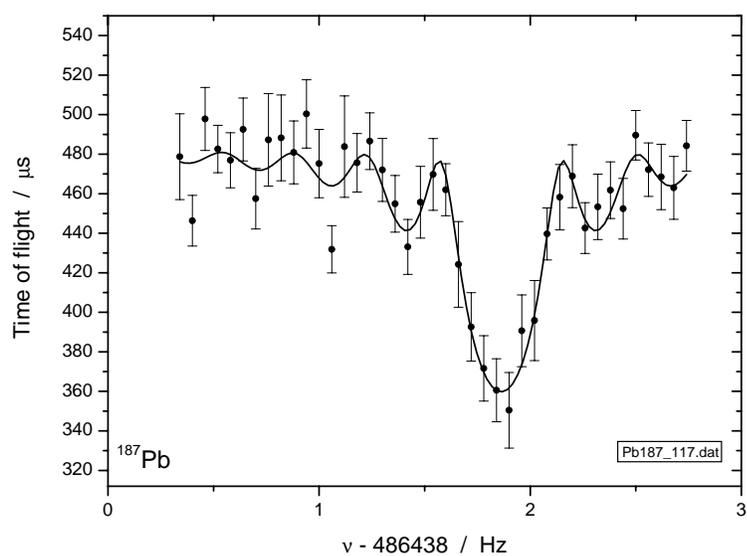
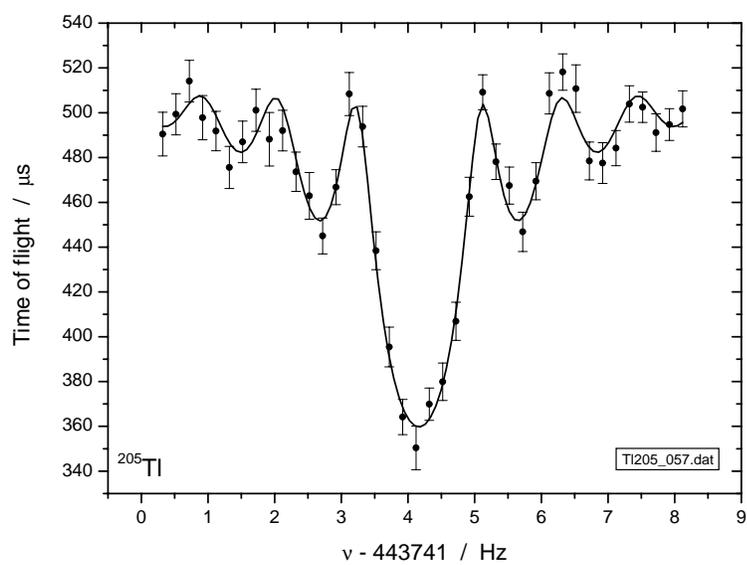
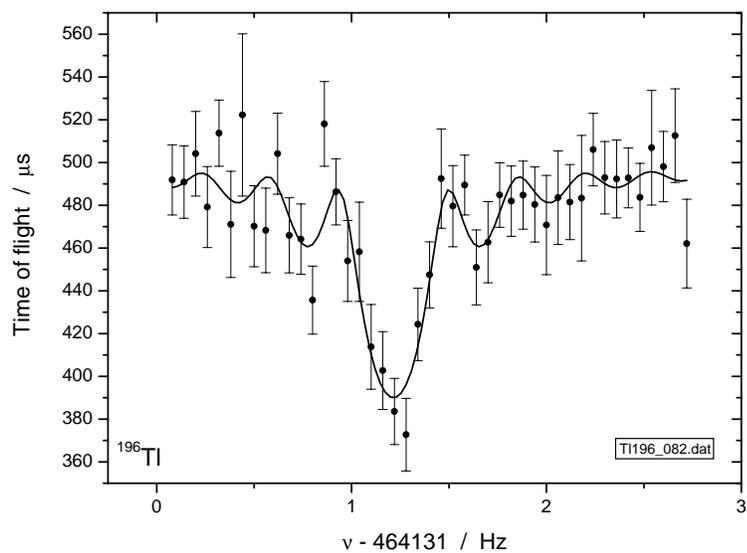
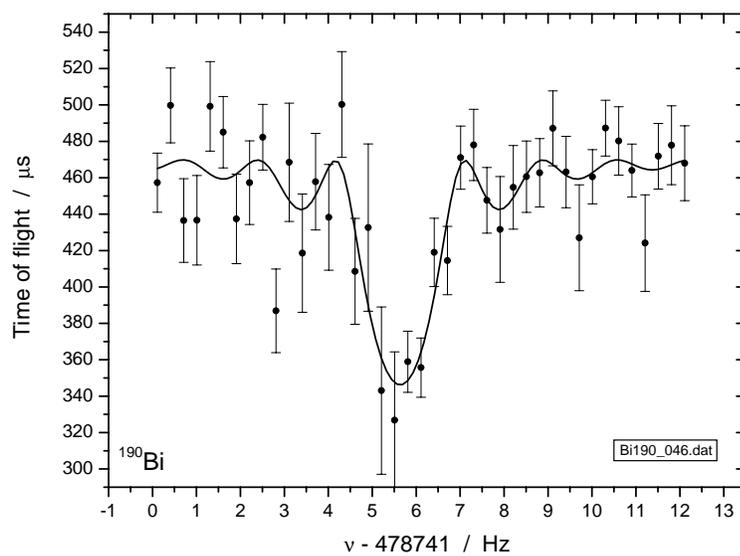
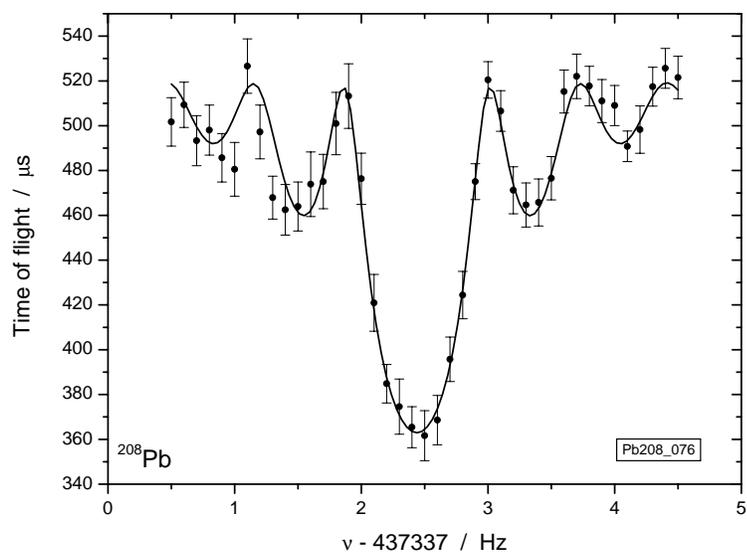
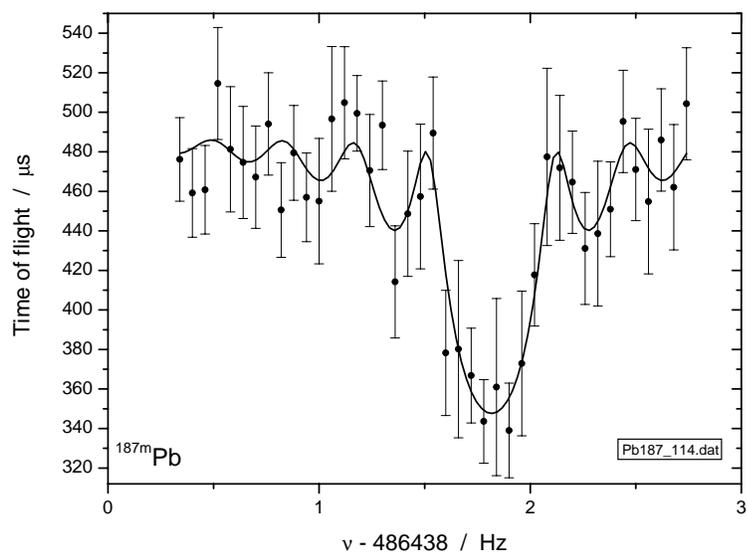


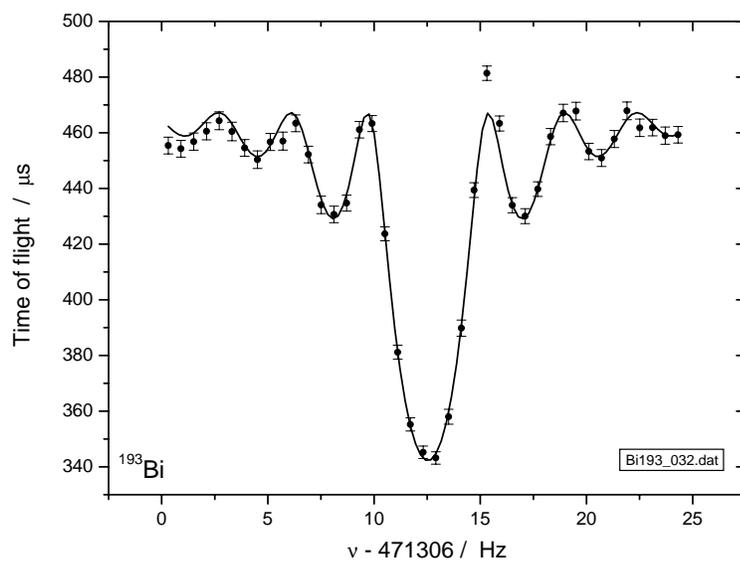
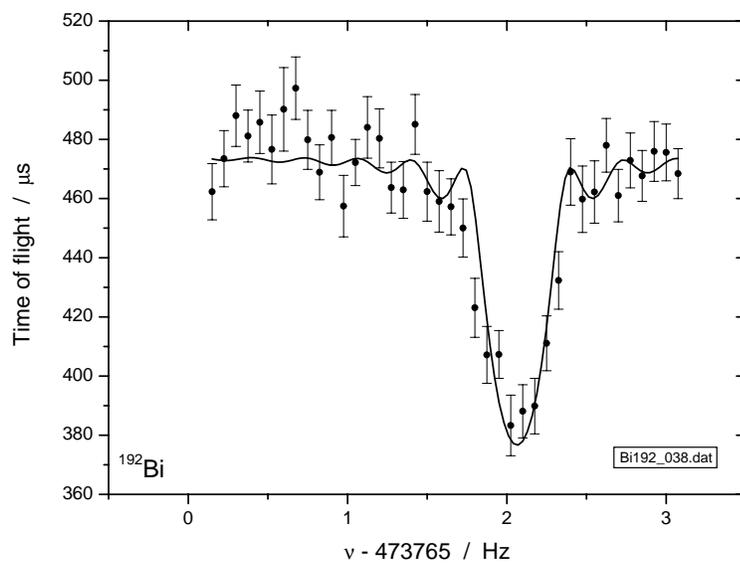
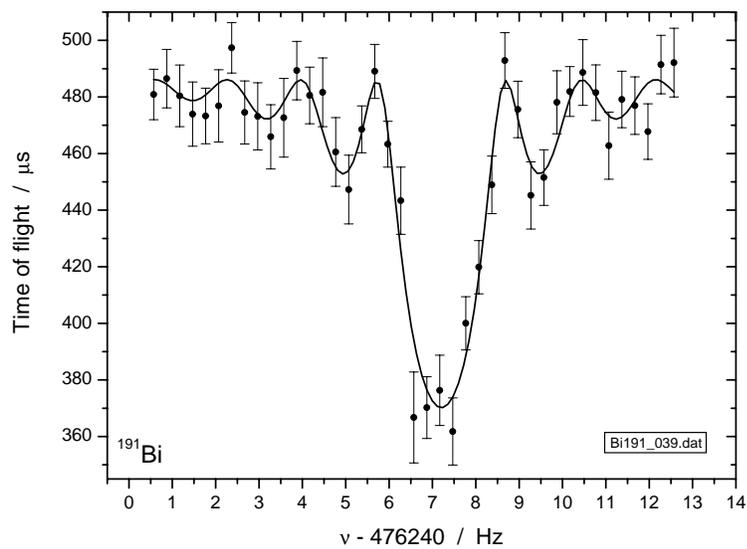
Abbildung B.1: Verlauf der Magnetfeldstärke während der Strahlzeit, dargestellt durch die Zyklotronfrequenzen der stabilen  $^{133}\text{Cs}$ -Ionen. Insgesamt 37 Messungen unterschiedlicher Zeitdauer wurden in 215 Blöcke à 20 min unterteilt. Sie enthalten im Mittel eine Zählrate von über 3000 Ionen. Die Ursache der sprunghaften Veränderung des Feldes (zwischen 48 und 96 Stunden) ist ungeklärt. Da beide im Abstand von genau 24 h stattfanden, könnte es auf eine äußere Magnetfeldänderung durch Inbetriebnahme einer Anlage auf dem CERN-Gelände zurückzuführen sein. Als Referenzmessungen wurden immer die beiden zeitlich am nächsten liegenden Messungen verwendet. Ihre mittlere Zeitdifferenz beträgt 167 Minuten und weist eine relative quadratische Feldänderung von  $\leq 5 \times 10^{-8}$  auf. Dies ist in Übereinstimmung zu dem Wert von ca.  $1 \times 10^{-8}$  aus [Kell2003].

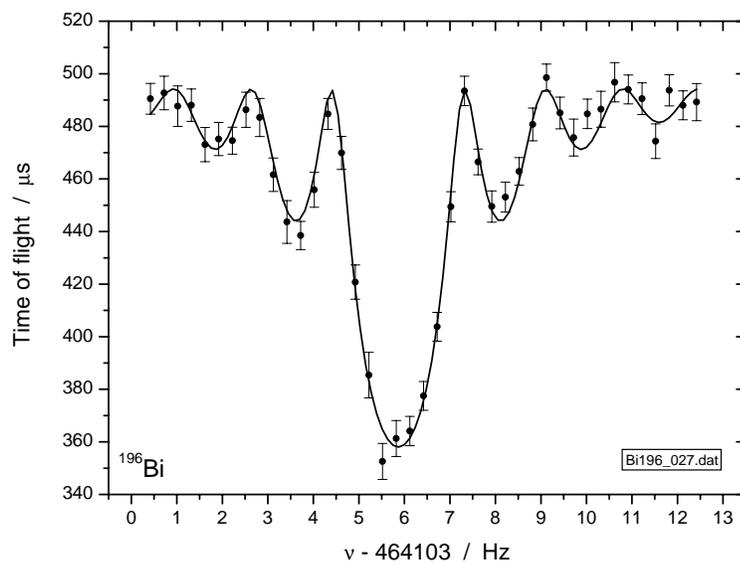
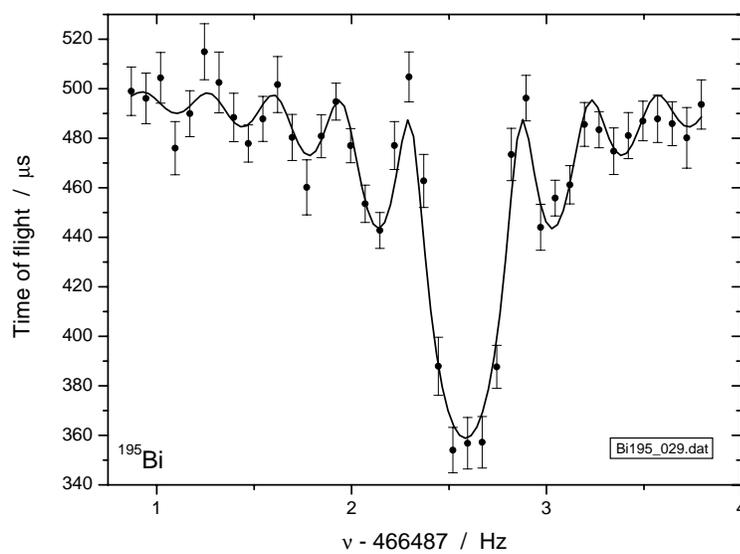
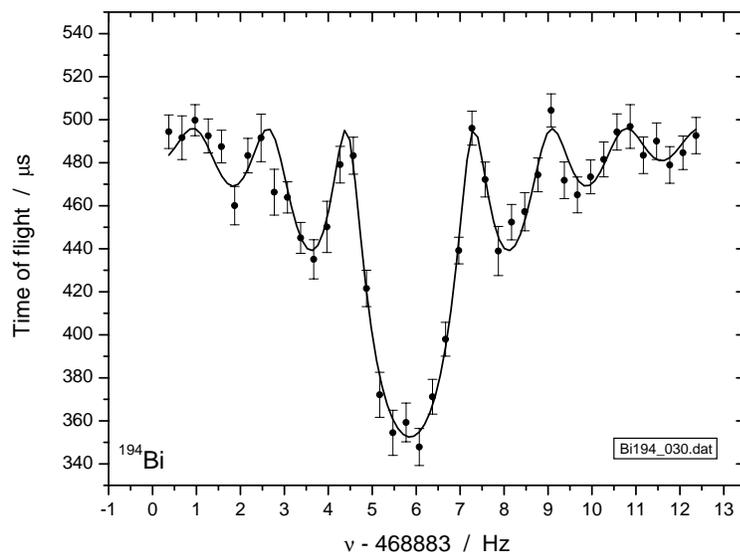


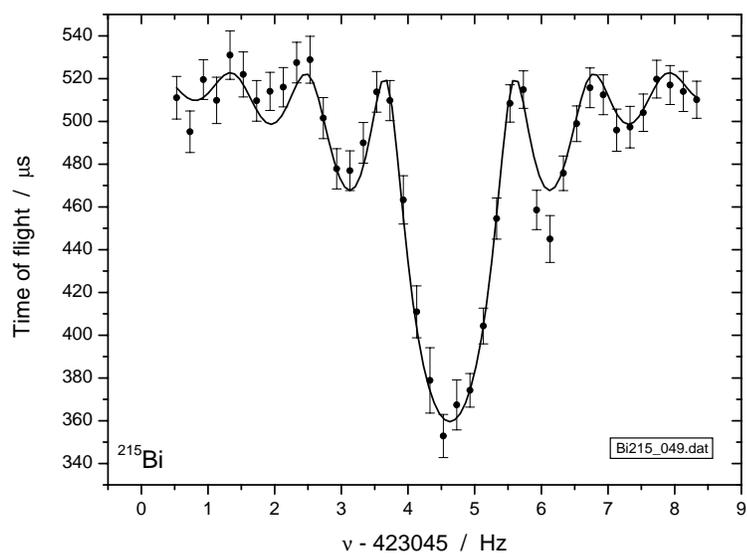
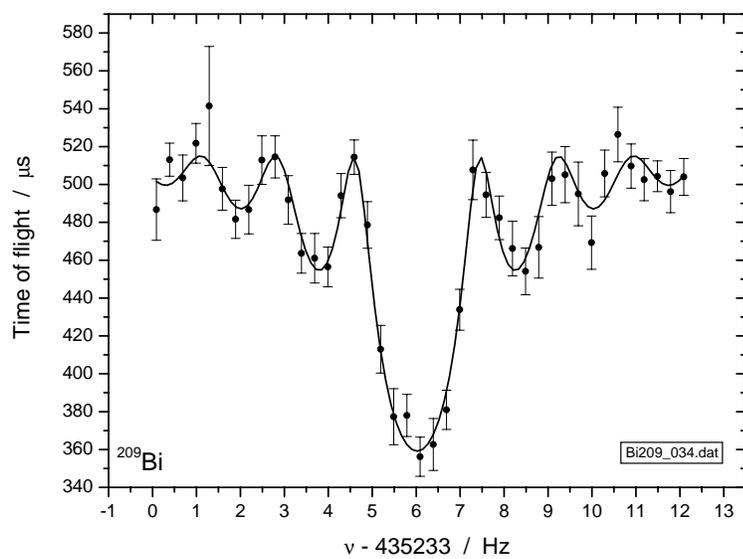
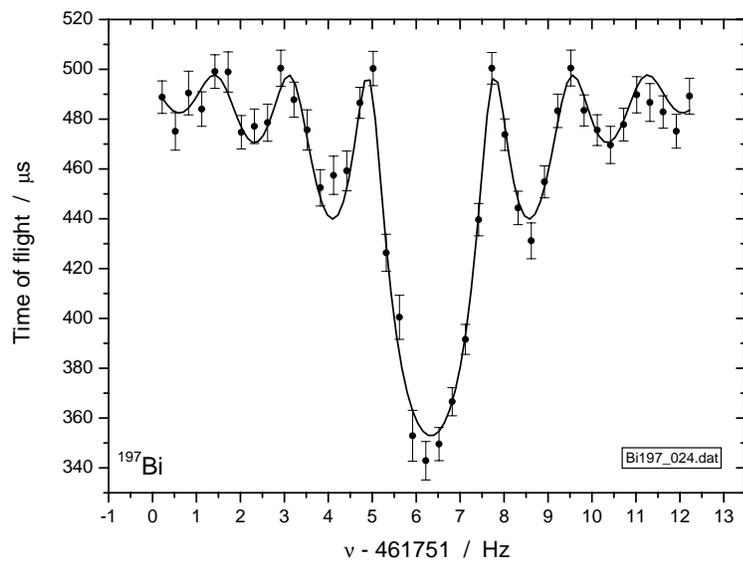


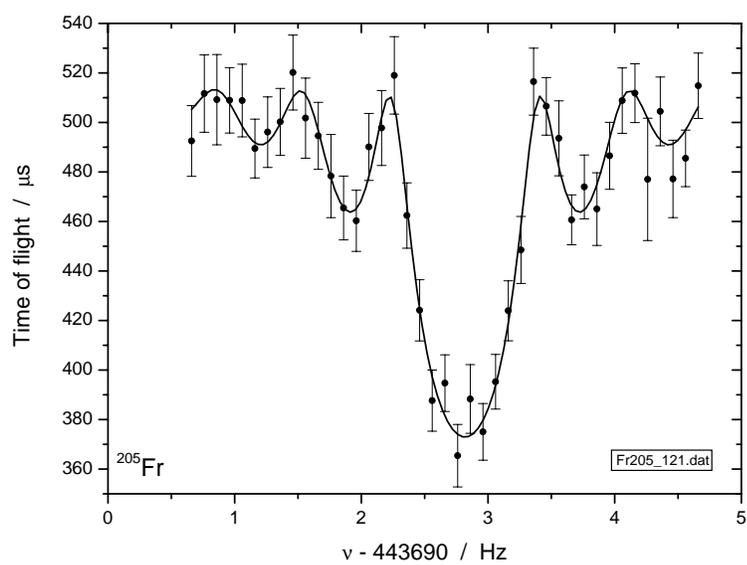
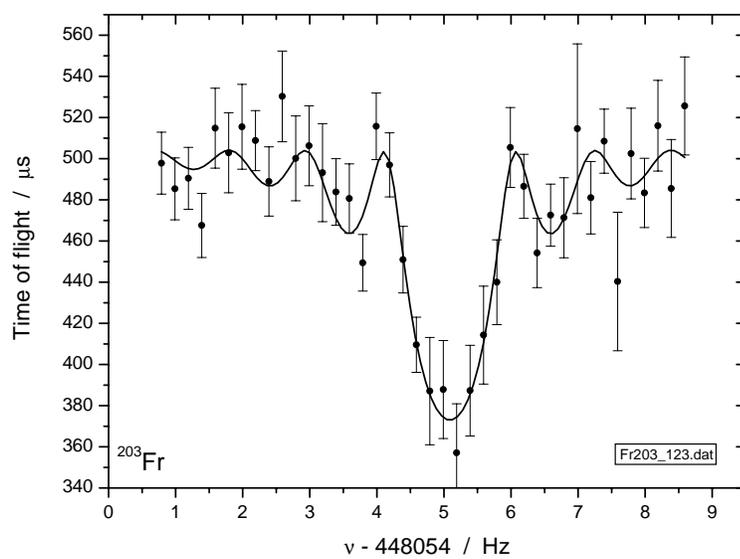
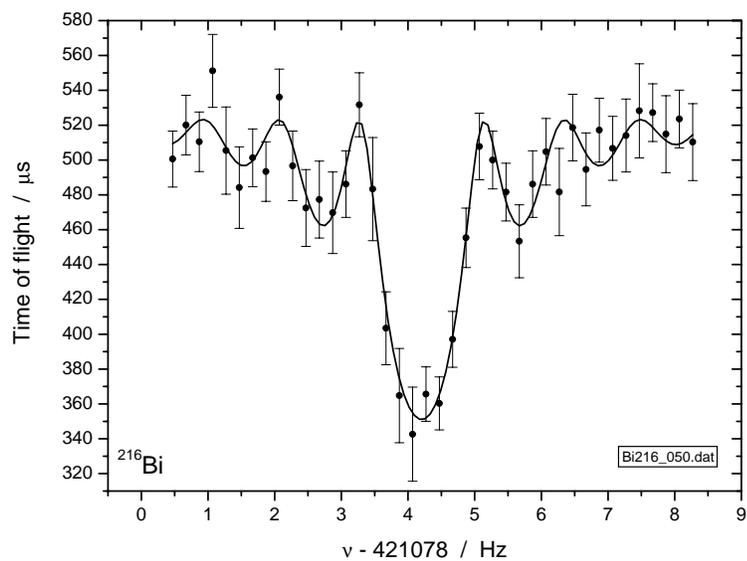


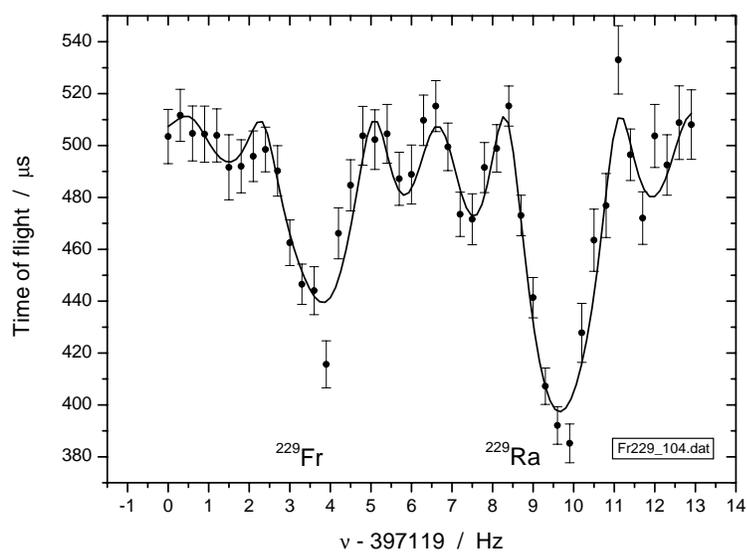
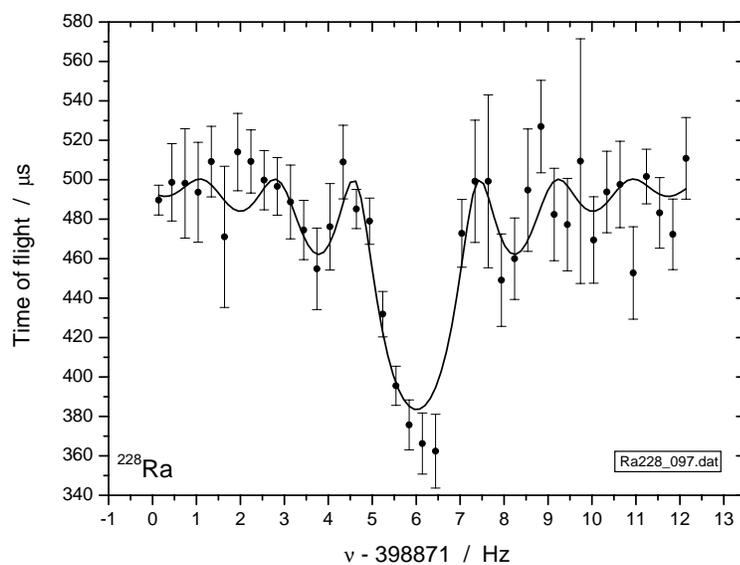
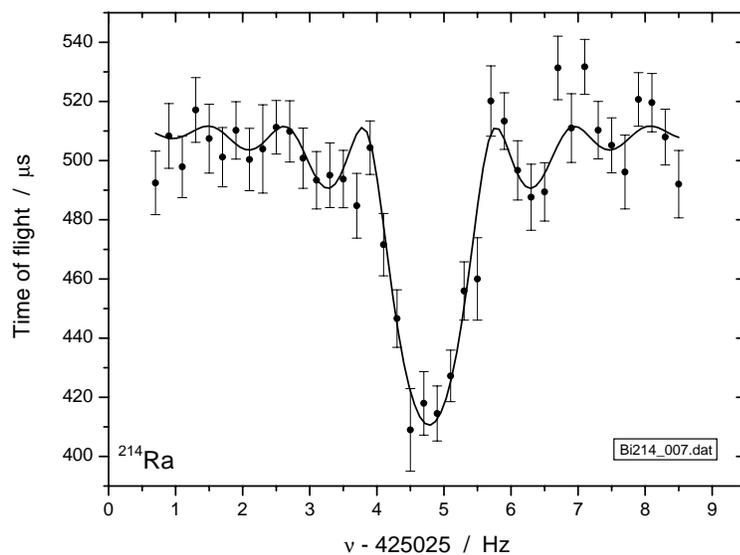


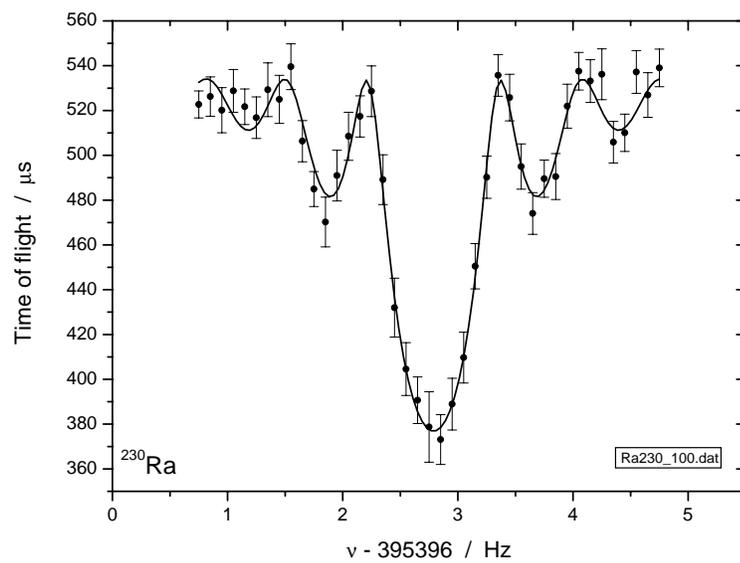














# Literaturverzeichnis

- [Andr1999] A.N. Andreyev, M. Huyse, P. Van Duppen, J.F. Cocks, K. Helariutta, H. Kettunen, P. Kuusiniemi, M. Leino, W.H. Trzaska, K. Eskola, and R. Wyss, *Hindered ( $\Delta l = 0$ ) Alpha Decay and Shape Staggering in  $^{191}\text{Po}$* , Phys. Rev. Lett. **82**, 1819 (1999).
- [Andr2000] A.N. Andreyev, M. Huyse, P. Van Duppen, L. Weissman, D. Ackermann, J. Gerl, F.P. Heßberger, S. Hofmann, A. Kleinböhl, G. Münzenberg, S. Reshitko, C. Schlegel, H. Schaffner, P. Cagarde, M. Matos, S. Saro, A. Keenan, C. Moore, C.D. O’Leary, R.D. Page, M. Taylor, H. Kettunen, M. Leino, A. Lavrentiev, R. Wyss, and K. Heyde, *A Triplet of Differently Shaped Spin-Zero States in the Atomic Nucleus  $^{186}\text{Pb}$* , Nature **405**, 430 (2000).
- [Andr2002a] A.N. Andreyev, K. Van de Vel, A. Barzakh, A. De Smet, H. De Witte, D.V. Fedorov, V.N. Fedoseyev, S. Franchoo, M. Górska, M. Huyse, Z. Janas, U. Köster, W. Kurcewicz, J. Kurpeta, V.I. Mishin, K. Partes, A. Plochocki, P. Van Duppen, and L. Weissman, *Nuclear Spins, Magnetic Moments and  $\alpha$ -Decay Spectroscopy of Long-Lived Isomeric States in  $^{185}\text{Pb}$* , Eur. Phys. J. A **14**, 63 (2002).
- [Andr2002b] A.N. Andreyev, M. Huyse, K. Van de Vel, P. Van Duppen, O. Dorvaux, P. Greenlees, K. Helariutta, P. Jones, R. Julin, S. Juutinen, H. Kettunen, P. Kuusiniemi, M. Leino, M. Muikku, P. Nieminen, P. Rahkila, J. Uusitalo, R. Wyss, K. Hauschild, and Y. Le Coz, *In-Beam and  $\alpha$ -Decay Spectroscopy of  $^{191}\text{Po}$  and Evidence for Triple Shape Coexistence at Low Energy in the Daughter Nucleus  $^{187}\text{Pb}$* , Phys. Rev. C **66**, 014313 (2002).
- [Audi1982] G. Audi, M. Epherre, C. Thibault, A.H. Wapstra, and K. Bos, *Masses of Rb, Cs, and Fr Isotopes*, Nucl. Phys. A **378**, 443 (1982).
- [Audi1993] G. Audi and A.H. Wapstra, *The 1993 Atomic Mass Evaluation*, Nucl. Phys. A **565**, 1 (1993).
- [Audi1995] G. Audi and A.H. Wapstra, *The 1995 Update to the Atomic Mass Evaluation*, Nucl. Phys. A **595**, 409 (1995).

- [Audi1997] G. Audi, O. Bersillon, J. Blachot, and A.H. Wapstra, *The NUBASE Evaluation of Nuclear and Decay Properties*, Nucl. Phys. A **624**, 1 (1997).
- [Audi2001] G. Audi, *The Evaluation of Atomic Masses*, Hyp. Int. **132**, 7 (2001).
- [Audi2003a] G. Audi, Private Mitteilung (2003).
- [Audi2003b] G. Audi, A.H. Wapstra, and C. Thibault, *The AME2003 Atomic Mass Evaluation*, Nucl. Phys. A **729**, 337 (2003).
- [Batc1999] J.C. Batchelder, K.S. Toth, C.R. Bingham, L.T. Brown, L.F. Conticchio, C.N. Davids, R.J. Irvine, D. Seweryniak, W.B. Walters, J. Wauters, E.F. Zganjar, J.L. Wood, C. De Coster, B. Decroix, and K. Heyde, *Behavior of Intruder based States in Light Bi and Tl Isotopes: The Study of  $^{187}\text{Bi}$   $\alpha$ -decay*, Eur. Phys. J. A **5**, 49 (1999).
- [Beck1997a] D. Beck, *Massenbestimmung instabiler Isotope der Seltenen Erden um  $^{146}\text{Gd}$  mit dem ISOLTRAP-Spektrometer*, Dissertation, Mainz 1997.
- [Beck1997b] D. Beck, F. Ames, G. Audi, G. Bollen, H.-J. Kluge, A. Kohl, M. König, D. Lunney, H. Raimbault-Hartmann, S. Schwarz, J. Szerypo, and the ISOLDE Collaboration, *ISOLTRAP: A Tandem Penning Trap System for Accurate On-Line Mass Determination of Short-Lived Isotopes*, Nucl. Instr. and Meth. A **368**, 675 (1996).
- [Beck2000] D. Beck, F. Ames, G. Audi, G. Bollen, F. Herfurth, H.-J. Kluge, A. Kohl, M. König, D. Lunney, I. Martel, R.B. Moore, H. Raimbault-Hartmann, E. Scharck, S. Schwarz, M. de Saint Simon, J. Szerypo, and the ISOLDE Collaboration, *Accurate Masses of Unstable Rare-Earth Isotopes by ISOLTRAP*, Eur. Phys. J. A **8**, 307 (2000).
- [Berg2002] I. Bergström, C. Carlberg, T. Fritioff, G. Douysset, J. Schönfelder, and R. Schuch, *SMILETRAP: A Penning Trap Facility for Precision Mass Measurements using Highly Charged Ions*, Nucl. Instr. and Meth. A **487**, 618 (2002).
- [Bjør1986] T. Bjørnstad, E. Hagebø, P. Hoff, O.C. Jonsson, E. Kugler, H.L. Ravn, S. Sundell, B. Vosicki, and the ISOLDE Collaboration, *Methods for Production of Intense Beams of Unstable Nuclei: New Developments at ISOLDE*, Physica Scripta **34**, 578 (1986).

- [Boll1987] G. Bollen, P. Dabkiewicz, P. Egelhof, T. Hilberath, H. Kalinowski, F. Kern, H. Schnatz, L. Schweikard, H. Stolzenberg, R.B. Moore, H.J. Kluge, G.M. Temmer, G. Ulm, and the ISOLDE Collaboration, *First Absolute Mass Measurements of Short-Lived Isotopes*, *Hyp. Int.* **38**, 793 (1987).
- [Boll1990] G. Bollen, R.B. Moore, G. Savard, and H. Stolzenberg, *The Accuracy of Heavy-Ion Mass Measurements using Time of Flight-Ion Cyclotron Resonance in a Penning Trap*, *J. Appl. Phys.* **68**, 4355 (1990).
- [Boll1992a] G. Bollen, H.-J. Kluge, M. König, T. Otto, G. Savard, H. Stolzenberg, R.B. Moore, G. Rouleau, G. Audi, and the ISOLDE Collaboration, *Resolution of Nuclear Ground and Isomeric States by a Penning Trap Mass Spectrometer*, *Phys. Rev. C* **46**, R2140 (1992).
- [Boll1992b] G. Bollen, H.-J. Kluge, Th. Otto, G. Savard, L. Schweikhard, H. Stolzenberg, G. Audi, R.B. Moore, G. Rouleau, and the ISOLDE Collaboration, *Mass Determination of Francium and Radium Isotopes by a Penning Trap Mass Spectrometer*, *J. Mod. Opt.* **39**, 257 (1992).
- [Boll1996] G. Bollen, S. Becker, H.-J. Kluge, M. König, R.B. Moore, T. Otto, H. Raimbault-Hartmann, G. Savard, L. Schweikard, H. Stolzenberg, and the ISOLDE Collaboration, *ISOLTRAP: A Tandem Penning Trap System for Accurate On-Line Mass Determination of Short-Lived Isotopes*, *Nucl. Instr. and Meth. A* **368**, 675 (1996).
- [Boll2001] G. Bollen, *Mass Measurements of Short-Lived Nuclides with Ion Traps*, *Nucl. Phys. A* **693**, 3 (2001).
- [Brad1999] M.P. Bradley, J.V. Porto, S. Rainville, J.K. Thompson, and D.E. Pritchard, *Penning Trap Measurements of the Masses of  $^{133}\text{Cs}$ ,  $^{87,85}\text{Rb}$ , and  $^{23}\text{Na}$  with Uncertainties  $\leq 0.2$  ppb*, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4510 (1999).
- [Brow1986] L.S. Brown and G. Gabrielse, *Geonium Theory: Physics of a Single Electron or Ion in a Penning Trap*, *Rev. Mod. Phys.* **58**, 233 (1986).
- [Comi1974] M.B. Comisarow and A.G. Marshall, *Fourier Transform Ion Cyclotron Resonance Spectroscopy*, *Chem. Phys. Lett.* **25**, 282 (1974).
- [Comi1978] M.B. Comisarow, *Signal Modeling for Ion Cyclotron Resonance*, *J. Chem. Phys.* **69**, 4097 (1978).

- [Corn1990] E.A. Cornell, R.M. Weiskoff, K.R. Boyce, and D.E. Pritchard, *Mode Coupling in a Penning Trap:  $\pi$  Pulses and a Classical Avoided Crossing*, Phys. Rev. A. **41**, 312 (1990).
- [DiFi1994] F. DiFilippo, V. Natarajan, K.R. Boyce, and D.E. Pritchard, *Accurate Atomic Masses for Fundamental Metrology*, Phys. Rev. Lett. **73**, 1481 (1994).
- [Dill2000] J. Dilling, D. Ackermann, J. Bernard, F.P. Hessberger, S. Hofmann, W. Horning, H.-J. Kluge, E. Lamour, M. Maier, R. Mann, G. Marx, R.B. Moore, G. Münzenberg, W. Quint, D. Rodriguez, M. Schädel, J. Schönfelder, G. Sikler, C. Toader, L. Vermeeren, C. Weber, G. Bollen, O. Engels, D. Habs, P. Thirolf, H. Backe, A. Dretzke, W. Lauth, W. Ludolphs, M. Sewtz, and the SHIPTRAP Collaboration, *The SHIPTRAP Project: A Capture and Storage Facility at GSI for Heavy Radionuclides from SHIP*, Hyp. Int. **127**, 491 (2000).
- [Dill2001] J. Dilling, D. Ackermann, F.P. Hessberger, S. Hofmann, H.-J. Kluge, G. Marx, G. Münzenberg, Z. Patyk, W. Quint, D. Rodriguez, C. Scheidenberger, J. Schönfelder, G. Sikler, A. Sobiczewski, C. Toader, and C. Weber, *A Physics Case for SHIPTRAP: Measuring the Masses of Transuranium Elements*, Hyp. Int. **132**, 495 (2001).
- [Dill2003] J. Dilling, P. Bricault, M. Smith, H.-J. Kluge, and the TITAN Collaboration, *The Proposed TITAN Facility at ISAC for Very Precise Mass Measurements on Highly Charged Short-Lived Isotopes*, Nucl. Instr. and Meth. B **204**, 492 (2003).
- [Dret2001] A. Dretzke, H. Backe, G. Kube, W. Lauth, W. Ludolphs, A. Morbach, and M. Sewtz, *Prospects of Ion Chemical Reactions with Heavy Elements in the Gas Phase*, Hyp. Int. **132**, 501 (2001).
- [Düll2002] Ch.E. Düllmann, W. Bröchle, R. Dressler, K. Eberhardt, B. Eichler, R. Eichler, H.W. Gäggeler, T.N. Ginter, F. Glaus, K.E. Gregorich, D.C. Hoffmann, E. Jäger, D.T. Jost, U.W. Kirbach, D.M. Lee, H. Nitsche, J.B. Patin, V. Perschina, D. Pignuet, Z. Qin, M. Schädel, B. Schausten, E. Schimpf, H.-J. Schött, S. Sovrana, R. Sudowe, P. Thörle, S.N. Timokhin, N. Trautmann, A. Türler, A. Vahle, G. Wirth, A.B. Yakushev, and P.M. Zielinski, *Chemical Investigation of Hassium (Element 108)*, Nature **418**, 859 (2002).
- [Fedo2003] V.N. Fedoseyev, Private Mitteilung (2003).
- [Foss2002] R. Fossion, C. De Coster, J.E. García-Ramos, T. Werner, and K. Heyde, *Nuclear Binding Energies: Global Collective Structure and Local Shell-Model Correlations*, Nucl. Phys. A **697**, 703 (2002).

- [Fran1987] B. Franzke, H. Geissel, and G. Münzenberg,  
*Mass Measurements of Stored Fragments*,  
GSI Proposal (1987).
- [Frau1975] S. Frauendorf and V.V. Pashkevich,  
*An Oblate-Prolate Transition in the Ground-State Rotational Band of Light Mercury Isotopes*,  
Phys. Lett. **55B**, 365 (1975).
- [Gabr1983] G. Gabrielse,  
*Relaxation Calculation of the Electrostatic Properties of Compensated Penning Traps with Hyperbolic Electrodes*,  
Phys. Rev. A **27**, 2277 (1983).
- [Gabr1989] G. Gabrielse, L. Haarsma, and S.L. Rolston,  
*Open-Endcap Penning Trap for High Precision Experiments*,  
Int. J. Mass. Spectrom. Ion Process. **88**, 319 (1989).
- [Geis1992] H. Geissel, P. Armbruster, K.H. Behr, A. Brünle, K. Burkard, M. Chen, H. Folger, B. Franczak, H. Keller, O. Klepper, B. Langenbeck, F. Nickel, E. Pfeng, M. Pfützner, E. Roeckl, K. Rykaczewski, I. Schall, D. Schardt, C. Scheidenberger, K.-H. Schmidt, A. Schröter, T. Schwab, K. Sümmerer, M. Weber, G. Münzenberg, T. Brohm, H.-G. Clerc, M. Fauerbach, J.-J. Gaimard, A. Grewe, E. Hanelt, B. Knödler, M. Steiner, B. Voss, J. Weckenmann, C. Ziegler, A. Magel, H. Wollnik, J.P. Dufour, Y. Fujita, D.J. Vieira, and B. Sherrill,  
*The GSI Projectile Fragment Separator (FRS): A Versatile Magnetic System for Relativistic Heavy Ions*,  
Nucl. Instr. and Meth. B **70**, 286 (1992).
- [Ghos1995] P.K. Ghosh,  
*Ion Traps*,  
International Series of Monographs on Physics **90**,  
Clarendon Press, Oxford (1995).
- [Gräf1980] G. Gräff, H. Kalinowski, and J. Traut,  
*A Direct Determination of the Proton Electron Mass Ratio*,  
Z. Phys. A **297**, 35 (1980).
- [Häff2003] H. Häffner, T. Beier, S. Djekić, N. Hermanspahn, H.-J. Kluge, W. Quint, S. Stahl, J. Verdú, T. Valenzuela, and G. Werth,  
*Double Penning Trap Technique for Precise  $g$  Factor Determination in Highly Charged Ions*,  
Eur. Phys. J. D **22**, 163 (2003).
- [Hard2001] J.C. Hardy and I.S. Towner,  
*Standard-Model Tests with Superallowed  $\beta$ -Decay: An Important Application of Very Precise Mass Measurements*,  
Hyp. Int. **132**, 115 (2001).
- [Herf2001a] F. Herfurth,  
*A New Ion Beam Cooler and Buncher for ISOLTRAP and Mass Measurements*

- of Radioactive Argon Isotopes*,  
Dissertation, Heidelberg 2001.
- [Herf2001b] F. Herfurth, J. Dilling, A. Kellerbauer, G. Bollen, S. Henry, H.-J. Kluge, E. Lamour, D. Lunney, R.B. Moore, C. Scheidenberger, S. Schwarz, G. Sikler, and J. Szerypo,  
*A Linear Radiofrequency Ion Trap for Accumulation, Bunching, and Emittance Improvement of Radioactive Ion Beams*,  
Nucl. Instr. and Meth. A **469**, 254 (2001).
- [Herf2002] F. Herfurth, A. Kellerbauer, F. Ames, G. Audi, D. Beck, K. Blaum, G. Bollen, O. Engels, H.-J. Kluge, D. Lunney, R.B. Moore, M. Oinonen, E. Sauvan, C. Scheidenberger, S. Schwarz, G. Sikler, C. Weber, and the ISOLDE Collaboration,  
*Accurate Mass Measurements of Very Short-lived Nuclei - Prerequisites for High-Accuracy Investigations of Superallowed  $\beta$ -Decays*,  
Eur. Phys. J. A **15**, 17 (2002).
- [Herf2003] F. Herfurth, F. Ames, G. Audi, D. Beck, K. Blaum, G. Bollen, A. Kellerbauer, H.-J. Kluge, M. Kuckein, D. Lunney, R.B. Moore, M. Oinonen, D. Rodriguez, E. Sauvan, C. Scheidenberger, S. Schwarz, G. Sikler, C. Weber, and the ISOLDE Collaboration,  
*Mass Measurement and Nuclear Physics - Recent Results from ISOLTRAP*,  
J. Phys. B **36**, 931 (2003).
- [Heyd1983] K. Heyde, P. Van Isacker, M. Waroquier, J.L. Wood, and R.A. Meyer,  
*Coexistence in Odd-Mass Nuclei*,  
Phys. Rep. **102**, 291 (1983).
- [Heyd1990] K. Heyde,  
*A Shell-Model Description of Intruder States and Shape Coexistence*,  
Nucl. Phys. A. **507**, 149c (1990).
- [HITR2002] *The HITRAP Project*,  
*A Facility for High-Accuracy Experiments with Trapped Ions at GSI*,  
GSI Darmstadt, Oktober 2002.
- [Hofm2000] S. Hofmann and G. Münzenberg,  
*The Discovery of the Heaviest Elements*,  
Rev. Mod. Phys. **72**, 733 (2000).
- [ISOL1997] G. Bollen, F. Herfurth, et al.,  
*High-Accuracy Mass Determination of Unstable Nuclei with a Penning Trap Mass Spectrometer*,  
CERN/ISC 97 - 30, 17 November, 1997.
- [Kell2001] A. Kellerbauer, T. Kim, R.B. Moore, and P. Varfalvy,  
*Buffer Gas Cooling of Ion Beams*,  
Nucl. Instr. and Meth. A **469**, 276 (2001).
- [Kell2002] A. Kellerbauer,  
*A Study of the Accuracy of the Penning Trap Mass Spectrometer ISOLTRAP and*

- Standard-Model Tests with Superalloyed Beta Decays*,  
Dissertation, Heidelberg 2002.
- [Kell2003] A. Kellerbauer, K. Blaum, G. Bollen, F. Herfurth, H.-J. Kluge, M. Kuckein, E. Sauvan, C. Scheidenberger, and L. Schweikard,  
*From Direct to Absolute Mass Measurements: A Study of the Accuracy of ISOL-TRAP*,  
Eur. Phys. J. D **22**, 53 (2003).
- [Köni1991] M. König,  
*Massenspektrometrische Auflösung von Isomer und Grundzustand in einer Penningfalle und Untersuchungen zur Coulombwechselwirkung gespeicherter Ionen*,  
Diplomarbeit, Mainz 1991.
- [Köni1995a] M. König, G. Bollen, H.-J. Kluge, T. Otto, and J. Szerypo,  
*Quadrupole Excitation of Stored Ion Motion at the True Cyclotron Frequency*,  
Int. J. Mass. Spectrom. Ion Process. **142**, 95 (1995).
- [Köni1995b] M. König,  
*Präzisionsmassenbestimmung instabiler Cäsium- und Bariumisotope in einer Penningfalle und Untersuchungen der Ionenbewegung bei azimuthaler Quadrupolanregung*,  
Dissertation, Mainz 1995.
- [Köst2000] U. Köster, V.N. Fedoseyev, V.I. Mishin, L. Weissman, M. Huyse, K. Kruglov, W.F. Mueller, P. Van Duppen, J. Van Roosbroeck, P. Thirolf, H.G. Thomas, D. Weisshaar, W. Schulze, R. Borcea, M. La Commara, H. Schatz, K. Schmidt, S. Röttger, G. Huber, V. Sebastian, K.L. Kratz, R. Catherall, U. Georg, J. Lettry, M. Oinonen, H.L. Ravn, H. Simon, and the ISOLDE Collaboration,  
*Isomer Separation of  $^{70g}\text{Cu}$  and  $^{70m}\text{Cu}$  with a Resonance Ionization Laser Ion Source*,  
Nucl. Instr. and Meth. B **160**, 528 (2000).
- [Köst2002] U. Köster,  
*Resonance Ionization Laser Ion Sources*,  
Nucl. Phys. A **701**, 441c (2002).
- [Köst2003] U. Köster, V.N. Fedoseyev, A.N. Andreyev, U.C. Bergmann, R. Catherall, J. Cederkäll, M. Dietrich, H. De Witte, D. V. Fedorov, L. Fraile, S. Franchoo, H. Fynbo, U. Georg, T. Giles, M. Gorska, M. Hannawald, M. Huyse, A. Joinet, O.C. Jonsson, K.L. Kratz, K. Kruglov, Ch. Lau, J. Lettry, V.I. Mishin, M. Oinonen, K. Partes, K. Peräjärvi, B. Pfeiffer, H.L. Ravn, M.D. Seliverstov, P. Thirolf, K. Van de Vel, P. Van Duppen, J. Van Roosbroeck, L. Weissman, IS365, IS387, and IS393 ISOLDE Collaborations,  
*On-Line Yields Obtained with the ISOLDE RILIS*,  
Nucl. Instr. and Meth. B **204**, 347 (2003).
- [Kohl1999] A. Kohl,  
*Direkte Massenbestimmung in der Bleigegend und Untersuchung eines Starkeffekts in der Penningfalle*,  
Dissertation, Heidelberg 1999.

- [Kolh2003] V.S. Kolhinen, T. Eronen, J. Hakala, A. Jokinen, S. Kopecky, S. Rinta-Antila, J. Szerypo, and J. Äystö,  
*Penning Trap for Isobaric Mass Separation at IGISOL*,  
Nucl. Instr. and Meth. B **204**, 502 (2003).
- [Kuck2002] M. Kuckein,  
*Phase-Locked Magnetron Excitation and Implementation of a SWIFT Cleaning Mechanism at ISOLTRAP*,  
Diplomarbeit, TU München 2002.
- [Kugl2000] E. Kugler,  
*The ISOLDE Facility*,  
Hyp. Int. **129**, 23 (2000).
- [Litv2003] Yu.A. Litvinov,  
*Basic Nuclear Properties of Neutron-Deficient Nuclei investigated via High Precision Mass Measurements in the Element Range of  $36 \leq Z \leq 92$* ,  
Dissertation, Giessen 2003.
- [Lunn2003] D. Lunney, J.M. Pearson, and C. Thibault,  
*Recent Trends in the Determination of Nuclear Masses*,  
Rev. Mod. Phys. **75**, 1021 (2003).
- [Magn1999] Magnex Scientific LTD,  
*Technical Specification* (1999).
- [Mars1985] A.G. Marshall, T.-C. L. Wang, and T. Ricca,  
*Tailored Excitation for Fourier Transform Ion Cyclotron Resonance Mass Spectrometry*,  
J. Am. Chem. Soc. **107**, 7893 (1985).
- [Mars1998] A.G. Marshall, C.L. Hendrickson, and G.S. Jackson,  
*Fourier Transform Ion Cyclotron Resonance Mass Spectrometry: A Primer*,  
Mass. Spectr. Revs. **17**, 1 (1998).
- [Marx2001] G. Marx, D. Ackermann, J. Dilling, F.P. Hessberger, S. Hoffmann, H.-J. Kluge, R. Mann, G. Münzenberg, Z. Qamhieh, W. Quint, D. Rodríguez, M. Schädel, J. Schönfelder, G. Sikler, C. Toader, C. Weber, O. Engels, D. Habs, P. Thierolf, H. Backe, A. Dretzke, W. Lauth, W. Ludolphs, M. Sewtz, and the SHIPTRAP Collaboration,  
*Status of the SHIPTRAP Project: A Capture and Storage Facility for Heavy Radionuclides from SHIP*,  
Hyp. Int. **132**, 463 (2001).
- [Mish1993] V.I. Mishin, V.N. Fedoseyev, H.-J. Kluge, V.S. Letokhov, H.L. Ravn, F. Scheerer, S. Sundell, Y. Shirakabe, and O. Tengdblad,  
*Chemically Selective Laser Ion-Sources for the CERN-ISOLDE On-Line Mass Separator Facility*,  
Nucl. Instr. and Meth. B **73**, 550 (1993).
- [Moor1992] F.L. Moore, L.S. Brown, D.L. Farnham, P.B. Schwinberg, and R.S. Van Dyck,  
*Cyclotron Resonance with  $10^{-11}$  Resolution: Anharmonic Detection and Beating*

- a Coherent Drive with the Noise*,  
Phys. Rev. A **46**, 2653 (1992).
- [Münz1979] G. Münzenberg, W. Faust, S. Hofmann, P. Armbruster, K. Güttner, and H. Ewald,  
*The Velocity Filter SHIP, A Separator of Unslowed Heavy Ion Fusion Products*,  
Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res. **161**, 65 (1979).
- [Neum2003] J. Neumayr, L. Beck, D. Habs, S. Heinz, J. Szerypo, P. Thierolf, V. Varentsov,  
F. Voit, and A. Wilfart,  
*The Gas Stopping Cell and Extraction RFQ for SHIPTRAP*,  
GSI Jahresbericht 2002, Seite 108.
- [Neum2004] J. Neumayr,  
Dissertation, LMU München, in Vorbereitung.
- [Niem2001] A. Nieminen, J. Huikari, A. Jokinen, J. Äystö, P. Campbell, E.C.A. Cochrane,  
and the EXOTRAPs Collaboration,  
*Beam Cooler for Low-Energy Radioactive Ions*,  
Nucl. Instr. and Meth. A **469**, 244 (2001).
- [Nils1969] S.G. Nilsson, C.F. Tsang, A. Sobiczewski, Z. Szymanski, S. Wycech, C. Gustafson,  
I.L. Lamm, P. Möller, and B. Nilsson,  
*On the Nuclear Structure and Stability of Heavy and Superheavy Elements*,  
Nucl. Phys. A **131**, 1 (1969).
- [Novi2002] Yu.N. Novikov, F. Attallah, F. Bosch, M. Falch, H. Geissel, M. Hausmann,  
Th. Kerscher, O. Klepper, H.-J. Kluge, C. Kozhuharov, Yu.A. Litvinov, K.E.G. Løbner,  
G. Münzenberg, Z. Patyk, T. Radon, C. Scheidenberger, A.H. Wapstra, and H. Wollnik,  
*Mass Mapping of a New Area of Neutron-Deficient Suburanium Nuclides*,  
Nucl. Phys. A **697**, 92 (2002).
- [Novi2003] Yu.N. Novikov,  
Private Mitteilung (2003).
- [NUCL2003] AMDC - Atomic Mass Data Center,  
*PC-Nucleus* - Programm, das Daten der NUBASE-Datenbank beinhaltet,  
<http://csnwww.in2p3.fr/amdc/>.
- [Otte1989] E.W. Otten,  
*Nuclear Radii and Moments of Unstable Isotopes*,  
Treatise on Heavy Ion Physics **8**, 517 (1989),  
Edited by D.A. Bromley.
- [Paty1989] Z. Patyk, A. Sobiczewski, P. Armbruster, and K.-H. Schmidt,  
*Shell Effects in the Properties of the Heaviest Elements*,  
Nucl. Phys. A **491**, 267 (1989).
- [Rado2000] T. Radon, H. Geissel, G. Münzenberg, B. Franzke, Th. Kerscher, F. Nolden,  
Yu.N. Novikov, Z. Patyk, C. Scheidenberger, F. Attallah, K. Beckert, T. Beha,  
F. Bosch, H. Eickhoff, M. Falch, Y. Fujita, M. Hausmann, F. Herfurth, H. Irnich,  
H.C. Jung, O. Klepper, C. Kozhuharov, Yu.A. Litvinov, K.E.G. Løbner,

- F. Nickel, H. Reich, W. Schwab, B. Schlitt, M. Steck, K. Sümmerer, T. Winkler, and H. Wollnik,  
*Schottky Mass Measurements of Stored and Cooled Neutron-Deficient Projectile Fragments in the Element Range of  $57 \leq Z \leq 84$ ,*  
Nucl. Phys. A **677**, 75 (2000).
- [Raim1997] H. Raimbault-Hartmann, D. Beck, G. Bollen, M. König, H.-J. Kluge, E. Schark, J. Stein, S. Schwarz, and J. Szerypo,  
*A Cylindrical Penning Trap for Capture, Mass Selective Cooling and Bunching of Radioactive Ion Beams,*  
Nucl. Instr. and Meth. B **126**, 378 (1997).
- [Rain2001] S. Rainville, M.P. Bradley, J.V. Porto, J.K. Thomson, and D.E. Pritchard,  
*Precise Measurements of the Masses of Cs, Rb, and Na - A New Route to the Fine Structure Constant,*  
Hyp. Int. **132**, 177 (2001).
- [Rodr2003] D. Rodríguez Rubiales,  
*An RFQ Buncher for Accumulation and Cooling of Heavy Radionuclides at SHIPTRAP and High Precision Mass Measurements on Unstable Kr Isotopes at ISOLTRAP,*  
Dissertation, Valencia 2003.
- [Sava1991] G. Savard, St. Becker, G. Bollen, H.-J. Kluge, R.B. Moore, Th. Otto, L. Schweikard, H. Stolzenberg, and U. Wiess,  
*A New Cooling Technique for Heavy Ions in a Penning Trap,*  
Phys. Lett. A **158**, 247 (1991).
- [Sava2001] G. Savard, R.C. Barber, C. Boudreau, F. Buchinger, J. Caggiano, J. Clark, J.E. Crawford, H. Fukutani, S. Gulick, J.C. Hardy, A. Heinz, J.K.P. Lee, R.B. Moore, K.S. Sharma, J. Schwartz, D. Seweryniak, G.D. Sprouse, and J. Vaz,  
*The Canadian Penning Trap Spectrometer at Argonne,*  
Hyp. Int. A **132**, 221 (2001).
- [Schö1999] J. Schönfelder,  
Private Mitteilung (1999).
- [Schö2002] J. Schönfelder, D. Ackermann, H. Backe, G. Bollen, J. Dilling, A. Dretzke, O. Engels, J. Estermann, D. Habs, S. Hofmann, F.P. Hessberger, H.-J. Kluge, W. Lauth, W. Ludolphs, M. Maier, G. Marx, R.B. Moore, W. Quint, D. Rodríguez, M. Sewtz, G. Sikler, C. Toader, and C. Weber,  
*SHIPTRAP - A Capture and Storage Facility for Heavy Radionuclides at GSI,*  
Nucl. Phys. A **701**, 579c (2002).
- [Schw1998] S. Schwarz,  
*Manipulation radioaktiver Ionenstrahlen mit Hilfe einer Paulfalle und direkte Massenmessungen an neutronenarmen Quecksilberisotopen mit dem ISOLTRAP-Experiment,*  
Dissertation, Mainz 1998.

- [Schw2001] S. Schwarz, F. Ames, G. Audi, D. Beck, G. Bollen, C. De Coster, J. Dilling, O. Engels, R. Fossion, J.-E. Garcia Ramos, S. Henry, F. Herfurth, K. Heyde, A. Kellerbauer, H.-J. Kluge, A. Kohl, E. Lamour, D. Lunney, I. Martel, R.B. Moore, M. Oinonen, H. Raimbault-Hartmann, C. Scheidenberger, G. Sikler, J. Szerypo, and C. Weber,  
*Accurate Masses of Neutron-Deficient Nuclides Close to  $Z = 82$ ,*  
Nucl. Phys. A **693**, 533 (2001).
- [Schw2003] S. Schwarz, G. Bollen, D. Lawton, P. Lofy, D.J. Morrissey, J. Ottarson, R. Ringle, P. Schury, T. Sun, V. Varentsov, and L. Weissman,  
*The Low-Energy-Beam and Ion-Trap Facility at NSCL/MSU,*  
Nucl. Instr. and Meth. B **204**, 507 (2003).
- [SHIP1998] J. Äystö, et al.,  
*Proposal for SHIPTRAP - A Capture and Storage Facility at GSI for Heavy Radionuclides from SHIP,*  
<http://www-aix.gsi.de/shiptrap/publication.htm>.
- [Sikl2003a] G. Sikler,  
*Massenspektrometrie kurzlebige Sr- und Sn- Isotope und Aufbau der SHIPTRAP-Penningfallen,*  
Dissertation, Heidelberg 2003.
- [Sikl2003b] G. Sikler, D. Ackermann, F. Attallah, D. Beck, J. Dilling, S.A. Elisseev, H. Geissel, D. Habs, S. Heinz, F. Herfurth, F. Heßberger, S. Hofmann, H.-J. Kluge, C. Kozhuharov, G. Marx, M. Mukherjee, J. Neumayr, W.R. Plaß, W. Quint, S. Rahaman, D. Rodríguez, C. Scheidenberger, M. Tarisien, P. Thierolf, V. Varentsov, C. Weber, and Z. Zhou,  
*First On-Line Test of SHIPTRAP,*  
Nucl. Instr. and Meth. B **204**, 482 (2003).
- [Stah1998] S. Stahl,  
*Aufbau eines Experimentes zur Bestimmung elektronischer g-Faktoren einzelner wasserstoffähnlicher Ionen,*  
Dissertation, Mainz 1998.
- [Stah1999] S. Stahl,  
Private Mitteilung (1999).
- [Stol1992] H. Stolzenberg,  
*Präzisionsmassenbestimmung instabiler Cäsium und Bariumisotope mit Hilfe einer Penningfalle,*  
Dissertation, Mainz 1992.
- [VanD1991] P. Van Duppen, P. Decroock, P. Dendooven, M. Huyse, G. Reusen, and J. Wauters,  
*Intruder States in Odd-Odd Tl Nuclei Populated in the  $\alpha$ -Decay of Odd-Odd Bi Isotopes,*  
Nucl. Phys. A **529**, 268 (1991).
- [VanD2001] R.S. Van Dyck, S.L. Zafonte, and P.B. Schwinberg,  
*Ultra-Precise Mass Measurements Using the UW-PTMS,*  
Hyp. Int. **132**, 163 (2001).

- [Weiz1935] C. F. von Weizsäcker,  
*Zur Theorie der Kernmassen*,  
Z. Phys. **96**, 431 (1935).
- [Whit1979] G.K. White,  
*Experimental Techniques in Low-Temperature Physics*,  
Oxford University Press, (1979).
- [Wine1975] D.J. Wineland and H.G. Dehmelt,  
*Principles of the Stored Ion Calorimeter*,  
J. Appl. Phys. **46**, 919 (1975).
- [Witt] H. De Witte,  
Dissertation, Leuven, in Vorbereitung.
- [Wood1992] J.L. Wood, K. Heyde, W. Nazarewicz, M. Huyse, and P. Van Duppen,  
*Coexistence in Even-Mass Nuclei*,  
Phys. Rep. **215**, 101 (1992).

## Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all denen danken, die zum Gelingen dieser Doktorarbeit beigetragen haben:

Zuallererst gilt mein Dank Prof. Dr. H.–Jürgen Kluge für das Vertrauen und die Möglichkeit diese Arbeit durchzuführen. Ohne seine Unterstützung und sein Interesse wäre dies nicht möglich gewesen. Besonders möchte ich mich für seine hilfreichen Ratschläge bedanken.

Dr. Gerrit Marx danke ich für die Ermutigung, selbst nach zwei Jahren ohne Physik mit einer Doktorarbeit zu beginnen. Dies würde ich jederzeit wieder tun.

Für die Startphase des FT–ICR Projekts an SHIPTRAP möchte ich Dr. Gerrit Marx, Dr. Johannes Schönfelder, Dr. Wolfgang Quint und Dr. Stefan Stahl danken. Ihre Begeisterung und ihre Erfahrung waren eine große Hilfe, die sich auch über ihre Zeit an der GSI fortgesetzt hat. Herrn Einert von der Firma CryoVac danke ich für die Diskussionen über technische Details zum Kryostat–Aufbau. Durch seine Erfahrung konnten vor allem an den kritischen Stellen des Aufbaus professionelle Lösungen gefunden werden. Dr. Medhi Tarisien sei für die Konstruktionszeichnungen der Reinigungsfalle und Dr. Stefan Stahl für die detaillierten Diskussionen zu den technischen Zeichnungen und die Elektronik–Entwicklungen gedankt.

Prof. Dr. Georg Bollen danke ich für die Anregungen zum Design der hyperbolischen Penningfalle und sein Interesse am SHIPTRAP–Experiment. Ein Dankeschön geht an Dr. Stefan Schwarz für seine Tipps und Programme, wie z.B. die neue Version des Suszi–Programms.

Den ISOLTRAP–Teams aus den Jahren 2000 bzw. 2002 sei für die gemeinsame Zeit am Experiment gedankt. Hierzu gehören Dr. Friedhelm Ames, Dr. Dietrich Beck, Dr. Klaus Blaum, Prof. Dr. Georg Bollen, Dr. Oliver Engels, Dr. Frank Herfurth, Dr. Alban Kellerbauer, Prof. Dr. H.–Jürgen Kluge, Dipl.–Phys. Michael Kuckein, Dr. Markku Oinonen und Dr. Stefan Schwarz.

Dr. Georges Audi möchte ich für die Zeit in Orsay danken. Sein Interesse an dem 'Isomeren–Puzzle' und die gemeinsame Durchführung der Atomaren Massenauswertung waren sehr lehrreich und interessant.

Mein Dank gilt den weiteren Mitarbeitern von SHIPTRAP, dem SHIP–Team und der Atomphysik–Gruppe der GSI:

Dr. Dieter Ackermann, Dr. Faouzi Attallah, Dr. Michael Block, Prof. Dr. Fritz Bosch, Dr. Sophie Heinz, Dr. Fritz Heßberger, Prof. Dr. Sigurd Hofmann, Dr. Christophor Kozhuharov, Steffi Lüttges, Dipl.–Phys. Manas Mukherjee, Dipl.–Phys. Jürgen Neumayr, Dipl.–Phys. Saidur Rahman, Dr. Daniel Rodríguez, Dr. Günther Sikler, Dr. Cristian Toader und Dr. Peter Thierolf.

Ein Dank geht an Herrn Markus Romig stellvertretend für die GSI–Werkstatt für die professionellen Arbeiten sowie an Siegbert Felzer, Peter Becker und Erich Wagner von der mechanischen Werkstatt am Institut für Physik in Mainz für die sorgfältige Fertigung der beiden Penningfallen.

Für die Durchsicht dieser Arbeit und die anregenden Diskussionen möchte ich mich bei Dr. Klaus Blaum und Dr. Dietrich Beck bedanken.

Meinem Büronachbarn Dr. Thomas Beier ein Dankeschön für die Anleitungen zu LaTeX und die geteilten Schokoladenvorräte.

Schließlich ein großes Dankeschön an Michael Hofmann, Dr. Conny Lorenz, Dr. Sven Toleikis und Karin Wegmann.

