

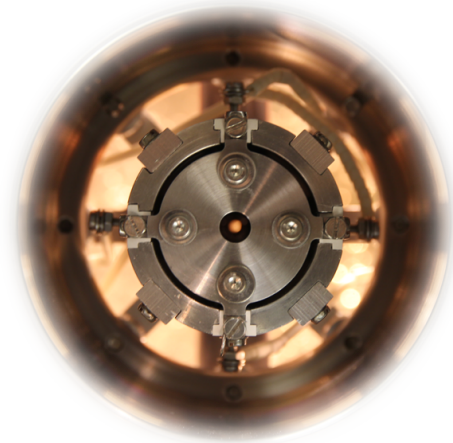
**Implementierung
der Laserionenquellenfalle LIST
bei ISOLDE und
Validierung der Spezifikationen
Effizienz und Selektivität**

Sven Richter

geboren am 11.05.1983

in Wiesbaden

Dissertation zur Erlangung des Grades
Doktor der Naturwissenschaften



Institut für Physik
Johannes Gutenberg Universität Mainz
Deutschland
April 2015

1. Berichterstatter:
2. Berichterstatter:

Datum der mündlichen Prüfung: 28.07.2015

Versicherung

für das Gesuch um Zulassung zur Promotion am Fachbereich 08

Hiermit versichere ich gemäß §12 Abs. 3e der Promotionsordnung des Fachbereichs 08, Physik, Mathematik und Informatik der Johannes Gutenberg-Universität Mainz vom 02.01.2013:

- a) Ich habe die jetzt als Dissertation vorgelegte Arbeit selbstständig verfasst. Es wurden ausschließlich die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet. Von der Ordnung zur Sicherung guter wissenschaftlicher Praxis in Forschung und Lehre und vom Verfahren zum Umgang mit wissenschaftlichen Fehlverhalten habe ich Kenntnis genommen.
- b) Ich habe oder hatte die jetzt als Dissertation vorgelegte Arbeit nicht schon als Prüfungsarbeit für eine andere Prüfung eingereicht.
- c) Ich hatte weder die jetzt als Dissertation vorgelegte Arbeit noch Teile davon an einer anderen Stelle als Dissertation eingereicht.

Datum und Unterschrift

Zusammenfassung

Die Funktionsweise der Laserionenquellenfalle LIST, sowie deren Implementierung bei der Forschungseinrichtung ISOLDE am CERN als neue Standard-Ionenquelle und die ermittelten Spezifikationen Effizienz und Selektivität werden vorgestellt.

Durch die Implementierung der LIST bei ISOLDE konnte on-line mit Hilfe von Radionukliden ein Minimalwert zur Unterdrückung von Kontaminationen durch die LIST bestimmt werden. Die erfolgreiche Unterdrückung von Francium-Kontamination ermöglichte es, neue Messdaten für den mittleren Ladungsradius und die Hyperfeinstruktur für $^{217}_{84}\text{Po}$ zu erzeugen.

Um die Funktionalität der LIST bei ISOLDE hinsichtlich der Ionisationseffizienz gegenüber anderen Ionenquellen einzuordnen, wurden in Mainz am RISIKO-Massenseparator mit der bereits existierenden Standard-Ionenquelle RILIS und der LIST die Effizienzen bestimmt und miteinander verglichen. Es konnte gezeigt werden, dass die LIST im Modus hoher Ionisationseffizienz eine vergleichbare Effizienz aufweist wie die RILIS. Im Modus zur Produktion eines hochreinen Ionenstrahls ist die Ionisationseffizienz gegenüber der RILIS reduziert.

Da die Bestimmung der Selektivität im On-line-Betrieb aufwendig und zeitintensiv ist, wurde die Reinheit des Ionenstrahls am RISIKO-Massenseparator mittels Laufzeitmessungen der Ionen off-line bestimmt und analysiert. Die Zeitstrukturen der RILIS ermöglichen einerseits Rückschlüsse auf die Reinheit des Ionenstrahls zu ziehen, andererseits konnte auch die Ionisation außerhalb des Atomisators, in dem überwiegend die resonante Ionisation stattfindet, nachgewiesen werden. Durch diesen Nachweis kann der Effizienzverlust während der Produktion eines hochreinen Ionenstrahls erklärt werden. Zudem bietet er einen Ansatz für weitere Entwicklungsarbeiten der LIST zur Steigerung der Effizienz.

Eine Übertragung der Messergebnisse zur Zeitstruktur der RILIS auf die LIST eröffnet neue Möglichkeiten zur Steigerung deren Selektivität im massenselektiven Mode. Dieser wurde anhand von Simulationen überprüft und mit Messungen an Kalium experimentell quantifiziert.

Datum und Unterschrift des Betreuers

Abstract

The functionality of the Laser Ion Source and Trap LIST at the research facility ISOLDE at CERN is represented. It's implementation as a standard ion source and the measured specifications of the efficiency and selectivity are described.

Due to the implementation of this ion source at ISOLDE the lowest suppression factor of contaminants could be measured by use of radio nuclides. New data for the mean-square charge radius and hyperfine structure of $^{217}_{84}\text{Po}$ resulted from the successful suppression of Francium contamination.

To compare the ionization efficiency of the LIST with other commonly used ion sources, measurements with the standard ISOLDE laser ion source RILIS and with the LIST at the RISIKO mass separator in Mainz were carried out. In the high efficient ionization mode the LIST showed a ionization efficiency in comparable range as the RILIS. In the high-purity ion beam mode the ionization efficiency is decreased.

Because of the complex and time-consuming measurements of the selectivity of ion sources, the radio chemical purity of the ion beam was analyzed off-line at the RISIKO mass separator in Mainz by time of flight measurements. These measurements using the RILIS allow conclusions to be drawn about the purity of the ion beam. Furthermore, the ionization process outside of the atomizer, the volume of the resonant ionization process, could be verified. The efficiency loss in the production of a high-purity ion beam by the LIST can be interpreted by this verification. Also new approaches for improvements to increase the ionization efficiency can be deduced from the measurements.

A transfer of the measurements of the RILIS time structure to the LIST opens new opportunities to increase its selectivity in mass-selective operation. This behavior was checked by simulations and quantified experimentally by measurements on Potassium.

Datum und Unterschrift des Betreuers

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	vii
Tabellenverzeichnis	xi
1. Einleitung	1
2. Theoretische Grundlagen	3
2.1. Laser	3
2.1.1. Lasermedium	4
2.1.2. Inversion	5
2.1.3. Frequenzselektion	9
2.1.4. Nichtlineare Optik	14
2.2. Ionisationsprozesse	16
2.2.1. Oberflächenionisation	16
2.2.2. Laserionisation	17
2.3. Linearer Quadrupolmassenfilter	21
2.4. Produktion von Radionukliden	29
3. Experimenteller Aufbau	31
3.1. Massenseparator	31
3.2. Ionenquelle	40
3.2.1. RILIS	41
3.2.2. LIST	43
3.3. Lasersysteme	48
4. Experimentelle Verfahren	51
4.1. Probenzubereitung	51
4.2. Messung des Massenspektrums	52
4.3. Effizienzmessung	53
4.4. Zeitstrukturmessung	54
4.5. Ermittlung der LIST Parameter	55
4.5.1. Repeller-Scan	55
4.5.2. RF-Amplituden-Scan	57
4.6. Wellenlängen-Scan	57
4.7. Sättigungsmessung	58

5. Implementierung und Messungen mit der LIST bei ISOLDE	59
5.1. Adaption der LIST für den On-line-Betrieb	59
5.2. On-line-Messung mit einem Titan-Target	60
5.2.1. Bestimmung der LIST-Parameter	61
5.2.2. Bestimmung der Zeitstruktur mit der LIST	61
5.2.3. Zusammenfassung der On-line-Messung	64
5.3. On-line-Messung mit einem Urancarbid-Target	64
5.3.1. Bestimmung der LIST-Parameter	65
5.3.2. α -Spektren mit der LIST	66
5.3.3. Messung der Hyperfeinstruktur von $^{217}_{84}\text{Po}$	71
5.3.4. Bestimmung des mittleren Ladungsradius	72
5.3.5. Zusammenfassung der On-Line-Messung	73
6. Messungen der Effizienz	75
6.1. Vergleich der Ionenquellen	75
6.1.1. Massenauflösung	77
6.1.2. Analyse der Isotopenverteilung	80
6.1.3. Nachbarmasseneinfluss	81
6.2. Ionisationseffizienz	83
6.2.1. RILIS	84
6.2.2. LIST im IG-Mode	90
6.2.3. LIST im LIST-Mode	97
6.3. Zusammenfassung der Effizienzmessungen	103
7. Messungen zur Selektivität	105
7.1. Zeitstrukturanalyse	105
7.1.1. Durchführung der Zeitstrukturmessung	105
7.1.2. Modellbeschreibung zur Analyse der Zeitstruktur	109
7.1.3. Analyse der Zeitstruktur 1	111
7.1.4. Analyse der Zeitstruktur 2	111
7.1.5. Analyse der Zeitstruktur 3	112
7.1.6. Interpretation der Analysen für die LIST	115
7.2. Massenselektiver Betrieb	116
7.2.1. Simulationsstudie der massenselektiven LIST	117
7.2.2. Simulationsergebnisse	122
7.2.3. Experimentelle Umsetzung	125
7.2.4. Experimentelle Ergebnisse	127
8. Simulationsstudie zum Ioneneintritt in die Quadrupolstruktur	131
9. Zusammenfassung und Ausblick	137
A. Weitere RILIS Effizienzmessungen	141
B. Datenübersicht	149

Abbildungsverzeichnis

2.1. Laserkomponenten	3
2.2. Absorptions- und Emissionsprozesse mit Besetzungsverteilung	4
2.3. Drei-Niveau-System des Rubin-Lasers	7
2.4. Vier-Niveau-System des Titan-Saphir-Lasers.	8
2.5. Absorptions- und Emissionsspektrum des Ti:Sa-Kristalls	9
2.6. Funktionsweise eines Lyot-Filters	10
2.7. Transmission eines Lyot-Filter	11
2.8. Funktionsweise eines Fabry-Pérot-Etalons	12
2.9. Transmission eines Fabry-Pérot-Etalons	13
2.10. Ionisationsübergänge resonanter Anregungen	18
2.11. Energieniveaus im Coulomb-Potential und im externen Feld	20
2.12. Elektrodenstruktur einer Paulfalle und eines Massenfilters	22
2.13. Sattelpotential	23
2.14. Stabilitätsdiagramm eines Quadrupols	25
2.15. Stabilitätsdiagramm eines Quadrupols und Ionenoszillationen	28
2.16. Produktionsprozesse von Radionukliden	29
3.1. Funktion des RISIKO Massenseparators	32
3.2. Extraktionselektrode	33
3.3. Einzellinse	34
3.4. Ablenkereinheit	35
3.5. Massenspektrum eines Nadelscanners	36
3.6. Faraday Becher	37
3.7. Sekundärelektronenvervielfacher	38
3.8. Signal des SEV und des Diskriminators	39
3.9. ISOLDE Detektoren: Tape-Station und Windmill-Detektor	40
3.10. Quelleneinheit	41
3.11. Oberflächenionenquelle	42
3.12. Laser Ion Source and Trap (LIST)	44
3.13. Segmentierte LIST	45
3.14. Schaltkreis der Transducerbox	47
3.15. Spektrale Bereiche eines Farbstoff- und eines Ti:Sa-Lasers	49
3.16. Layout eines Ti:Sa-Lasers	50
4.1. Probenzubereitung	52
4.2. Repeller-Scans für den LSF und den LLF	56

5.1.	On-line-Target-Einheit für die LIST	60
5.2.	Titanfolien als Targetmaterial	60
5.3.	Resonantes Anregungsschema für Magnesium	61
5.4.	Zeitstruktur der LIST	62
5.5.	Longitudinaler Potentialverlauf der LIST	63
5.6.	Urancarbidstab als Targetmaterial	64
5.7.	Resonantes Anregungsschema für Polonium	65
5.8.	On-line-Repellerscans von radioaktiven Isotopen	66
5.9.	Vergleich der α -Spektren: Oberflächenionenquelle und LIST	67
5.10.	Vergleich der α -Spektren: RILIS und LIST	68
5.11.	α -Spektrum für $A = 217$ u	69
5.12.	α -Spektrum für $A = 218$ u	70
5.13.	Hyperfeinstrukturmessung an Polonium	71
5.14.	Mittlerer Ladungsradius für Polonium	72
6.1.	Wellenlängen-Scan des Ionisationsschritts von Ytterbium	76
6.2.	Resonantes Anregungsschema für Ytterbium	77
6.3.	Ytterbium-Massenspektrum der RILIS	78
6.4.	Ytterbium-Massenspektrum der LIST	79
6.5.	Resonantes Anregungsschema für Holmium	81
6.6.	Massenspektren von Holmium unterschiedlicher Intensität	82
6.7.	Sättigungsmessung der resonanten Übergänge von Ytterbium	84
6.8.	Effizienzmessung: RILIS 1	87
6.9.	Effizienzmessung: RILIS 2	88
6.10.	Effizienzmessung: RILIS 3	89
6.11.	Effizienzmessung: IG 1	91
6.12.	Effizienzmessung: IG 2	92
6.13.	Effizienzmessung: IG 3	93
6.14.	Massenspektrum einer Blindprobe	96
6.15.	Effizienzmessung: LIST 1	98
6.16.	Effizienzmessung: LIST 2	99
6.17.	Effizienzmessung: LIST 3	100
6.18.	Effizienzmessung: LIST 4	101
7.1.	Zeitstruktur für $m = 174$ u (Ytterbium)	106
7.2.	Zeitstruktur für $m = 180$ u	107
7.3.	Zeitstruktur des Extraktionspeaks mit Massenspektrum	108
7.4.	Axialer Potentialverlauf der RISIKO	110
7.5.	Laufzeitberechnungen der Zeitstruktur 2	112
7.6.	Ausschnitt des axialen Potentialverlaufs der RISIKO	113
7.7.	Laufzeitberechnungen der Zeitstrukturen 2 und 3	114
7.8.	Zählrate in Abhängigkeit der Startposition	115
7.9.	Simulationsmodell zur Berechnung der Ionentrajektorien	118
7.10.	Startparameter für die Simulationsberechnungen	119

7.11. Potentiale der LIST im IG-Mode	120
7.12. Ausschnitt der Potentiale der LIST im IG-Mode	120
7.13. Stabile und instabile Trajektorien in der LIST	121
7.14. Stabilitätsbereiche: Variation der statischen Elektroden Spannungen . . .	123
7.15. Stabilitätsbereiche: Variation der Startenergie	124
7.16. Stabilitätsbereich: Variation der Startposition	125
7.17. Erweiterter Schaltkreis der Transducerbox zum massenselektiven Betrieb .	126
7.18. Stabilitätsbereich für ^{39}K -Kalium	127
7.19. Spitzen der Stabilitätsbereiche für Kalium	128
7.20. Massenspektren im massenselektiven Betrieb für Kalium	129
8.1. Simulation unter Variation des Repellerpotentials und der Startposition	132
8.2. Simulation unter Variation der Startwinkel	133
8.3. Simulation unter Variation der Teilchendichteverteilung	134
8.4. Vergleich experimenteller Daten mit der Simulation	135
A.1. Effizienzmessung: RILIS A	142
A.2. Effizienzmessung: RILIS B	143
A.3. Effizienzmessung: RILIS C	144
A.4. Effizienzmessung: RILIS D	145
A.5. Effizienzmessung: RILIS E	146
A.6. Effizienzmessung: RILIS F	147

Tabellenverzeichnis

2.1. Auswahlregeln elektrischer Dipolübergänge	18
4.1. Hersteller zertifizierter Proben	51
5.1. Unterdrückungsfaktoren der LIST mit einem Titan-Target	62
5.2. Unterdrückungsfaktoren der LIST mit einem Urancarbid-Target	66
6.1. Isotopenverteilung von Ytterbium	75
6.2. Ytterbium-Massenauflösung mit der RILIS	78
6.3. Ytterbium-Massenauflösung mit der LIST	80
6.4. Experimentell ermittelte Isotopenverteilung von Ytterbium	81
6.5. Nachbarmasseneinflusses von Holmium	83
6.6. Fitparameter der Sättigungsmessung	84
6.7. Zusammenfassung der RILIS Effizienzmessungen	86
6.8. Zusammenfassung der LIST Effizienzmessungen im IG-Mode	94
6.9. Zusammenfassung der LLF bestimmt im IG-Mode	97
6.10. Zusammenfassung der LIST Effizienzmessungen im LIST-Mode	102
6.11. Zusammenfassung der LLF im LIST-Mode	102
7.1. Maximale Startpositionen für unterschiedliche Massen	116
7.2. Spannungen der LIST für unterschiedliche Massen	122
7.3. Betriebsparameter im massenselektiven Betrieb für Kalium	129
A.1. Zusammenfassung vorhergehender RILIS Effizienzmessungen	141
B.1. Zusammenstellung der Messdateien	151

1. Einleitung

In der Kern- und Atomphysik werden immer neue Erkenntnisse über die Struktur instabiler Nuklide erlangt. Um diese Forschung an diesen sogenannten exotischen Isotopen weiter voranzutreiben, sind nach der künstlichen Produktion dieser Atome hochselektive Auswahlverfahren bezüglich des gewünschten Isotops notwendig. Diese werden primär durch die Ionenquelle und die Dispersion der dabei zum Einsatz kommenden On-Line Isotopenseparatoren verwirklicht. Ein Maß für die Qualität der Auswahl ist neben der *Effizienz* die *Selektivität*, die durch das Verhältnis der Anzahl der gewünschten Isotope zur Anzahl aller anderen Isotope, den *Kontaminationen*, definiert wird. Im einfachsten Fall werden Atome in einer Ionenquelle ionisiert und auf Basis des Masse-Ladungsverhältnisses nach der Masse sortiert. Bei diesen Verfahren werden aber keine Isobare, die auch beim Produktionsprozess entstehen, herausgefiltert.

Exotischer Atome werden an den Forschungseinrichtung ISOLDE am CERN [BGK⁺03] in Genf und TRIUMF in Vancouver [LBLP07] durch eine Kernreaktion durch Beschuss eines Targetmaterials mit Nukleonen erzeugt. Diese werden durch Effusion in eine heiße Kavität geleitet, damit sie zur resonanten Ionisation mit Laserstrahlen als freie Atome zur Verfügung stehen. Dieses Verfahren wird in der sog. RILIS (Resonant Ionization Laser Ion Source) angewendet. Man erhält so einen Ionenstrahl mit einem höheren Anteil der gewünschten Ionen als er in einem Strahl durch reine Oberflächenionisation entspricht. Durch Oberflächenionisation in der heißen Kavität können aber auch unerwünschte Ionen als Kontaminationen entstehen. Mit einem nachfolgenden Massenfilter können Ionen der gewünschten Masse selektiert werden. Diese Selektion umfasst jedoch auch isobare Ionen der Kontaminationen. Mit einer statisch geladenen Repellerelektrode können Ionen am Austritt aus der Kavität gehindert werden. Nur neutrale Atome können in Form eines Atomstrahls das Ionisationsvolumen des Lasers außerhalb der heißen Kavität erreichen und dort resonant ionisiert werden. Aus dem nun elementenreinen Ionenstrahl kann mit dem nachfolgenden Massenseparator ein Isotop mit sehr geringer isobarer Kontamination selektiert werden. Dieses Verfahren wird mit der an der Universität in Mainz entwickelten Laserionenquellenfalle LIST (Laser Ion Source & Trap) realisiert.

An der Katholischen Universität Leuven [KAB⁺96], der Universität Jyväskylä [MKS⁺10] und der Forschungseinrichtung RIKEN in Japan [MYI⁺92] werden exotische Atome mit einer Kernreaktion durch Beschuss einer dünnen Targetfolie mit Nukleonen produziert. Die entstehenden Ionen werden elektrisch neutralisiert und als Atome in einer Gaszelle thermalisiert. In dem Gasfluss werden sie resonant durch die Laserstrahlen ionisiert und durch eine Multipol-Ion-Guide-Struktur vom Gas separiert. Man erhält auch hierbei

1. Einleitung

einen elementenreinen Ionenstrahl, da keine Kontaminationen aus Oberflächenionisation entstehen können. Mit Hilfe eines Massenseparators kann nunmehr ein Isotop mit sehr geringer isobarer Kontamination selektiert werden. Jedoch können mit dieser Methode keine kurzlebigen Atome untersucht werden.

Die vorliegende Arbeit stützt sich auf vorangegangene Entwicklungsarbeiten zur aktiven Unterdrückung der Kontamination bei der Ionisierung für die Ionenquelle der Forschungseinrichtung ISOLDE. Dafür wurde ein Prototyp einer Ionenquelle entwickelt und deren Funktionalität getestet. Eine endgültige Integration bei ISOLDE und Aufnahme in den regelmäßigen Messbetrieb stand seinerzeit noch aus und wurde im Rahmen dieser Arbeit realisiert. Weiterhin sollten zusätzliche Maßnahmen zur Steigerung der Selektivität sowie gleichzeitig auch der Ionenausbeute, also der Effizienz der Ionenquelle, überprüft werden, ohne dabei die Infrastruktur der Ionenquelle, wie sie nun bei ISOLDE eingesetzt wird wesentlich zu ändern. Die angestrebten Verbesserungen der Effizienz und Selektivität sollten durch entsprechende Messungen verifiziert werden.

2. Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden die theoretischen Grundlagen zu den verwendeten Lasern, zu den Ionisationsprozessen und zur Wirkungsweise der linearen Quadrupolfilter beschrieben.

2.1. Laser

Mit dem Begriff *Laser*¹ werden sowohl der zugrundeliegende Prozess zur Erzeugung eines kohärenten Lichtstrahls als auch umgangssprachlich die entsprechenden Geräte bezeichnet. Da die Laser für dieses Projekt ausschließlich als Arbeitsmittel eingesetzt werden, wird deren Funktionsweise aus [Dem07, Dem10] zusammengefasst und erklärt.

Im Allgemeinen sind für den Betrieb eines Lasers drei Komponenten notwendig: Eine *Energiequelle*, ein *Lasermedium* und ein *Resonator*. Der recht komplexe Prozess des Lasers ist schematisch in Abbildung 2.1 dargestellt und kann vereinfacht wie folgt zusammengefasst werden:

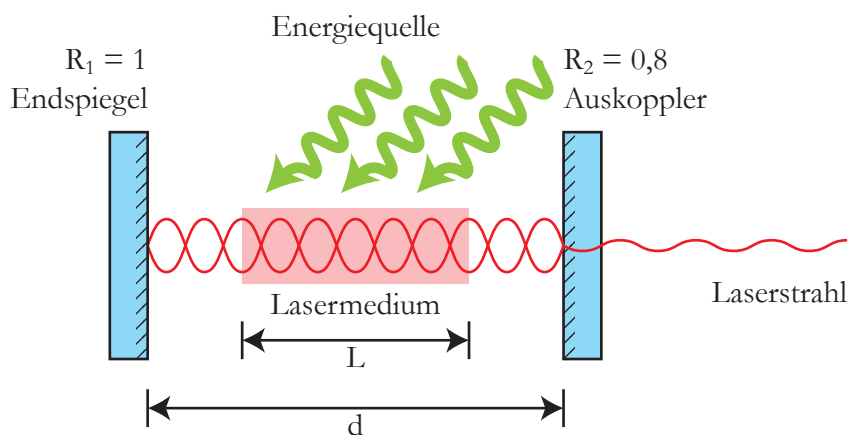


Abbildung 2.1.: Schematische Darstellung eines Lasers mit Lasermedium, hochreflektierendem Endspiegel und Auskoppelspiegel.

Die Energiequelle versorgt das Lasermedium mit Energie. Der Resonator besteht im einfachsten Fall aus mindestens einem Endspiegel mit der Reflektivität $R_1 = 1$ und einem Auskoppelspiegel mit der Reflektivität $R_2 < 1$. Der Resonator bildet überhöhte stehende Wellen, die sogenannten Resonatormoden, deren halbe Wellenlängen $\lambda_n/2$ ein

¹Laser ist das englische Akronym zu *Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation*

2. Theoretische Grundlagen

ganzzahliges Vielfaches n der Länge des Resonators d entspricht, $d = n \lambda_n / 2$. Wenn die Moden das Lasermedium durchlaufen, werden sie durch die stimulierte/induzierte Emission verstärkt. Am Auskoppelspiegel wird ein Teil der in dem Mode gespeicherten Energie als Laserstrahl ausgekoppelt.

2.1.1. Lasermedium

Von Bedeutung ist das Lasermedium und die in ihm stattfindenden Prozesse: *induzierte Absorption*, *induzierte Emission* und *spontane Emission*. In Abbildung 2.2a) ist dazu ein vereinfachtes atomares Zwei-Niveau-System mit den Zuständen $|i\rangle$ und $|k\rangle$ und den dazugehörigen Energien E_i und E_k mit $E_i < E_k$ dargestellt.

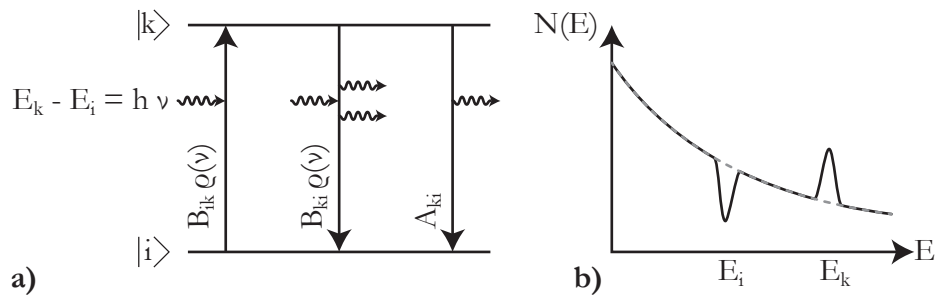


Abbildung 2.2.: a) Schematische Darstellung der induzierten Absorption, Emission und spontanen Emission. b) Besetzungsverteilung $N(E)$ im thermischen Gleichgewicht $N(E_i) > N(E_k)$ (gestrichelte Linie) und in Inversion $N(E_i) < N(E_k)$ (durchgezogene Linie)

Induzierte Absorption

Bei der induzierten Absorption eines Photons der Energie $h\nu = E_k - E_i$ wird ein Atom des Lasermediums aus dem tiefer liegenden Energiezustand $|i\rangle$ in den höher liegenden Energiezustand $|k\rangle$ überführt. Die Wahrscheinlichkeit \mathcal{P}_{ik} dieses Prozesses hängt vom Einstein-Koeffizienten der induzierten Absorption B_{ik} und der spektralen Energiedichte des Strahlungsfeldes $\rho(\nu)$ ab.

$$\mathcal{P}_{ik} = B_{ik}\rho(\nu) \quad (2.1)$$

Induzierte Emission

Befindet sich das Atom bereits im angeregten Zustand $|k\rangle$, so kann dieses unter Emission eines Photons der gleichen Energie $h\nu = E_k - E_i$ in den tieferen Zustand $|i\rangle$ übergehen. Dabei wird explizit zwischen der induzierten und der spontanen Emission unterschieden. Bei der induzierten Emission wird durch ein schon vorhandenes Photon passender Energie die Emission eines identischen Photons aus einem angeregten Atom des Mediums induziert. Das emittierte Photon ist somit eine Kopie mit identischer Phase, Wellenlänge und Ausbreitungsrichtung. Die Wahrscheinlichkeit \mathcal{P}_{ki} dieses Prozesses

hängt vom Einstein-Koeffizienten der induzierten Emission B_{ki} und ebenfalls von der spektralen Energiedichte des Strahlungsfeldes ab.

$$\mathcal{P}_{ki} = B_{ki}\rho(\nu) \quad (2.2)$$

Spontane Emission

Bei einem Übergang eines Atoms aus dem energetisch höheren Zustand $|k\rangle$ in den niedrigeren Zustand $|i\rangle$ ohne Interaktion mit einem induzierenden Photon liegt spontane Emission vor. Die Wahrscheinlichkeit $\mathcal{P}_{\text{spontan}}$ dieses Prozesses ist unabhängig vom Strahlungsfeld und hängt nur von dem Einstein-Koeffizient der spontanen Emission A_{ki} ab.

$$\mathcal{P}_{\text{spontan}} = A_{ki} \quad (2.3)$$

2.1.2. Inversion

Weist aufgrund einer externen Energiezufuhr das höher liegende Energieniveau hingegen eine deutlich größere Besetzungsdichte auf als das tiefer liegende Energieniveau $N(E_k) = N_k > N(E_i) = N_i$, dann überwiegt die induzierte Emissionsrate $N_k B_{ki}\rho(\nu)$ gegenüber der Absorptionsrate $N_i B_{ik}\rho(\nu)$. Dadurch wird die Anzahl der Photonen, die das Lasermedium verlassen, erhöht. Dieser Zustand wird *Inversion* genannt. Eine Darstellung einer entsprechenden Besetzungsverteilung ist in Abbildung 2.2b) in Anlehnung an [Dem07] gezeigt.

Im stationären thermischen Gleichgewicht entspricht die Summe aus spontaner und induzierter Emission der induzierten Absorption.

$$A_{ki}N_k + B_{ki}\rho(\nu)N_k = B_{ik}\rho(\nu)N_i \quad (2.4)$$

Das Verhältnis der Besetzungszahlen N_i , N_k ist durch die Boltzmann-Verteilung gegeben, wobei g_i und g_k die statistischen Gewichte der Zustände $|i\rangle$ bzw. $|k\rangle$ mit Gesamtdrehimpulsen J ($g = 2J + 1$), k_B die Boltzmannkonstante und T die absolute Temperatur beschreiben.

$$\frac{N_k}{N_i} = \frac{g_k}{g_i} e^{-h\nu/k_B T} \quad (2.5)$$

Einerseits erhält man aus den Gleichungen (2.4) in (2.5) für die spektrale Energiedichte des Strahlungsfeldes:

$$\rho(\nu) = \frac{g_i}{g_k} \frac{B_{ik}}{B_{ki}} \frac{A_{ki}}{B_{ki}} \frac{1}{e^{h\nu/k_B T} - 1}, \quad (2.6)$$

andererseits beschreibt das Planck'sche Strahlungsgesetz die Energiedichte mit

$$\rho(\nu) = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3} \frac{1}{e^{h\nu/k_B T} - 1}. \quad (2.7)$$

Aus dem Vergleich der Gleichungen (2.6) und (2.7) können zwei wesentliche Relationen abgeleitet werden.

2. Theoretische Grundlagen

$$B_{ki} = \frac{g_i}{g_k} B_{ik} \quad (2.8)$$

$$A_{ki} = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3} B_{ki} \quad (2.9)$$

Gleichung (2.8) zeigt, dass bei gleichen statistischen Gewichten $g_i = g_k$ die Einstein-Koeffizienten für die induzierte Emission und Absorption gleich groß sind. Mit $B_{ki}h\nu$ wird die Wahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit beschrieben, dass ein Photon eines Modes die induzierte Emission auslöst. Entsprechend beschreibt Gleichung (2.9) die Situation, dass das Verhältnis von spontaner Emission gleich der induzierten Emission ist, falls das Strahlungsfeld im Mittel ein Photon pro Mode enthält. Dieses Verhältnis ist somit direkt proportional zu der Anzahl n der Photonen in einem Mode.

$$\frac{\mathcal{P}_{ki}}{\mathcal{P}_{\text{spontan}}} = \frac{B_{ki}nh\nu}{A_{ki}c^3/8\pi\nu^2} = n \quad (2.10)$$

Es existiert ein Schwellenwert $\Delta N_{\text{Schwelle}}$, der angibt, für welche Differenz der Besetzungszahlen der Niveaus N_k und N_i eine Verstärkung im Lasermedium einsetzen kann. Für die Abnahme der Intensität $I(\nu, z)$ eines Strahles der Frequenz ν bei Passieren eines absorbierenden Mediums mit dem Absorptionskoeffizienten $\alpha(\nu)$ nach einer Strecke z gilt das Beer'sche Absorptionsgesetz.

$$I(\nu, z) = I(\nu, 0) e^{-\alpha(\nu)z} \quad (2.11)$$

Der Absorptionskoeffizient $\alpha(\nu)$ kann ausgedrückt werden durch den Absorptionsquerschnitt $\sigma(\nu)$, die Besetzungszahlen und die statistischen Gewichte der beteiligten Niveaus.

$$\alpha(\nu) = \left[N_i - \frac{g_i}{g_k} N_k \right] \sigma(\nu) \quad (2.12)$$

Bei einer Inversion $N_k > g_k/g_i N_i$ wird der Absorptionskoeffizient negativ. Hat das Lasermedium die Länge L , so wird nach einem vollständigen Umlauf in einem Resonator der einfachen Länge d die Intensität um den Verstärkungsfaktor $G(\nu)$ verstärkt.

$$G(\nu) = \frac{I(\nu, 2d)}{I(\nu, 0)} = e^{-2\alpha(\nu)L} > 1 \quad (2.13)$$

Da es sich nicht um einen idealen Resonator handelt, muss die Verstärkung größer sein, als die Verluste, die durch Reflexionen, Streuung, Beugung oder Absorption hervorgerufen werden. Alle Verluste nach einem Umlauf im Resonator werden in einem gemeinsamen Koeffizienten $\gamma(\nu)$ beschrieben.

$$\frac{I(\nu, 2d)}{I(0)} = e^{-\gamma(\nu)} \quad (2.14)$$

Es erfolgt eine Anpassung des Verstärkungsfaktors $G(\nu)$ an diese Verluste pro Resonatorumlauf.

$$G(\nu) = e^{-(2\alpha(\nu)L + \gamma(\nu))} > 1 \quad (2.15)$$

Damit induzierte Emission stattfindet, muss der Exponent in Gleichung 2.15 positiv werden.

$$2 \underbrace{\left(N_i - \frac{g_i}{g_k} N_k \right)}_{=-\Delta N} \sigma(\nu) L + \gamma(\nu) < 0 \quad (2.16)$$

Bei konstanten Werten für $\sigma(\nu)$, L und $\gamma(\nu)$ kann somit eine Schwellenbedingung bezüglich der Inversion gegeben werden.

$$\Delta N = N_k \frac{g_i}{g_k} - N_i \geq \Delta N_{\text{Schwelle}} \quad \text{mit} \quad \Delta N_{\text{Schwelle}} = \frac{\gamma(\nu)}{2\sigma(\nu) L} \quad (2.17)$$

Man kann anschaulich erklären, dass in einem Zwei-Niveau-System mit $g_i = g_k$ keine Inversion erreicht werden kann. Sobald sich die Hälfte der Zustände im höheren Niveau $|k\rangle$ befindet, dominiert die induzierte Emission und somit kann keine Inversion aufgebaut werden. Nur in einem Mehrstufenniveau kann eine Überhöhung des Niveaus N_k gegenüber N_i erreicht werden. Die Energiezufuhr zum Erreichen einer Inversion wird als *Pumpen* bezeichnet.

Rubinlaser

Betrachtet sei das Drei-Niveau-System eines Rubinlasers in Abbildung 2.3. Das Lasermedium besteht aus mit Cr^{3+} dotiertem Korund (Al_2O_3). Die Cr^{3+} -Ionen im Kristall verbreitern die oberen Energieniveaus E_{k1} und E_{k2} , so dass ein kontinuierliches Spektralband, hier im grünen und blauen Wellenlängenbereich, absorbiert werden kann. Die angeregten Niveaus geben einen Teil ihrer Energie durch Gitterschwingungen sehr schnell ab und zerfallen innerhalb von 10^{-10} bis 10^{-11} s in das metastabile Energieniveau E_l , das

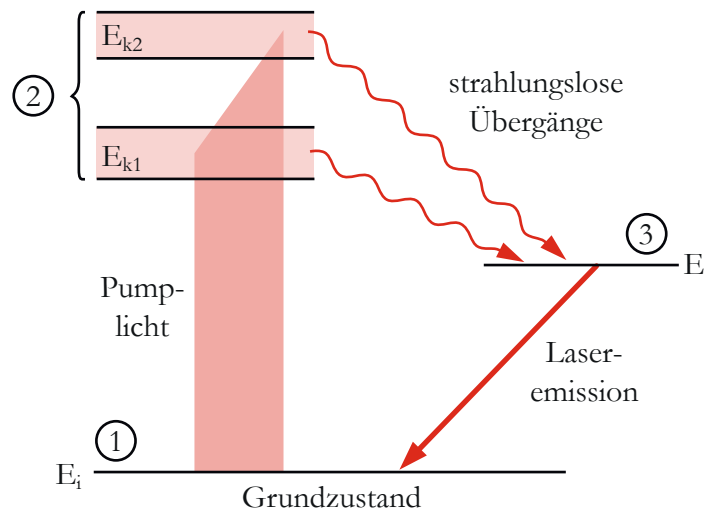


Abbildung 2.3.: Drei-Niveau-System des Rubin-Lasers, adaptiert aus [Dem10].

(1) Grundzustand 4A_2 , (2) angeregte Energieniveaus 4F_1 und 4F_2 , (3) metastabiles Energieniveau 2E (Dublett)

2. Theoretische Grundlagen

eine lange Relaxationszeit von $\tau = 1/A_{li} \approx 3 \text{ ms}$ hat, so dass eine Inversion erzeugt wird, sofern der Grundzustand hinreichend entvölkert ist. Durch spontane Emission $|l\rangle \rightarrow |i\rangle$ wird der Prozess der induzierten Emission in Gang gesetzt.

Titan-dotierter Saphirlaser

Das Niveau-System eines Titan-dotierten Saphirkristalls (*Ti:Sa*) entspricht quasi einem Vier-Niveau-System und bietet somit gegenüber einem Drei-Niveau-System den weiteren Vorteil, dass der Pumpprozess und der Verstärkungsprozess über induzierte Absorption bzw. Emission vollständig von gemeinsam verwendeten Energieniveaus entkoppelt werden. Abbildung 2.4 zeigt dieses Niveau-System des Ti:Sa-Lasers.

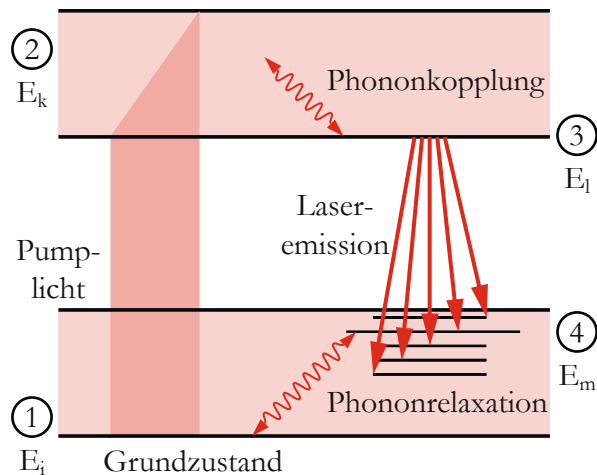


Abbildung 2.4.: Vier-Niveau-System des Titan-Saphir-Lasers.

Durch die Dotierung mit Ti^{3+} koppeln diese Ionen vibrometrisch an die Gitterstruktur des Kristalls. Dadurch sind die Energieniveaus verbreitert [Mit01]. Vom Grundzustand $|i\rangle$ kann höchst effizient optisch im Bereich von etwa 500 nm auf den höheren Zustand $|k\rangle$ gepumpt werden. Dieser Zustand koppelt über Phononen mit einem leicht tiefer liegenden Zustand $|l\rangle$. Von dort kann die induzierte Emission in tiefer liegende Niveaus $|m\rangle$ in Gang gesetzt werden. Da es sich um ein Band handelt, kann die induzierte Emission durch Frequenzselektion im Laserresonator weit abgestimmt werden. Der Zustand $|m\rangle$ wird wiederum über Phononkopplung in den Grundzustand $|i\rangle$ entvölkert. Da die Phononkopplung stark und damit schnell ist, sind die Besetzungszahlen N_k und N_m im Verhältnis zu den Besetzungszahlen N_l und N_i sehr klein. Dieses ermöglicht eine einfach zu erreichende Inversion zwischen den Zuständen $|l\rangle$ und $|m\rangle$. Der Pumpprozess, die induzierte Absorption, kann zwischen den Zuständen $|i\rangle$ und $|k\rangle$ aufgrund der Besetzungszahlen N_i und N_k hingegen sehr effizient erfolgen. Abbildung 2.5 veranschaulicht, dass das Absorptions- und Emissionsspektrum des Ti:Sa-Kristalls spektral voneinander getrennt sind. Der Ti:Sa-Kristall besitzt zusätzlich eine hervorragende thermische Leitfähigkeit, so dass die Wärme, die bei dem Pumpprozess im Kristall erzeugt wird, gut abgeführt wird.

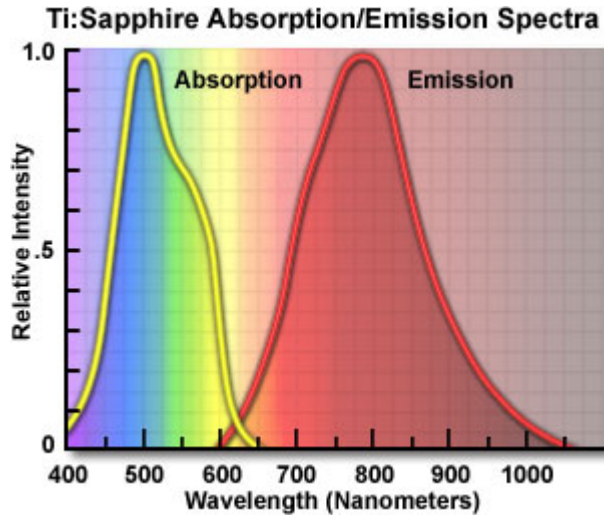


Abbildung 2.5.: Absorptions- und Emissionsspektrum des Ti:Sa-Kristalls [Oly14]

2.1.3. Frequenzselektion

Das Auftreten von breiten Frequenzbändern im aktiven Medium des Ti:Sa-Lasers führt dazu, dass eine breite Palette von optischen Frequenzen verstärkt werden kann. Der Resonator des Lasers gibt daher zusätzliche Bedingungen vor, bei welchen Wellenlängen $\lambda(m)$ die induzierte Emission erfolgen kann. Da sich in einem Resonator der Länge d stehende Wellen bilden, gilt im Resonanzfall für die halbe Wellenlänge die Bedingung:

$$\frac{\lambda(m)}{2} = \frac{d}{m} \quad \text{mit} \quad m \in \mathbb{N} \quad (2.18)$$

Damit der Laser nur in einem gewählten Frequenzbereich emittiert, muss dieser durch frequenzselektive Elemente des Resonators eingeschränkt werden. Die dafür typischerweise genutzten frequenzselektiven Elemente, der *Lyot-Filter* und das *Fabry-Pérot-Etalon*, werden im Folgenden erläutert.

Lyot-Filter

Bei einem Lyot-Filter wird wellenlängenabhängig die Polarisierung aufgrund der doppelbrechenden Wirkung eines Kristalls geändert und nachfolgend die ungewünschte Polarisierung aus dem Resonator entfernt. Somit kann ein schmales Frequenzband im Resonator ausgewählt werden. Aufgrund der Brewsterflächen der optischen Elemente im Resonator und der Struktur des Ti:Sa-Kristalls kann nur linear p-polarisiertes Licht mit geringsten Verlusten im Resonator umlaufen, während andere Polarisationsrichtungen herausreflektiert werden. Anhand Abbildung 2.6 wird die Frequenzselektion des Lyot-Filters deutlich.

Ohne Beschränkung der Allgemeinheit wird eine linear polarisierte Lichtwelle \vec{E} in der xy -Ebene angenommen, die sich in z -Richtung mit einer Frequenz ω und der Wellenzahl

2. Theoretische Grundlagen

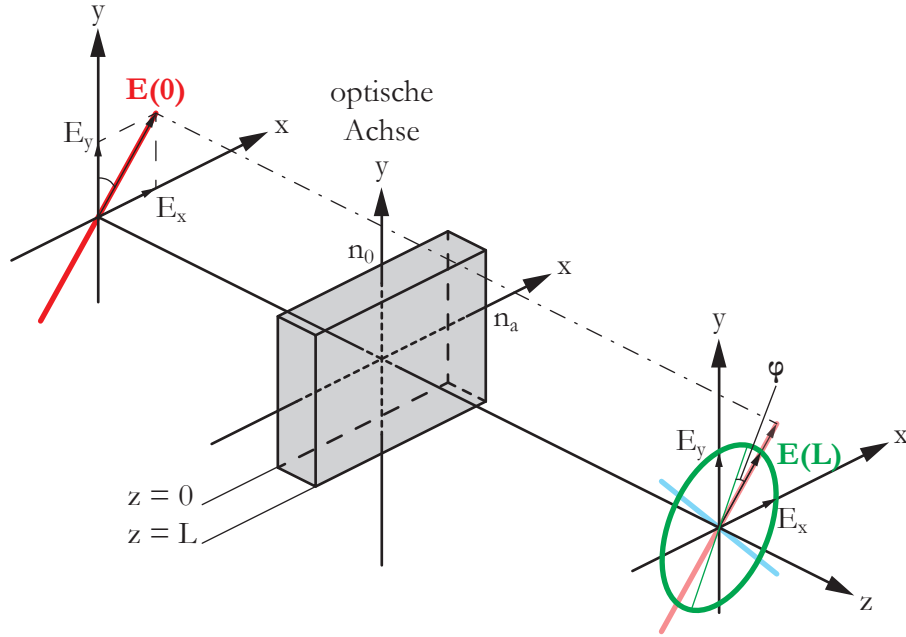


Abbildung 2.6.: Schematische Darstellung der Funktionsweise eines Lyot-Filters.

k ausbreitet und durch die rote Linie dargestellt wird.

$$\vec{E}(0) = (E_x \vec{e}_x + E_y \vec{e}_y) \cos(\omega t - kz) \quad (2.19)$$

Trifft diese Welle auf einen doppelbrechenden Kristall, dessen optische Achse parallel zur y -Achse liegt, so wird die Welle in zwei Teilwellen, eine ordentliche und eine außerordentliche, aufgespalten. Beide Teilwellen propagieren aufgrund der unterschiedlichen Brechungsindizes n_o und n_a mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten im Kristall. Die ordentliche Teilwelle, senkrecht zur optischen Achse, hat die Phasengeschwindigkeit $v_o = c/n_o$ und die außerordentliche Welle, parallel zur optischen Achse, $v_a = c/n_a$. Nach Passieren des Kristalls der Länge L besitzen die Teilwellen eine Phasendifferenz δ .

$$\delta = \frac{2\pi}{\lambda} (n_o - n_a) L \quad (2.20)$$

Durch die Phasendifferenz entstehen im Allgemeinen elliptisch polarisierte Wellen, dargestellt durch die grüne Ellipse. Die Hauptachse der Ellipse ist dabei um $\varphi = \delta/2$ gegenüber der ursprünglich gewünschten Polarisation gedreht. Nur für eine Phasendifferenz $\delta = 2\pi m$ mit $m \in \mathbb{N}$ ist die Polarisation identisch mit der jeweiligen vor dem Kristall, dargestellt durch die hellrote Linie. Ist dagegen die Phasendifferenz $\delta = (2m + 1)\pi$, dann ist die Welle senkrecht zur ursprünglichen Polarisation linear polarisiert, so wie es durch die blaue Linie dargestellt ist.

Folgt nach dem Durchlauf des Kristalls ein weiterer linearer Polarisationsfilter, so wird die Welle auf $E(L) = E(0) \cos(\varphi)$ und entsprechend die Intensität auf $I(L) = I_0 \cos^2(\varphi)$ abgeschwächt. Es kann eine Transmission T in Abhängigkeit der Wellenlänge λ definiert werden.

$$T(\lambda) = T_0 \cos^2 \left(\frac{\pi (n_o - n_a) L}{\lambda} \right) \quad (2.21)$$

Werden mehrere Kristalle, zum Beispiel mit jeweils vierfacher Länge $L_m = 4^m L_0$ mit $m = 0, 1, 2$ hintereinander verwendet, dann ist die Gesamttransmission das Produkt der Einzeltransmissionen.

$$T(\lambda) = \prod_m T_m(\lambda) \quad (2.22)$$

Da die Lyot-Filter im Resonator eingebaut sind, werden diese mehrfach durchlaufen. Die Gesamttransmission der einzelnen Kristalle muss entsprechend der Anzahl der Durchläufe durch den Resonator mit sich selbst multipliziert werden. Ein Beispiel der gerechneten Transmissionen der Lyot-Filter für den im vorliegenden Experiment verwendeten Ti:Sa-Laser ist in Abbildung 2.7 gezeigt.

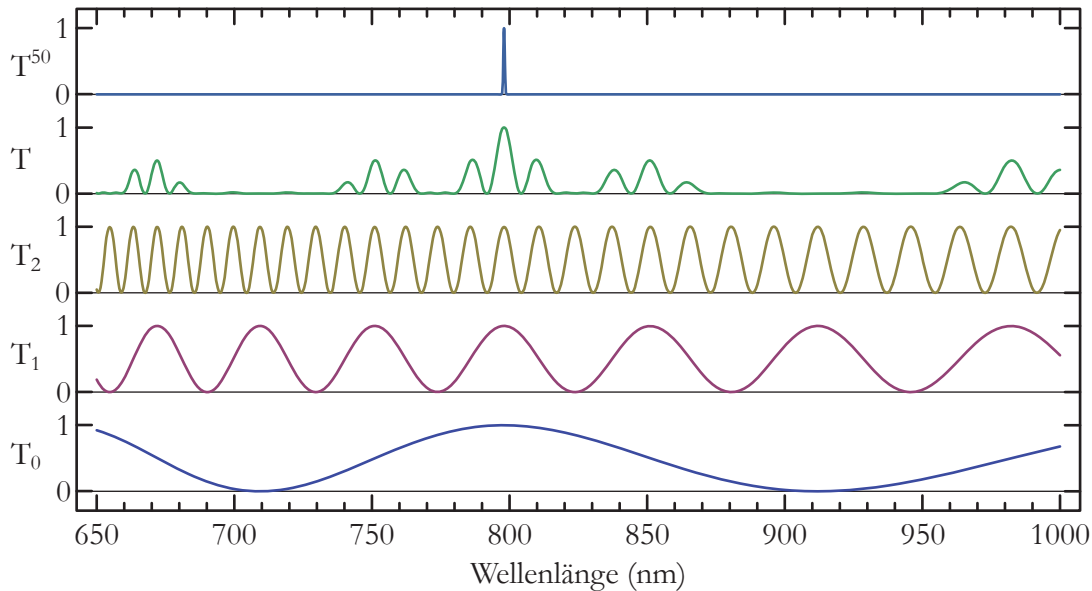


Abbildung 2.7.: Transmission drei einzelner Lyot-Filter T_0 , T_1 , T_2 unterschiedlicher Dicke, Gesamttransmission T dieser drei Lyot-Filter, sowie die Transmission nach 50-fachem Passieren der drei Lyot-Filter T^{50} [Kro13].

Steht der Kristall des Lyot-Filters im Brewster-Winkel zum durchlaufenden Strahl, erfolgt die notwendige Polarisierung automatisch ohne ein zusätzliches optisches Element in den Resonator zu bauen.

Fabry-Pérot-Etalon

Eine weitaus schmalere Frequenzselektion kann durch ein Fabry-Pérot-Etalon erreicht werden. Die Frequenzselektion basiert auf Interferenzen von Teilstrahlen, die durch Re-

2. Theoretische Grundlagen

flexionen an den planparallelen Oberflächen des Etalons hervorgerufen wird. Das Prinzip der Interferenzen an einem Etalon ist in Abbildung 2.8a) dargestellt.

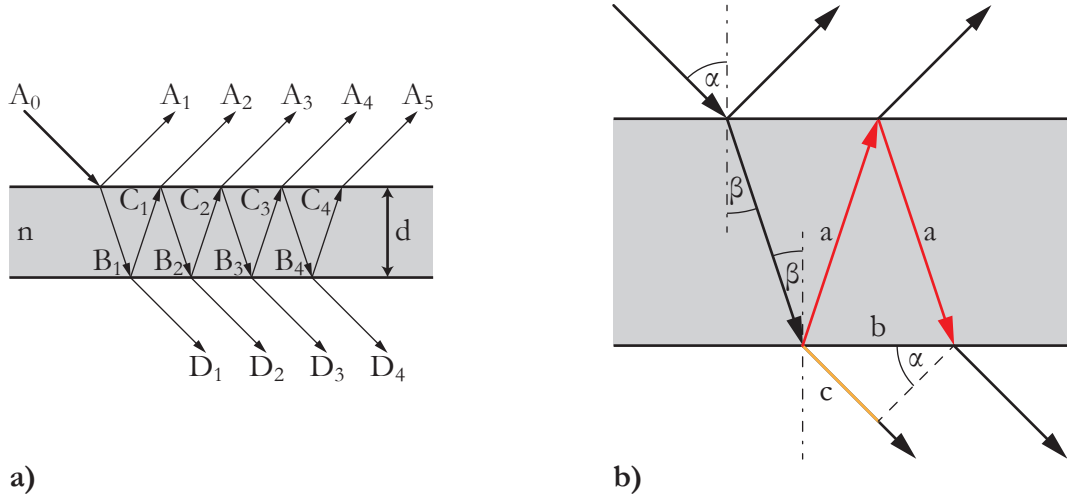


Abbildung 2.8.: Schematische Darstellung der Funktionsweise eines Fabry-Pérot-Etalons, adaptiert aus [Dem07]

Eine auf das Etalon der Dicke d mit dem Brechungsindex n treffende Welle der Amplitude A_0 wird in reflektierende Wellen der Amplituden A_m und gebrochene Wellen der Amplituden B_m , mit jeweils $m = 1, 2, 3, \dots$, aufgeteilt. Die gebrochenen Wellen B_m werden an der Austrittsfläche wiederum in reflektierte Wellen der Amplituden C_m und gebrochene Wellen der Amplituden D_m aufgeteilt. Die Reflexion $R = I_r/I_i$ ist durch das Verhältnis der Intensitäten der reflektierten Welle I_r und der initialen Welle I_i gegeben. Es gilt für die Amplituden der reflektierten Wellen $A_R = \sqrt{R}A_i$ und der transmittierten Wellen $A_t = \sqrt{1-R}A_i$. Die Lichtbrechung erfolgt nach dem Brechungsgesetz mit $\sin(\alpha) = n \sin(\beta)$. Zwischen den transmittierten Wellen D_m tritt Interferenz auf, wobei der Gangunterschied Δs bzw. die Phasendifferenz δ zweier benachbarter Teilwellen mit Hilfe der Abbildung 2.8b) hergeleitet werden kann. Für den Gangunterschied Δs gilt:

$$\Delta s = 2an - c \quad \text{mit} \quad \begin{cases} a = \frac{d}{\cos(\alpha)} \\ b = 2d \tan(\beta) \\ c = b \sin(\alpha) \end{cases} \quad (2.23a)$$

$$= 2n \frac{d}{\cos(\alpha)} - 2d \tan(\beta) \sin(\alpha) \quad (2.23b)$$

$$= 2d \sqrt{n^2 - \sin^2(\alpha)} \quad (2.23c)$$

Die Phasendifferenz δ kann aus dem Gangunterschied Δs bestimmt werden, wobei noch der Phasensprung von π an den reflektierenden Oberflächen beachtet werden muss.

$$\delta = 2\pi \frac{\Delta s}{\lambda} + \pi \quad (2.24)$$

Nur für eine Phasendifferenz $\delta = 2\pi m$ mit $m \in \mathbb{N}$ erfolgt konstruktive Interferenz. Entsprechend erhält man die Gesamtamplitude D aller transmittierten Wellen durch phasenrichtige Summation aller Teilwellen p , wobei unter sehr kleinem Winkel $\alpha \rightarrow 0$ nahezu unendlich viele Teilwellen $p \rightarrow \infty$ interferieren. Des Weiteren gilt $D_1 = (\sqrt{1-R})^2 A_0$, so dass die unendliche Summe durch die geometrische Reihe ausgedrückt werden kann als

$$D = \sum_{m=1}^{p \rightarrow \infty} D_m e^{i(m-1)\delta} = (1-R) A_0 \sum_{m=0}^{\infty} R^m e^{im\delta} \quad (2.25a)$$

$$= \frac{1-R}{1-Re^{i\delta}}. \quad (2.25b)$$

Durch die Definition der Intensität $I_D = 1/2c\epsilon_0 DD^*$ kann wiederum die Transmission $T = I_D/I_0$ unter Verwendung der Substitution $F = 4R/(1-R)^2$ definiert werden. Ebenfalls gilt, dass die Transmission entsprechend der Anzahl der Durchläufe im Resonator potenziert werden muss.

$$T = \frac{1}{1 + F \sin^2(\delta/2)} \quad (2.26)$$

Ein Beispiel der gerechneten Transmission des Etalons mit unterschiedlicher Reflexion für die verwendeten Ti:Sa-Laser ist in Abbildung 2.9 gezeigt. Üblicherweise hat das Etalon eine Reflexion von $R = 0.4$ und eine Dicke d von $300 \mu\text{m}$.

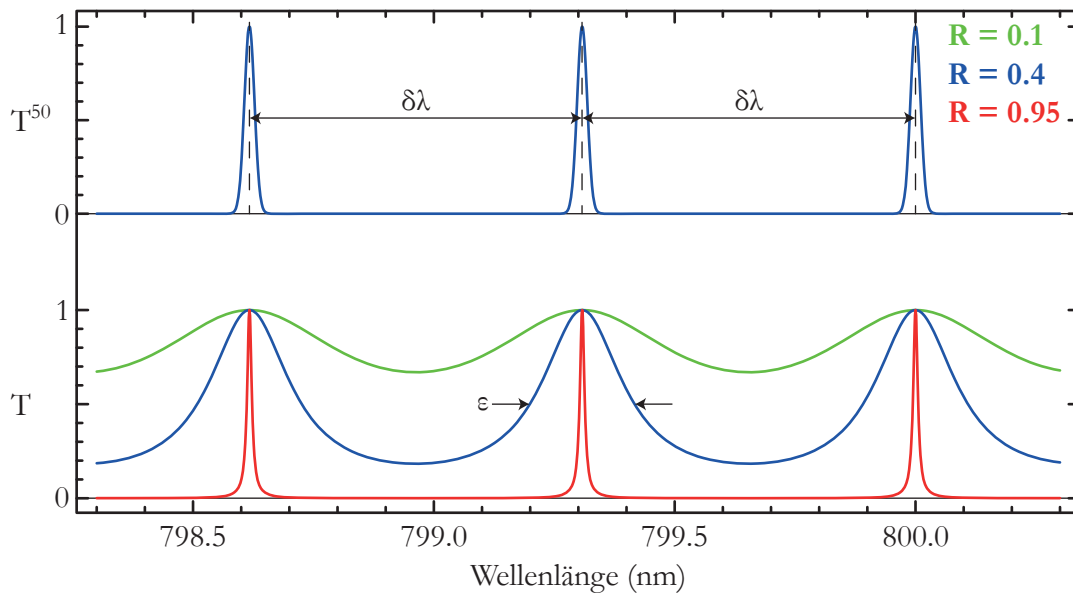


Abbildung 2.9.: Transmission T eines Fabry-Pérot-Etalons in Abhängigkeit der Wellenlänge für unterschiedlich angenommene Reflexionen, sowie die Transmission T^{50} nach 50-fachem Passieren des Etalons [Kro13].

Mit dem Etalon kann der spektrale Bereich wesentlich feiner eingestellt werden als mit dem Lyot-Filter. Trotzdem ist der Lyot-Filter für die sinnvolle Verwendung des Etalons

2. Theoretische Grundlagen

notwendig. Desweiteren kann man durch ein zusätzliches dickeres Etalon die spektrale Breite des Lasers zusätzlich reduzieren.

2.1.4. Nichtlineare Optik

Um einen größeren spektralen Bereich nutzen zu können, werden aus der fundamentalen Laserstrahlung über Frequenzvervielfachung höhere harmonische Ordnungen erzeugt. Die Theorie wird ausführlich in [Boy03, BC91] diskutiert. Eine elektromagnetische Welle $\vec{E}(t, \vec{x}) = \vec{E}_0 \cos(\omega t - \vec{k}\vec{x})$ mit der Frequenz ω und der Wellenzahl \vec{k} bewirkt eine Ausrichtung der Dipolmomente $\vec{p}(\vec{E})$ in einem Medium. Die Summe der Dipolmomente führt dann zu einer Polarisation $\vec{P}(\vec{E})$ des Mediums, die von dessen Suszeptibilität n -ter Ordnung $\chi^{(n)}$ abhängt. Die elektrische Feldkonstante wird durch ϵ_0 beschrieben.

$$\vec{P}(\vec{E}) = \sum_i \vec{p}_i(\vec{E}) = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E}^2 + \chi^{(3)} \vec{E}^3 + \dots \right) \quad (2.27)$$

Die Polarisation eines Mediums kann selbst wieder eine elektromagnetische Welle erzeugen und aussenden. Je nach betrachteter Ordnung der Suszeptibilität $\chi^{(n)}$ werden unterschiedliche Wellen erzeugt. Im Folgenden werden nur die erste und die zweite Ordnung erläutert, da die Polarisation höherer Ordnung $\vec{P}^{(n)}$ mit $n > 2$ aufgrund des geringen Betrags der entsprechenden Suszeptibilität $\chi^{(n)}$ nur sehr schwach ausfällt.

Erste Ordnung

Durch den linearen Anteil der Suszeptibilität $\chi^{(1)}$ wird im Allgemeinen der komplexe, frequenzabhängige Brechungsindex n ausgedrückt. Da $\chi^{(1)}$ klein gegen 1 ist, gilt für den Brechungsindex n die verwendete Näherung in Gleichung 2.28a. Man kann sowohl den reellen Brechungsindex n' als auch den Absorptionskoeffizienten α durch $\chi^{(1)}$ ausdrücken.

$$n = \sqrt{1 + \chi^{(1)}} \approx 1 + \frac{1}{2} \chi^{(1)} = n' + i \frac{c}{2\omega} \alpha \quad (2.28a)$$

$$n' = 1 + \frac{1}{2} \Re(\chi^{(1)}) \quad (2.28b)$$

$$\alpha = \frac{\omega}{c} \Im(\chi^{(1)}) \quad (2.28c)$$

Durch den linearen Anteil der Polarisation $\vec{P}^{(1)} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}$ können somit die Lichtbrechung, Reflexion und Absorption beschrieben werden.

Zweite Ordnung

Zur Betrachtung der Wirkung der zweiten Ordnung der Suszeptibilität $\chi^{(2)}$ werden zwei gleichzeitig einfallende unterschiedliche elektromagnetische Wellen \vec{E}_1 und \vec{E}_2 eingesetzt.

$$\vec{E}(t, \vec{x}) = \vec{E}_1 \cos(\omega_1 t - \vec{k}_1 \vec{x}) + \vec{E}_2 \cos(\omega_2 t - \vec{k}_2 \vec{x}) \quad (2.29)$$

Der quadratische Anteil der Polarisation $\vec{P}^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} \vec{E}^2$ kann unter Zuhilfenahme von $\cos(x) \cos(y) = 1/2 (\cos(x-y) + \cos(x+y))$ berechnet werden.

$$\vec{P}^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} \vec{E}^2(t, \vec{x}) \quad (2.30a)$$

$$= \epsilon_0 \chi^{(2)} \left[\vec{E}_1^2 \cos^2(\omega_1 t - \vec{k}_1 \vec{x}) + \vec{E}_2^2 \cos^2(\omega_2 t - \vec{k}_2 \vec{x}) + 2 \vec{E}_1 \vec{E}_2 \cos(\omega_1 t - \vec{k}_1 \vec{x}) \cos(\omega_2 t - \vec{k}_2 \vec{x}) \right] \quad (2.30b)$$

$$= \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi^{(2)} \left[\vec{E}_1^2 + \vec{E}_2^2 + \vec{E}_1^2 \cos(2(\omega_1 t - \vec{k}_1 \vec{x})) + \vec{E}_2^2 \cos(2(\omega_2 t - \vec{k}_2 \vec{x})) + 2 \vec{E}_1 \vec{E}_2 \cos((\omega_1 + \omega_2)t - (\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \vec{x}) + 2 \vec{E}_1 \vec{E}_2 \cos((\omega_1 - \omega_2)t - (\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \vec{x}) \right] \quad (2.30c)$$

In Gleichung 2.30c erkennt man sowohl eine frequenzunabhängige Polarisierung, eine Polarisierung mit doppelter Frequenz als auch eine Polarisierung mit der Summen- als auch Differenzfrequenz des Mediums. Eine makroskopisch neue Welle mit der entsprechend neuen Frequenz kann aber nur entstehen, wenn beide Wellen, die anregenden Wellen mit den neu erzeugten Wellen, die gleiche Phasengeschwindigkeit besitzen. Ansonsten interferieren die neu erzeugten Wellen destruktiv. Die Phasengeschwindigkeit v_{Phase} im Medium mit dem Brechungsindex $n(\omega)$ wird wie folgt berechnet:

$$v_{\text{Phase}} = \frac{\omega}{|\vec{k}|} = \frac{c}{n(\omega)} \quad (2.31)$$

Über die Impulserhaltung $\vec{k}(\omega_1 \pm \omega_2) = \vec{k}(\omega_1) \pm \vec{k}(\omega_2)$ und die Definition der Phasengeschwindigkeit ergibt sich folgende Phasenbedingung:

$$n_{\text{out}}(\omega_1 \pm \omega_2) = n_{\text{in},1}(\omega_1) = n_{\text{in},2}(\omega_2) \quad (2.32)$$

Über die Phasenbedingungen wiederum können die einzelnen Prozesse der Frequenzverdopplung, der Summen- und Differenzfrequenzbildung ausgewählt werden. Experimentell erfolgt die Anpassung der Phasenbedingung durch Verkippen des frequenzvervielfachenden Kristalls oder thermisch durch Erwärmen des Kristalls. Durch das Verkippen resultiert dabei ein größerer Einstellbereich als durch die Erwärmung.

Im Sonderfall der Frequenzverdopplung des fundamentalen Laserstrahls gilt $\omega_1 = \omega_2$ und $\vec{k}_1 = \vec{k}_2$. Der dritte, vierte und fünfte Summand in Gleichung (2.30c) tragen dementsprechend gleichermaßen zur Frequenzverdopplung bei. Die Differenzfrequenz ist im Allgemeinen aufgrund von Phasenfehlanspassung unterdrückt.

Im Fall der Frequenzverdreifachung eines Laserstrahls findet unter Anpassung der Phasenbedingung vorrangig die Summenfrequenzbildung des fundamentalen und des zuvor frequenzverdoppelten Laserstrahls statt.

2.2. Ionisationsprozesse

Von wesentlicher Bedeutung beim Betrieb der RILIS und der LIST ist die resonante Laserionisation. In direkter Konkurrenz zu diesem Prozess steht die Oberflächenionisation. Beide Prozesse werden im Folgenden näher erläutert. Weitere Prozesse zur Ionisation sind die Plasmaionisation, die Elektronenstoßionisation bzw. Sputterionisation, die hier nicht von Bedeutung sind und daher hier nicht betrachtet werden.

2.2.1. Oberflächenionisation

Bei der Oberflächenionisation wird ein Elektron eines Atoms mit einer Ionisierungsenergie E_{IP} kleiner als die Austrittsarbeit W eines Elektrons aus einer heißen Oberfläche ionisiert. Dabei wird die Energie $W - E_{\text{IP}}$ frei. Die Wahrscheinlichkeit dieser Ionisation \mathcal{P}_i an einer heißen Oberfläche wird durch die Saha-Langmuir-Gleichung beschrieben. Die Herleitung ist von Dresser zusammengefasst [Dre68] und in diesem Kapitel referiert. Sie beruht auf den Arbeiten von Meghnad Saha und Irving Langmuir [Sah21, LK25].

Für die Teilchenzahldichte neutraler Atome n_0 , einfach geladener Ionen n_i und Elektronen n_e in einem Gas im thermischen Gleichgewicht der Temperatur T gilt folgende Relation:

$$\frac{n_i n_e}{n_0} = 2 \frac{g_i}{g_0} \left(\frac{2\pi m_e k_B T}{h^2} \right)^{3/2} \exp\left(-\frac{E_{\text{IP}}}{k_B T}\right) \quad (2.33)$$

In dieser Gleichung fließen die statistischen Gewichte des Grundzustandes der Elektronenhülle des Ions g_i und des neutralen Atoms g_0 ein, wobei jeweils $g = 2J + 1$ gilt. Der Term $\sqrt{h^2/2\pi m_e k_B T}$ beschreibt die thermische Wellenlänge des Elektrons, auch bekannt als die De Broglie Wellenlänge, mit der Elektronenmasse m_e und der Boltzmann-Konstante k_B . Im Argument der Exponentialfunktion steht das Ionisationspotential E_{IP} .

Die Richardson-Gleichung beschreibt den Austritt von Elektronen bzw. den Elektronenstrom j aus einer glühenden Metall- oder Halbleiteroberfläche der Temperatur T , wobei W die Austrittsarbeit der Elektronen aus der Oberfläche beschreibt.

$$j = AT^2 \exp\left(-\frac{W}{k_B T}\right) \quad \text{mit} \quad A = \frac{4\pi m_e e k_B^2}{h^3} \quad (2.34)$$

Mit Hilfe der Relation $n_e = j \sqrt{2\pi m_e / e^2 k_B T}$ folgt aus Gleichung (2.34) die Teilchenzahldichte der Elektronen n_e

$$n_e = 2 \left(\frac{2\pi m_e k_B T}{h^2} \right)^{3/2} \exp\left(-\frac{W}{k_B T}\right) \quad (2.35)$$

Aus dem Quotienten aus Gleichung (2.33) und (2.34) ergibt sich das Verhältnis von Ionen zu Atomen n_i/n_0 .

$$\frac{n_i}{n_0} = \frac{g_i}{g_0} \exp\left(\frac{W - E_{\text{IP}}}{k_B T}\right) \quad (2.36)$$

Die Wahrscheinlichkeit der Ionisation \mathcal{P}_i ergibt sich aus dem Verhältnis der Teilchendichte der Ionen n_i zu der gesamten Teilchendichte $n_i + n_0$.

$$\mathcal{P}_i = \frac{n_i}{n_0 + n_i} = \frac{n_i/n_0}{1 + n_i/n_0} \quad (2.37)$$

Man erkennt, dass das Verhältnis der Ionen zu den neutralen Teilchen n_i/n_0 bei fester Temperatur ausschließlich vom Ionisationspotential E_{IP} des zu ionisierenden Elements und der Austrittsarbeit W des Materials der Oberfläche abhängt. Da diese Eigenschaften materialabhängig sind, besteht keine Möglichkeit der Einflussnahme auf eine selektive Ionisation oder Selektion eines bestimmten Elements.

2.2.2. Laserionisation

Über die diskrete Lage der Energieniveaus der Elektronenhülle eines Atoms können Elektronen durch eine spezifische Energiezuführung von Photonen der Energie $h\nu$ schrittweise angeregt werden. Nach mehreren konsekutiven Schritten wird das Ionisationspotential (IP) überschritten und das Elektron ist nicht mehr an das Atom gebunden. Dieser physikalische Prozess entspricht der induzierten Absorption. Um eine gewisse Selektivität bei der Ionisierung eines gewünschten Elements zu erlangen, verwendet man eine Mehr-Niveau-Anregung. Da für jedes Element die Niveaus bei unterschiedlichen Energien liegen, kann somit eine Selektion der zu ionisierenden Atome erreicht werden.

Auswahlregeln

Die Anregungen mittels Photonen über elektrischen Dipolübergängen sind an Bedingungen, die sogenannten *Auswahlregeln*, geknüpft. Diese sind nicht nur an die Energieerhaltung, sondern auch an die Erhaltung des Drehimpulses und an weitere Erhaltungen gebunden. Es gelten die in Tabelle 2.1 aufgelisteten Auswahlregeln.

Ionisationsübergänge

Der Anregungsschritt, der zur Ionisation führt, wird *Ionisationsübergang* genannt. Es sind drei Ionisationsübergänge möglich: Die *nichtresonante Photoionisation*, die Ionisation über einen *autoionisierenden Zustand* beziehungsweise einen *Rydberg-Zustand*. Alle drei Ionisationsübergänge sind schematisch in Abbildung 2.10 dargestellt und werden im folgenden näher erläutert [Dem07].

Nichtresonante Photoionisation

Bei der nichtresonanten Photoionisation (in Abbildung 2.10a) wird einem Elektron, das sich auf einem angeregten Zwischenniveau befindet, durch ein Photon ausreichend Energie zugeführt, so dass die Gesamtenergie des Elektrons größer ist als das Ionisationspotential. Da der Wirkungsquerschnitt σ_{nr} der nichtresonanten Photoionisation mit üblicherweise $\sigma_{nr} \sim 10^{-17}$ sehr klein ist, wird dabei eine hohe Photonendichte benötigt.

2. Theoretische Grundlagen

Auswahlregel	Bemerkung
$\Delta l = \pm 1$	Gilt für Einelektronenatome.
$\Delta L = \pm 1$	Gilt für Mehrelektronenatome bei L-S-Kopplung. Gerade Zustände kombinieren nur mit ungeraden Zuständen.
$\Delta M = 0$	Gilt für linear polarisiertes Licht.
$\Delta M = \pm 1$	Gilt für zirkular polarisiertes Licht.
$\Delta S = 0$	Gilt für leichte Atome. Für schwere Atome gibt es Ausnahmen.
$\Delta J = 0, \pm 1$	$J = 0 \rightarrow J = 0$ ist allerdings verboten.

Tabelle 2.1.: Auswahlregeln elektrischer Dipolübergänge [Dem10].

Es sind l der Bahndrehimpuls für ein Einelektronensystem, L , M , S und J der Bahndrehimpuls, die magnetische Quantenzahl, der Gesamtspin und der Gesamtdrehimpuls für Mehrelektronensysteme.

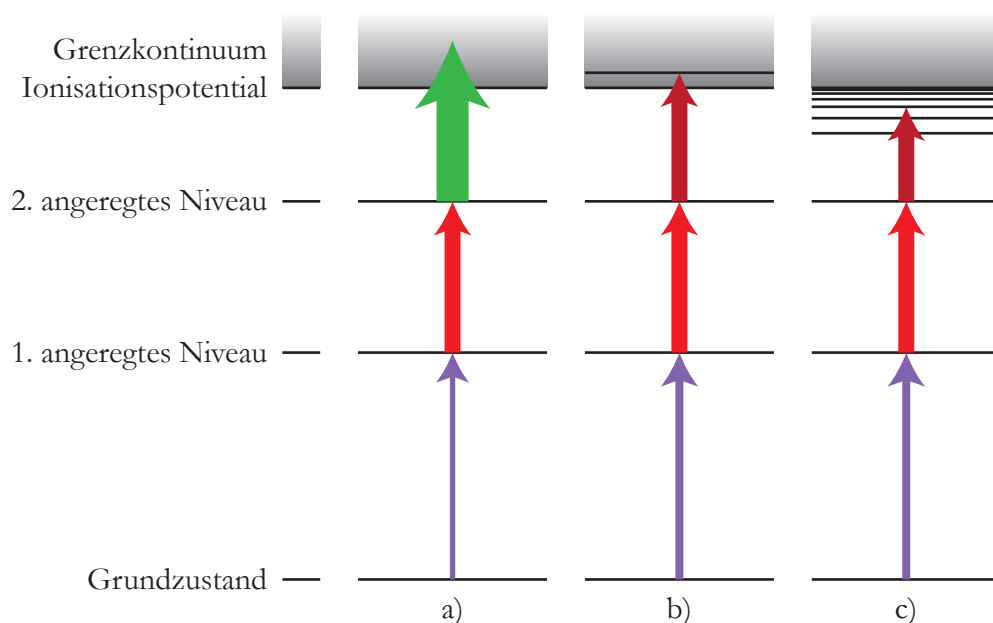


Abbildung 2.10.: Schematische Darstellung der Ionisationsübergänge nach mehrstufiger resonanter Anregung auf ein Zwischenniveau mit anschließendem Ionisationsprozess. a) Nichtresonante Photoionisation, b) Ionisation über einen autoionisierenden Zustand, c) Ionisation über einen Rydbergzustand. Nähere Erläuterungen erfolgen im Text.

Der Beitrag der nichtresonanten Photoionisation ist im Regelfall klein gegenüber der resonanten Ionisation über einen autoionisierenden Zustand oder einen Rydberg-Zustand.

Autoionisierender Zustand

Ein autoionisierende Zustand liegt im Anregungsspektrum über dem Ionisationspotential. Es handelt sich dabei um eine Mehrelektronenanregung, bei der zwei oder mehrere Elektronen unterhalb des Ionisationspotentials angeregt, aber noch an das Atom gebunden sind. Bei dem Zerfall des angeregten Zustands einer der Elektronen kann statt der Aussendung eines Photons die Energie auf ein anderes angeregtes Elektron übergehen, so dass dieses damit ausreichend Energie besitzt, um vom Atom gelöst zu werden [ABF75]. Der Prozess der Ionisation über einen autoionisierenden Zustand ist in Abbildung 2.10b) dargestellt. Je nach Kopplung der Elektronen kann ein autoionisierender Zustand spektral stark verbreitert sein. Eine Ionisierung über autoionisierende Zustände ist daher meistens gegenüber Wellenlängeninstabilitäten des ionisierenden Lasers unempfindlich.

Rydberg-Zustand

Elektronen in energetisch hochliegenden Rydberg-Zuständen sind so weit vom Atomrumpf entfernt, dass der Atomkern und die restlich verbleibenden Elektronen als effektive Punktladung betrachtet werden können. Das System kann dann vereinfacht als Zwei-Teilchen-System betrachtet werden. Die Energieniveaus E_n der Rydbergzustände mit der Hauptquantenzahl n berechnen sich dann nach der Rydberg-Ritz-Formel mit der Rydberg-Konstante der reduzierten Masse R_{nuc} und dem Quantendefekt δ_n .

$$E_n = E_{\text{IP}} - R_{\text{nuc}} \frac{1}{(n - \delta_n)^2} \quad \text{für } n \in \mathbb{N} \quad (2.38)$$

Die Rydberg-Konstante der reduzierten Masse R_{nuc} berechnet man aus der Rydberg-Konstante R_∞ mit einem Faktor $m_{\text{nuc}}/(m_{\text{nuc}}+m_e)$, der Masse des Elektrons m_e und der des Kerns m_{nuc} . Der Quantendefekt δ_n ist eine Korrektur, die eingeführt wird, da die innen liegenden Elektronen beim Atomrumpf immer noch einen Einfluss auf das Elektron im Rydberg-Zustand haben.

Da sich das angeregte Elektron noch unterhalb des Ionisationspotentials befindet, ist noch ein weiterer Prozess notwendig, der es dem Elektron ermöglicht, sich von dem Atom zu lösen. Das kann entweder durch thermische Energiezufuhr oder durch Feldionisation erfolgen. Dabei wird durch ein starkes elektrisches Feld das Coulomb-Potential soweit abgesenkt, dass das Elektron den Atomrumpf verlassen kann, wie in Abbildung 2.11 dargestellt. Aus dem zum Ionisationspotential konvergierenden Anregungsspektrum kann durch Fitten der Rydberg-Ritz-Formel die Hauptquantenzahl n ermittelt und das Ionisationspotential E_{IP} sehr präzise bestimmt werden.

Sättigung

Die Effizienz der Laserionisation ist primär von der Anzahl der Photonen abhängig, die mit den Atomen wechselwirken können [Dem07]. Beschreibt man das Atomensemble N im Zwei-Niveau-System, wie in Kapitel 2.1.1 beschrieben, so kann nur eine bestimmte Anzahl N_k Atome gemäß des Sättigungswerts S angeregt werden. Hierbei setzt sich der Sättigungswert aus dem Quotienten der tatsächlich eingestrahlenen Laserleistung P_{Laser}

2. Theoretische Grundlagen

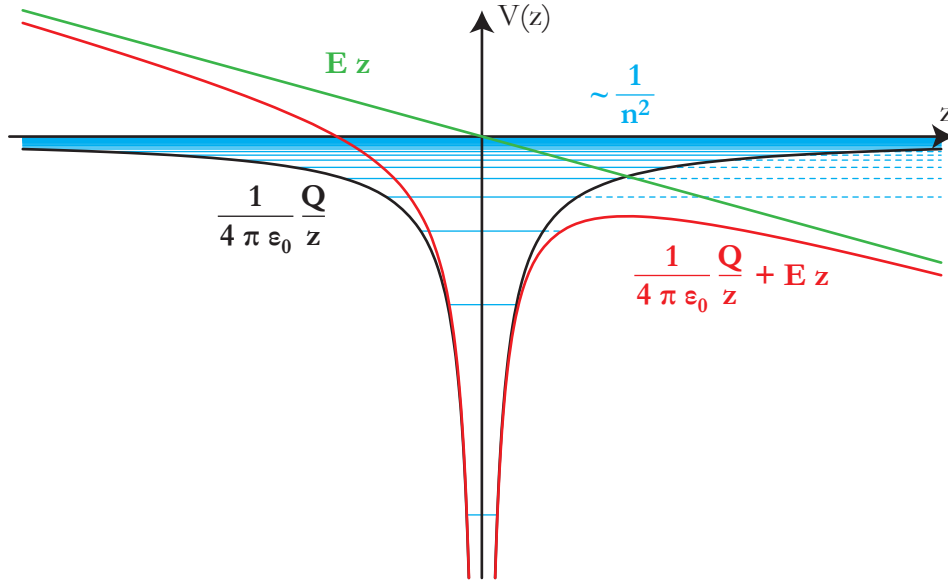


Abbildung 2.11.: Darstellung des Coulomb-Potentials mit den Energieniveaus E_n und des abgesenkten Coulomb-Potentials durch ein starkes elektrisches Feld. Das Potential des Elektrischen Felds ist durch die nach z abfallende Linie dargestellt.

und der notwendigen Sättigungsleistung $P_{\text{Sät.}}$ zusammen. Ohne Lasereinstrahlung I_{Laser} sind alle Atome im Grundzustand N_i .

$$N_i = \frac{N}{1+S} = \frac{N}{1 + \frac{P_{\text{Laser}}}{P_{\text{Sät.}}}} \quad (2.39)$$

Bei einer Anregung bzw. Ionisation werden im Allgemeinen die Anzahl N_k der Atome im oberen Zustand detektiert.

$$N_k = N - N_i = N - \frac{N}{1+S} = N \frac{S}{1+S} \quad (2.40)$$

Die vollständige Fitfunktion experimenteller Daten der Sättigungsmessung $I_{\text{Signal}}(P)$ wird noch um einen linearen Term mit der Steigung β und einen konstanten Wert γ erweitert. γ beschreibt dabei einen konstanten Offset des Signals, der vom Detektor ohne Lasereinstrahlung gemessen wird. Der lineare Term βP beschreibt sowohl einen mit steigender Laserleistung größer werdenden Anteil der nichtresonanten Photoionisation als auch eine Vergrößerung des Volumens, in dem bei höherer Laserleistung eine Sättigung der Ionisation erfolgt. Damit ist der Fitparameter β auch nur dann physikalisch sinnvoll, wenn $\beta \geq 0$ gilt. Der Vorfaktor α beschreibt demnach das Konvergenzlimit des maximalen Signals bei Sättigung. Beträgt die Laserleistung P gerade den Wert $S_{1/2}$, so beträgt das Signal gerade die Hälfte des Konvergenzlimits.

$$I_{\text{Signal}}(P) = \alpha \frac{\frac{P}{S_{1/2}}}{1 + \frac{P}{S_{1/2}}} + \beta P + \gamma \quad (2.41)$$

2.3. Linearer Quadrupolmassenfilter

In diesem Kapitel wird die Theorie des linearen Quadrupolmassenfilters beschrieben. Die Idee des Speicherns [PS53] und Filterns [PR55] von geladenen Teilchen innerhalb einer Quadrupolstruktur geht auf Wolfgang Paul² zurück.

Um Teilchen der Masse m bei einer Auslenkung \vec{r} zum Fallenzentrum mit einer Beschleunigung \vec{a} zurück zu bewegen, wird eine ortsabhängige Kraft $\vec{F}(\vec{r})$ benötigt, wobei \vec{r} der Ortsvektor des Teilchens zum Symmetriezentrum ist.

$$m\vec{a} = \vec{F}(\vec{r}) \quad (2.42)$$

Auf geladene Teilchen wirkende elektrische und magnetische Felder \vec{E} und \vec{B} können durch die Lorentzkraft beschrieben werden, wobei Q die Ladung und \vec{v} die Geschwindigkeit der Teilchen darstellt.

$$\vec{F}_L = Q(\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}) \quad (2.43)$$

Wenn kein statisches magnetisches Feld vorliegt, $\vec{B} = \vec{0}$, wird nur durch das elektrische Feld Einfluss auf geladene Teilchen genommen. Das elektrische Feld kann wiederum durch den Gradienten des elektrischen Potentials Φ ausgedrückt werden. Die resultierende Kraft hängt dann, wie angenommen, linear vom Ortsvektor ab und entspricht damit einem harmonischen Oszillator.

$$\vec{F}(\vec{r}) = -Q\nabla\Phi \quad (2.44)$$

Es folgt das Potential $\Phi(\vec{r}, t)$ im dreidimensionalen Raum x , y und z und den zugehörigen Vorfaktoren α , β und γ , sowie mit der zeitlich abhängigen Amplitude $\Phi_0(t)$.

$$\Phi(\vec{r}, t) = \Phi_0(t)(\alpha x^2 + \beta y^2 + \gamma z^2) \quad (2.45)$$

Vernachlässigt man geladene Teilchen und Materie im Inneren der Quadrupolstruktur, so folgt aus der ersten Maxwell-Gleichung die Laplace-Gleichung $\Delta\Phi = 0$. An die Vorfaktoren α , β und γ wird damit folgende Bedingung geknüpft:

$$\alpha + \beta + \gamma = 0 \quad (2.46)$$

Es existieren zwei prinzipielle Lösungen³ (2.47a) und (2.47b) die unterschiedliche Quadrupolgeometrien für unterschiedliche Anwendungen beschreiben.

$$\alpha = \beta \quad \gamma = -2\alpha \quad \text{oder} \quad (2.47a)$$

$$\alpha = -\beta \quad \gamma = 0 \quad (2.47b)$$

Verwendet man die Lösung aus Gleichung (2.47a), so wirken in allen drei Raumrichtungen elektrische Felder. Durch eine entsprechende Anordnung hyperbelförmiger Elektroden nach Gleichung (2.45), wie in Abbildung 2.12a) zu sehen, wird die sogenannte

²Wolfgang Paul wurde dafür im Jahre 1989 mit dem Nobelpreis ausgezeichnet.

³Weitere mögliche Lösungen beschreiben die selben Quadrupolgeometrien, die nur an andere Achsen ausgerichtet werden.

2. Theoretische Grundlagen

dreidimensionale *Paulfalle* konstruiert. Da diese Geometrie im experimentellen Teil keine Verwendung findet, wird sie nur der Vollständigkeit halber erwähnt.

Verwendet man die Lösung aus Gleichung (2.47b), so erfolgt ausschließlich in zwei Raumrichtungen, der x - und y -Achse, eine resultierende Kraft, während Teilchen sich entlang der Quadrupolstruktur in z -Richtung kräftefrei bewegen können. Die hier in den zwei transversalen Richtungen hyperbelförmige Elektrodengeometrie für den *linearen Massenfilter* ist in Abbildung 2.12b) dargestellt.

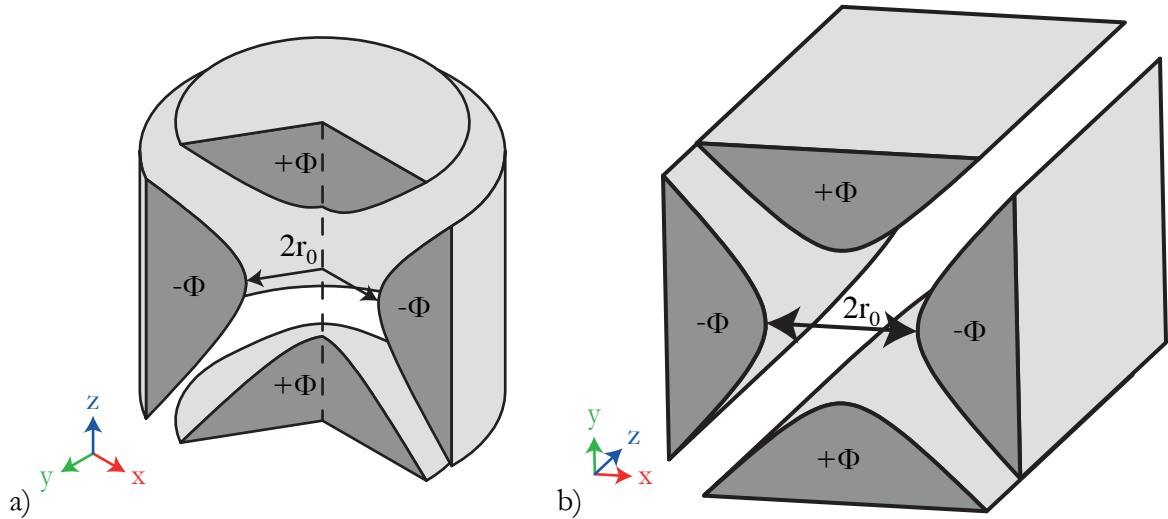


Abbildung 2.12.: a) Elektrodenstruktur für die Paulfalle
b) Elektrodenstruktur für den Quadrupolmassenfilter

Lässt man für die Lösungen (2.47b) den Abstand r_0 der Elektroden zur Symmetrieachse einfließen, so wird das elektrische Potential $\Phi(x, y, t)$ durch das an die Elektroden angelegte Potential $\Phi_0(t)$ definiert.

$$\alpha = \beta = \frac{1}{r_0^2} \quad (2.48)$$

$$\Phi(x, y, t) = \Phi_0(t) \frac{x^2 - y^2}{r_0^2} \quad (2.49)$$

Wie in Abbildung 2.13 gezeigt, wirkt das Feld $\Phi(x, y, t)$ aus Gleichung (2.49) im statischen Fall immer in eine Richtung fokussierend und in die andere defokussierend. Die Verwendung einer hochfrequenten Wechselspannung bewirkt eine fokussierende Wirkung für beide Raumrichtungen und ist unter dem Begriff der *Starken Fokussierung* bekannt. Eine gleichzeitige Überlagerung einer Gleichspannung ermöglicht, wie im Folgenden hergeleitet wird, einen massenselektiven Betrieb. Daher wird eine Superposition einer Gleichspannung U und einer Wechselspannung der Frequenz $f = 2\pi\omega$ und Amplitude V für Φ_0 eingeführt.

$$\Phi_0 = U + V \cos(\omega t) \quad (2.50)$$

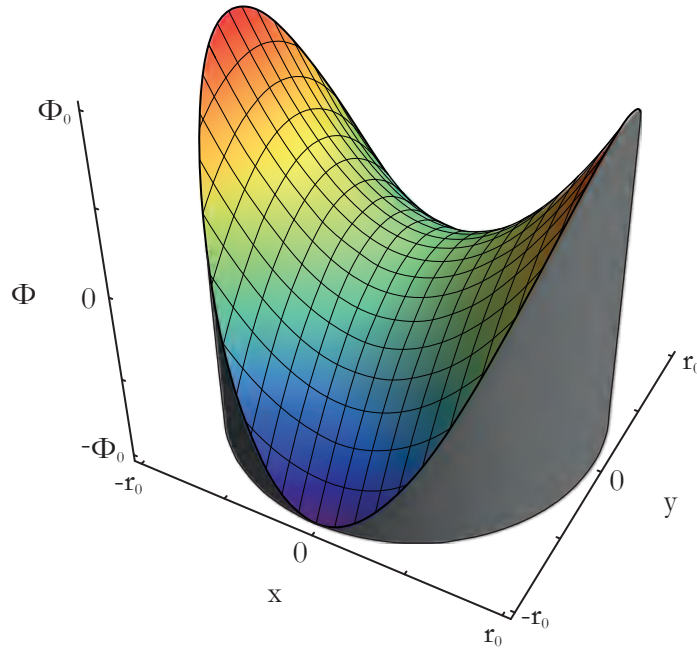


Abbildung 2.13.: Darstellung des Sattelpotentials $\Phi(x, y, t_0)$ innerhalb der linearen Quadrupolstruktur. Maximum bzw. Minimum des Potentials $\pm\Phi_0$ liegen an den Scheitelpunkten r_0 der Elektroden.

Unter Verwendung der Relation $\vec{F} = m\vec{a}$ und der Annahme, dass es sich bei den geladenen Teilchen um einfach positiv geladene Ionen $Q = e$ handelt, erhält man durch Einsetzen von Gleichung (2.50) in (2.49), sowie nachfolgend in (2.44), die Bewegungsgleichung (2.51a) bis (2.51c) innerhalb der Quadrupolstruktur.

$$\ddot{x} + \frac{e}{mr_0^2}(U - V \cos(\omega t))x = 0 \quad (2.51a)$$

$$\ddot{y} - \frac{e}{mr_0^2}(U - V \cos(\omega t))y = 0 \quad (2.51b)$$

$$\ddot{z} = 0 \quad (2.51c)$$

Fasst man mit $u = x, y$ zusammen, führt die dimensionslosen Größen τ , a_u und q_u ein und wendet die Substitutionen (2.52a) bis (2.52c) an, können die Bewegungsgleichungen (2.51a) und (2.51b) zu der Mathieu'schen Differentialgleichung (2.53) vereinfacht werden.

$$2\tau = \omega t \quad (2.52a)$$

$$a_u = a_x = -a_y = \frac{4eU}{mr_0^2\omega^2} \quad (2.52b)$$

$$q_u = q_x = -q_y = \frac{2eV}{mr_0^2\omega^2} \quad (2.52c)$$

2. Theoretische Grundlagen

$$\boxed{\frac{d^2 u}{d\tau^2} + (a_u - 2q_u \cos(2\tau)) \cdot u = 0} \quad (2.53)$$

Die Lösung der Mathieu'schen Differentialgleichung ist in [McL47] und [MS54] detailliert beschrieben und wird durch eine Linearkombination zweier unendlicher Fourier-Reihen gebildet, mit den Koeffizienten $\alpha_{I,II}$, den Fourier-Reihenkoeffizienten $c_{2s,u}$ und dem *charakteristischen Exponenten* $\mu_u = i\beta_u$.

$$u(\tau) = \alpha_I \cdot e^{\mu_u \tau} \sum_{s=-\infty}^{\infty} c_{2s,u} \cdot e^{2is\tau} + \alpha_{II} \cdot e^{-\mu_u \tau} \sum_{s=-\infty}^{\infty} c_{2s,u} \cdot e^{-2is\tau} \quad (2.54a)$$

Über den exponentiellen und trigonometrischen Zusammenhang, der Euler'schen Formel $e^{\pm i\varphi} = \cos(\varphi) \pm i \sin(\varphi)$ kann die Lösung (2.54a) umgeschrieben werden, wobei für die Koeffizienten der Zusammenhang $A = \alpha_I + \alpha_{II}$ und $B = i(\alpha_I - \alpha_{II})$ gilt.

$$u(\tau) = A \cdot \sum_{s=-\infty}^{\infty} c_{2s,u} \cdot \cos((2s + \beta_u)\tau) + B \cdot \sum_{s=-\infty}^{\infty} c_{2s,u} \cdot \sin((2s + \beta_u)\tau) \quad (2.54b)$$

Die Koeffizienten α_I und α_{II} bzw. A und B werden durch die Anfangsbedingungen u und \dot{u} definiert.

Die Fourier-Reihenkoeffizienten $c_{2s,u}$ dagegen hängen nur von den Parametern a_u und q_u ab und konvergiert für große s schnell gegen 0.

$$\lim_{s \rightarrow \pm\infty} |c_{2s,u}|^{\frac{1}{|s|}} = 0 \quad (2.55)$$

Die Konstante β_u im charakteristischen Exponenten μ_u hängt ebenfalls nur von den Parametern a_u und q_u ab und kann iterativ durch den Kettenbruch mit der Rekursionsfunktion $r_{\pm}(k, a_u, q_u)$ bestimmt werden.

$$\beta_u^2(a_u, q_u) = a_u + r_+(1, a_u, q_u) + r_-(1, a_u, q_u) \quad (2.56)$$

$$r_{\pm}(k, a_u, q_u) = \frac{q_u^2}{(2k \pm \beta_u)^2 - a_u - r_{\pm}(k+1, a_u, q_u)} \quad (2.57)$$

Aus Gleichung (2.54a) bzw. (2.54b) geht hervor, dass Lösungen, also Trajektorien von geladenen Teilchen, nur dann beschränkte Oszillationen beschreiben, wenn β_u eine rein reelle Zahl annimmt. Diese Lösungen werden als *stabil* bezeichnet. Ist ein imaginärer Anteil in β_u vorhanden, wächst die Oszillationsamplitude der Teilchen exponentiell an, diese treffen auf die Quadrupolstäbe und sind somit verloren. Diese Lösungen werden als *instabil* bezeichnet.

Da der charakteristische Exponent β_u von den dimensionslosen Parametern a_u und q_u abhängt, können die stabilen Lösungen im $a_u q_u$ -Parameterraum, dem sog. Stabilitätsdiagramm, graphisch dargestellt werden. Abbildung 2.14 zeigt das Stabilitätsdiagramm für einen linearen Quadrupol entlang der z -Achse:

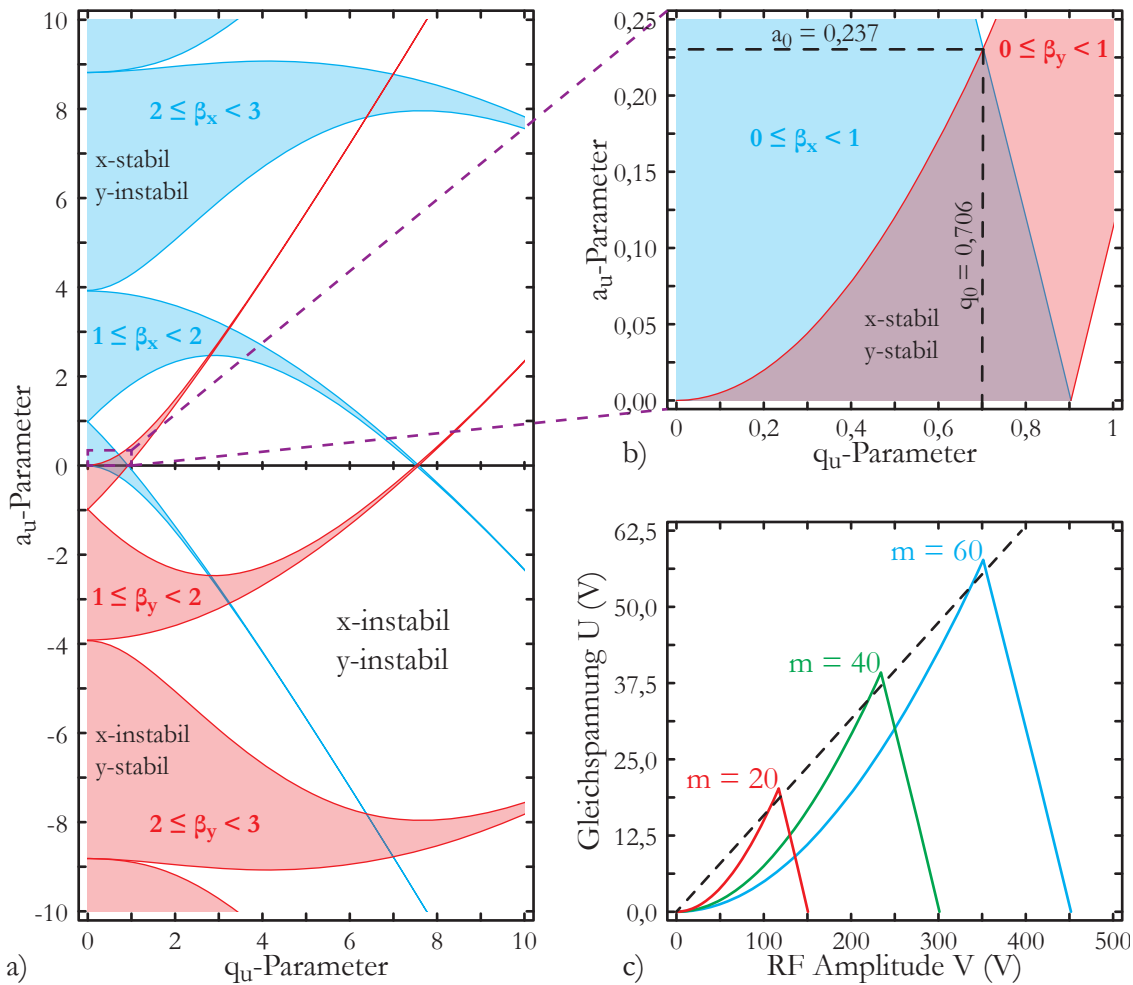


Abbildung 2.14.: Stabilitätsdiagramm eines idealen linearen Quadrupols entlang der z -Achse.

- Kennzeichnung stabiler Lösungen hinsichtlich der x -Achse durch blaue bzw. hinsichtlich der y -Achse durch rote Flächen.
- Verzerrte Vergrößerung des ersten gemeinsamen in x - und y -Achse stabilen Bereichs.
- Umrechnung der Parameter a_u und q_u in Spannungen für U und V für unterschiedliche Massen mit fiktiven Werten für r_0 und ω und Darstellung einer Arbeitsgeraden zum massenselektiven Betrieb.

2. Theoretische Grundlagen

Betrachtet man zunächst die Lösungen nur für die x -Ausrichtung, ergeben sich für die blauen Flächen in Abbildung 2.14a) reelle Werte für β_x . Betrachtet man die Lösungen für die y -Ausrichtung, müssen nach den Gleichungen (2.52b) und (2.52c) nur die Lösungen der x -Ausrichtung invertiert werden, was im Stabilitätsdiagramm einer Spiegelung an der a_u - und q_u -Achse zur Folge hat. Der Parameter q_u repräsentiert die Wechsellspannungsamplitude. Negative Werte für q_u bedeuten eine Phasenverschiebung der Wechsellspannung V um π . Man erhält dadurch zur a_u -Achse spiegelsymmetrische Lösungen. Die Spiegelung an der q_u -Achse verdeutlicht, dass mit Gleichspannungen entweder nur in Richtung der x - oder der y -Achse fokussiert werden kann. Es reicht aus, nur die stabilen Lösungen im ersten Quadranten zu betrachten. Es ergeben sich für die roten Flächen in Abbildung 2.14a) reelle Werte für β_y . Gemeinsame stabile Lösungen ergeben sich durch die Überlagerung der roten und blauen Flächen. Die größte überlappende Dreieck-ähnliche Fläche ist in Abbildung 2.14b) gezeigt und wird in Folge dessen auch *Stabilitätsdreieck* genannt. Die Dreieckspitze ($a_u = a_0 = 0,237$, $q_u = q_0 = 0,706$) spielt bei dem massenselektiven Betrieb eine wesentliche Rolle. Substituiert man die Parameter a_u und q_u zurück in die Spannungen U und V so ergeben sich je nach Masse unterschiedlich große Dreiecke, deren Spitzen auf einer Geraden liegen, so dass explizit immer nur eine Masse transmittiert werden kann. Ein Beispiel ist in Abbildung 2.14c) zu sehen, wobei fiktive Werte für r_0 und ω verwendet wurden.

Für die Bestimmung der Trajektorien der geladenen Teilchen für einen festen Arbeitspunkt (a_u, q_u) bestimmen man das Frequenzspektrum $\Omega_{s,u}$ der Oszillationen der Ionen. Hinzu setzt man τ aus Gleichung (2.52a) in Gleichung (2.54b) ein. Wegen der in Gleichung (2.55) beschriebenen Konvergenz der Koeffizienten $c_{2s,u} \rightarrow 0$ für große $|s|$ erhält man folgende Näherungslösung.

$$\Omega_{s,u} = |2s + \beta_u| \frac{\omega}{2} \quad \text{für} \quad s = 0, \pm 1, \pm 2 \dots \quad (2.58)$$

Die sogenannte *adiabatische Näherung* wird üblicherweise zur Bestimmung der Trajektorien in der Fallengeometrie verwendet und setzt für den Fall $\beta_u^2 \ll 1$, also nahe des Koordinatenursprungs, die Bedingungen $|a_u| \ll q_u \ll 1$ voraus, so dass sich die Gleichung 2.56 zu folgendem Term vereinfacht.

$$\beta_u^2 = a_u + \frac{q_u^2}{2} \quad (2.59)$$

Betrachtet man nur die Fourier-Reihenoeffizienten $c_{2s,u}$ für $s = 0$ und $s = \pm 1$, so folgt für diese aus der adiabatische Näherung der Zusammenhang:

$$c_{2,u} = c_{-2,u} = -\frac{q_u}{4} c_{0,u} \quad (2.60)$$

Die allgemeine Lösung der Matheu'sche Bewegungsgleichung nimmt dann folgende Form an:

$$u(t) = c_{0,u} \sqrt{A^2 + B^2} \left(1 - \frac{q_u}{2} \cos(\omega t) \right) \cos \left(\frac{\beta_u}{2} \omega t - \varphi \right) \quad (2.61)$$

$$\text{mit } \varphi = \arctan\left(\frac{A^2 - B^2}{A^2 + B^2}\right) \quad (2.62)$$

Man erkennt in Gleichung (2.61) durch die zwei Klammern die überlagerten Bewegungen der Mikro- und Makrobewegung.

- Die Mikrobewegung folgt direkt dem Führungsfeld ω und hat eine um den Faktor $q_u/2$ reduzierte Amplitude.
- Die Makrobewegung beschreibt eine Oszillation mit der reduzierten Frequenz $\frac{\beta_u}{2}\omega$

Überträgt man die Bewegungsgleichung (2.61) auf die Dreiecksspitze des Stabilitätsdiagramms, so können die zugehörigen Mikro- und Makrobewegungen durch Einsetzen der Parameter q_u und β_u berechnet werden, wobei der Koeffizient $c_{0,u}\sqrt{A^2 + B^2} = 1$ und $\varphi = 0$ gesetzt wurde. Zur Veranschaulichung wurden die Oszillationen für drei unterschiedliche Arbeitspunkte berechnet. Die Arbeitspunkte sind in Abbildung 2.15a) und in Abbildung 2.15b) die dazugehörigen Trajektorien der Oszillationen in x -Richtung (oben) und in y -Richtung (unten) dargestellt. Für den Arbeitspunkt bei $(q_u, a_u) = (0,7050, 0,2357)$, der durch ein grünes Kreuz markiert ist, folgen für eine geeignete Masse stabile Oszillationen. Für eine zu leichte Masse entspricht der Arbeitspunkt $(q_u, a_u) = (0,7075, 0,2365)$, der durch ein blaues Kreuz markiert ist. Die Oszillation ist in der x -Richtung instabil und wächst in der Amplitude an, bis die Masse auf die Quadrupolstäbe trifft. Für eine zu schwere Masse entspricht der Arbeitspunkt $(q_u, a_u) = (0,7010, 0,2343)$, der durch ein rotes Kreuz markiert ist. Die Oszillation ist in y -Richtung instabil und wächst in der Amplitude immer stärker an, bis die Masse auf die Quadrupolstäbe trifft.

2. Theoretische Grundlagen

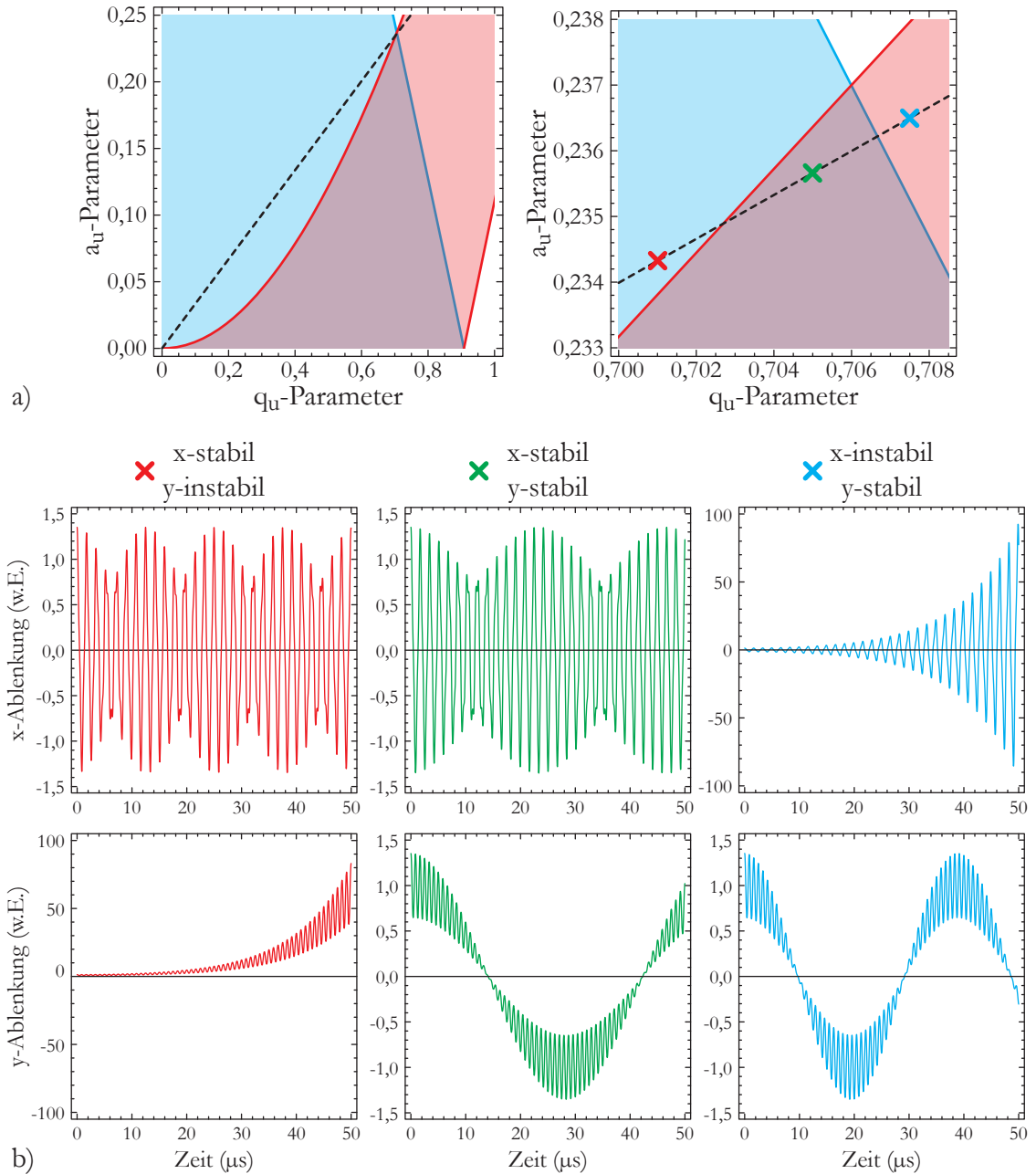


Abbildung 2.15.: a) Stabilitätsdiagramm mit einer schwarz gestrichelten Arbeitsgeraden (links) und eine Vergrößerung der Spitze des Stabilitätsbereichs (rechts). Ein Arbeitspunkt für eine stabile Trajektorie einer Masse ist durch das grüne Kreuz dargestellt. Ein Arbeitspunkt einer zu schweren Masse ist durch das rote und einer zu leichten Masse durch das blaue Kreuz dargestellt.

b) Berechnete Oszillationen in x -Richtung (oben) und y -Richtung (unten) für die verschiedenen Arbeitspunkte.

2.4. Produktion von Radionukliden

Die Produktion von radioaktiven Nukliden findet bei ISOLDE durch Protonenbeschuss in einem massiven Target mit einer Massenseparationsanlage statt. Diese Vorgehensweise wird als *On-line*-Betrieb bezeichnet, im Gegensatz zum *Off-line*-Betrieb, bei dem meist stabile Isotope, verwendet werden. Dabei wird das Target mit Protonen beschossen, die eine kinetische Energie von typischerweise 1,4 GeV haben. Das Target ist im Allgemeinen direkt mit der Ionenquelle verbunden und besteht entweder aus Metall, refraktionärem Metallpulver oder Metallkarbid. Je nachdem, welches Target-Material verwendet wird, wird es auf 700 °C bis 2000 °C geheizt. Entsprechend variiert die Effusionszeit der erzeugten Radionuklide durch das Targetmaterial bis in die Ionenquelle von einer Zehntel bis drei Sekunden. Durch den Beschuss von Protonen werden im Target-Material durch Spallation, Fragmentation und Kernspaltung die Radionuklide produziert. Abbildung 2.16 veranschaulicht diese drei Prozesse.

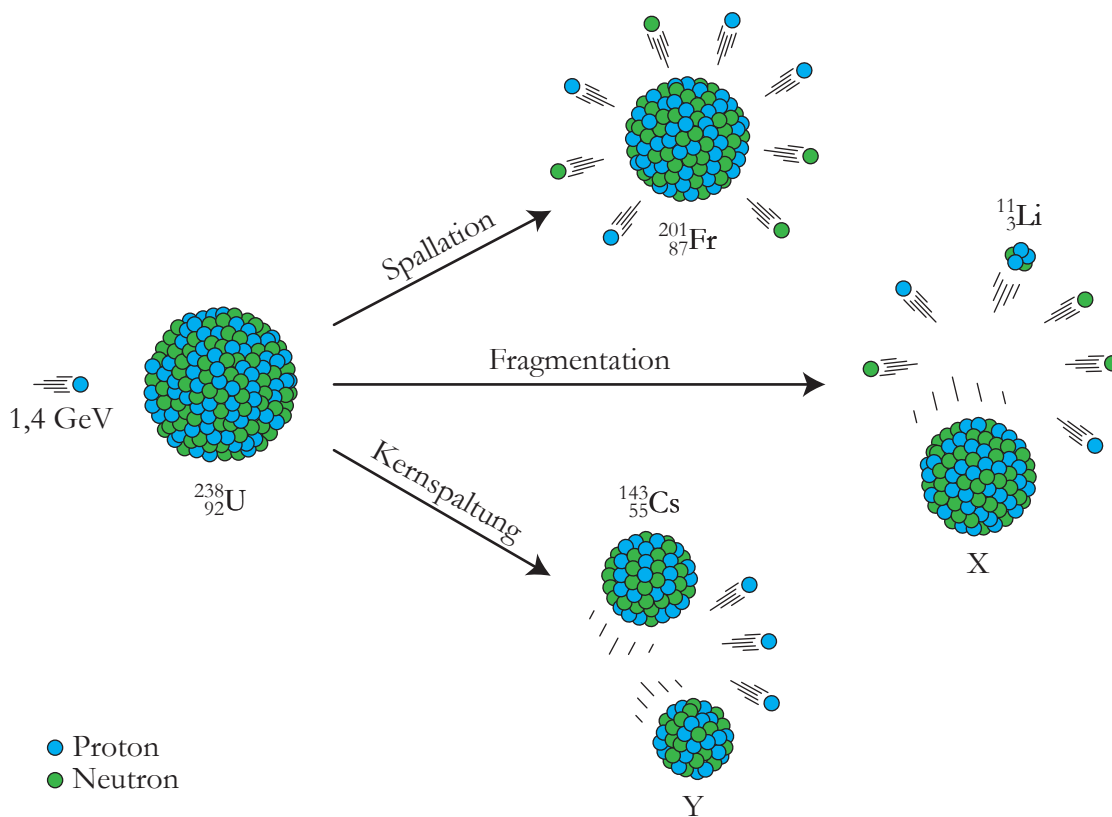


Abbildung 2.16.: Die drei Prozesse, Spallation, Fragmentation und Kernspaltung, illustriert anhand des Target-Materials $^{238}_{92}\text{U}$ mit Erzeugung dreier Beispiel-Radionuklide, $^{201}_{87}\text{Fr}$, $^{11}_3\text{Li}$, $^{143}_{55}\text{Cs}$ gezeigt.

3. Experimenteller Aufbau

In diesem Kapitel wird der experimentelle Aufbau beschrieben. Zuerst wird die prinzipielle Funktionsweise des Massenseparators an der Universität Mainz und ISOLDE bei CERN, sowie einige wichtige Unterschiede der einzelnen Anlagen untereinander erläutert. Weiter wird jeweils näher auf die für diese Arbeit relevanten unterschiedlichen Ionenquellen in ihrer Funktion eingegangen, als auch die für den Betrieb der Ionenquellen notwendige technische Infrastruktur beschrieben. Schlussendlich folgt ein Überblick über die Lasersysteme, die für den Betrieb der beschriebenen Laser-Ionenquellen notwendig sind.

3.1. Massenseparator

Mit Hilfe von Massenseparatoren werden einzelne Atome oder Moleküle durch eine Ionenquelle ionisiert, mittels einer Separationseinheit nach deren Masse-zu-Ladungsverhältnis sortiert und in einem Detektor nachgewiesen oder anderen Experimenten zur Verfügung gestellt.

In Abbildung 3.1 ist schematisch der aktuelle Aufbau des RISIKO¹-Massenseparators gezeigt, der in seiner ursprünglichen Funktion zur Spurenanalyse von Strontiumisotopen in Umweltproben entwickelt und aufgebaut wurde [Zim90]. Die Funktionsweise der einzelnen Bauteile wird der Reihenfolge wie in Abbildung 3.1 nacheinander erläutert:

Ionenquelle

Die Ionenquelle bringt die Atome oder Moleküle einer Probe in einen ionischen Zustand, so dass diese mit Hilfe von elektrischen oder magnetischen Feldern manipuliert werden können. Da es in dieser Arbeit hauptsächlich um den Vergleich und die Entwicklung von Ionenquellen geht, werden diese im Kapitel 3.2 gesondert und detailliert beschrieben. Jede der verwendeten Ionenquellen, als auch die Geräte, die für oder im Bereich der Ionenquelle notwendig sind, werden in einem Sicherheitsbereich, einem *Hochspannungskäfig*, abgeschottet auf dem Potential von 30 kV bzw. bei ISOLDE auf 60 kV betrieben. Dieses Potential entspricht der kinetischen Gesamtenergie der Ionen.

Extraktionselektrode

Mit Hilfe der Extraktionselektrode werden die Ionen primär beschleunigt. Die Elektrodenöffnung ist mit $67,5^\circ$ zur Strahlachse geneigt und in einem achtfachen Abstand des

¹RISIKO ist das phonetische Akronym zu *Resonanzionisationsspektroskopie in kollinearer Geometrie*

3. Experimenteller Aufbau

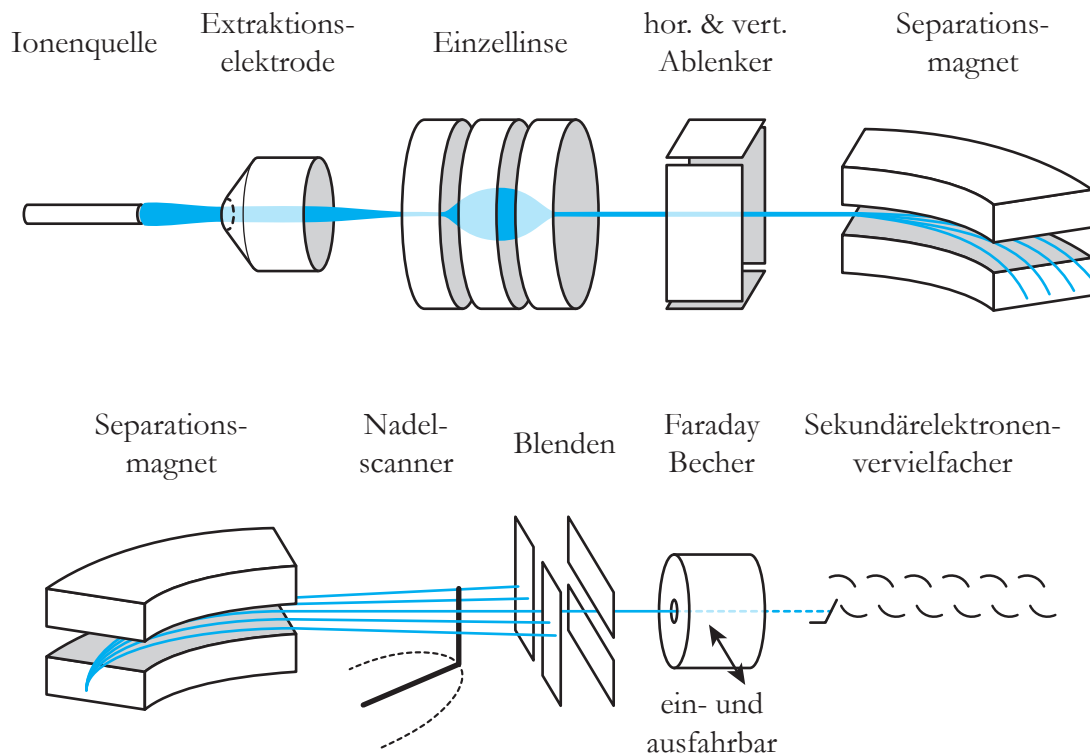


Abbildung 3.1.: Schematische Darstellung der Funktion des RISIKO Massenseparators. Obere Ebene: Produktion der Ionen in der Ionenquelle, Beschleunigung und Ionenstrahlformung durch die ionenoptischen Elemente Extraktions-elektrode, Einzellinse, horizontale und vertikale Ablenker, und Separationsmagnet.

Untere Ebene: Aufspaltung des Ionenstrahls durch den Separationsmagneten nach dem Masse-zu-Ladungsverhältnis, und die Detektoren Nadel-scanner, nach den Schlitzblenden ein- und ausfahrbarer Faraday Becher und Sekundärelektronenvervielfacher.

Nähere Erläuterungen zu den einzelnen Bauteilen folgen im Text.

Ionenstrahldurchmessers zur Ionenquelle angeordnet. Durch die kegelförmige Geometrie der Elektrode bewirkt das elektrische Feld, dass im Idealfall die Raumladungseffekte der Ionen untereinander kompensiert und somit die Divergenz kompensiert wird [Pie54]. Es resultiert ein paralleler Ionenstrahl. Diese Geometrie wird auch *Pierce-Anordnung* genannt.

Bei RISIKO ist die Extraktionsöffnung mit 7 mm vorgegeben. Gute Ergebnisse konnten erzielt werden, wenn der Abstand der Extraktionselektrode zur Ionenquelle im Allgemeinen 40 mm betrug. In diesem Fall ist eine erste Potentialdifferenz von ungefähr 12 kV notwendig.

Die Extraktionselektrode kann in der Halterung vor und zurück bewegt werden. Durch die unteren Translationsrollen kann ein vertikaler Kippwinkel korrigiert werden, weitere Bewegungsfreiheitsgrade sind nicht manipulierbar. Die zweigeteilte Halterung wird durch gegenseitiges Kontern an einem aus Kunststoff bestehenden Isolationsring befestigt, während dieser wiederum durch den Fixierring am Rezipienten befestigt wird.

Abbildung 3.2 zeigt einen Schnitt der technischen Zeichnung der Extraktionselektrode in ihrer Halterung.

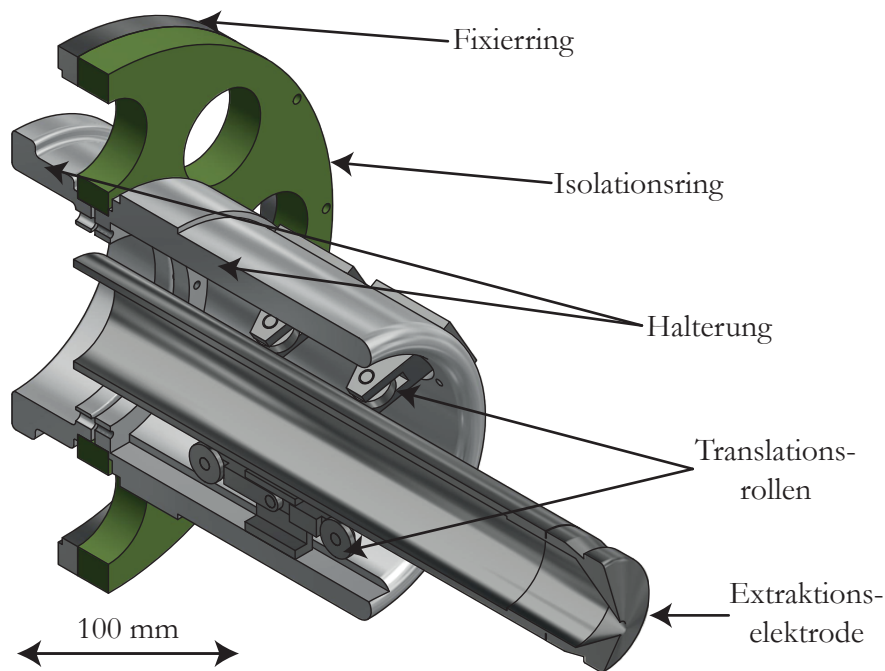


Abbildung 3.2.: Extraktionselektrode mit Fixierung durch Translationsrollen in der Halterung, Isolationsring und Fixierring.

Einzellinse

Eine Einzellinse dient zur Fokussierung des Ionenstrahls und besteht im einfachsten Fall aus drei nacheinander folgenden Ringelectroden, wobei die beiden äußeren Elektroden

3. Experimenteller Aufbau

das gleiche Potential haben. Dadurch behalten die Ionen ihre Gesamtenergie nach Passieren der Einzellinse bei. Je nachdem welches Vorzeichen das Potential der mittleren Elektrode besitzt, werden die Ionen kurzzeitig abgebremst oder beschleunigt. Bei beiden Varianten tritt ein fokussierender Effekt auf [Lie08].

Bei RISIKO schließt die Einzellinse mit etwa einem Zentimeter Abstand an die Halter der Extraktionselektrode an. Ein Fokus im Bereich der Detektorregion wird mit einer Potentialdifferenz von etwa 7 kV zur Extraktionsspannung erreicht. Drei mit Federn gespannte Konterschrauben ziehen die äußeren Elektroden (1 und 3) zusammen. Dadurch werden die drei Elektroden und die isolierenden Glasisolatoren zusammengezogen und -gehalten. Durch die Konterschrauben sind die äußeren Elektroden elektrisch verbunden und durch die 3 Rezipientenbefestigungen geerdet. Abbildung 3.3 zeigt einen Schnitt der technischen Zeichnung der Einzellinse.

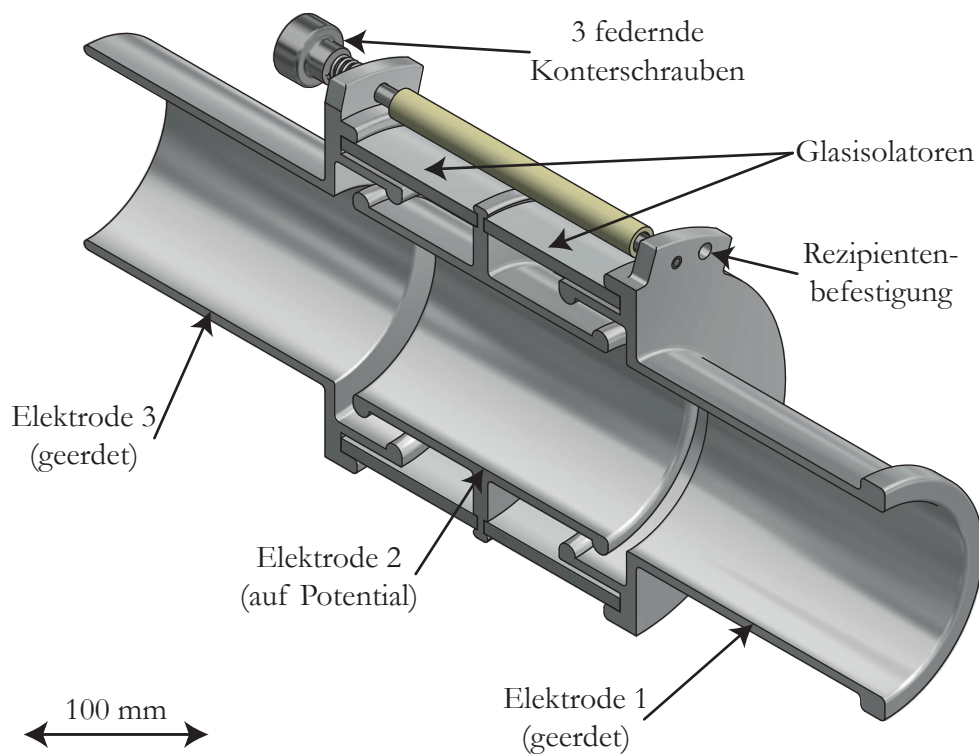


Abbildung 3.3.: Einzellinse bei RISIKO.

Ablenker

Die Ablenker ermöglichen eine Korrektur der Flugrichtung der Ionen, wenn diese aufgrund von thermisch bedingten Änderungen der Ionenquelle oder von fehlenden Freiheitsgeraden ionenoptischer Bauteile nicht exakt auf der definierten Achse durch die Vakuumapparatur fliegen.

Die Ablenkplatten in x - und y -Richtung sind nacheinander positioniert, wobei gegenüberliegenden Ablenkplatten symmetrisch mit unterschiedlichem Vorzeichen auf Potenti-

al gesetzt werden. Damit erfolgt bei kleinen Abweichungen von der Achse eine Korrektur ohne linsenähnliche Effekte.

Abbildung 3.4 zeigt eine technische Zeichnung der Ablenker.

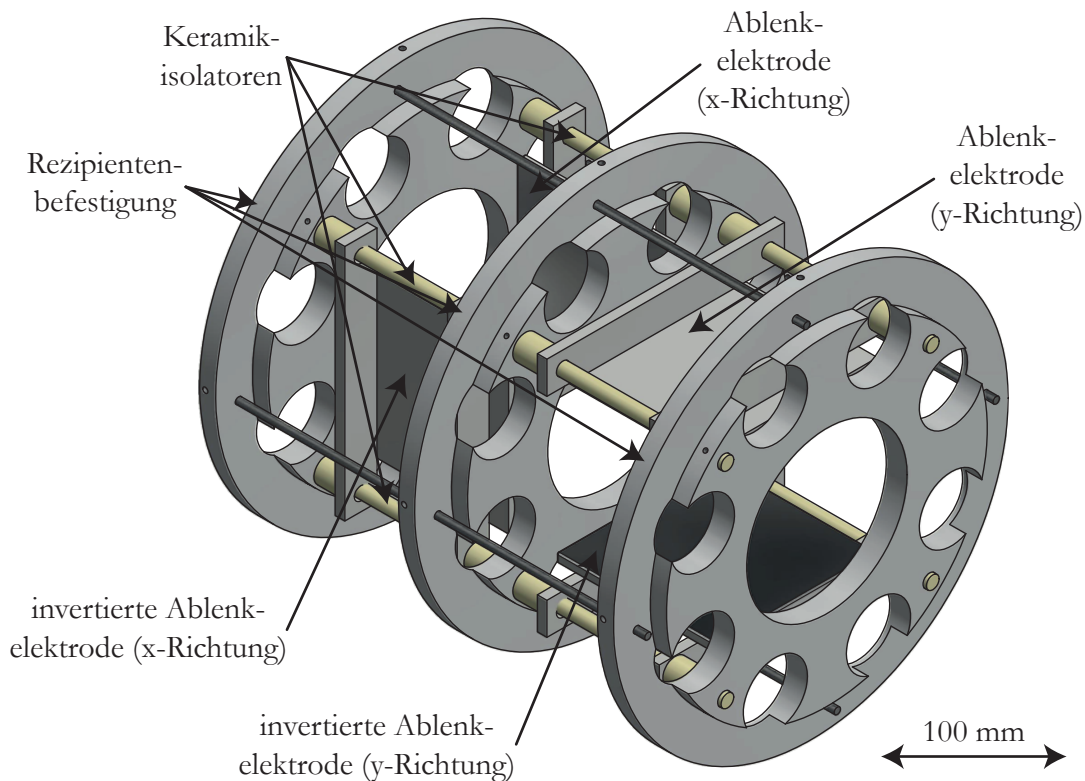


Abbildung 3.4.: x - bzw. y -Ablenker, bestehend jeweils aus zwei Ablenkelektroden, die symmetrisch mit unterschiedlichem Vorzeichen auf Potential gesetzt werden. Keramikisolatoren und Gewindestangen verbinden Ablenkelektroden und Rezipientenhalter.

Separationsmagnet

Der Separationsmagnet des RISIKO-Massenseparators ist ein 60° Dipolmagnet². Die Ionen werden je nach Ladung und Masse unterschiedlich durch das im Separationsmagneten erzeugte Magnetfeld abgelenkt. Daher erfolgt eine Aufspaltung des Ionenstrahls nach dem Masse-zu-Ladungsverhältnis. Die Ionenquellen, die in dieser Arbeit behandelt werden, produzieren im allgemeinen nur einfach geladene Ionen, so wird nachfolgend der Einfachheit halber nur von einer Massenseparation geredet. Es kann ein Magnetfeld bis zu 0,7 T erzeugt werden, womit theoretisch bei einer Gesamtenergie der Ionen von 30 kV eine Transmission bis zur Masse 250 u erreicht werden kann. Zur Bestimmung des Magnetfeldes ist eine Hallsonde zwischen den Polen des Separationsmagneten installiert.

²Hersteller: Firma Danfysik, DK-2630 Taastrup

3. Experimenteller Aufbau

Bei ISOLDE existieren für Forschungszwecke zwei On-line-Massenseparatoren, *GPS*³ und *HRS*⁴ und für Entwicklungszwecke ein weiterer Off-line-Massenseparator. Genauso wie der RISIKO-Massenseparator, setzen der GPS und der Off-line-Massenseparator einen 60° Dipolmagneten ein und erreichen damit eine Auflösung von $R = m/\Delta m = 500 \dots 1000$. Der HRS dagegen verwendet zwei, einen 60° und einen 90° Dipolmagneten, um die Massenaufösung erheblich auf Werte von bis zu $R = 5000$ zu erhöhen [ISO14b].

Nadelscanner

Der Nadelscanner ist ein Detektor für geladene Teilchen, wobei der für Ionen sensitive Teil aus einem Stück Draht (Nadel) besteht. Dieser durchquert die vom Magneten nach Masse horizontal aufgefächerten Ionenstrahlen. Die Ionen werden von der Nadel aufgenommen und ein entsprechender Strom kann gemessen werden. Für die Detektion eines Ionenstrahls ist ein Ionenstrom von mindestens 200 pA notwendig. Um Informationen über die absolute Größe des Ausschlags der Nadel zu erhalten, können Marker frei gesetzt werden, die je nach Ausschlag der Nadel ein Signal ausgeben. Da die Nadel mit etwa 15 Hz oszilliert, können recht schnell Einflüsse der Extraktionselektrode, der Einzellinse oder des horizontalen Ablenkers analysiert werden, für das sonst ein Durchstimmen des Magnetfeldes des Separatormagneten notwendig wäre. Das macht den Nadelscanner zum idealen Detektor zum Optimieren der Extraktionselektrode und der Einzellinse. Ein durch den Nadelscanner aufgenommenes Palladium-Spektrum ist in Abbildung 3.5 dargestellt. Mit dem Nadelscanner können je nach Massebereich 6 bis 12 Ionenstrahlen

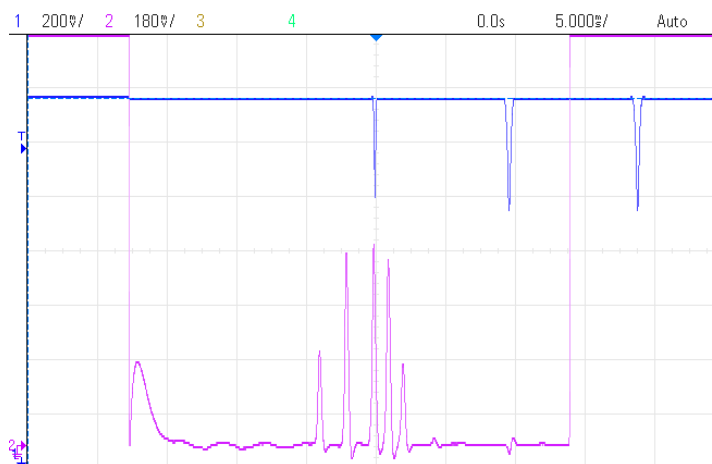


Abbildung 3.5.: Momentaufnahme des Oszilloskopdisplays des Nadelscanners. Die magentafarbene Linie visualisiert das Spektrum der natürlichen Isotopenverteilung des stabilen Palladiums. Zu erkennen sind von rechts nach links die Palladium-Isotope $^{102}_{46}\text{Pd}$, $^{104}_{46}\text{Pd}$ bis $^{106}_{46}\text{Pd}$, $^{108}_{46}\text{Pd}$ und $^{110}_{46}\text{Pd}$. Die blaue Linie visualisiert das Passieren der Marker.

aufgenommen werden. Ein Marker definiert den zentralen Durchgang durch die nach-

³GPS ist das phonetische Akronym zu *General Purpose Separator*

⁴HRS ist das phonetische Akronym zu *High Resolution Separator*

folgenden Blenden, während der zweiter Marker einen willkürlich gewählten Ausschlag von 2 cm Abstand zum zentralen Durchgang definiert.

Schlitzblenden

Es sind bewegliche Schlitzblenden sowohl zur horizontalen, als auch zur vertikalen Limitierung des Ionenstrahls vorhanden. Davon werden nur die horizontalen Blenden genutzt um die Detektion benachbarter Ionenstrahlen zu verhindern. Des weiteren können die Blenden auch genutzt werden, um die Ionenstrahlintensität abzuschwächen, damit Detektoren mit niedriger Zerstörschwelle, z.B. der Sekundärelektronenvervielfacher, verwendet werden können.

Faraday Becher

Das Detektionsverfahren des Faraday Bechers ist das Gleiche wie das des Nadelscanners. Da der Nadelscanner nur die Detektionsoberfläche der Nadel hat, ist dieser als Detektor nur mit großen Ionenströmen benutzbar. Der Faraday Becher bietet, je nach verwendeter Blende, eine größere Detektionsfläche und kann durch ein integratives Messverfahren schon für Ionenströme ab 100 fA benutzt werden. Im Vergleich zum Nadelscanner ist somit der Faraday Becher bis zu 3 Größenordnungen sensitiver. Abbildung 3.6 zeigt einen Schnitt einer technischen Zeichnung des Faraday Bechers.

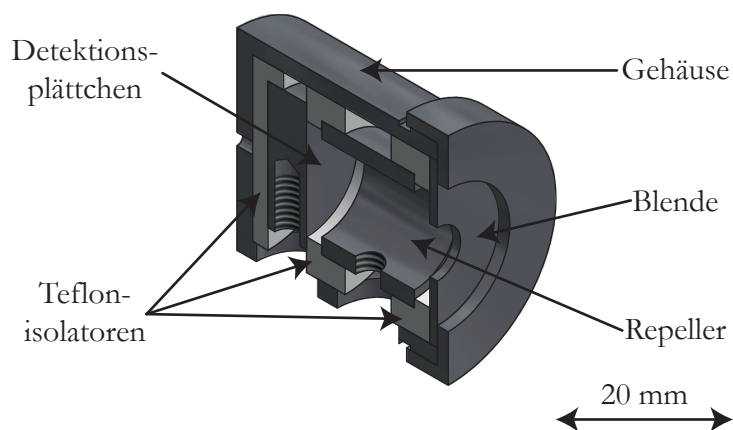


Abbildung 3.6.: Faraday Becher: In einem geerdeten Gehäuse werden durch Teflon isoliert das Detektionsplättchen und der Repeller untergebracht.

Beim Auftreffen von Ionen auf das Detektionsplättchen können Elektronen ausgeschlagen werden. Diese liefern einen zusätzlichen Beitrag des gemessenen Ionenstroms. Daher wird eine zusätzliche Repellerelektrode auf -30 V gesetzt, um ausgeschlagene Elektronen wieder auf das Detektionsplättchen zu drücken. Wird die Repellerelektrode geerdet, so wird der gemessene Ionenstrom bis zu einer Größenordnung nach oben verfälscht. Ist die Repellerelektrode nicht angeschlossen, also ohne definiertes Bezugspotential, lädt sich die Repellerelektrode auf und nach einer Zeit von wenigen Sekunden stellt sich ein Ionenstrom mit konstantem Verhältnis zum tatsächlichen Ionenstrom ein.

Sekundärelektronenvervielfacher

Mit einem Sekundärelektronenvervielfacher (kurz *SEV*) können einzelne Ionen gezählt und das zeitliche Eintreffen der Ionen gemessen werden. Der SEV besteht aus mehreren Dynoden, wobei an die erste Dynode ein negatives Potential von typisch $> -2\text{ kV}$ angelegt wird und die Dynoden untereinander durch hochohmige Widerstände der Reihe nach verbunden sind. Beim Auftreffen der Ionen auf die erste Dynode, der sog. Konversionsdynode, werden Elektronen freigesetzt, die aufgrund der Potentialdifferenz zur nächsten Dynode beschleunigt werden. Die Elektronen erhalten somit genügend kinetische Energie, um bei jeder Dynode weitere Sekundärelektronen herauszulösen. Somit entsteht stufenweise eine Elektronenlawine für jedes einzelne auftreffende Ion. Von der letzten Dynode, der Anode, fließt die Ladung der Elektronenlawine über einen Arbeitswiderstand zur Erdung ab. Abbildung 3.7 zeigt links die Rückansicht und rechts einen Schnitt einer technischen Zeichnung des SEV.

Der durch die Elektronenlawine am Arbeitswiderstand erzeugte Spannungsabfall wird als Ausgangssignal genutzt. Die Verarbeitung des Signals erfolgt durch einen schnellen Verstärker und einen Diskriminator, der ein TTL-Signal definierter Länge von ca. 25 ns ausgibt. Abbildung 3.8 zeigt das Signal des SEV und das Ausgangssignal des Diskriminators. Aufgrund der geringen Zerstörschwelle der Dynodenbeschichtung und der Gefahr von Überschlägen sollten nicht mehr als 10^6 Ionen pro Sekunde auf den SEV treffen. Das entspricht einem maximalen Ionenstrom von etwa 100 fA. Dieses Limit wird nochmals verringert, wenn die Ionen nicht kontinuierlich, sondern nur in definierten kurzen

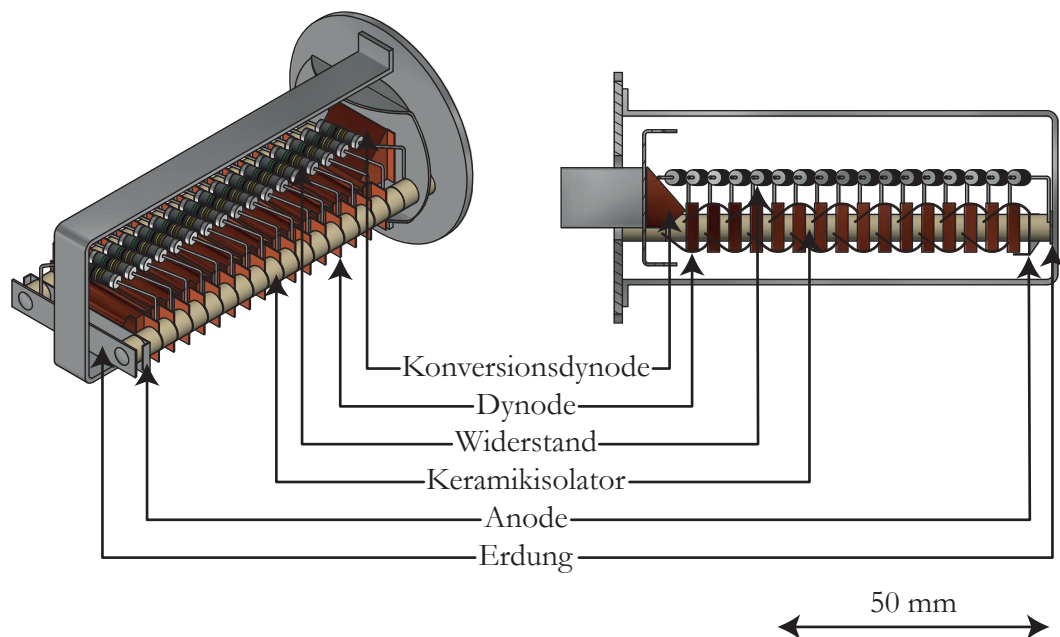


Abbildung 3.7.: In zwei Ansichten ist der Aufbau des SEV zu erkennen. Konversionsdynode und Dynoden sind durch Widerstände verbunden. An der letzten Dynode, der Anode, wird das Signal der Elektronenlawine gemessen.

Zeitfenstern auf den SEV treffen.

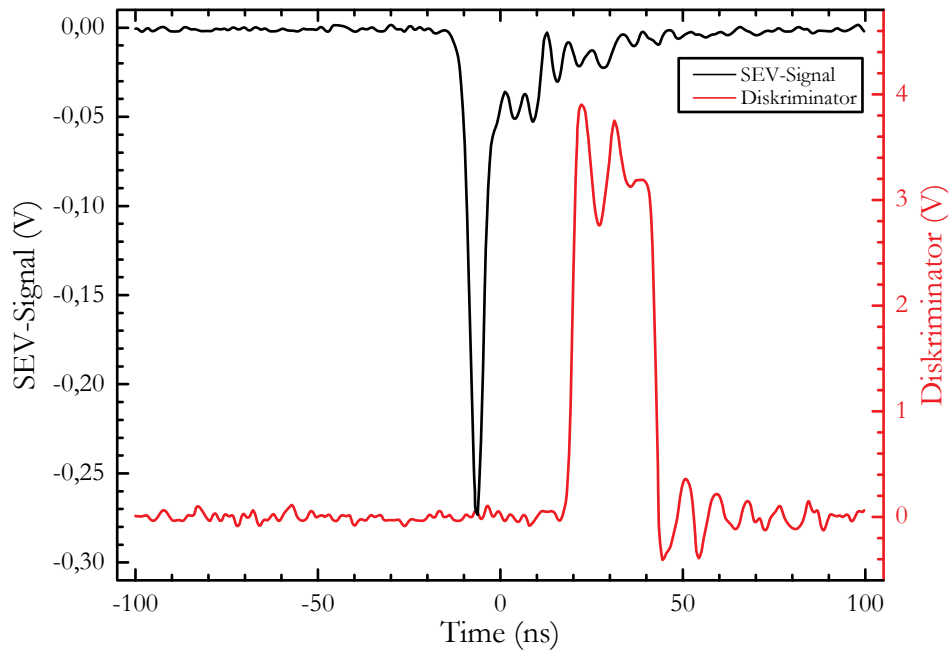


Abbildung 3.8.: In schwarz ist der negative Spannungsabfall der Elektronenlawine über den Arbeitswiderstand dargestellt. Der Diskriminator wandelt alle Spannungsabfälle bestimmter Tiefe in ein TTL-Signal um, welches in rot dargestellt wird.

Weitere Detektoren bei ISOLDE

Für die eindeutige Identifizierung radioaktiver Elemente bei ISOLDE wurden für Messungen zwei weitere Arten von Detektoren verwendet:

- Die *Tape-Station* ist ein Detektor, mit dem verschiedene Isotope mit β -Zerfall identifiziert werden können. Ein Metall-beschichtetes Band wird in den Ionenstrahl gefahren und für eine kurze, definierte Zeit (Gating) werden die radioaktiven Ionen auf ihm gesammelt. Der Bereich des Bandes mit den gesammelten Ionen bewegt sich in einen Szintillator, in dem die β -Teilchen registriert werden. Aus deren zeitabhängigen Zählrate und aus den bekannten Zerfallsketten einzelner Isotope können diese nachgewiesen und identifiziert werden [LCD⁺97]. Abbildung 3.9a) zeigt eine schematische Darstellung der Tape Station.
- Der *Windmill-Detektor* ist eine Entwicklung der Katholischen Universität Leuven (Belgien). Mit ihm können radioaktive Isotope mit α -Zerfall identifiziert werden. Auf einem drehbaren Rad, der sog. Windmill, sind zehn Kohlenstoff-Folien befestigt, die nacheinander in den Ionen-Strahlengang gefahren werden können. Die Ionen werden in den Kohlenstoff-Folien implantiert. Deren Zerfallsprodukte können

3. Experimenteller Aufbau

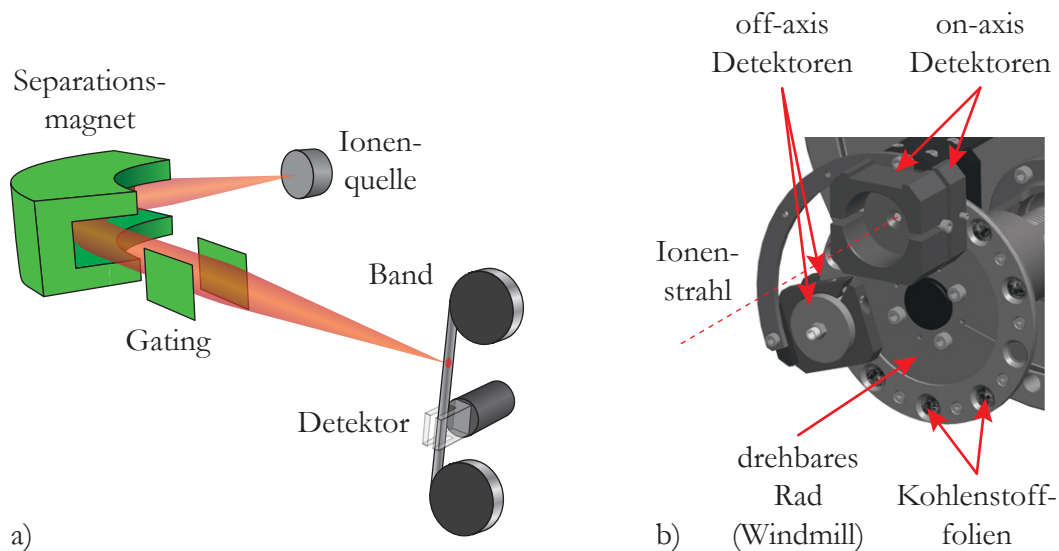


Abbildung 3.9.: Schematische Darstellung a) der Tape-Station [Gil10] und b) des Windmill-Detektors [RLC⁺13].

direkt on-axis im Bereich des Ionenstrahls mit Silizium-Detektoren (PIPS⁵) oder off-axis, unabhängig von einer kontinuierlichen Implantation radioaktiver Teilchen, nachgewiesen werden. Weitere Germanium-Detektoren, die am Windmill-Detektor positioniert sind, ermöglichen zusätzliche, bei dem Zerfall freigesetzte γ -Strahlung nachzuweisen. Abbildung 3.9b) zeigt eine schematische Darstellung des Windmill-Detektors.

3.2. Ionenquelle

Es gibt eine große Anzahl unterschiedlicher Ionisationsverfahren. An der Forschungseinrichtung ISOLDE am CERN werden im Allgemeinen Laserionisation, Oberflächenionisation und Plasmaionisation genutzt [ISO14b]. Diese Verfahren weisen im Bezug auf ihren spezifischen Aufbau, der Ionisationswahrscheinlichkeit und der Selektivität des Prozesses unterschiedliche Stärken und Schwächen auf:

- Oberflächenionenquellen sind vergleichsweise einfach gebaut und können ohne großen Aufwand betrieben werden. Allerdings können nur Elemente mit niedrigem Ionisationspotential, also primär Alkali- und Erdalkalielemente von der linken Seite des Periodensystems, effizient ionisiert werden.
- Plasmaionenquellen sind technisch aufwendig, da sie höhere Spannungen und kontrollierten Stromfluss für die Entladung benötigen. Zusätzlich wird oftmals ein

⁵PIPS ist die kommerzielle Bezeichnung des Detektors der Fa. Canberra und das phonetische Akronym für **P**assivated **I**mplanted **P**lanar **S**ilicon

stabiles Magnetfeld genutzt. Als Vorteil ist man in der Lage, jedes Element zu ionisieren. Das hat als Nachteil eine völlig unselektive Ionisation zur Folge.

- Laserionenquellen bieten hier viele Vorteile. Der Aufbau ist mit der einer Oberflächenionenquelle weitgehend identisch und somit im Quellenbereich recht einfach zu betreiben. Durch Einstrahlen mehrerer Laserstrahlen, wird explizit immer nur ein bestimmtes Element ionisiert. Dadurch ist der Ionisationsprozess höchst selektiv. Als Nachteil steht dem ein hoher experimenteller Aufwand zum Betrieb der präzise abgestimmten Lasersysteme entgegen.

Bei ISOLDE wird jede Ionenquelle eine immer identisch konstruierte *Quelleneinheit*⁶ eingebaut, die voll automatisiert durch einen Roboterarm an das *Quellen-Frontend* des Massenseparators angeschlossen werden kann. Die Ionenquelle befindet sich im Volumen des Topfes hinter dem Hitzeschild. Abbildung 3.10 zeigt eine solche Quelleneinheit.

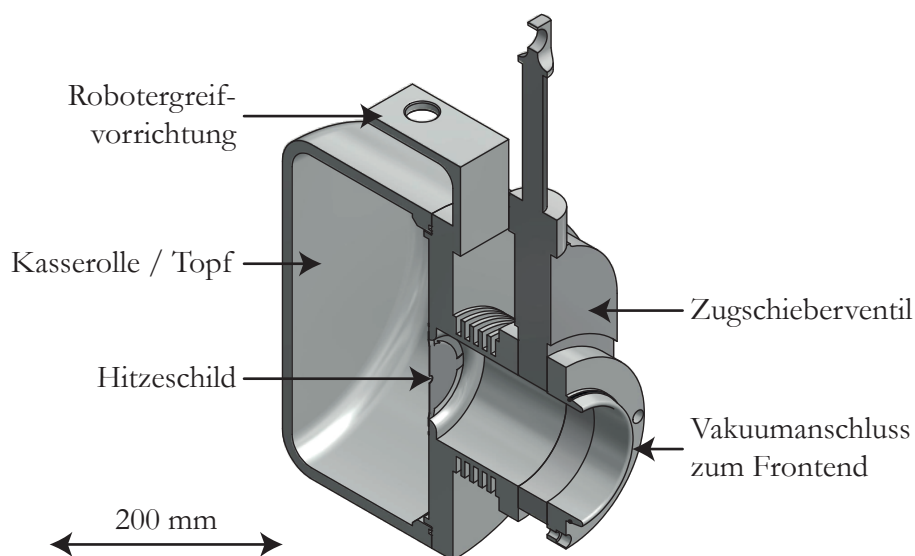


Abbildung 3.10.: Quelleneinheit ohne Ionenquelle zum Anschluss an das Quellen-Frontend durch einen Roboter

3.2.1. RILIS

Ein Großteil der Entwicklung von Laserionenquellen wurde an der Forschungseinrichtung ISOLDE am CERN mit der schon seit langem etablierten Laserionenquelle *RILIS*⁷ durchgeführt [SFK⁺92].

⁶Die Quelleneinheit wird bei ISOLDE auch *Casserole* genannt, da in der Anfangsphase von ISOLDE tatsächlich eine Kasserolle (Kochtopf) verwendet wurde.

⁷RILIS ist das phonetische Akronym für *Resonance Ionization Laser Ion Source*

3. Experimenteller Aufbau

Basis für die RILIS ist die konventionelle Oberflächenionenquelle der ISOLDE. Der *Ionisator*⁸ besteht prinzipiell aus einem Röhrchen, das resistiv oder indirekt durch einen Glühfaden bis auf 2400 °C geheizt wird. Materialien sind üblicherweise Tantal oder Wolfram, in Versuchsstadien auch Graphit, Rhenium oder als Material mit niedriger Austrittsarbeit Gadolinium-Hexaborid. Abbildung 3.11 zeigt einen Schnitt einer technischen Zeichnung mit den Materialien entsprechend unterschiedlich eingefärbten Bauteilen der RILIS.

Im Fall der RILIS ist es nicht das Ziel, mit dem Ionisator Ionen zu erzeugen, sondern durch die heiße Oberfläche freie Atome zu erzeugen, indem die Abdampfung absorbiertes Isotope vorzugsweise atomar erfolgt. Daher wird der Ionisator nachfolgend ausschließlich als *Atomisator* bezeichnet. Neben dem Atomisator existiert eine weitere resistiv geheizte Komponente, der *Mass-Marker*⁹, der als Probenreservoir für stabile Elemente genutzt wird. Der Mass-Marker steckt einseitig in dem Atomisator, während er auf der anderen Seite durch Zusammenquetschen verschlossen wird, damit die Probe beim Verdampfen

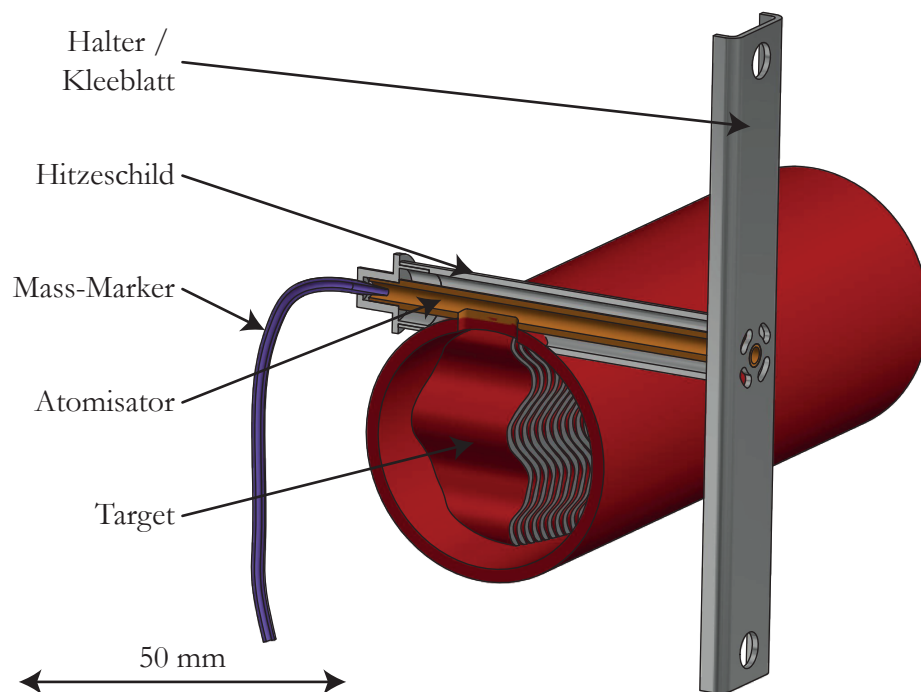


Abbildung 3.11.: ISOLDE Oberflächenionenquelle. Dargestellt ist rot das Target zur Erzeugung der Radionuklide, orange der Atomisator und lila der Mass-Marker als Probenreservoir für stabile Elemente. Der Atomisator ist an einem Halter, dem sogenannten Kleeblatt, befestigt und durch ein Hitzeschild umgeben.

⁸Weitere gebräuchliche Begriffe für den Ionisator bei ISOLDE sind *Hot Cavity*, *Line* oder *Transfer-Line*.

⁹Ein gelegentlich aber auch etwas irreführender Begriff bei ISOLDE für den Mass-Marker ist einfach nur *Oven* (engl. Ofen).

ausschließlich in den Atomisator gelangen kann. Um den Atomisator ist ein Hitzeschild befestigt, das zusätzlich mit Tantalfolie eingewickelt wird. Die thermische Isolierung soll die Wärme innerhalb des Hitzeschildes halten, damit der Atomisator eine möglichst gleichmäßige Temperatur hat. Der Atomisator wird zur Extraktionselektrode hin durch einen Tantalhalter fixiert. Der Halter hat in der Nähe des Atomisators Kleeblatt-ähnliche Aussparungen, damit auch das Ende des Atomisators heiß genug bleibt. Des Weiteren ist der Atomisator auf der Seite des Mass-Markers mit einer Tantalfeder, sowie der Mass-Marker am verschlossenen Ende elektrisch verbunden.

Durch Überlapp der Laserstrahlen passender Wellenlänge im Volumen des Atomisators erfolgt eine Ionisation der freien Atome. Die durch Laserstrahlen erzeugten Ionen werden *Laserionen* genannt. Obwohl, wie in Kapitel 2.2.2 beschrieben, die resonante Laserionisation ein höchst selektiver Prozess ist, sind Kontaminationen durch den Prozess der Oberflächenionisation laut Kapitel 2.2.1 aufgrund des heißen Atomisators nicht auszuschließen, diese werden nachfolgend *Oberflächenionen* genannt.

3.2.2. LIST

Bei der Laserionenquelle und -falle *LIST*¹⁰ handelt es sich um eine Erweiterung einer konventionellen Laserionenquelle mit verschiedenen Gleichspannungs- und Radiofrequenz-Elektroden. Die Geometrie ist ähnlich einer linearen Paul'schen Falle aufgebaut und besteht somit aus einer Quadrupolstruktur und zwei Endelektroden, zwischen denen unterschieden werden soll. Die Endelektrode, die dem Atomisator zugewandt ist wird als *Repeller* und die andere der Extraktorelektrode zugewandten Seite als *Ausgangselektrode* bezeichnet. Beide sind flache scheibenförmige Elektroden, die eine zentrale Öffnung vorweisen. Die LIST-Elektrodenstruktur wird in etwa 1 mm Abstand direkt hinter dem Atomisator positioniert. Sie hat eine Länge von 90 mm, der freie Feldradius r_0 zwischen der zentralen Achse und den Quadrupolstäben beträgt 7,5 mm. Abbildung 3.12 zeigt einen Schnitt einer technischen Zeichnung mit eingefärbten Bauteilen der LIST-Elektrodenstruktur und der konventionellen Laserionenquelle RILIS, so wie sie bei ISOLDE verwendet wird.

Wie zuvor in Kapitel 3.2.1 bei der Beschreibung der RILIS erwähnt, können durch die hohen Temperaturen im Atomisator Oberflächenionen entstehen. Im ungünstigen Fall sind diese Isobare zu dem gewünschten Isotop und können das Experiment negativ beeinflussen. Durch eine leicht positive Spannung am Repeller werden Ionen am Austritt aus dem Atomisator gehindert und somit wird eine Unterdrückung dieser Kontamination erreicht. Neutrale Atome, die den Repeller passieren, können nun mit Hilfe von Laserstrahlung resonant ionisiert werden. Ohne Quadrupolstruktur hätten die nach dem Repeller erzeugten Ionen aufgrund des starken Feldgradienten des Extraktionspotentials je nach Ionisationsort eine andere kinetische Energie, so dass keine Strahlformung bzw. Massenseparation erfolgen kann. Die nachfolgende Quadrupolstruktur und die Ausgangselektrode schirmen also primär das starke Extraktionsfeld ab. Die in der LIST erzeugten Laserionen werden dabei durch das alternierende Quadrupolfeld auf der Achse

¹⁰LIST ist das phonetische Akronym für *Laser Ion Source and Trap*

3. Experimenteller Aufbau

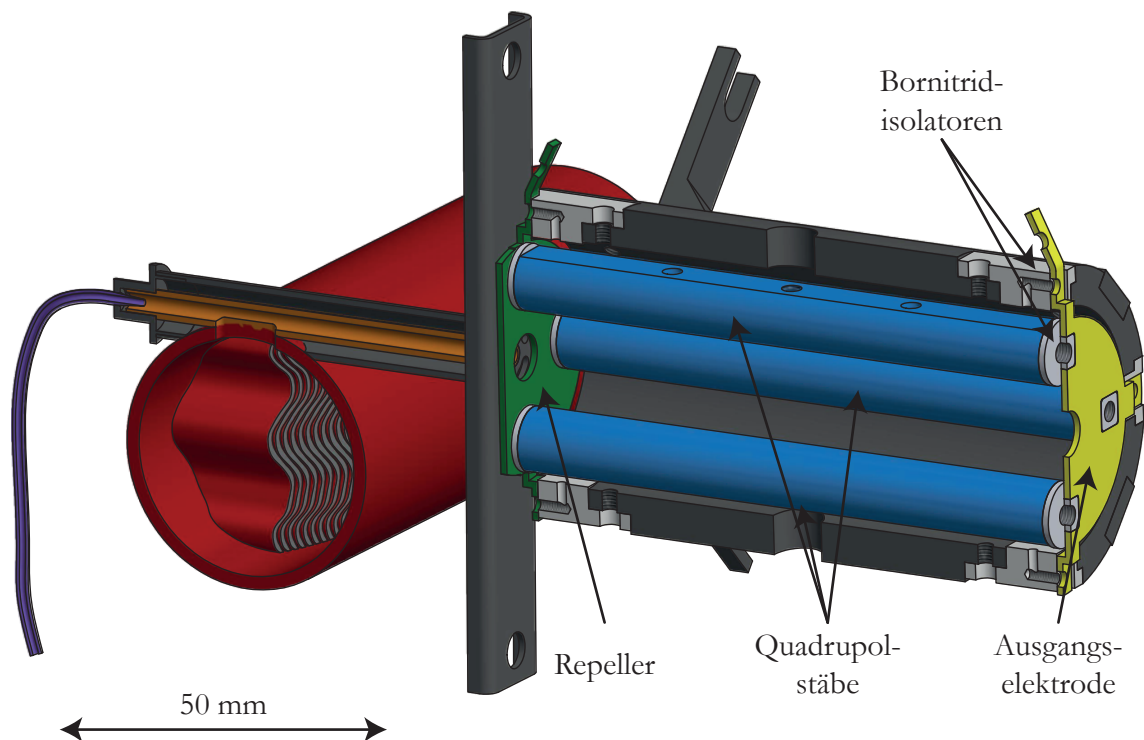


Abbildung 3.12.: Die LIST wird direkt mit etwa 1 mm Abstand hinter die RILIS gebaut. Der Aufbau der RILIS ist unverändert wie in Abbildung 3.11. Die in blau dargestellten Quadrupolstäbe werden durch den Repeller und der Ausgangselektrode, in grün bzw. gelb eingefärbt, gehalten und ausgerichtet, welche wiederum an dem Gehäuse der LIST befestigt sind. Quadrupolstäbe, Repeller und Ausgangselektrode sind durch weiß dargestellte Bornitridisolatoren voneinander elektrisch isoliert.

zusammengehalten und bewegen sich mit ihrer longitudinalen thermischen Startenergie zur Ausgangselektrode. Von dort können sie mit dieser geringen, näherungsweise thermischen Energieunschärfe mit definierter Energie beschleunigt werden. Die Quadrupolstruktur wird nicht, wie üblich als linearer Massenfilter zur Massenselektion genutzt, sondern nur mit einer Wechselspannung zur Ionenführung verwendet.

Den Betrieb der LIST mit positivem Potential des Repellers wird dabei als *LIST-mode* bezeichnet, die Laserionen werden in der LIST produziert. Setzt man stattdessen den Repeller auf ein negatives Potential, so werden sowohl Laserionen als auch Oberflächenionen, die im Atomisator produziert werden, in das Volumen der LIST geführt. Prinzipiell wird somit die Ionisationscharakteristik der RILIS erhalten. Da in diesem Fall die Ionen nur durch das alternierende Quadrupolfeld zur Extraktionselektrode geführt werden, wird dieser Betriebszustand als *Ion-Guide-Mode* oder kurz *IG-Mode* bezeichnet.

Historie

In der ersten Planung sollte die LIST wesentlich vielseitiger verwendet werden. Wie der Teil „Trap“ im Name LIST vermuten lässt, waren weitere Funktionen der LIST geplant [BGK⁺03].

Ursprünglich waren die Quadrupolstäbe der Länge nach in 9 Segmente unterteilt, wodurch ein definierter axialer Potentialverlauf innerhalb der LIST erzeugt werden konnte. Die Potentiale an den letzten Segmenten der Quadrupolstäbe konnten schnell umgeschaltet werden, womit ein Kumulieren der Laserionen in einem Potentialminimum möglich war. Ein Ionenpuls konnte dann zu definierten Zeiten mit bekannter Zeitstruktur aus der LIST herausgeschossen werden. Durch Einlassen von Puffergas konnten die Laserionen dabei innerhalb der LIST gekühlt werden, das zu einer wesentlich niedrigeren Emitanz führt. Eine schematische Zeichnung der *segmentierten LIST* und das resultierende Potential ist in Abbildung 3.13 dargestellt.

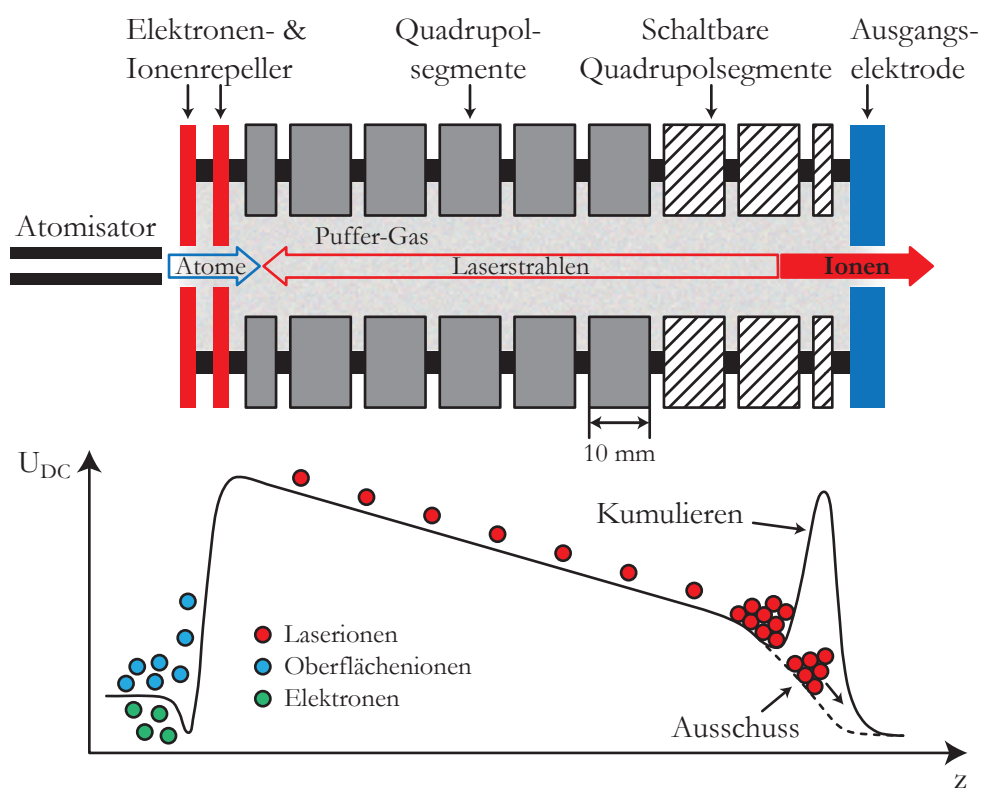


Abbildung 3.13.: Oben: Schematische Zeichnung der segmentierten LIST mit Bezeichnung der einzelnen Komponenten

Unten: Funktionsprinzip des resultierenden Potentials mit Ionenkumulierung (durchgezogene Linie) und Ausschussbedingung (gestrichelt Linie).

Grafik nach [Wie06]

Die prinzipielle Funktionsfähigkeit und Charakterisierung der segmentierten LIST wur-

3. Experimenteller Aufbau

de in [Wie06] gezeigt. Wie sich in der nachfolgenden Arbeit [Sch10] herausgestellt hat, sind unter On-line-Bedingungen technische Limitierungen zu beachten, die bis heute den On-line-Einsatz der segmentierten LIST unmöglich machen. Einerseits ist das Pumpensystem und die Vakuumanlage bei ISOLDE in der Ionenquellenregion nicht darauf ausgelegt, mit Puffergas zu arbeiten, andererseits ist der Hochspannungskäfig aufgrund der hohen radioaktiven Strahlung rund 20 m vom Frontend entfernt. Die Übertragung der schnell geschalteten Hochfrequenzspannungen (RF^{11}) ist aufgrund der Kapazität des Kabels mit großen Signalstörungen und Pulsverzerrungen verbunden. Außerdem fehlt die Infrastruktur an elektrischen Vakuumdurchführungen am ISOLDE-Frontend, um alle Elektroden der segmentierten LIST anzusteuern.

Zwangswise wurden daher signifikante Vereinfachungen der LIST vorgenommen. Es wurde auf das Kühlen mit Puffergas, die Segmentierung der Quadrupolstäbe und auf einen der beiden Repeller verzichtet. Im Rahmen der Arbeit von [Sch10] wurden weitere Prototypen der LIST entwickelt, die diese Änderungen beinhalten. Die Funktionalität und Charakterisierung des aktuellen Designs der LIST wurde am RISIKO-Massenseparator ohne Target durchgeführt. Die vollständige Integration der LIST bei ISOLDE ist Bestandteil der vorliegenden Arbeit, während erste On-line-Resultate mit der LIST bei [Fin14] beschrieben werden.

Elektronik

Bei Verzicht auf die Segmentierung wird die LIST nur im IG-Mode verwendet und somit wird keine Überlagerte Gleichspannung benötigt. Es ist ausschließlich ein RF-Signal mit einer Frequenz von etwa 1 MHz und eine Amplitude bis zu 500 V notwendig.

Die Funktionsweise der RF-Ankopplung an die LIST, so wie es für einen Betrieb bei ISOLDE entwickelt wurde, wird in Abbildung 3.14 dargestellt. Das sinusförmige RF-Signal wird von einem kommerziellen abstimmbaren Generator mit einer maximalen Amplitude von 10 V erzeugt. Die für den Betrieb der Transducerbox und der LIST notwendige Leistung wird durch einen an der Universität Mainz entwickelten Verstärker (EAF081211) zur Verfügung gestellt, über ein spezielles Koaxialkabel an das Frontend übertragen und dort mit einem strahlungsresistenten Schwingkreis, der Transducerbox [Ric14], in die vorgesehene Spannung transformiert.

Die Transducerbox soll sich möglichst nahe an der Ionenquelle und der LIST befinden, um Verluste der transformierten Spannung zu minimieren. Die während des Betriebs dort herrschende hohe radioaktive Strahlung lässt gewöhnliche in den Leiterplatten oder in den elektronischen Bauteilen verwendeten Kunststoffe in kurzer Zeit porös werden. Daher wurden die Schwingkreise in der Transducerbox mit Luftspulen ($L = 36 \mu\text{H}$) und Drehkondensatoren ($540 \text{ pF} < C < 740 \text{ pF}$) aufgebaut. Für die Isolatoren wurde das weitgehend strahlungsresistente PEEK¹² verwendet.

Der Quadrupol der LIST benötigt zwei entgegengesetzte RF-Signale. Daher enthält die Transducerbox zwei gekoppelte Schwingkreise, an denen die beiden hochtransformierten

¹¹engl.: radio frequency

¹²PEEK ist das Akronym zu *Polyetheretherketon*

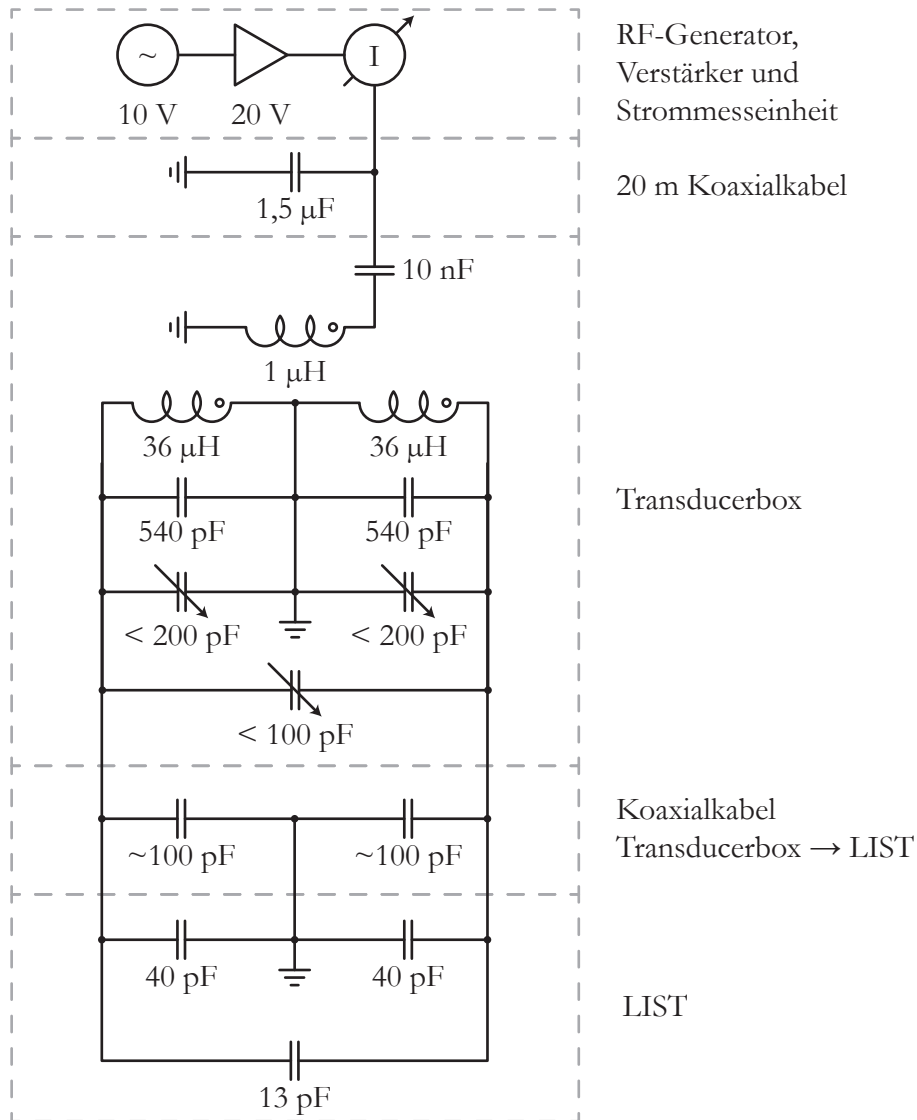


Abbildung 3.14.: Schaltkreis der elektronischen Komponenten zur Erzeugung des RF-Signals. Im Hochspannungskäfig wird vom RF-Generator das RF-Signal erzeugt und durch einen Verstärker verstärkt. Für den On-line-Betrieb wird zur Überwachung die Strommessenheit verwendet. Das verstärkte Signal wird zum Frontend geleitet und durch die Transducerbox auf die notwendige Spannung transformiert und an die Quadripolstäbe der LIST angeschlossen.

3. Experimenteller Aufbau

Signale mit entgegengesetzter Polarität abgegriffen werden können. Beide Drehkondensatoren sind mit einem weiteren kleineren Drehkondensator ($C < 100$ pF) verbunden, um die transformierten Signale bezüglich ihrer Amplitude anzupassen. Die Kapazitäten von 40 pF und 13 pF entsprechen den Kapazitäten der Quadrupolstäbe zum Gehäuse bzw. der Quadrupolstäbe untereinander.

Da im On-line-Betrieb die Amplitude der transformierten RF-Signale, im Gegensatz zu Off-line-Betrieb, nicht direkt gemessen werden kann, wird der Strom zur Überwachung der Resonanz der Transducerbox am Ausgang des Vorverstärkers gemessen.

3.3. Lasersysteme

Effiziente resonante Ionisationsprozesse werden durch abstimmbare Laser induziert. Dabei ist von wesentlicher Bedeutung, dass das Licht der Laser spektral schmalbandig ist, um möglichst selektiv ionisieren zu können. Um wiederum möglichst viele unterschiedliche Elemente ionisieren zu können, werden möglichst einfach und spektral weit abstimmbare Laser benötigt. Diese Eigenschaften können nur *Festkörper-Laser* und *Farbstoff-Laser*¹³ aufweisen. Das abgedeckte Wellenlängenspektrum ist in Abbildung 3.15 dargestellt.

Wie schon im Kapitel 2.1 erläutert, wird bei einer Inversion im Lasermedium induzierte Emission und damit die Erzeugung eines Laserstrahls ermöglicht. Die Inversion wird durch Einbringen von Energie in das Lasermedium, sogenanntes Pumpen, erzeugt. Üblicherweise wird das Lasermedium optisch durch kurzwelligeres Licht gepumpt, als am Ende der erzeugte Laserstrahl besitzt. Spektral abstimmbare Laser werden üblicherweise durch einen anderen Laserstrahl gepumpt, wie z.B. durch ein frequenzverdoppelten Neodym dotierte YAG¹⁴-Laser (kurz: Nd:YAG). Das Medium des Nd:YAG-Lasers dagegen wird häufig durch Blitzlampen oder Dioden gepumpt.

Farbstoff-Laser

Bei Farbstoff-Lasern ist das Lasermedium üblicherweise organisch gelöster Farbstoff. Da der Farbstoff sowohl ein Singulett- als auch Triplett-System besitzt, und bei Übergängen in den langlebigeren Triplettzustand die Inversion verringert oder ganz aufgehoben wird, ist ein Umwälzen des Farbstoffs notwendig [Mes05]. Im Allgemeinen fließt der Farbstoff durch eine Küvette oder wird durch eine flache Düse als Freistrahler erzeugt. Auch wenn der Farbstoff-Laser einen großen spektralen Bereich zur Verfügung stellt, ist der Betrieb von Farbstoff-Lasern sehr aufwendig. Der Farbstoff bleicht mit der Zeit aus, wodurch ein regelmäßiger Wechsel des Farbstoffs erforderlich ist. Auch muss je nach Wellenlängenbereich der Farbstoff gewechselt werden. Oft sind die Farbstoffe auch hoch giftig, so dass der Benutzer potentiell gefährdet wird. Der Einsatz von Farbstoff-Lasern ist an der Forschungseinrichtung ISOLDE seit 1994 implementiert und bildet die Basis der RILIS.

¹³Häufig wird für Farbstoff-Laser auch der englische Begriff Dye-Laser verwendet.

¹⁴Abkürzung für *Yttrium-Aluminium-Granat*

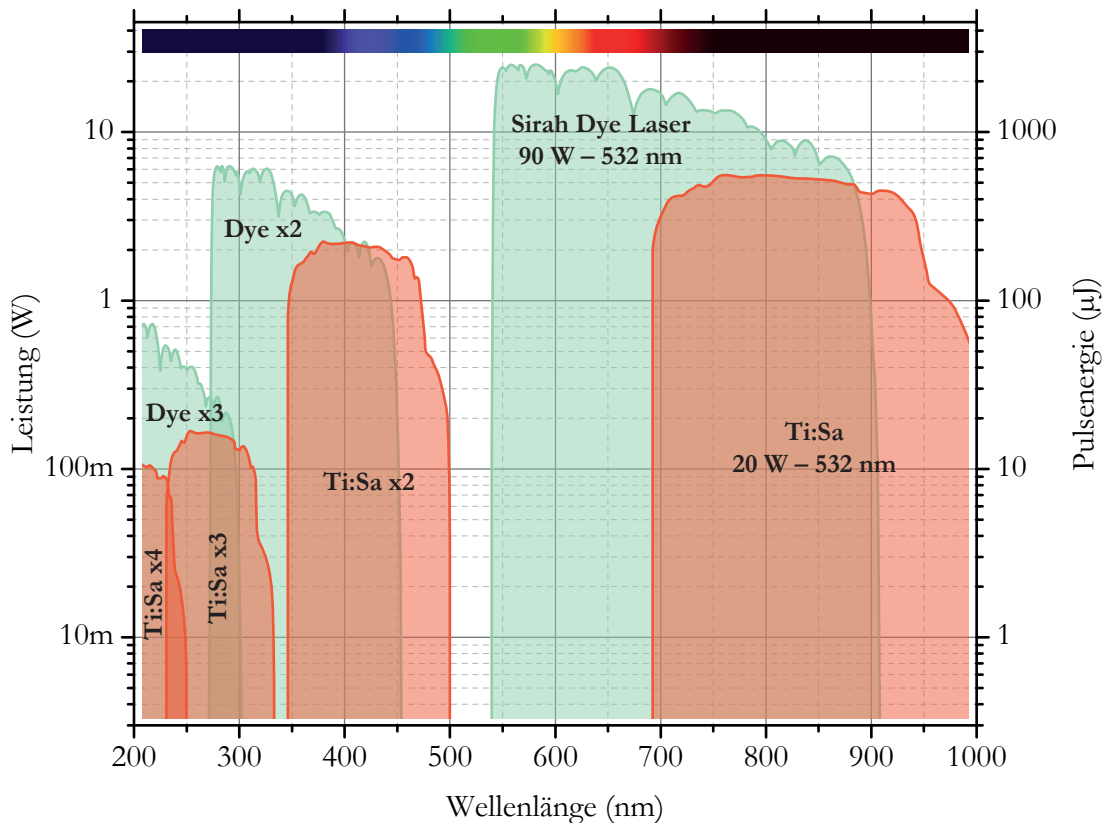


Abbildung 3.15.: Spektraler Bereich und Laserleistung bzw. Pulsenergie der Farbstoff-Laser der Firma Sirah und der an der Universität Mainz entwickelten Ti:Sa-Laser, wie sie bei ISOLDE verwendet werden. Daten wurden von [Rae14] gesammelt und zur Verfügung gestellt.

Festkörper-Laser

Da die Kristalle von Festkörper-Lasern im Allgemeinen nicht ohne Neujustierung gewechselt werden können, fällt die Erweiterung des spektralen Bereichs durch Ändern des Lasermediums raus. Die meisten Kristalle erlauben wenn überhaupt nur eine kleine spektrale Abstimmung mit meist unter 100 nm Breite [Web99]. Die größte spektrale Abstimbarkeit unter den Festkörper-Lasern bietet der Titan-dotierte Saphir-Kristall. Gegenüber Farbstoff-Lasern bietet er den Vorteil, hoher Stabilität und prinzipieller Wartungsfreiheit.

Die für diese Arbeit verwendeten Titan-Saphir-Laser sind im wesentlichen durch die Arbeitsgruppe LARISSA der Universität Mainz entwickelt worden und auch mit eigenen Modifikationen an vielen anderen Forschungseinrichtungen weltweit in Betrieb. So ist seit 2011 auch ein Titan-Saphir-Lasersystem bei ISOLDE in Betrieb genommen worden [FBF⁺12, Rot12]. Wegen des leicht ändern spektralen Bereichs gegenüber den Farbstoff-Lasern können nun wesentlich mehr Elemente ionisiert werden, die bisher nicht spektral nur durch die Farbstoff-Laser ionisierbar waren. Durch den gemeinsamen Be-

3. Experimenteller Aufbau

trieb von Farbstoff- und Titan-Saphir-Laser kann immer ein System in Betrieb sein, während das andere für ein anderes Element konfiguriert wird. Somit kann die RILIS über 3000 Stunden Ionenstrahlzeit für über 60 Elemente bereitstellen.

On-line-Messungen, die an ISOLDE durchgeführt wurden, sind im allgemeinen mit gepulsten Farbstoff- und Titan-Saphir-Lasern durchgeführt worden. Dagegen sind Messungen am RISIKO-Massenseparator ausschließlich mit gepulsten Titan-Saphir-Lasern oder ohne Laser durch Oberflächenionisation durchgeführt worden.

Abbildung 3.16 zeigt das Standardlayout eines Titan-Saphir-Lasers, so wie dieser bei ISOLDE und in Mainz eingesetzt wird. Der Pumpstrahl wird von einem kommerziellen frequenzverdoppelten Neodym-dotierten-YAG-Laser erzeugt und durch eine Linse in den Titan-Saphir-Kristall fokussiert, der sich in einem Kupferkühlkörper befindet. Der Resonator bildet eine sogenannte Z-Geometrie. Im Strahlpfad befinden sich die frequenzselektiven Elemente, der Lyot-Filter und das Fabry-Pérot-Etalon. Des weiteren ist noch eine Pockelszelle dargestellt, die im Resonator als Güteschalter fungiert und damit Einflussnahme auf das temporäre Verhalten des Laserpulses ermöglicht.

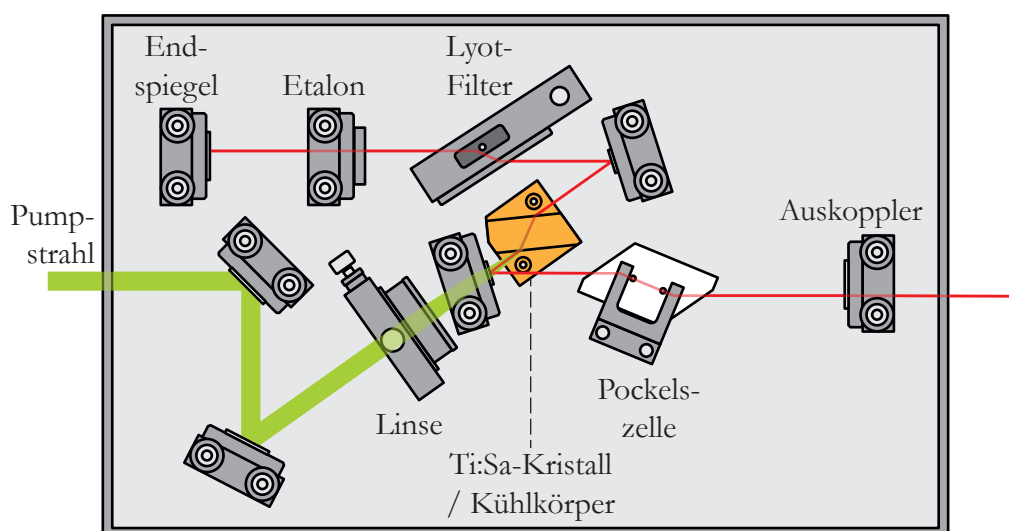


Abbildung 3.16.: Layout des Mainzer Titan-Saphir-Lasers, adaptiert von [Rot12]

4. Experimentelle Verfahren

Im vorliegenden Kapitel werden die experimentellen Verfahren erläutert, wie sie für die in den folgenden Kapiteln beschriebenen Messungen durchgeführt wurden. Dabei werden auch die Messungen dargestellt und die Messgrößen angegeben.

4.1. Probenzubereitung

Die Probenzubereitung ist besonders bei Effizienzmessungen von Bedeutung, da eine genaue Kenntnis der Probengröße, gemessen in Anzahl der Atome pro Lösungsmenge, notwendig ist.

Im Allgemeinen werden kommerziell erhältliche *Stammlösungen* in einer Säure gelöst. Diese sind vom Hersteller zertifiziert, so dass die Probengröße in der Lösung bekannt ist. In Tabelle 4.1 sind die Hersteller, sowie Artikelnummern verwendeter zertifizierter Laborproben aufgelistet. Um die Stammlösungen nicht zu verunreinigen, wurden immer ein Teil der Stammlösung in Probengefäße abgefüllt und ggf. verdünnt, um kleinere Probengrößen zu erhalten.

Element	Hersteller	Artikelnr.	Probengröße		
			in $\frac{\mu\text{g}}{\text{mL}}$	($\frac{\text{Atome}}{\mu\text{L}}$)	
Magnesium	Carl Roth	2333.2	1000	$(2,478 \times 10^{16})$	2 % HNO ₃
Palladium	Sigma-Aldrich	207349-100ML	1000	$(5,659 \times 10^{15})$	5 % HCl
Ytterbium	Sigma-Aldrich	207640-100ML	1004	$(3,494 \times 10^{15})$	1 % HNO ₃

Tabelle 4.1.: Hersteller, Artikelnummern und Probengrößen verwendeter zertifizierter Proben.

Eine Dosierung oder Verdünnung wird über Pipettieren durchgeführt. Wird ein geringerer Probengehalt benötigt, wird mit destilliertem Wasser verdünnt. Die flüssige Probe wird üblicherweise in Mengen von 1 μL bis 10 μL auf ein Stück Titanfolie von etwa 3 mm bis 5 mm Kantenlänge aufgebracht und unter einer Heizlampe eingetrocknet. Die Titanfolie hat zum einen den Vorteil, die Probe an einer definierten Stelle im Mass-Marker positionieren zu können, zum anderen wirkt die Titanfolie als Reduktionsmetall. Primär beim Phasenübergang des Verdampfens werden Oxidverbindungen aufgebrochen. Dabei wird wesentlich die Ionisationseffizienz gesteigert [RHS⁺¹², Fra13], da die Oxidbildung mit der Probe einen Verlustkanal für die resonanten Laserionisation darstellt. Die Folie mit der eingetrockneten Probe wird, wie in Abbildung 4.1a) 3 bis 5 mal gefaltet,

4. Experimentelle Verfahren

so dass ein längliches Konstrukt entsteht, das in den Mass-Marker passt. Um eine Reproduzierbarkeit der Messungen zu gewährleisten, sollte die Probe möglichst immer an der selben Stelle im Mass-Marker positioniert werden. Dazu wurde diese, wie in in Abbildung 4.1b) dargestellt, mit einem Stück Draht 1 cm bis 2 cm vor den Verschluss des Mass-Markers positioniert. Damit ist die Probe weit genug vom Atomisator entfernt, so dass dessen Wärmestrahlung keine wesentliche Rolle beim Verdampfungsprozess der Probe im Mass-Marker spielt.

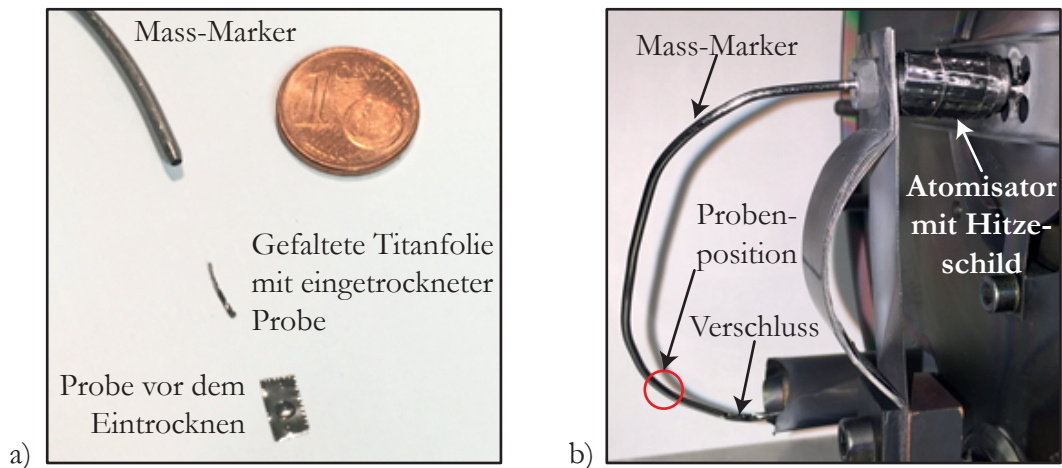


Abbildung 4.1.: a) Darstellung der gelösten Probe auf der Titanfolie vor dem Eintrocknen, die gefaltete Titanfolie mit eingetrockneter Probe und der Mass-Marker. Zum Größenvergleich dient eine 1-Cent-Münze.
b) An dem Atomisator angeschlossener Mass-Marker und Darstellung des Bereichs zur Probenpositionierung.

Bei der Probenzubereitung können schon Pipettierungsfehler auftreten. Nach der Bedienungsanleitung der Pipetten [Bio14] besteht bei korrekter Anwendung eine Ungenauigkeit von bis zu 2,5 %.

4.2. Messung des Massenspektrums

Grundfunktion des Massenseparators ist die räumliche Aufteilung der Ionen in ihre Masse-Ladungsverhältnisse. Da im Experiment durch die Laserionisation gezielt nur einfach geladene Ionen erzeugt werden, wird vereinfacht nur von einer Massenseparation bzw. von einem Massenspektrum die Rede sein.

Ein monoenergetischer Ionenstrahl wird im Separationsmagneten aufgrund von Lorentz- und Zentrifugalkraft für unterschiedlich schwere Ionen beim Passieren des Magnetfeldes räumlich in mehrere Teilstrahlen aufgeteilt. Der Nachweis eines Ionenteilstrahls erfolgt im Anschluss entweder mit einem Faraday Becher oder mit einem SEV, deren Positionen im RISIKO-Massenseparator fest definiert sind. Einer der Teilstrahlen der Ionen einer bestimmten Masse kann durch Einstellen des Magnetfeldes im Separationsmagnet

zur Detektion ausgewählt werden. Das Magnetfeld wird durch den Strom, der durch die Spulen fließt, definiert und eingestellt. Das Magnetfeld wiederum kann durch eine Hall-Sonde, die im Innern des Separationsmagneten positioniert ist, ausgelesen werden. Die Zuordnung eines eingestellten Magnetfeldes zu einer Masse bei konstant zugeführter Energie der Ionen stellt die sog. Massenkalisierung dar. Mit Hilfe einer Massenkalisierung kann jederzeit durch Einstellen des Magnetfeldes eine bestimmte Masse reproduzierbar selektiert beziehungsweise unbekannte nachgewiesene Teilstrahlen einer Masse zugeordnet werden. Es besteht dabei ein quadratischer Zusammenhang zwischen dem Magnetfeld und der zugeordneten Masse.

Ein Massenspektrum wird aufgenommen, indem der Strom für das erzeugende Magnetfeld kontinuierlich verändert wird, dadurch treffen die Teilstrahlen unterschiedlicher Masse nacheinander auf einen Detektor. Der Verlauf des nachgewiesenen Ionensignals unter Zuordnung der Masse über das Magnetfeld erzeugt das Massenspektrum. Für den RISIKO-Massenseparator wurde eine schon existierende Massenkalisierung für eine Beschleunigungsspannung von 30 kV verwendet.

In der Prozedur der Ionenstrahloptimierung wird unter anderem auch die Spannung der elektrostatischen Ablenkplatten des Massenseparators variiert. Dabei werden die Teilstrahlen hinter dem Magneten horizontal abgelenkt. Daher kann es vorkommen, dass in den Massenspektren nachgewiesene Peaks nicht immer auf ganzzahlige Massen in der Einheit der atomaren Masseinheit (amu) zugeordnet werden. In diesen Fällen wurde eine Korrektur der Massenskala vorgenommen.

Da der Eisenjoch des Separationsmagneten mit Hysterese behaftet ist, musste darauf geachtet werden, dass bei der Messung der Massenspektren das Magnetfeld immer identisch verändert wurde. In der automatisierten Prozedur wurde daher das Magnetfeld grundsätzlich ganz auf Null Tesla herunter gefahren und dann nachfolgend auf den gewünschten Massenbereich hoch gefahren.

4.3. Effizienzmessung

Um die LIST in den regelmäßigen Betrieb von ISOLDE aufzunehmen, ist für die Experimente die Kenntnis der erreichbaren Ionisationseffizienz in der LIST wichtig. Dieses muss durch eine ausreichende Statistik bestätigt werden. Die Effizienz der RILIS wird dabei als Referenz für die LIST-Effizienzmessungen angenommen. Die *Effizienz* \mathcal{E} gibt an, welcher Anteil der Atome eines Elements einer Probe N_{Probe} durch die Ionenquelle resonant durch Laserstrahlung entsprechend $N_{\text{Laserionen}}$ ionisiert wird.

$$\mathcal{E} = \frac{N_{\text{Laserionen}}}{N_{\text{Probe}}} \quad (4.1)$$

Die Effizienzmessungen im Rahmen dieser Arbeit wurden in einer Messprozedur aufgenommen, in die die Ionisationseffizienz und die Transmission der Ionenoptik und des Massenseparators eingehen. Simulationen im Programm *SIMION*¹ haben ergeben, dass

¹SIMION ist ein Programm zur Berechnung von elektromagnetischen Feldern und Trajektorien von geladenen Teilchen innerhalb dieser Felder.

4. Experimentelle Verfahren

die Transmission der Ionenoptik und des Massenseparators bei annähernd 100 % liegen sollte. Daher wird angenommen, dass die gemessenen Werte direkt die Ionisationseffizienz der jeweiligen Ionenquelle widerspiegeln.

Die Anzahl der Atome der Proben ist dank der zertifizierten Lösungen bekannt. Es muss nur die Anzahl der Ionen bestimmt werden, die den Detektor erreichen. Als Detektor wird üblicherweise der Faraday Becher benutzt. Da durch die resonante Laserionisation nur einfach geladene Ionen den Detektor erreichen, kann aus der gesamten zugeflossenen Ladung über die Elementarladung auf die Anzahl der transmittierten Atome zurückgeschlossen werden.

Die Probe kann im Mass-Marker unabhängig vom Atomisator geheizt werden. Entsprechend wird der Atomisator auf eine ausreichend hohe Temperatur gebracht und die Atome der Probe durch stufenweises Heizen des Mass-Markers dosiert in den Atomisator geleitet.

Im Regelfall kann ab einem gewissen Heizstrom des Mass-Markers ein Ionensignal detektiert werden. Dieser Schwellwert kann erfahrungsgemäß etwas variieren, je nachdem wie oft die Titanfolie bei der Probenzubereitung gefaltet wurde und an welcher Position sich diese im Mass-Marker befindet. Sobald ein Signal des Ionenstroms zu erkennen ist, üblicherweise ab 500 fA, kann dieses genutzt werden, um die Parameter des Lasers, der Ionenoptik und des Separationsmagneten zu optimieren, ohne zu viele Ionen während dieser Zeit zu „verlieren“. Die Effizienzmessungen werden nachfolgend bei deutlich mehr als 1 nA Ionenstroms durchgeführt. Dazu wird die Temperatur des Mass-Markers schrittweise durch Vergrößerung des Heizstroms erhöht. Zwischenzeitlich werden die Laserstrahlen durch einen Shutter mehrmals kurzfristig blockiert, um das Untergrundsignal zu messen. Sobald alle Atome der Probe verdampft sind, ist meist ein deutlich rapides Abfallen des Ionensignals zu erkennen. Die Messung ist beendet, sobald der maximale Heizstrom erreicht und das Signal des Ionenstroms in den Bereich des Untergrundsignals abgefallen ist.

4.4. Zeitstrukturmessung

Ein Nachweis der Unterdrückung der Oberflächenionen im Ionenstrom kann am eindrucksvollsten über die Zeitstruktur des Ionenpulses durch eine zum Laserpuls laufzeitabhängig korrelierte Messung der Ionen erfolgen. Hierzu wird eine Zeitstrukturmessung durchgeführt. Das Signal des Ionenstroms wird dabei in zeitlicher Abhängigkeit vom Laserpuls aufgenommen. Für die Zeitstrukturmessungen wird ein schneller *Multichannel-Analyzer*² (MCA) benötigt. Dieser besitzt jeweils einen Eingang für ein Start- und ein Stoppsignal. Das Startsignal ist entweder ein Trigger-Signal des Pumplasers, ein externes Trigger-Signal, das den Pumplaser steuert, oder ein durch eine Photodiode aufgenommenes Signal, das vom Streulicht des Laserpulses erzeugt wird. Durch das Startsignal wird eine Laufzeitmessung eingeleitet. Durch den SEV detektierte Ionen werden durch Stoppsignale registriert und entsprechende Zählerkanäle in Abhängigkeit der Laufzeit inkrementiert. Der MCA kann Stoppsignale mit einer zeitlichen Auflösung von 2,5 ns in

²Die Multichannel-Analyzer-Karte ist von der Firma FAST ComTec GmbH

einem minimal 100 ns breiten Kanal registrieren. Die Anzahl der Kanäle und somit die Messdauer, in der der MCA Stoppsignale akzeptiert, sollte etwas kleiner als die Periode zwischen zwei Laserpulsen gewählt werden, da sonst aufgrund des zeitlichen Jitters des Lasers nicht alle Startsignale der Laserpulse registriert werden können.

4.5. Ermittlung der LIST Parameter

Die LIST besitzt 5 unabhängige Elektroden, die mit unterschiedlichen Spannungen versorgt werden. Von essentieller Bedeutung ist die Wahl der Spannung der Repellerelektrode, mit der die Kontamination unterdrückt werden soll. Des weiteren sollen die Ionen durch das RF-Feld, erzeugt durch die Quadrupolstäbe, in der LIST geführt werden. Die Abschirmung des LIST-Volumens von dem Extraktionsfeld erfolgt durch das Gehäuse der LIST, sowie die Ausgangselektrode (Abbildung 3.12). Diese Spannungen definieren somit einen 5-dimensionalen Parameterraum der LIST mit Einfluss auf Effizienz und Selektivität der Ionenquelle.

4.5.1. Repeller-Scan

Wie schon im experimentellen Aufbau in Kapitel 3.2.2 beschrieben, soll die LIST in zwei verschiedenen Betriebsmodi betrieben werden, im LIST-Mode und IonGuide-Mode (IG-Mode). Zur Ermittlung der optimalen Spannung der Repellerelektrode für den LIST- oder für den IG-Mode dient der *Repellerscan*. Dabei wird die Spannung der Repellerelektrode bei konstanten Spannungen aller anderen Elektroden variiert und der Ionenstrom gemessen. Des weiteren können mit dem Repellerscan zwei wesentliche Faktoren der LIST bestimmt werden:

Der LIST Unterdrückungsfaktor, LSF^3 gibt an, mit welchem Faktor Oberflächenionen im LIST-Mode gegenüber dem IG-Mode unterdrückt werden können. Bei der Bestimmung des LSF findet keine resonante Laserionisation statt, da die Laserstrahlen die Quelle gar nicht erst erreichen. In diesem Fall wird angenommen, dass der Anteil gewünschter Ionen so klein ist, dass sämtliche Oberflächenionen Kontaminationen darstellen. Der LSF gibt häufig einen Minimalwert an, da die Unterdrückung im LIST-Mode meist auf das Niveau des Detektorrauschens erfolgt und folglich der LSF hauptsächlich von der Signalhöhe der Oberflächenionen im IG-Mode bestimmt wird.

Der Verlustfaktor der LIST, LLF^4 gibt an, mit welchem Faktor Laserionen im LIST-Mode gegenüber dem IG-Mode unterdrückt werden. Dieser Verlust kann durch die Reduktion des Ionisationsvolumens, etwas durch die Divergenz des neutralen Atomstrahls, der den Atomisator verlässt und die Repellerelektrode passiert, erklärt werden.

³LSF ist eine englische Abkürzung zu *LIST Suppression Factor*

⁴LLF ist eine englische Abkürzung zu *LIST Loss Factor*

4. Experimentelle Verfahren

Der LIST Qualitätsfaktor, LQF^5 ist keine Messgröße, sondern ergibt sich aus dem Quotienten des LSF und des LLF. Da die Selektivität der Ionenquelle nicht direkt gemessen werden kann, gibt der LQF einen Wert an, der einerseits die Unterdrückung von Oberflächenionen, andererseits auch den Verlust von Laserionen beachtet.

$$LQF = \frac{LSF}{LLF} \quad (4.2)$$

Ein Beispiel eines Repellerscans mit den ermittelten Werten für den Unterdrückungsfaktor LSF, den Verlustfaktor LLF und den sich daraus ergebenden LIST Qualitätsfaktor LQF ist in Abbildung 4.2 dargestellt. Es handelt sich dabei um einen Repellerscan, der am Off-line-Massenseparator von ISOLDE aufgenommen wurde. Ergebnisse der On-line-Messungen werden in Kapitel 5.3 vorgestellt.

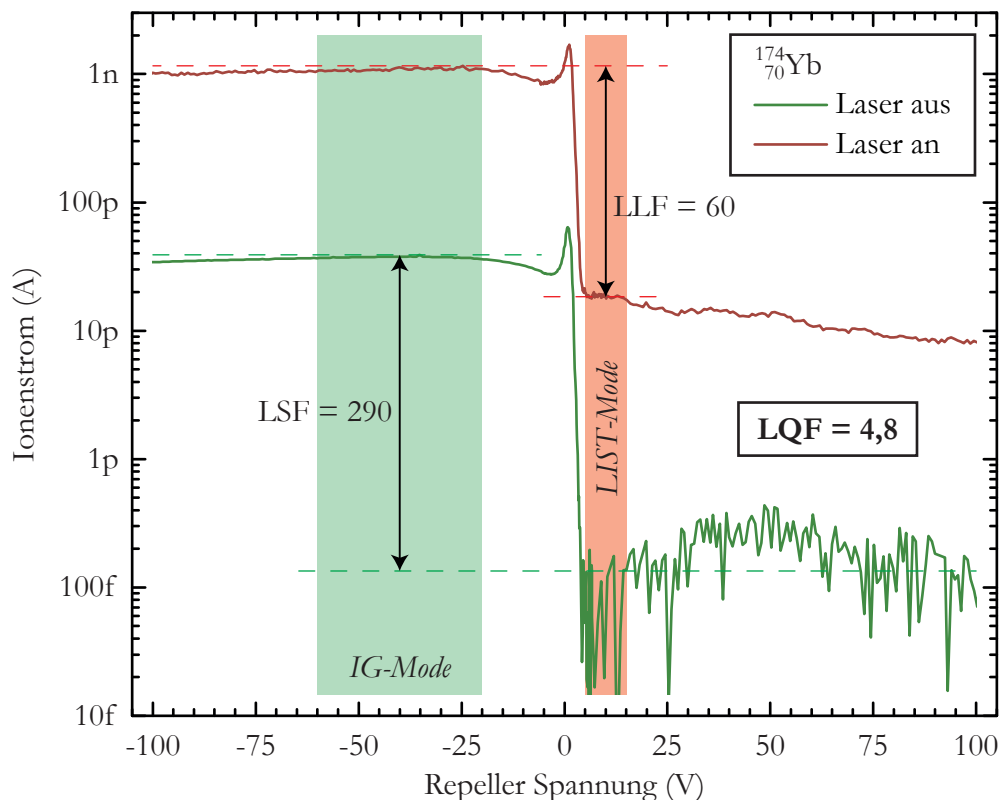


Abbildung 4.2.: Repeller-Scans mit und ohne resonanter Laserionisation von $^{174}_{70}\text{Yb}$. Spannungen der Repellerelektrode für den IG-Mode sind durch die grüne Fläche und für den LIST-Mode durch die rote Fläche gekennzeichnet. Die Werte für den LSF und LLF ergeben sich aus dem Quotienten der Ionenströme im IG- und LIST-Mode ohne bzw. mit Lasereinstrahlung.

⁵LQF ist eine englische Abkürzung zu *LIST Quality Factor*

4.5.2. RF-Amplituden-Scan

Aus der Theorie des linearen Massenfilters 2.3 geht hervor, dass ein definierter Amplitudenbereich des RF-Feldes des Quadrupols notwendig ist, um die Ionen durch die LIST zu führen. Aus Gl. (2.52c) geht hervor, dass diese Spannung für jede Masse angepasst werden muss. Der Amplitudenbereich des RF-Feldes wird durch die Größe q_u definiert, mit $0 < q_u < 0,908$.

$$V = \frac{mr_0^2\omega^2}{2e}q_u \quad (4.3)$$

Nach der Theorie sollte der Ionenstrom innerhalb des Stabilitätsbereichs konstant sein. Im vorliegenden Aufbau der LIST erhält man aber eine geringfügige Abnahme des Ionenstroms in Abhängigkeit der Amplitude des RF-Feldes. Aus dem Amplitudenscan kann die Amplitude des RF-Feldes für das Maximum des Ionenstroms für jede Masse ermittelt werden. Der RF-Amplituden-Scan wird in Kapitel 7.2.4 zur Bestimmung des Stabilitätsbereichs angewendet.

4.6. Wellenlängen-Scan

In der Resonanzionisationsspektroskopie werden mit Laserstrahlen die Elektronen eines Atoms schrittweise resonant angeregt bis das Atom ionisiert ist (Kapitel 2.2.2). Die Eigenschaften der einzelnen Übergangsschritte werden mit Hilfe eines Wellenlängen-Scans ermittelt. Dabei wird ein schwacher Teilstrahl des Laserstrahls ausgekoppelt und mit einem Wellenlängenmessgerät⁶ registriert.

Das Wellenlängenmessgerät besteht aus einem temperaturstabilisierten Fizeau-ähnlichen Interferometer [Hig14], dessen Interferenzmuster durch ein Photodiodenarray registriert wird. Durch einen Vergleich eines abgespeicherten Interferenzmuster bekannter Wellenlänge (z.B. eines HeNe-Laserstrahls) kann die Wellenlänge des zu untersuchenden Laserstrahls bestimmt werden. Einen Wellenlängenscan zeigt das Ionensignal in Abhängigkeit der eingestellten Wellenlänge. Da im Rahmen dieser Arbeit keine Laserspektroskopie durchgeführt werden musste, sondern die Übergänge bekannt waren [Nat14], wurde ein breiter Wellenlängen-Scan einmalig genutzt, um die Wellenlängen der Übergänge zu verifizieren und starke Übergänge mit hoher Übergangswahrscheinlichkeit bzw. hohem Ionensignal zu finden. Zusätzlich wurde der Wellenlängen-Scan nur im Bereich des gewünschten Übergangs verwendet, um das Ionensignal zu optimieren. Während aller anderen Messungen erfolgte keine aktive Änderung der Wellenlänge. Trotzdem wurde beständig die Wellenlänge kontrolliert, um bei auftretenden Signaländerungen eine ungewünschte spektrale Änderung der resonanten Anregung ausschließen zu können.

⁶Fa. HighFinesse, Modell WS6

4.7. Sättigungsmessung

Zur Bestimmung der notwendigen Laserleistung zur Sättigung eines Übergangs, wird die Laserleistung des entsprechenden Laserstrahls schrittweise reduziert und das Signal der Ionen aufgenommen. Zur Leistungsreduzierung eines fundamentalen oder frequenzverdoppelten Laserstrahls wird im einfachsten Fall ein kontinuierlich dynamischer Graufilter im Strahlengang positioniert und somit ein Teil der Laserintensität absorbiert. Eine Alternative dazu ist die Verwendung eines $\lambda/2$ -Plättchens und eines polarisationsabhängigen Strahlenteilers im Laserstrahl. Durch das $\lambda/2$ -Plättchen kann die Polarisation des Laserstrahls manipuliert werden und somit der Prozentsatz des transmittierten Strahls durch den polarisationsabhängigen Strahlteiler bestimmt werden. Da bei der Frequenzverdrehung ebenfalls eine Anpassung der Polarisation notwendig ist, kann entsprechend die Leistung des frequenzverdrehenden Laserstrahls elegant durch Ändern des $\lambda/2$ -Plättchens in der Tripler-Einheit reduziert werden.

5. Implementierung und Messungen mit der LIST bei ISOLDE

In diesem Kapitel wird die Adaption der LIST an die apparativen Voraussetzungen der ISOLDE beim CERN beschrieben. Die korrekte Funktionalität der LIST wird durch ausgewählte On-line-Messungen nachgewiesen. Erste grundlegende Erkenntnisse aus den durchgeführten Messungen werden beschrieben. Eine ausführliche Auswertung und Analyse der On-line-Ergebnisse sind in [Fin14]¹ nachzulesen.

5.1. Adaption der LIST für den On-line-Betrieb

Die Komponenten der LIST wurden im Institut für Physik der Universität Mainz gefertigt, montiert und vorab am RISIKO Massenseparator getestet. Der endgültige Einbau der LIST in eine Target-Einheit wurde gemeinsam mit der Gruppe bei ISOLDE vorgenommen. Damit die LIST am On-line-Frontend betrieben werden konnte, mussten zusätzliche Vorbereitungen an der Quelleneinheit vorgenommen werden. Die Quelleneinheit befindet sich am CERN im strahlentechnisch gesicherten Bereich. Daher wurde für die Montage der Transducerbox eine Halterung konstruiert, so dass die modifizierte LIST-Quelleneinheit weiterhin durch den Roboter gehandhabt und an das Frontend angeschlossen werden kann.

Die Verkabelung war seitens der Target-Gruppe vorgegeben. Es wurde ein RF-Kabel vom Hochspannungskäfig zum Frontend und der Anschluss zur Quelleneinheit der Helicon Plasma-Ionenquelle genutzt. Die Coax-Kabel von diesem Anschluss zur Transducerbox und von dieser zur LIST wurden aus Materialien konfektioniert, die strahlenresistent sind. In der Abbildung 5.1a) ist die vorbereitete Target-Einheit für den On-line-Betrieb mit den erwähnten Modifikationen und in 5.1b) der Roboter bei einem Handhabungstest dargestellt.

Des Weiteren mussten die Geräte für das RF-Signal im Hochspannungskäfig installiert und durch eine Software zur Fernsteuerung vom Kontrollraum aus überwacht werden, wobei die Software in LabView auf Basis serieller Kommunikationsprotokolle durch lichtoptische Datenkabel implementiert wurde.

¹Fink, Daniel, seinerzeit aktiver Mitarbeiter des gemeinsamen LIST-Projektes vor Ort bei ISOLDE

5. Implementierung und Messungen mit der LIST bei ISOLDE

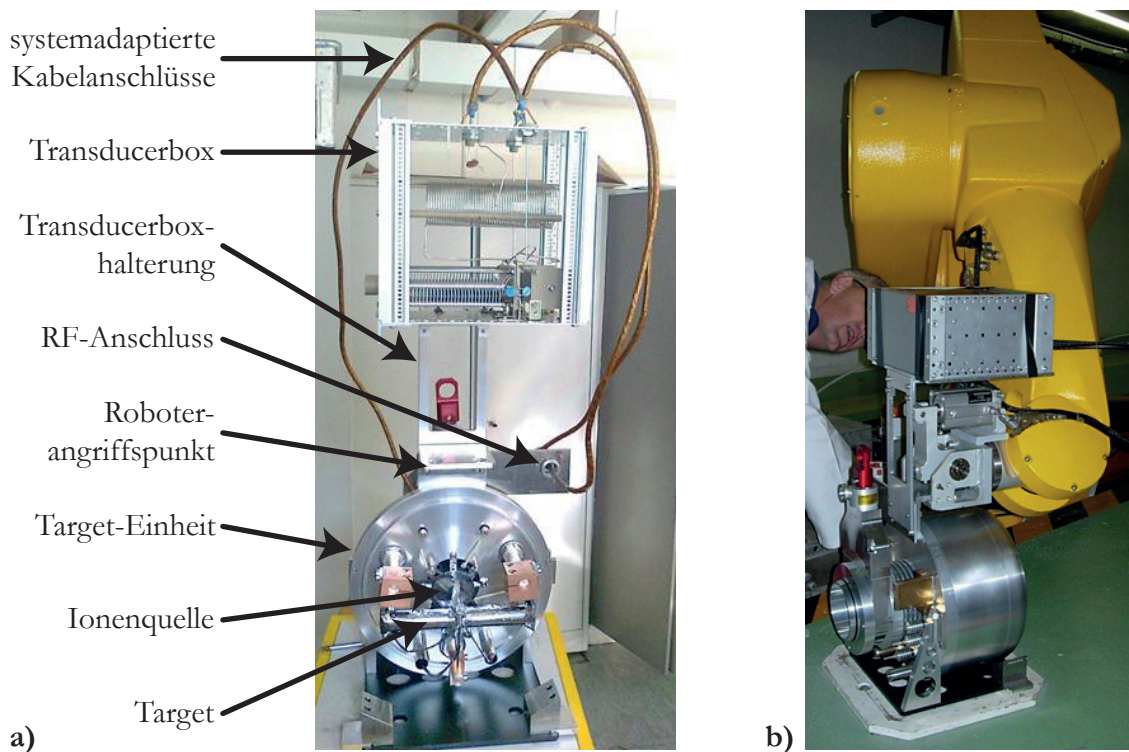


Abbildung 5.1.: a) Für den On-line-Betrieb am CERN vorbereitete Target-Einheit mit Transducerbox und b) Robotertest am On-line-Frontend

5.2. On-line-Messung mit einem Titan-Target

Für den ersten On-line-Betrieb² mit radioaktiven Isotopen wurde Magnesium verwendet. Von Seiten der Target-Gruppe der ISOLDE bestanden Bedenken gegen die Verwendung eines Urancarbid-Targets mit der LIST, da durch eine mögliche Beschichtung der Isolatoren der LIST mit aus dem Carbid abdampfendem Kohlenstoff diese leitfähig werden könnten. Daher wurde als Targetmaterial die in in Abbildung 5.2 dargestellten aufgerollten Titanfolien verwendet.



Abbildung 5.2.: Aufgerollte Titanfolien als Targetmaterial

Zur resonanten Ionisation von Magnesium wurde ein Dreischritt-Laserschema verwendet, wobei die ersten zwei Schritte resonant durch frequenzverdreifachte bzw. frequenzverdoppelte Farbstoff-Laser und der letzte Schritt nicht-resonant durch den Pumplaser ins

²Messzeit vom 05. bis 07.05.2011

Ionisationskontinuum erfolgt. Das Anregungsschema von Magnesium ist in Abbildung 5.3 dargestellt.

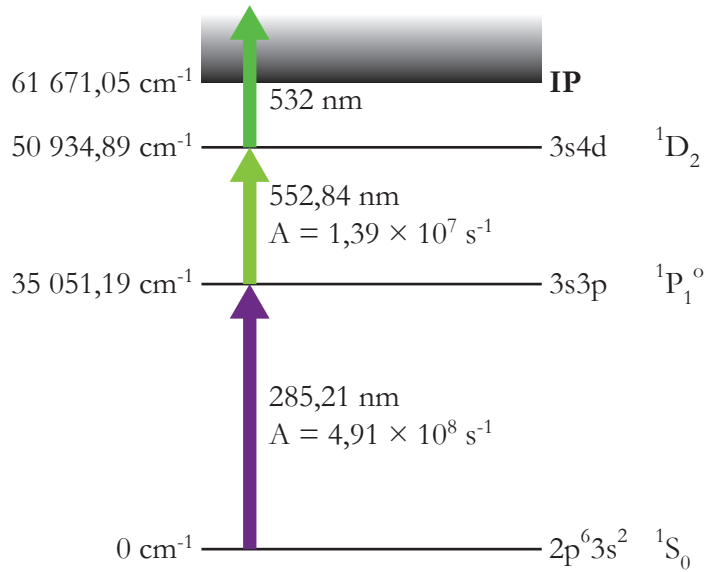


Abbildung 5.3.: Resonantes Anregungsschema für Magnesium, Daten extrahiert von [ISO14a]. In der mittleren Spalte sind Wellenlängen und die Übergangsstärken, in der rechten Spalte die Konfiguration der einzelnen Terme und in der linken Spalte die Energieniveaus angegeben.

5.2.1. Bestimmung der LIST-Parameter

Da primär ein Experiment einer Arbeitsgruppe mit den Magnesiumionen versorgt werden sollte, konnten nur peripher Messungen zur Bestimmung der Unterdrückungsfaktoren für verschiedene typische Kontaminationselemente und des Verlustfaktors für Magnesium durchgeführt werden. Diese Messungen erfolgten mit Hilfe des Faraday Bechers und der Tapestation. Die erreichten Unterdrückungsfaktoren LSF sind in Tabelle 5.1 zusammengefasst.

Der Verlustfaktor LLF wurde anhand von $^{27}_{12}\text{Mg}$ an der Tapestation überprüft und mit einem Wert von $\text{LLF} = 50$ bestimmt. Er stimmt damit mit den Werten aus vorhergehenden Off-line-Messungen überein [Fin14].

5.2.2. Bestimmung der Zeitstruktur mit der LIST

Für verschiedene Repellerspannungen im LIST-Mode im Bereich zwischen 4 V und 200 V wurden Zeitstrukturmessungen aufgenommen. Für die ausgewählten Spannungen 7 V, 10 V und 40 V ist die Zeitstruktur in Abbildung 5.4 dargestellt. Bei einer Repetitionsrate von 10 kHz der Laserpulse ergibt sich eine Zeitstruktur im Bereich zwischen 30 μs bis 60 μs . In den Messungen erkennt man zwei Peaks, die das Auftreffen der Ionen auf

5. Implementierung und Messungen mit der LIST bei ISOLDE

Isotop	Detektor	I_{IG}	I_{LIST}	$I_{\text{Untergrund}}$	LSF
$^{21}_{11}\text{Na}$	TS	160 000	100	100(10)	$\geq 16\,000$
$^{23}_{11}\text{Na}$	FC	85 pA	0,4 pA	0,1 pA	280
$^{26}_{11}\text{Na}$	TS	39 000	100	100(10)	$\geq 3\,900$
$^{39}_{19}\text{K}$	FC	410 pA	2 pA	0,1 pA	230
$^{48}_{22}\text{Ti}$	FC	3 500 pA	0,9 pA	0,1 pA	4 400

Tabelle 5.1.: Ionenintensitäten im IG-Mode und im LIST-Mode. Ohne Einheitsangaben in counts ansonsten pA, sowie Untergrundmessungen mit verschiedenen Detektoren (FC: Faraday Becher; TS: Tapestation) und der daraus folgenden LIST Unterdrückungsfaktoren [Fin14].

dem Detektor in zeitlicher Abhängigkeit der Laserpulse und der Repellerspannung beschreiben, wobei die Counts auf den ersten Peak normiert wurden. Eine Erläuterung der Peaks kann anhand Abbildung 5.5 am longitudinalen Spannungsverlauf auf der Symme-

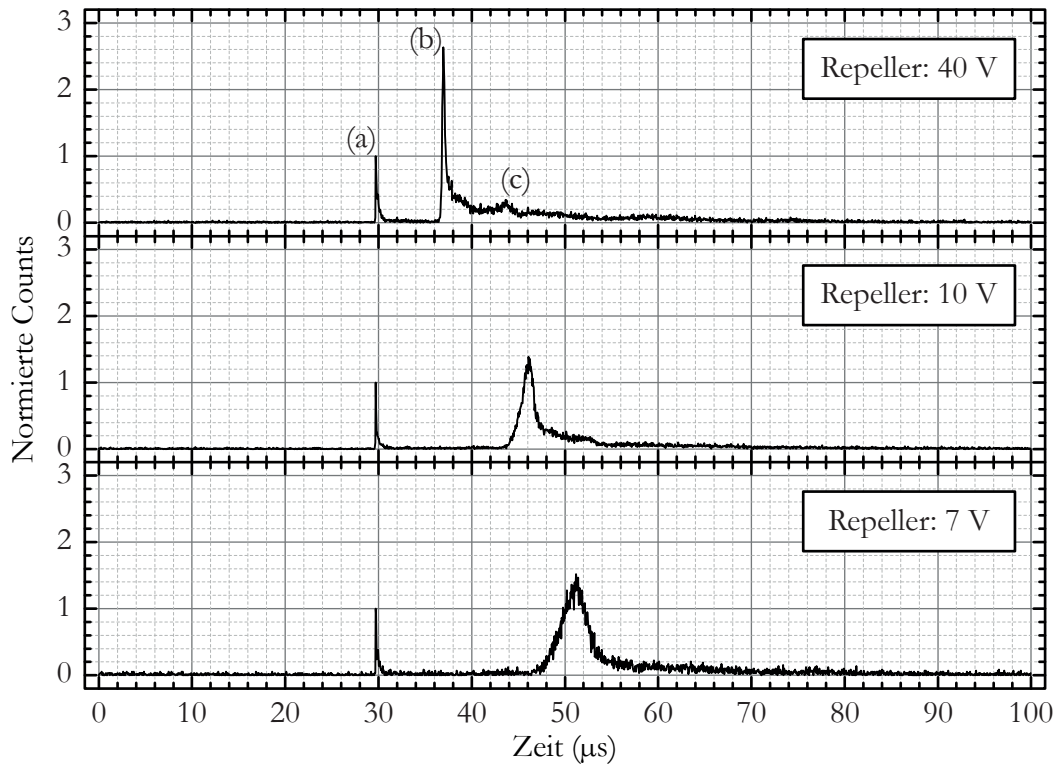


Abbildung 5.4.: Zeitstruktur des Ionenpuls der LIST

- (a) Ionen, die nahe der Ausgangselektrode erzeugt wurden,
- (b) Ionen die nahe der Repeller-Elektrode erzeugt wurden,
- (c) Ionen, deren Laufzeitverhalten noch nicht plausibel geklärt ist.

trieachse (rote gestrichelte Linie) durchgeführt werden. Der Spannungsverlauf ist durch eine Simulation mit dem Program Comsol Multiphysics³ ermittelt worden.

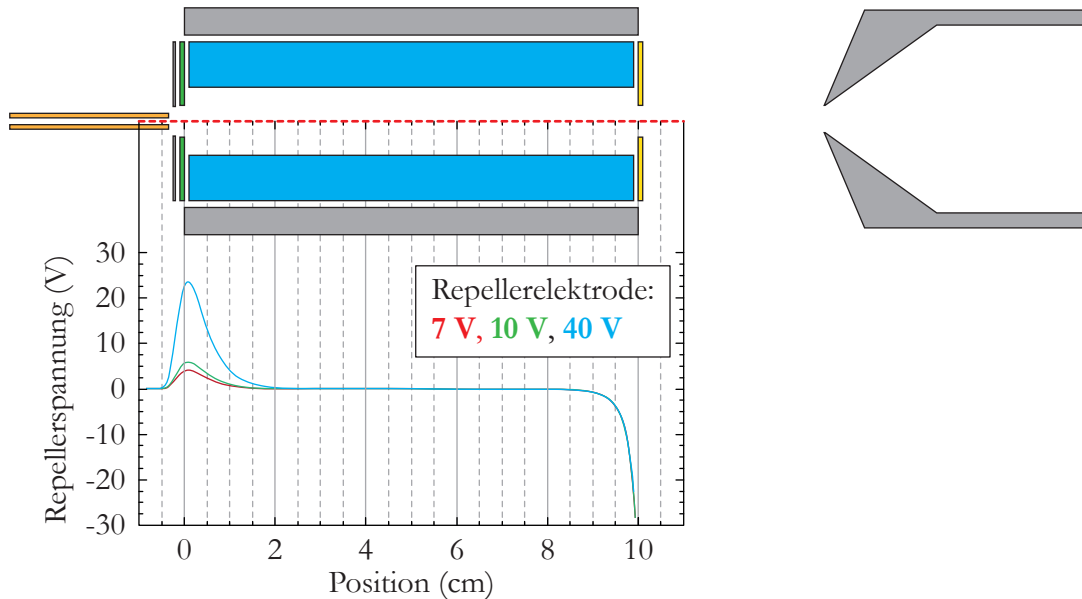


Abbildung 5.5.: Longitudinaler Potentialverlauf längs der Symmetrieachse der LIST für unterschiedliche Spannungen der Repellerelektrode.

Die Ionen des ersten Peaks (a) in Abbildung 5.4 bei etwa $30 \mu\text{s}$ der Zeitstrukturmessung werden nahe der Ausgangselektrode erzeugt und direkt extrahiert. Die Repellerspannung hat an dieser Stelle keinen Einfluss auf das Extraktionsfeld. Daher weisen diese Ionen nur eine Abhängigkeit zum Laserpuls auf und sie haben eine konstante Laufzeit. Der Großteil der Ionen des nachfolgenden Peaks (b) in Abbildung 5.4 zwischen $36 \mu\text{s}$ und $54 \mu\text{s}$ der Zeitstruktur entstehen nahe der Repellerelektrode innerhalb des LIST-Volumens. Ihre Laufzeit hängt sowohl von den Laserpulsen, als auch der Repellerspannung ab. Je größer die Repellerspannung ist, desto stärker werden die Ionen innerhalb des LIST-Volumens in Richtung der Ausgangselektrode beschleunigt und werden daher früher im Detektor registriert als bei kleineren Repellerspannungen. Gleichzeitig wird dieser Peak auch bei größeren Repellerspannungen schmaler. Das kann mit der relativen Energieunschärfe erklärt werden, die bei konstanter thermischer Startenergie der Ionen im Vergleich zur Energiezufuhr durch das Repellerpotential abnimmt. Des Weiteren ist bei größeren Repellerspannungen nach dem zweiten Peak (b) ein zeitlich langer Signalansatz mit zusätzlicher Signalstruktur (c) zu erkennen. Der Signalansatz entsteht durch Ionen, die weiter im Inneren der Quadrupolstruktur erzeugt werden. Sie erhalten nicht mehr die volle Beschleunigungsspannung des Repellers und benötigen daher eine längere Laufzeit zur Ausgangselektrode. Die zusätzliche Signalstruktur (c) in Abbildung 5.4 wurde bisher noch nicht plausibel erklärt.

³Comsol Multiphysics GmbH, Göttingen, Berlin. Simulationsprogramm mittels Differentialgleichungen und Methoden der Finite Elemente

5.2.3. Zusammenfassung der On-line-Messung

Mit Hilfe der erfolgten apparativen Anpassung und der durchgeführten On-line-Messungen konnte die erfolgreiche Inbetriebnahme und die Funktionsfähigkeit der LIST am Frontend nachgewiesen werden. Die Bedenken des Verlustes der Isolationseigenschaften einiger Bauteile der LIST durch aufdampfendes Titan konnten nicht bestätigt werden. Somit steht bei dem Einsatz der LIST mit einem Urancarbid-Target nichts im Weg, um auch schwerere radioaktive Elemente mit der LIST ionisieren zu können.

5.3. On-line-Messung mit einem Urancarbid-Target

Am ISOLDE Experiment IS456 [Coc14] wurden mit Messungen an Polonium-Isotopen durchgeführt. Während der Produktion neutronenreicher Poloniumisotope entstehen isobare Francium-Atome als Kontamination, die bisherige Messungen unmöglich machten. Es sollte untersucht werden, in wie weit die LIST die Francium-Kontamination unterdrücken kann. Zur Produktion von schwereren Elementen kommt ein Urancarbid-Target zum Einsatz, das in Abbildung 5.6 bei der Vorbereitung gezeigt ist. Da bei dem On-line-Betrieb mit einem Titan-Target keine Probleme auftraten, wurde erwartet, dass auch mit einem Urancarbid-Target die Isolationsfähigkeit der Isolatoren der LIST erhalten bleibt.



Abbildung 5.6.: Massiver Urancarbidstab als Targetmaterial.

Für diese Messungen wurden geringfügige Modifikationen an der LIST vorgenommen. Die LIST wurde dabei näher an dem Atomisator positioniert. Der bisherige Abstand von 5 mm zwischen dem Ausgang des Atomisators und der Repellerelektrode sollte der Konstruktion bei thermisch bedingter Ausdehnung etwas Spielraum geben, damit zwischen Atomisator, Hitzeschild und Repeller kein elektrischer Kontakt entsteht. Wie in der Beschreibung des Verlustfaktors in Kapitel 4.5.1 ausgeführt wurde und auch die Ergebnisse der Zeitstruktur des ersten On-line-Betriebs gezeigt haben, ist die Atomdichte am Ausgang des Atomisators am größten. Ein größerer Abstand der LIST zum Atomisator wirkt sich nachteilig auf die Ionisationseffizienz aus. Der minimale Abstand, der ohne Gefahr eines elektrischen Kontakts erreicht werden konnte, betrug ca. 2 bis 2,5 mm. Um den Kontakt des Hitzeschildes mit dem Repeller aktiv zu vermeiden, wurden die Bornitrid-Isolatoren, die die Quadrupolstäbe halten und in der Repellerelektrode verankert sind, verlängert, so dass sie durch die Repellerelektrode durchreichen und den Hitzeschild berühren. Des Weiteren wurden der Durchmesser der Öffnung der Ausgangselektrode von 7 auf 11 mm vergrößert, damit auch Ionen mit einer größeren Oszillationsamplitude durch den Feldeingriff der Extraktionselektrode erfasst werden können.

Während dieses Messzyklus⁴ wurde die LIST zunächst wieder zur Ionisation von Magnesium-Isotopen und anschließend von Polonium-Isotopen verwendet. Zur resonanten Ionisierung von Magnesium wurde das in Kapitel 5.2 erwähnte Dreischritt-Laserschema verwendet. Für die Polonium-Isotope wurde gleichfalls ein Dreischritt-Laserschema gewählt, wobei der erste Schritt resonant durch einen frequenzverdreifachten Farbstoff-, der zweite resonant durch einen Titan-Saphir- und der dritte Schritt nicht-resonant durch den Pumplaser ins Ionisations-Kontinuum erfolgte. Das entsprechende Anregungsschema ist in Abbildung 5.7 dargestellt. Da es sich bei den Polonium-Isotopen im wesentlichen um α -Strahler handelt, wurde zu deren Nachweis der Windmill-Detektor⁵ verwendet.

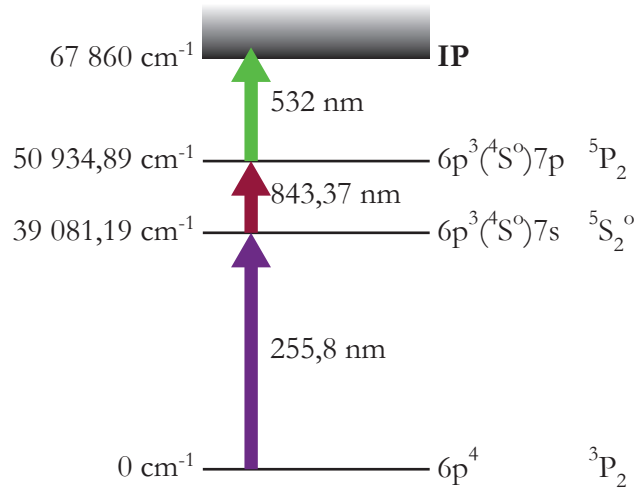


Abbildung 5.7.: Resonantes Anregungsschema für Polonium bei ISOLDE, Daten extrahiert von [ISO14a]. Notation wie in Abbildung 5.3.

5.3.1. Bestimmung der LIST-Parameter

Im Rahmen dieser Messungen wurden sowohl für verschiedene leichte Isotope (${}^{26}_{11}\text{Na}$, ${}^{30}_{11}\text{Na}$ und ${}^{46}_{19}\text{K}$) als auch für einige schwere Isotope (${}^{205}_{87}\text{Fr}$, ${}^{212}_{87}\text{Fr}$, ${}^{220}_{87}\text{Fr}$) die Unterdrückungsfaktoren (LSF) bei Verwendung der LIST, in einer Position näher am Atomisator, bestimmt und in Tabelle 5.2 zusammengefasst. Die Messungen am ${}^{26}_{11}\text{Na}$, sind direkt vergleichbar mit den Messungen aus Tabelle 5.1. Der Unterdrückungsfaktor hat sich von vorher $\text{LSF} \geq 3\,900$ auf nunmehr $\text{LSF} \geq 14\,100$ erhöht. Für die Isotope ${}^{26}_{11}\text{Na}$, ${}^{30}_{12}\text{Mg}$ und ${}^{46}_{19}\text{K}$ wurden mehrere Messpunkte aufgenommen, die den Verlauf eines Repellerscans grob widerspiegeln. Diese sind in Abbildung 5.8 dargestellt. Zu erkennen ist, dass der Verlustfaktor der LIST mit $\text{LLF} = 20$ deutlich kleiner ausfällt, als bei den Messungen, bei dem die LIST eine etwas entferntere Position vom Atomisator hatte. Entsprechend hat die Änderung der Position der LIST den Verlustfaktor um über die Hälfte reduziert.

⁴Messzeit vom 07. bis 14.09.2012

⁵Katholische Universität Leuven, Nuclear Spectroscopy Group

Isotop	Detektor	I_{IG}	I_{LIST}	$I_{\text{Untergrund}}$	LSF
$^{26}_{11}\text{Na}$	TS	75 000	28	28(5)	≥ 14 100
$^{30}_{11}\text{Na}$	TS	1 437	125	125(11)	≥ 130
$^{46}_{19}\text{K}$	TS	13 000	50	50(7)	≥ 1 850
$^{205}_{87}\text{Fr}$	WM	63 520	25	0	2 540
$^{212}_{87}\text{Fr}$	FC	80 pA	2 pA	0,85 pA	70
$^{220}_{87}\text{Fr}$	WM	15 379	412	412(20)	≥ 770

Tabelle 5.2.: Ionenintensitäten im IG-Mode und im LIST-Mode. Ohne Einheitsangaben in counts ansonsten pA, sowie Untergrundmessungen mit verschiedenen Detektoren (FC: Faraday Becher; TS: Tapestation; WM: Windmill) und der daraus folgenden LIST Unterdrückungsfaktoren [Fin14]

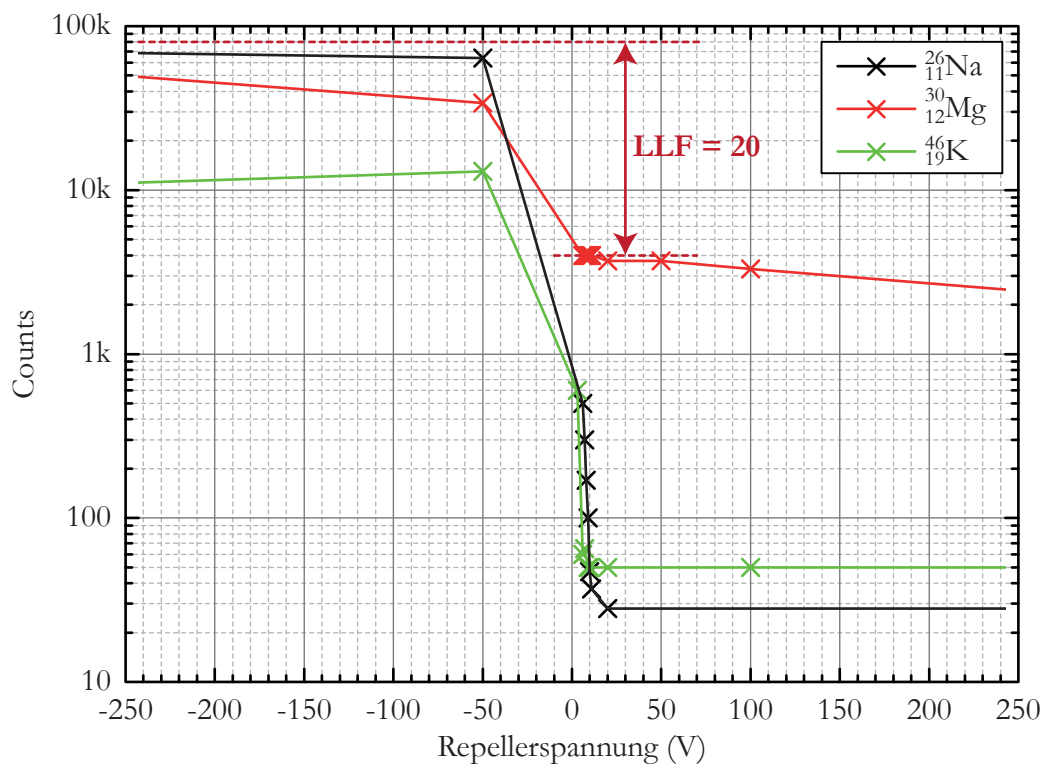


Abbildung 5.8.: Repellerscan für die Isotope $^{26}_{11}\text{Na}$, $^{30}_{12}\text{Mg}$ und $^{46}_{19}\text{K}$ und Bestimmung des LLF am Magnesium.

5.3.2. α -Spektren mit der LIST

Mit den nachfolgenden Messungen sollte ein Vergleich der LIST mit den Standardionenquellen bei ISOLDE, einer Oberflächenionenquelle und der RILIS, durchgeführt werden.

Vergleich der LIST mit einer Oberflächenionenquelle

Abbildung 5.9 zeigt einen Vergleich von α -Spektren der Ionen, die mit einer Oberflächenionenquelle und mit der LIST erzeugt wurden, wobei der Massenseparator auf die Masse $m = 218$ u eingestellt war. Die Oberflächenionenquelle produzierte primär das Isotop $^{218}_{87}\text{Fr}$, wobei auch das Tochternuklid $^{214}_{85}\text{At}$ durch den Zerfall entstand, auch deutlich zu erkennen ist. Mit der LIST wurde der Franciumanteil deutlich reduziert.

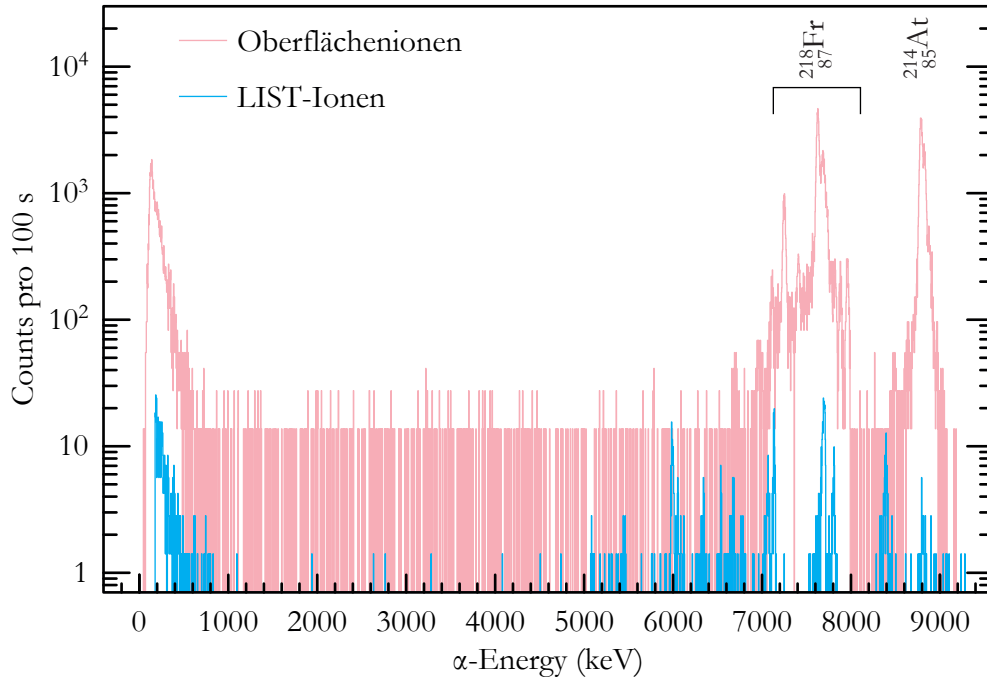


Abbildung 5.9.: Vergleich der α -Spektren der Ionen, die mit einer Oberflächenionenquelle und der LIST erzeugt wurden [FCA⁺15].

Vergleich der LIST mit der RILIS

Abbildung 5.10 zeigt einen weiteren Vergleich von α -Spektren der Ionen, die mit der RILIS und mit der LIST erzeugt wurden, wobei der Massenseparator auf die Masse $m = 196$ u eingestellt war. Durch die resonante Laserionisation ist das Polonium-Signal des Isotops $^{196}_{84}\text{Po}$ entsprechend dem LLF mit der LIST um etwa einen Faktor 20-30 kleiner als bei der RILIS. Man erkennt auch, dass das α -Spektrum mit der LIST deutlich besser aufgelöst ist und mehr Peaks zu erkennen sind, die im Spektrum mit der RILIS in den Flanken des $^{196}_{84}\text{Po}$ untergehen.

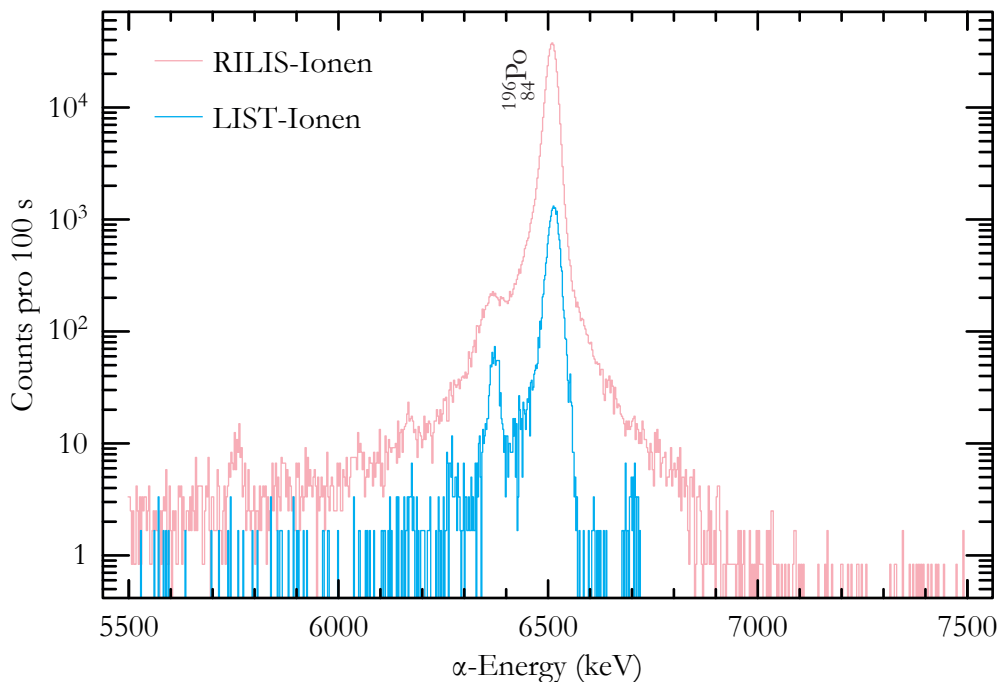
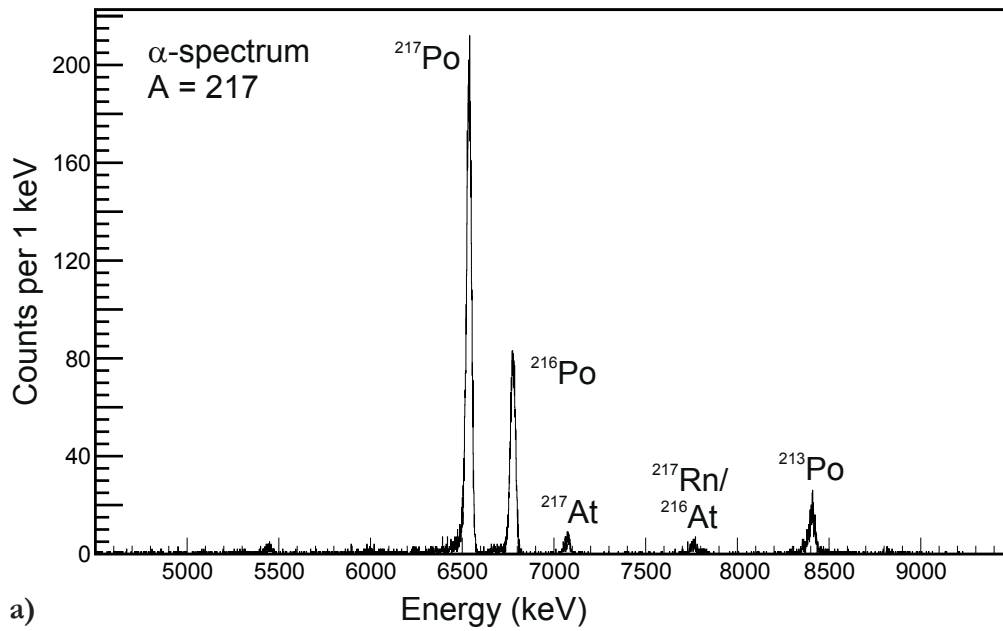


Abbildung 5.10.: Vergleich der α -Spektren der Ionen, die mit der RILIS und der LIST erzeugt wurden [FCA⁺15].

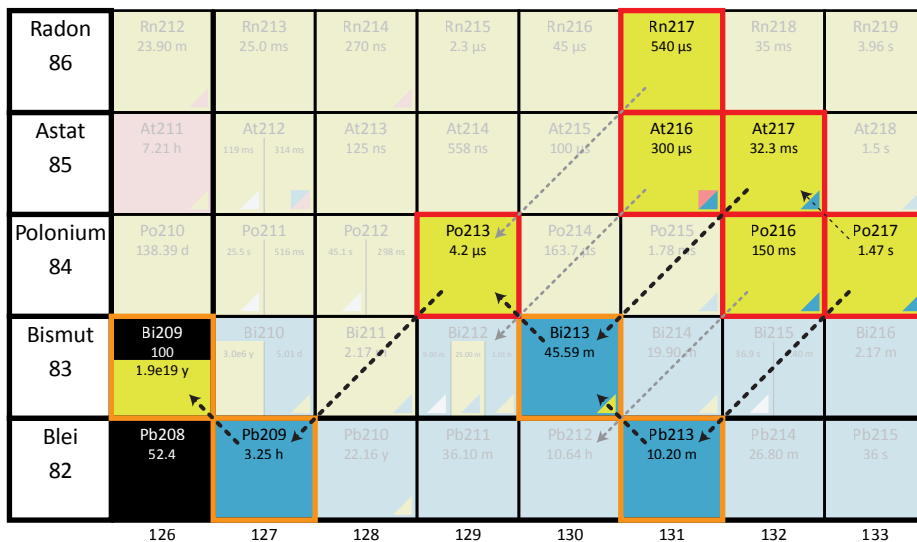
Messungen von $^{217}_{84}\text{Po}$ und $^{218}_{84}\text{Po}$

Nachfolgend wurden Messungen der α -Spektren der Polonium-Isotope unter Verwendung der LIST durchgeführt. Die Abbildungen 5.11a) und 5.12a) zeigen die α -Spektren für die Einstellung des Separator-Magneten auf die Masse $m = 217$ u bzw. $m = 218$ u.

Das Spektrum für $A = 217$ u in Abbildung 5.11a) zeigt deutlich, dass das Poloniumisotop $^{217}_{84}\text{Po}$ dominant ist. Das Poloniumisotop $^{216}_{84}\text{Po}$ wird aufgrund nicht optimaler Massenauflösung des GPS-Massenseparators ebenfalls nachgewiesen. Anhand der Zerfallsketten, die in Abbildung 5.11b) dargestellt sind, kann auch die vermeintliche Kontamination erklärt werden. Rote Rahmen kennzeichnen diejenigen Isotope, die im α -Spektrum zu sehen sind. Orangefarbene Rahmen kennzeichnen Isotope, die zur Zerfallskette gehören, aber als β^- -Strahler nicht vom Windmill-Detektor nachgewiesen werden können. Die Isotope $^{217}_{85}\text{At}$ und $^{213}_{84}\text{Po}$ sind entsprechend aufgrund der Zerfallskette von $^{217}_{84}\text{Po}$ auch im Spektrum vorhanden. Bemerkenswert ist auch, dass die sehr kurzlebigen Isotope $^{216}_{85}\text{At}$ ($300 \mu\text{s}$) und $^{216}_{86}\text{Rn}$ ($540 \mu\text{s}$) zu erkennen sind. Diese kommen zwar auch mit geringem Anteil in den Zerfallsketten von $^{217}_{84}\text{Po}$ und $^{216}_{84}\text{Po}$ vor. Da keine zugehörigen Mutterisotope im α -Spektrum nachgewiesen werden und eigentlich nur Isotope mit Halbwertszeiten im Bereich einiger Millisekunden das Target und die Ionenquelle verlassen können, müssen diese Isotope durch den Zerfall der Mutterisotope $^{220}_{87}\text{Fr}$ bzw. $^{221}_{88}\text{Ra}$ in der LIST entstanden und ionisiert worden sein. Unter der Annahme, dass sich die Mutterisotope auf den Stäben ablagern und beim Zerfall wieder ablösen, könnte dieser Prozess reduziert



a)



b)

Abbildung 5.11.: a) α -Spektrum des Windmill-Detektors [FCA⁺15], aufgenommen bei der Einstellung des Separator-Magneten für die Masse 217 u, und b) die dominanten Zerfallsketten der im α -Spektrum vorhandenen Isotope.

werden, indem die Oberfläche der Quadrupolstäbe verringert wird. Dieses erfordert eine Prototypentwicklung einer sogenannten *Narrow-Rod-LIST*.

Das Spektrum für $A = 218$ u in Abbildung 5.12a) zeigt deutlich dominant das $^{218}_{84}\text{Po}$ und das in der Zerfallskette vorkommende $^{214}_{84}\text{Po}$. Aufgrund der langen Halbwertszeit von $^{209}_{82}\text{Pb}$ (22 Jahre) werden keine weiteren in der Zerfallskette vorkommende Isotope mehr nachgewiesen. Durch die zeitlich kurz vorher durchgeführte Messung an $A = 217$ u

5. Implementierung und Messungen mit der LIST bei ISOLDE

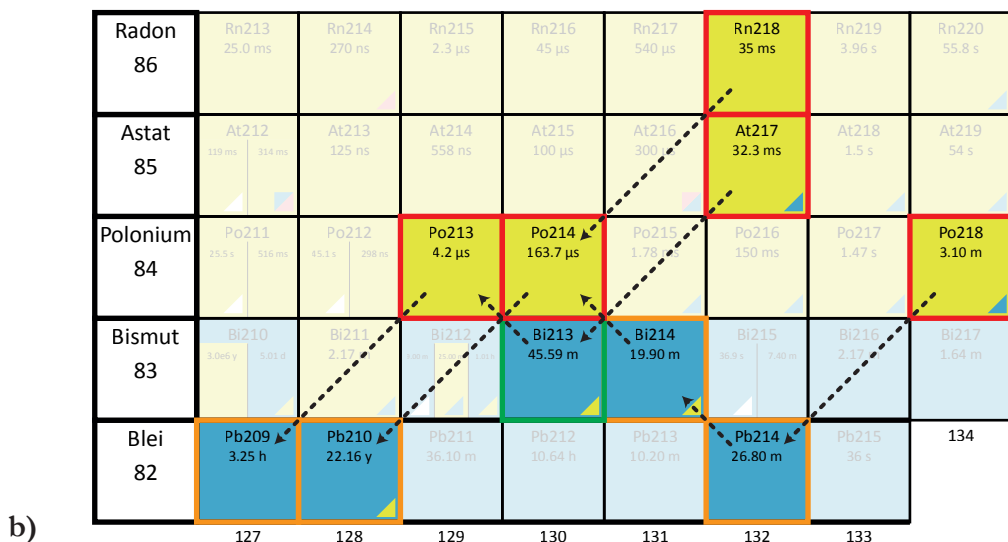
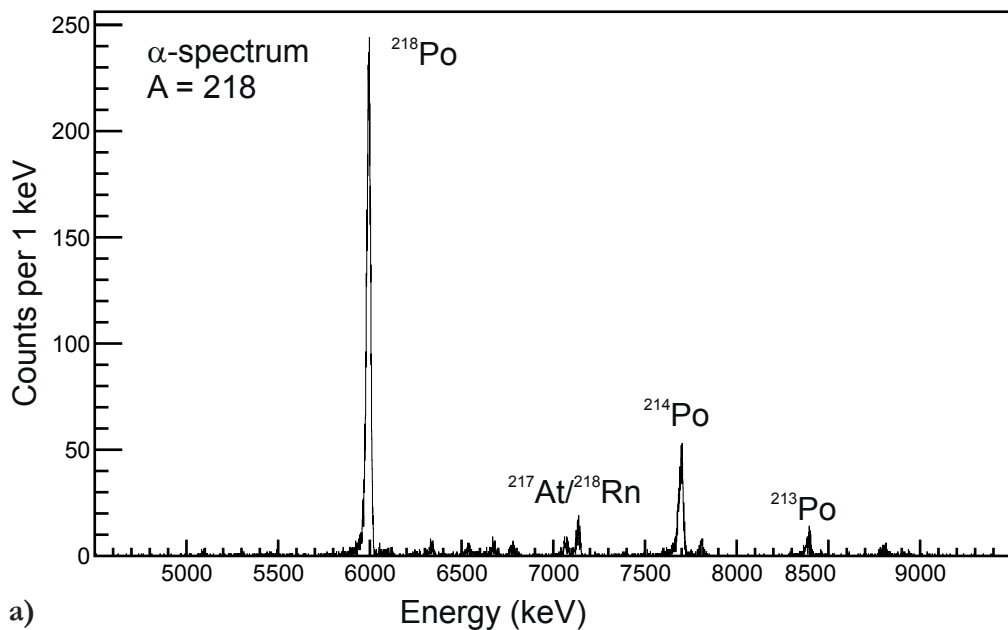


Abbildung 5.12.: a) α -Spektrum des Windmill-Detektors [FCA⁺15], aufgenommen bei der Einstellung des Separator-Magneten für die Masse 218 u, und b) die dominanten Zerfallsketten der im α -Spektrum vorhandenen Isotope.

ist das relativ langlebige $^{213}_{83}\text{Bi}$ (46 Minuten) entstanden, konnte aber als β^- -Zerfall nicht mit dem Windmill-Detektor nachgewiesen werden. Aufgrund der Halbwertszeit des Isotops $^{213}_{83}\text{Bi}$ konnte in der nachfolgenden Messung mit $A = 128$ u dessen Zerfallsprodukt, das $^{213}_{84}\text{Po}$, nachgewiesen werden, wobei diese Zerfallskette wie bei $^{217}_{84}\text{Po}$ bei $^{209}_{83}\text{Bi}$ endet. Rote Rahmen kennzeichnen wiederum diejenigen Isotope, die im Windmill-Spektrum zu sehen sind. Orangefarbene Rahmen kennzeichnen Isotope, die zur Zerfallskette gehören, aber als β^- -Strahler nicht vom Windmill-Detektor nachgewiesen werden können. Aus

der Zerfallskette für $^{218}_{84}\text{Po}$ in Abbildung 5.12b) geht hervor, dass $^{217}_{85}\text{At}$ und $^{218}_{86}\text{Rn}$ offensichtlich ebenfalls, wie die kurzlebigen Isotope $^{216}_{85}\text{At}$ und $^{217}_{86}\text{Rn}$, in der LIST entstanden sind und dort ionisiert wurden.

5.3.3. Messung der Hyperfeinstruktur von $^{217}_{84}\text{Po}$

Da der zweite Anregungsschritt beim $^{217}_{84}\text{Po}$ durch einen speziellen spektral schmalbandigen Ti:Sa-Laser mit zwei Etalons durchgeführt wurde, konnte auch erstmals die Hyperfeinaufspaltung der $7s\ ^5S_2$ und $7p\ ^5P_2$ Zustände aufgelöst werden. Abbildung 5.13 zeigt die Resonanzen des zweiten Anregungsschritts dieses Übergangs für die drei Poloniumisotope $^{216}_{84}\text{Po}$, $^{217}_{84}\text{Po}$ und $^{218}_{84}\text{Po}$.

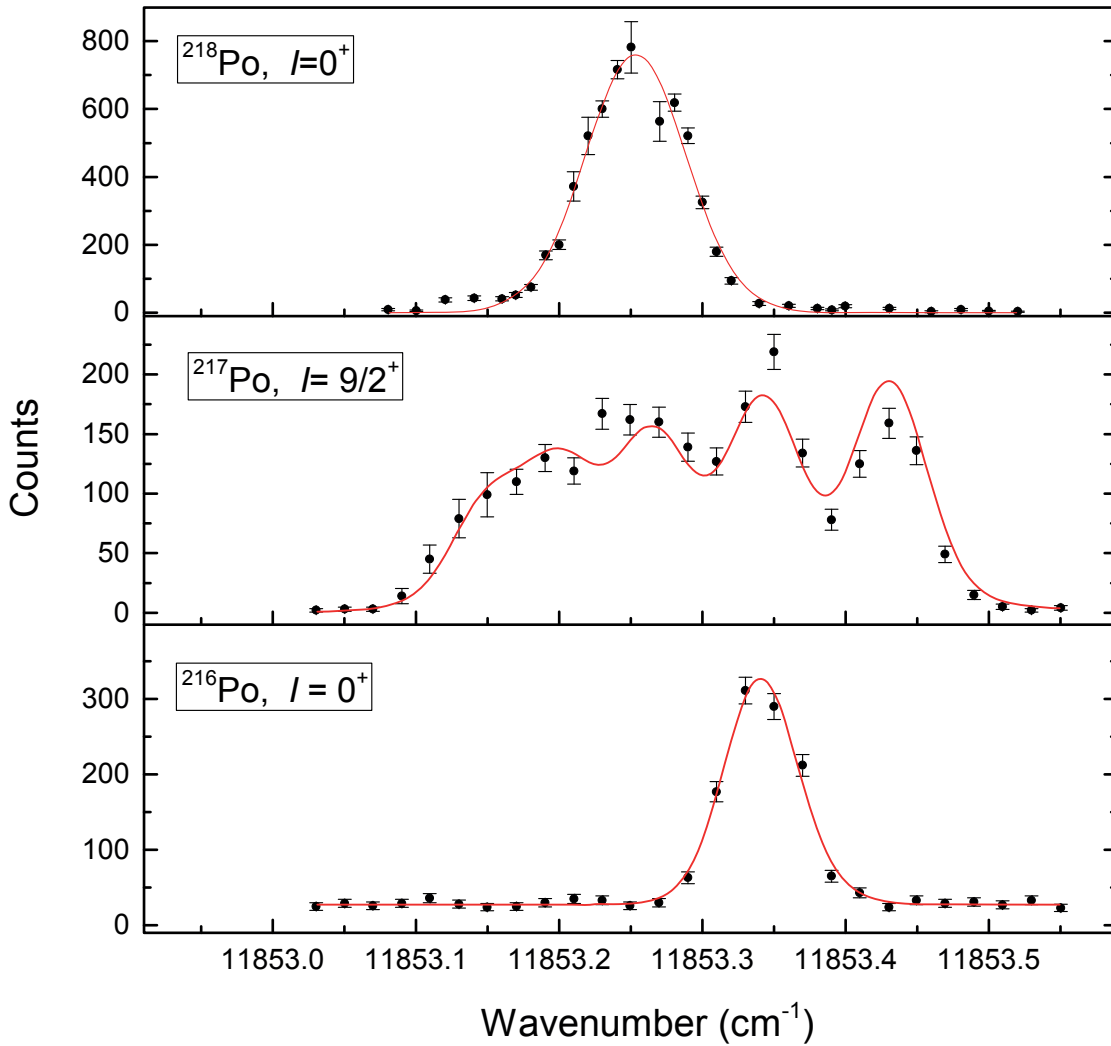


Abbildung 5.13.: Zweiter Anregungsschritt für die Isotope $^{216}_{84}\text{Po}$, $^{217}_{84}\text{Po}$ und $^{218}_{84}\text{Po}$ [FCA⁺15].

5.3.4. Bestimmung des mittleren Ladungsradius

Abbildung 5.14 zeigt die Abweichungen der Ladungsradien $\delta \langle r^2 \rangle$ von Polonium in Abhängigkeit der Massenzahl A . Als Referenz wurde $^{210}_{84}\text{Po}$ mit abgeschlossener Neutronen- und Protonenschale gewählt. Die roten Kreise und Dreiecke sind die bisher ermittelten Werte aus den früheren Arbeiten [FCA⁺15]. Der Wert für $^{217}_{84}\text{Po}$ konnte mit Hilfe der LIST durch Unterdrückung der isobaren Francium-Kontamination bestimmt werden und ist in Abbildung 5.14 durch einen roten Stern dargestellt. Es stehen noch Messungen für $^{211}_{84}\text{Po}$ bis $^{215}_{84}\text{Po}$ aus.

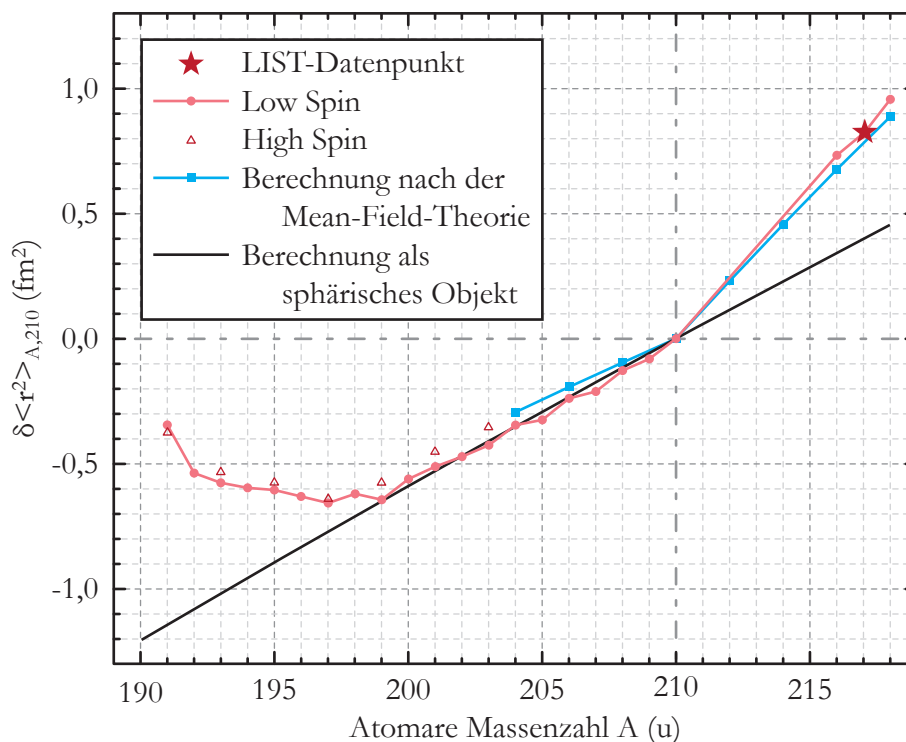


Abbildung 5.14.: Bisherige Resultate der Abweichungen der mittleren Ladungsradien $\delta \langle r^2 \rangle$ von Polonium in Abhängigkeit der Massenzahl A . Bisher ermittelte Daten ohne LIST sind durch rote Kreise und Dreiecke dargestellt. Der mit Hilfe der LIST ermittelte Wert für $^{217}_{84}\text{Po}$ ist durch einen roten Stern gekennzeichnet. Theoretische Berechnungen als sphärisches Objekt sind durch eine schwarze Linie und nach der Mean-Field-Theorie durch blaue Datenpunkte dargestellt. [FCA⁺15]

5.3.5. Zusammenfassung der On-Line-Messung

Beim On-line-Betrieb der LIST mit einem Urancarbid-Target konnten einige wesentliche Punkte herausgefunden werden:

1. Die Bedenken zum Verlust der Isolationseigenschaften einiger Bauteile der LIST haben sich nicht bestätigt.
2. Es konnte die erfolgreiche Unterdrückung mehrerer verschiedener Isotope mit Faktoren $LSF > 1000$ (Tabelle 5.1) nachgewiesen werden, ähnlich wie es beim Betrieb mit einem Titan-Target der Fall war (Tabelle 5.2). Eine Ausnahme bildet das Isotop $^{212}_{87}\text{Fr}$, dessen Unterdrückung nur mit einem Faktor $LSF = 70$ erfolgte.
3. Es konnten erstmalig an $^{217}_{84}\text{Po}$ der mittlere Ladungsradius bestimmt werden.
4. Die Hyperfeinaufspaltung der $7s\ ^5S_2^o$ - und $7p\ ^5P_2$ -Zustände des $^{217}_{84}\text{Po}$ konnte vermessen werden.

Damit wurde der Nachweis der erfolgreichen Integration und Funktionsfähigkeit der LIST an der ISOLDE endgültig erbracht.

6. Messungen der Effizienz

Zielsetzung dieser Messung ist es, einen direkten Vergleich der Effizienz der beiden Ionenquellen RILIS und LIST zu erstellen. Hierzu mussten die beiden Quellen am gleichen Massenseparator nacheinander installiert werden.

6.1. Vergleich der Ionenquellen

Um korrekte Resultate für den Vergleich der RILIS und der LIST zu erhalten, wurde darauf geachtet, dass die physikalischen Messparameter und Verfahren soweit wie möglich identisch und unverändert blieben. So wurden die Proben für alle Effizienzmessungen, auf gleiche Weise exakt wie in Kapitel 4.1 beschrieben, zubereitet. Für Effizienzmessungen mit der LIST wurde nachfolgend lediglich eine Verdünnung vorgenommen. Da die RILIS und die LIST in zwei baugleiche Quelleneinheiten installiert sind und ein Wechsel der Ionenquellen durch einen Wechsel der Quelleneinheiten erfolgt, wurden beide Ionenquellen, sowie Extraktor, Einzellinse und die Ablenker, mit Hilfe des Theodoliten auf eine gemeinsame Achse justiert. Bei einem Wechsel der Ionenquelle musste die Position des Extraktors längs der Achse wieder so angepasst werden, dass der Extraktor $4 \pm 0,1$ cm vom Atomisator bzw. der Ausgangselektrode der LIST entfernt ist. Deswegen erfolgte nach einem Wechsel eine gesonderte Überprüfung und ggf. eine Nachjustierung des Extraktors mit Hilfe eines Theodoliten. So konnte sichergestellt werden, dass für alle Messungen vergleichbare Bedingungen vorlagen.

Alle Vergleichsmessungen wurden an dem Element Ytterbium durchgeführt. Ytterbium gehört zur Serie der Lanthanoide und lässt sich aufgrund der niedrigen Schmelz- und Siedetemperatur von 816°C bzw. 1193°C [Kar01] sehr leicht im Atomisator zu freien Atomen verdampfen. Ytterbium besitzt sieben stabile Isotope, die mit ihrer Isotopenhäufigkeit in Tabelle 6.1 dargestellt sind. Zur Ionisierung von Ytterbium wurde eine zweistufige Laseranregung gewählt. Der erste Schritt erfolgte resonant durch einen frequenzverdreifachten, der zweite Schritt resonant durch einen fundamentalen Titan-Saphir-Laser. Für den zweiten, den ionisierenden Schritt, stehen mehrere Möglichkeiten

Isotop	$^{168}_{70}\text{Yb}$	$^{170}_{70}\text{Yb}$	$^{171}_{70}\text{Yb}$	$^{172}_{70}\text{Yb}$	$^{173}_{70}\text{Yb}$	$^{174}_{70}\text{Yb}$	$^{176}_{70}\text{Yb}$
Häufigkeit	0,13 %	3,04 %	14,28 %	21,83 %	16,13 %	31,83 %	12,76 %

Tabelle 6.1.: Stabile Isotope des Elements Ytterbium und natürliche Isotopenverteilung. [Nuc14]

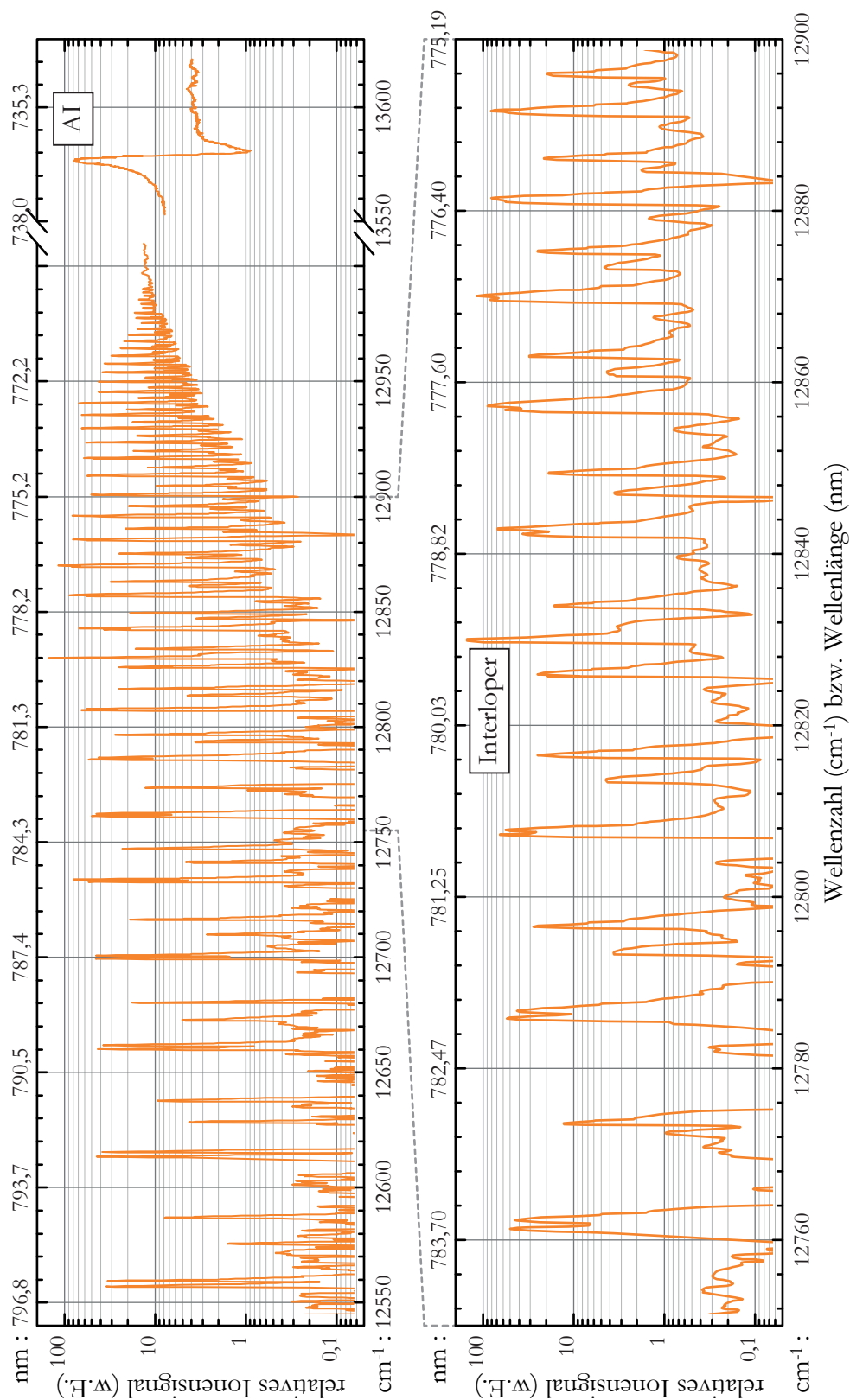


Abbildung 6.1.: Wellenlängen-Scan, aufgenommen durch einen Gitter-gestützten Titan-Saphir-Laser. Oben: vollständige Scan-Bereich, unten: Ausschnittsvergrößerung. Zu erkennen sind die Rydbergserien dreier unterschiedlicher Zustände, die zum Ionisationspotential (IP) bei $13\,028,91\text{ cm}^{-1}$ konvergieren, der Interloper und der autoionisierende Zustand (AI). Die Skalierung erfolgt in der Wellenzahl auf der unteren Abszisse, während die dazugehörig umgerechnete Wellenlänge auf der oberen Abszisse dargestellt ist.

zur Verfügung. Um einen möglichst starken Ionisationsschritt zu wählen, wurde ein breiter Wellenlängen-Scan des zweiten Anregungsschritts durchgeführt, der durch einen Gitter-gestützten Titan-Saphir-Laser erfolgte und in Abbildung 6.1 dargestellt ist. In diesem Wellenlängen-Scan sind die in Kapitel 2.2.2 beschriebenen verschiedenen resonanten Ionisationsprozesse über Rydbergzustände, den autoionisierenden Zustand (AI) und ein Interloper zu erkennen. Da der Laser bei der Wellenlänge des autoionisierenden Zustandes eine ungewöhnlich schlechte Laserleistung vorwies oder bei genügend Laserleistung nicht stabil genug die Wellenlänge gehalten werden konnte, wurden die Messungen größtenteils bei der Wellenlänge mit dem höchsten Peak im Bereich der Rydbergserie gewählt, dem Interloper. Abbildung 6.2 zeigt das für die Messungen verwendete Anregungsschema.

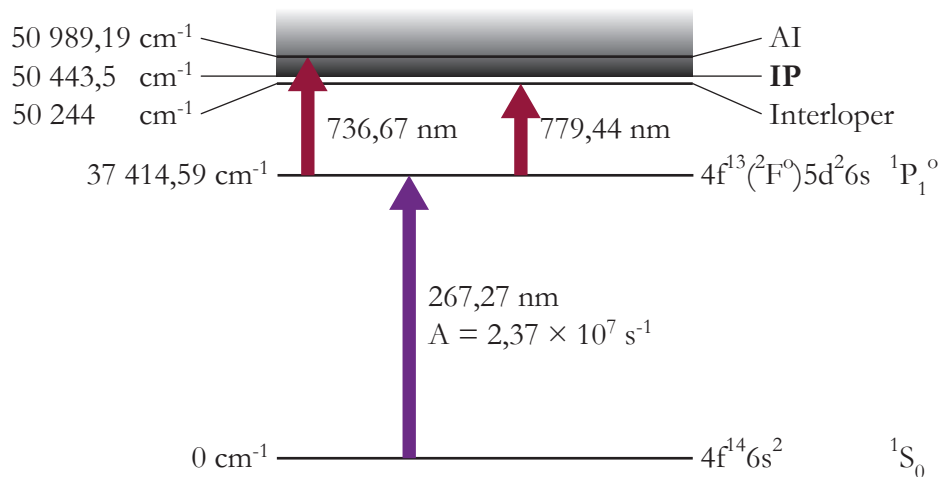


Abbildung 6.2.: Resonantes Anregungsschema für Ytterbium am RISIKO-Massenseparator [Roß11]. In der mittleren Spalte sind die Wellenlängen der Laserübergänge und die Übergangsstärke vom Grundzustand in den ersten Anregungszustand, in der rechten Spalte die Konfiguration der einzelnen Terme und in der linken Spalte die Energieniveaus angegeben.

6.1.1. Massenauflösung

Die Massenseparation hängt primär von dem Separationsmagneten und der Ionenoptik ab. Werden die Bedingungen und Einstellungen für den Separationsmagneten und die Ionenoptik beim Betrieb mit der RILIS und der LIST nahezu konstant gehalten, so kann auch ein Einfluss der Ionenquelle auf die Massenauflösung beobachtet werden. Dieser Einfluss kann nur durch eine Energieunschärfe verursacht werden, hervorgerufen durch unterschiedliche Geometrien und Potentiale im Ionisationsbereich der Ionenquellen.

RILIS

Ein Massenspektrum der RILIS ist in Abbildung 6.3 linear und logarithmisch dargestellt.

6. Messungen der Effizienz

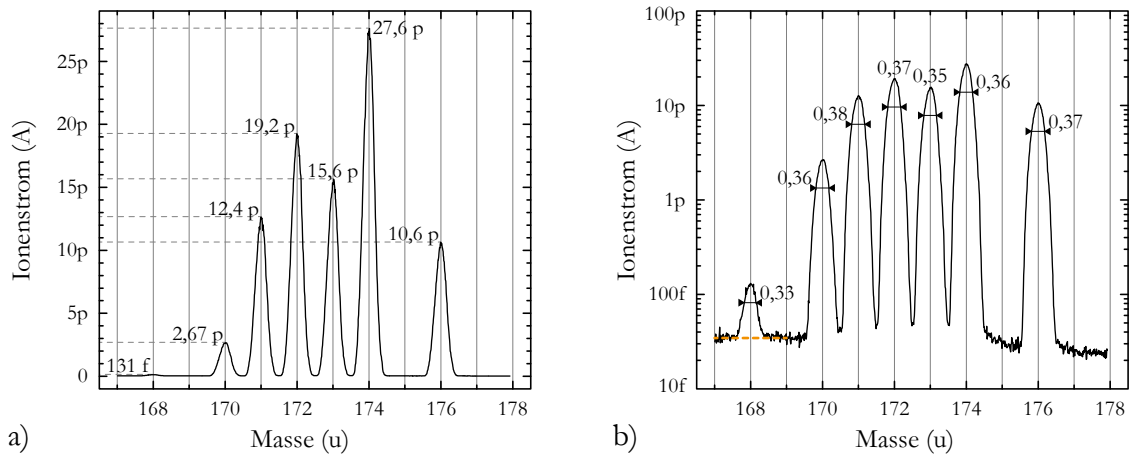


Abbildung 6.3.: Massenspektrum von Ytterbium, das durch die RILIS ionisiert wurde, a) in linearer und b) in logarithmischer Darstellung. In der linearen Darstellung sind die Peak-Höhen und in der logarithmischen die Peak-Breiten bei halber Peak-Höhe eingezeichnet.

Die Messung des Massenspektrums wurde vor einer Effizienzmessung aufgenommen und wurde daher mit einem verhältnismäßig niedrigen Ionenstrom aufgenommen, um die Effizienzmessung nicht allzu sehr zu verfälschen. Von einer Analyse der Massen-Peaks durch eine Fit-Funktion wurde abgesehen, da keine Funktion gefunden werden konnte, die die leicht asymmetrischen Massenpeaks korrekt beschreibt. Stattdessen wurde eine Auswertung der Massenspektren direkt anhand der aufgenommenen Datenpunkte vorgenommen.

Betrachtet man die Peak-Breite Δm bei halber Peak-Höhe (FWHM), so kann daraus die Massenauflösung $\mathfrak{R} = m/\Delta m$ des Systems ermittelt werden. In der logarithmischen Darstellung des Massenspektrums in Abbildung 6.3b) sind die Peak-Breiten für alle Peaks eingezeichnet. Da die Peak-Höhe des Isotops $^{168}_{70}\text{Yb}$ sich nicht einmal um eine Größenordnung vom Untergrund unterscheidet, wurde explizit der Untergrund von 35 fA (orangene Linie) zur Bestimmung der Peak-Breite beachtet. Bei den anderen Massen-Peaks spielt der Beitrag des Untergrunds bei der Bestimmung der Peak-Breite keine große Rolle. Im Mittel erhält man somit ein Breite von $\Delta m = 0,36 \pm 0,02$ u. In Tabelle 6.2 sind für die einzelnen Ytterbiumisotope die Massenauflösungen angegeben, indem

Isotop	$^{168}_{70}\text{Yb}$	$^{170}_{70}\text{Yb}$	$^{171}_{70}\text{Yb}$	$^{172}_{70}\text{Yb}$	$^{173}_{70}\text{Yb}$	$^{174}_{70}\text{Yb}$	$^{176}_{70}\text{Yb}$	Mittelwert
$m/\overline{\Delta m}$	469	475	478	480	483	486	492	$\Rightarrow 481$
$m/\Delta m$	512	470	456	470	499	486	476	$\Rightarrow 480$

Tabelle 6.2.: Experimentelle Ergebnisse der Massenauflösung des RISIKO-Massenseparators mit der RILIS. Bestimmung der Auflösung für jedes Isotop mit einer gemittelten sowie der zugehörigen Peak-Breite.

die gemittelte Peak-Breite $m/\Delta m$ verwendet oder die zur Masse zugehörigen Breiten verwendet wurden. Mittelt man die Auflösungen für den Massenbereich, so erhält man sehr ähnliche Massenauflösungen von $\mathfrak{R} \approx 480$. Bei der RILIS bewirkt nur der Feldeingriff der Extraktionselektrode in den Atomisator und außerhalb des Atomisators der Feldgradient eine Energieunschärfe. Da der Innendurchmesser des Atomisators nur 2,5 mm beträgt, ist der Feldeingriff entsprechend auch nur wenige Millimeter tief, im Vergleich zur Länge des Atomisators von 35 mm. Der Feldgradient außerhalb des Atomisators ist extrem groß, doch wie die Analyse der Zeitstruktur in Abbildung 7.8 zeigt, fällt die Atomdichte, und somit die Anzahl der Atome, die außerhalb des Atomisators ionisiert werden können, sehr schnell ab. Somit produziert die RILIS größtenteils Ionen mit gleicher Energie aus dem Atomisator. Eine wesentliche Verschlechterung der Massenauflösung durch die RILIS wird nicht erwartet. Die Massenauflösung wird als Vergleichsreferenz zur LIST gewählt.

LIST

Da aufgrund der Transmissionslimitierung im IG-Mode als auch des LLF im LIST-Mode die Probengröße verringert werden musste, um eine angemessene Messdauer zu erreichen, standen damit nicht mehr ausreichend Ionen zur Verfügung, um eine Messung des Massenspektrums und eine nachfolgende Effizienzmessung mit der gewünschten Genauigkeit durchzuführen. Daher wurden die Messungen der Massenspektren und die Effizienzmessungen aus Gründen, auf die in Kapitel 6.2.2 näher eingegangen wird, mit zwei separaten Proben durchgeführt.

Es fällt bei diesen Massenspektren auf, dass das Signal zwischen benachbarten Massenpeaks nicht mehr um mehrere Größenordnungen bis auf Werte nahe des Untergrundsignals abfällt und daher die Peaks der Massenspektren der LIST, sowohl im IG- als auch

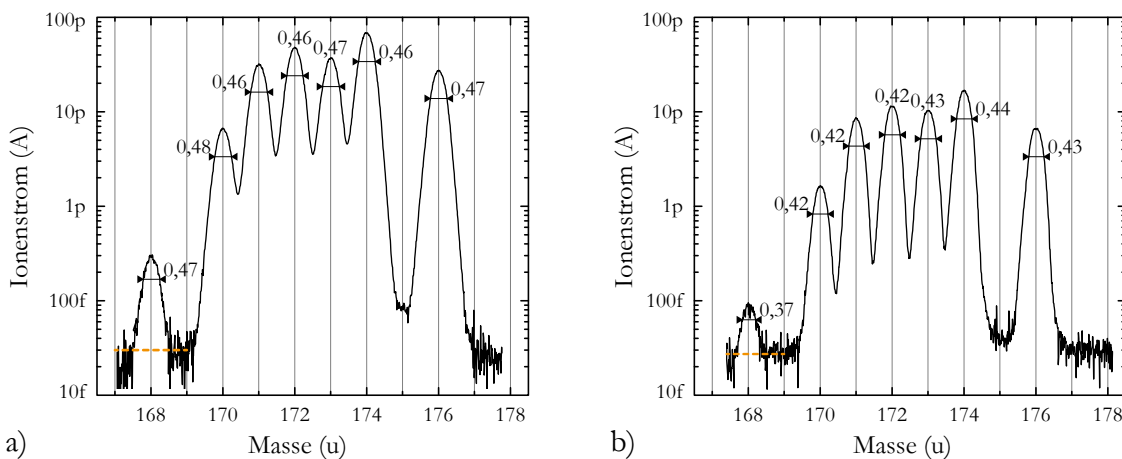


Abbildung 6.4.: Massenspektrum von Ytterbium mit der LIST jeweils in logarithmischer Darstellung. Ebenfalls sind die Peak-Breiten bei halber Peak-Höhe eingezeichnet.

- a) im IG-Mode
- b) im LIST-Mode

6. Messungen der Effizienz

im LIST-Mode, schlechter aufgelöst sind als bei der RILIS. Im Mittel wurde im LIST-Mode eine Peak-Breite von $\overline{\Delta m}_{\text{LIST}} = 0,46 \pm 0,01$ u und im IG-Mode eine Peak-Breite von $\overline{\Delta m}_{\text{IG}} = 0,42 \pm 0,02$ u ermittelt. In Tabelle 6.3 sind für die einzelnen Ytterbiumisotope die Massenauflösungen im IG- und LIST-Mode angegeben. Es wurden die individuellen und die gemittelten Peak-Breiten zur Bestimmung der Massenauflösung verwendet.

Isotop	$^{168}\text{Yb}_{70}$	$^{170}\text{Yb}_{70}$	$^{171}\text{Yb}_{70}$	$^{172}\text{Yb}_{70}$	$^{173}\text{Yb}_{70}$	$^{174}\text{Yb}_{70}$	$^{176}\text{Yb}_{70}$	Mittelwert
IG-Mode								
$m/\overline{\Delta m}$	362	366	368	370	373	375	379	$\Rightarrow 370$
$m/\Delta m$	359	358	369	377	367	391	373	$\Rightarrow 371$
LIST-Mode								
$m/\overline{\Delta m}$	401	405	408	410	412	415	420	$\Rightarrow 411$
$m/\Delta m$	450	403	406	408	402	397	409	$\Rightarrow 410$

Tabelle 6.3.: Massenauflösung des RISIKO-Massenseparators mit der LIST. Bestimmung der Auflösung für jedes Isotop mit einer gemittelten und der entsprechend zugehörigen Peak-Breite.

Bei der LIST kann eine Energieunschärfe im wesentlichen durch zwei Potentiale verursacht werden, erstens durch das Repellerpotential und zweitens durch die RF-Spannung der Quadrupolstäbe. Da die Ionen im Gegensatz zu einem herkömmlichen linearen Massenfilter im Einflussbereich dieser Potentiale erzeugt werden, spielen sie bezüglich der Startparameter der Ionen eine wesentliche Rolle.

Es zeigt sich, dass die Massenauflösung mit der LIST im LIST-Mode ca. 10 % über der Massenauflösung im IG-Mode liegen. Jedoch ist die gemessene Massenauflösung der RILIS in Tabelle 6.2 gegenüber der Massenauflösung der LIST ca. 20 % bzw. 30 % besser.

6.1.2. Analyse der Isotopenverteilung

Aus der Höhe der Massen-Peaks kann die Isotopenverteilung der Probe verifiziert werden. Unter der Annahme, dass der höchste Peak in Abbildung 6.3 der tatsächlichen Isotopenhäufigkeit des $^{174}\text{Yb}_{70}$ entspricht, erhält man die in der Tabelle 6.4 angegebene experimentelle Isotopenverteilung und die Abweichungen zu den Literaturwerten aus Tabelle 6.1. Da für alle Messungen die identische Stammlösung von Ytterbium verwendet wurde, reicht es aus, die Analyse der Isotopenverteilung mit dem Massenspektrum der RILIS durchzuführen. Die Abweichungen zum Literaturwert beträgt im Allgemeinen unter 0,5 %. Ausnahme hierbei ist das Isotop $^{173}\text{Yb}_{70}$, das 2 % vom Literaturwert abweicht. Wurde ein Massenspektrum einer Blindprobe aufgenommen, so wurde auf der Masse 173 u ein kleiner Peak registriert. Dieser Beitrag scheint bei der experimentellen Bestimmung der Isotopenverteilung von Ytterbium einen Einfluss zu haben. Im Hinblick auf die Bestimmung der Ionisationseffizienz wird im Rahmen der Messgenauigkeit weiterhin von der natürlichen Isotopenverteilung ausgegangen.

Isotop	$^{168}_{70}\text{Yb}$	$^{170}_{70}\text{Yb}$	$^{171}_{70}\text{Yb}$	$^{172}_{70}\text{Yb}$	$^{173}_{70}\text{Yb}$	$^{174}_{70}\text{Yb}$	$^{176}_{70}\text{Yb}$
Peakhöhe	131 fA	2,67 pA	12,4 pA	19,2 pA	15,6 pA	27,6 pA	10,6 pA
exp. Häuf.	0,15 %	3,08 %	14,58 %	22,18 %	18,04 %	31,83 %	12,27 %
Abweichung	0,02 %	0,04 %	0,3 %	0,35 %	1,91 %	—	-0,49 %

Tabelle 6.4.: Experimentelle Ergebnisse der Isotopenverteilung auf Basis des $^{174}_{70}\text{Yb}$ und Abweichung anhand der Literaturwerte in Tabelle 6.1.

6.1.3. Nachbarmasseneinfluss

Ein weiterer Parameter, der für die Bestimmung der Effizienz von Bedeutung ist, ist der Einfluss der Signalhöhe einer Masse m an der Stelle der Nachbarmassen $m \pm 1$. Dieser Einfluss wird folgendes als Nachbarmasseneinfluss bezeichnet. Die Massenspektren, die bisher untersucht wurden, sind nur für Ionenströme von 10 pA bis etwa 100 pA repräsentativ, wobei das Signal auf den benachbarten Masseneinheiten im Untergrundsignal des Detektors verschwindet und keine qualitative Aussage bezüglich des Nachbarmasseneinflusses zulässt. Von den Ytterbiumisotopen sind zur Durchführung dieser Untersuchung wegen fehlender Nachbarisotope die Isotope $^{170}_{70}\text{Yb}$, $^{174}_{70}\text{Yb}$ und $^{176}_{70}\text{Yb}$ bedingt geeignet. Daher wurden im Rahmen eines anderen Projektes am RISIKO-Massenseparator Massenspektren bei unterschiedlichen Ionenströmen für Holmium durchgeführt. Holmium gehört wie Ytterbium zu den Lanthanoiden, hat nur ein stabiles Isotop $^{165}_{67}\text{Ho}$ und ist daher besonders gut geeignet, die Flanken und Ausläufer des Massenpeaks hinsichtlich des Nachbarmasseneinflusses zu untersuchen. Zur Ionisierung von Holmium wird ein Dreischritt-Laserschema verwendet, das in Abbildung 6.5 dargestellt ist. Der erste

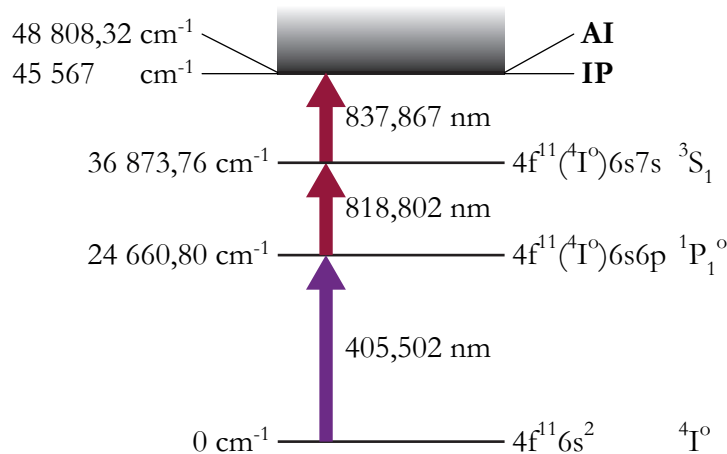


Abbildung 6.5.: Resonantes Anregungsschema für Holmium am RISIKO-Massenseparator [GLL⁺09, Nat14]. In der mittleren Spalte sind die Wellenlängen der Laserübergänge, in der rechten Spalte die Konfiguration der einzelnen Terme und in der linken Spalte die Energieniveaus angegeben.

6. Messungen der Effizienz

Schritt erfolgt resonant durch einen frequenzverdoppelten, der zweite und dritte Schritt durch fundamentale Titan-Saphir-Laser.

In Abbildung 6.6 sind die Massenpeaks von Holmium zur Bestimmung des Nachbarmasseneinflusses für unterschiedlich hohe Ionenströme dargestellt. Dazu wurde der Heizstrom des Mass-Markers variiert. Bei den vier höchsten Peaks sind, abgesehen von der asymmetrischen Struktur der Peaks, ausgeprägte Flanken zu erkennen. Diese werden nach Außen mit einem deutlichen Übergang flacher. Bei einer Peak-Höhe kleiner als 100 pA verschwinden die flachen Ausläufer der Peak-Struktur im Untergrund des Detektors. Die Übergänge von steilen zur flachen Flanken bleiben nahezu an den selben Massenpositionen und sind in der Abbildung durch die Punkt-Strich-Linien dargestellt.

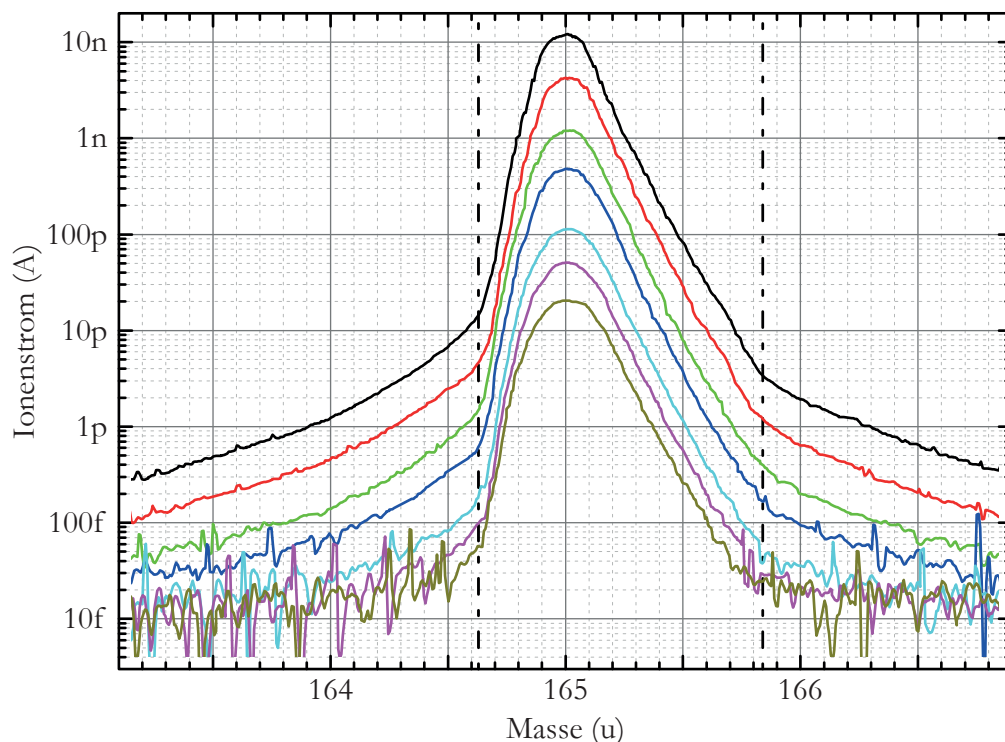


Abbildung 6.6.: Massenspektren von $^{165}_{67}\text{Ho}$ bei unterschiedlichen Ionenstromintensitäten durch unterschiedliche Einstellungen des Heizstromes des Mass-Markers. Die Änderung der Flankenstruktur ist immer nahezu an der gleichen Massenposition und durch die Punkt-Strich-Linien gekennzeichnet.

Nur für die drei höchsten Peaks in Abbildung 6.6 gibt das Verhältnis \mathfrak{S}_m der Peak-Höhe von $^{165}_{67}\text{Ho}$ zur Signalhöhe bei den Massen $m = 164\text{u}$ und $m = 166\text{u}$ diesen Nachbarmasseneinfluss an. Bei den übrigen Massen-Peaks kann das Verhältnis nicht korrekt bestimmt werden, da das Signal bei den Massen $m = 164\text{u}$ und $m = 166\text{u}$ kleiner als das Untergrundsignal des Detektors sein müsste oder durch Schwankungen des Untergrundsignals aufgrund der Detektorelektronik schon zu stark verfälscht wurde. In Tabelle 6.5 sind die Verhältnisse $\mathfrak{S}_{164,166}$ und die gemittelten Verhältnisse für die drei höchsten Peaks aufgelistet.

Linien- farbe	Peak-Höhe in A			Verhältnis		Mittelwert	
	$m = 165$	$m = 164$	$m = 166$	\mathfrak{S}_{164}	\mathfrak{S}_{166}	\mathfrak{S}_{164}	\mathfrak{S}_{166}
schwarz	12,1n	1,24p	1,92p	9800	6300	9300	6400
rot	4,27n	454f	639f	9400	6700		
grün	1,21n	139f	199f	8700	6100		
blau	481p	77,5f	94,2f	6200	5100		
cyan	114p	24,7f	35,8f	4600	3180		
lila	50,9p	29,0f	21,5f	1800	2400		
braun	20,5p	19,3f	21,4f	1100	1000		

Tabelle 6.5.: Signalhöhe von Holmium und den Nachbarmassen zur Bestimmung des Nachbarmasseneinflusses der RISIKO mit der RILIS.

Da die Daten nachträglich während der Messphase eines anderen Projektes gemessen wurden und somit keine identischen Bedingungen wie bei den Effizienzmessungen sichergestellt werden konnten, stellen die ermittelten Werte keine präzisen Werte, sondern lediglich eine Abschätzung der Größenordnung für den Nachbarmasseneinfluss für die Effizienzmessungen dar. Für die höchsten Peaks der Masse $m = 165$ u ist somit ein Nachbarmasseneinfluss an den Stellen der Massen $m = 164$ u bzw. $m = 166$ u deutlich geringer als drei Größenordnungen. Da unter Vorwegnahme der Ergebnisse der Effizienzmessungen der Nachbarmasseneinfluss mindestens eine Größenordnung kleiner als die Schwankungen der einzelnen Effizienzmessungen untereinander ist, wird bei der Erhebung der Effizienz auf eine Korrektur des Nachbarmasseneinflusses verzichtet.

6.2. Ionisationseffizienz

Die Ionisationseffizienz einer Ionenquelle ist von vorrangiger Bedeutung, wie in Kapitel 4.3) ausgeführt. Da die LIST primär auf der Struktur und dem Prinzip der RILIS beruht, soll vor allem ein Vergleich der Ionisationseffizienz der RILIS als Referenzwert mit der Ionisationseffizienz der LIST sowohl im IG-Mode als auch im LIST-Mode durchgeführt werden. Die Effizienzmessungen erfolgten anhand des Isotops $^{174}_{70}\text{Yb}$, da es die größte Isotopenhäufigkeit aufweist. Es wurde die Besetzung des Zustands bei $50\,443,5\text{ cm}^{-1}$ als Ionisationsschritt gewählt. Sättigungsmessungen zu den Übergängen sind in Abbildung 6.7, sowie die dazugehörigen Fitparameter ($S_{1/2}$, α , β , γ) der Fitfunktion aus Gleichung (2.41) in Tabelle 6.6 angegeben. Aus den Sättigungsmessungen kann man entnehmen, dass der erste Schritt mit $S_{1/2} = 4,3\text{ mW}$ gesättigt war und mit maximal 35 mW ausreichend Laserleistung zur Verfügung stand. Der zweite Schritt war gemäß Fit mit $1,0\text{ W}$ gesättigt, wobei die Sättigungsleistung nur mit einer großen Ungenauigkeit bestimmt werden konnte. Da maximal knapp $1,8\text{ W}$ zur Verfügung standen, lag diese Anregung nur knapp über der Sättigungsgrenze.

6. Messungen der Effizienz

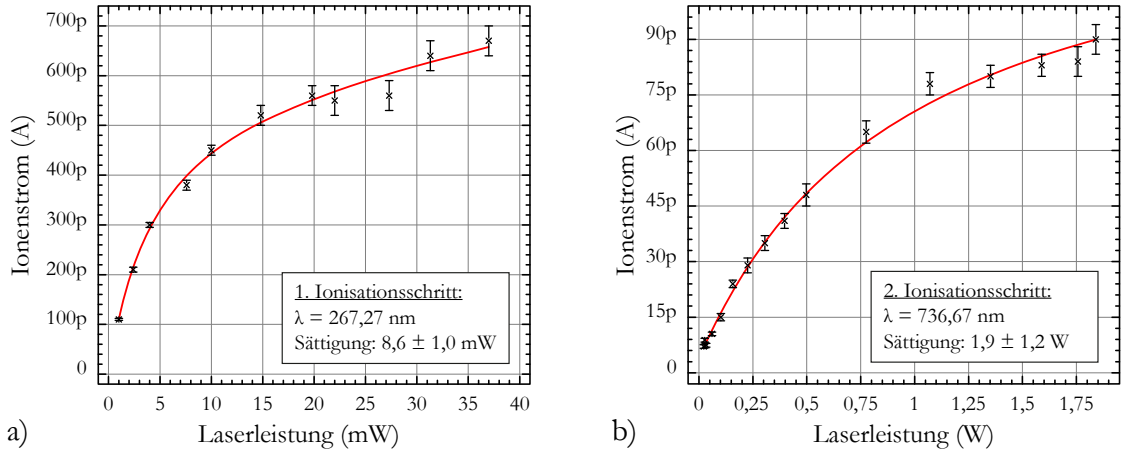


Abbildung 6.7.: Sättigungsmessung der resonanten Übergänge von Ytterbium zur Ionisation a) für den ersten Ionisationsschritt und b) für den zweiten Ionisationsschritt.

zu Abbildung 6.7a)	zu Abbildung 6.7b)
$S_{1/2} = 4,3 \pm 1,0 \text{ mW}$	$S_{1/2} = 1,0 \pm 0,6 \text{ W}$
$\alpha = 590 \pm 60 \text{ pA}$	$\alpha = 132 \pm 86 \text{ pA}$
$\beta = 3,7 \pm 1,9 \text{ pA/mW}$	$\beta = 0 \pm 0,2 \text{ pA/W}$
$\gamma = -5 \pm 14 \text{ pA}$	$\gamma = 4 \pm 1 \text{ pA}$
$\chi_{\text{reduz.}}^2 = 1,45$	$\chi_{\text{reduz.}}^2 = 2,29$

Tabelle 6.6.: Fitparameter der Sättigungsmessung in Abbildung 6.7

6.2.1. RILIS

Effizienzmessungen in der RILIS wurden insgesamt drei mal durchgeführt. Sie sind in Abbildung 6.8 bis 6.10 zu sehen. Die Datenpunkte der Rohdaten sind durch graue Kreuze dargestellt. Die Datenpunkte des Untergrundsignals (Kapitel 4.3) sind durch rote Kreuze dargestellt. Die Datenpunkte der Rohdaten, die einen Beitrag zum Nutzsignal zur Effizienzmessung liefern, sind durch eine grüne Kurve verbunden. Der vollständige Verlauf des Untergrundsignals (dunkelrote Kurve) ist eine Interpolation auf Basis des Nutzsignals (grüne Kurve) und den gemessenen Verhältnissen zwischen Nutzsignal und den Datenpunkten des Untergrundsignals. Die Anzahl der Laserionen $N_{\text{Laserionen}}$ in Gleichung 4.1 wird aus der Differenz des Nutzsignals (grüne Kurve) und des interpolierten Untergrundsignals (dunkelrote Kurve) bestimmt. Somit kann der Verlauf der Effizienz \mathcal{E} während der Effizienzmessung durch die gelbe Linie dargestellt werden. Der Heizstrom des Atomisators betrug generell 280 A, während der Heizstrom des Mass-Markers schrittweise erhöht wurde. Der Heizstrom des Mass-Markers ist in den Abbildungen durch die blaue Linie dargestellt. Während der Effizienzmessungen hat sich herausgestellt, dass durch einen Defekt bei den elektrischen Zuführungen ein um den Faktor

$1,7 \pm 0,1$ höherer Ionenstrom gemessen wurde. Dieser Faktor wurde bei der Auswertung der vorliegenden Effizienzmessungen berücksichtigt. Weitere besondere Ereignisse während der Effizienzmessung sind durch rosafarbene Flächen und durch große römische Zahlen gekennzeichnet.

Effizienzmessung RILIS 1

Abbildung 6.8 stellt die erste Effizienzmessung der RILIS dar. Während dieser Messung traten folgende Ereignisse auf:

- I) Beenden der Aufheizphase des Atomisators bei einem Heizstrom von 280 A mit anschließender räumlicher und zeitlicher Optimierung der Laserstrahlen in den Atomisator. Der Heizstrom des Mass-Markers ist wegen einer nicht vollständigen Entkopplung der Netzteile des Atomisators und des Mass-Markers schon auf etwa 13 A angestiegen, obwohl dieser noch nicht kontrolliert geändert wurde. Es ist schon ein Laser-abhängiges Signal zu erkennen.
- II) Durchführung einer Sättigungsmessung des ersten Anregungsschritts.
- III) Durchführung einer Sättigungsmessung des zweiten Anregungsschritts.
- IV) Wiederholung der Durchführung einer Sättigungsmessung des zweiten Anregungsschritts mit anschließender räumlicher Optimierung der Laserstrahlen.
- V) Auftreten von Kontaktproblemen innerhalb der Ionenquelle, so dass entweder der Heizstrom des Atomisators oder des Mass-Markers fluktuierte. Ein gewisser Verlust an Ytterbiumatomen in diesem Zeitraum ist möglich. Ab Minute 230 wurden nochmals die räumlichen und zeitlichen Laserparameter überprüft, um den Prozess der Laserionisation als Ursache auszuschließen. Es konnte keine Verbesserung erreicht werden.

Effizienzmessung RILIS 2

Abbildung 6.9 stellt die zweite Effizienzmessung der RILIS dar. Folgende Messungen wurden in den gekennzeichneten Zeitintervallen durchgeführt:

- I) In den ersten neunzig Minuten der Messung wurde der Atomisator auf 280 A geheizt und der Mass-Marker schrittweise geheizt, bis ein laserabhängiges Ionensignal knapp über 100 fA nachgewiesen werden konnte. Anschließend wurden die Parameter der Laser räumlich und zeitlich optimiert.
- II) Aufnahme eines Massenspektrums von Ytterbium.

Effizienzmessung RILIS 3

Abbildung 6.10 stellt die dritte Effizienzmessung der RILIS dar. Folgende Messungen wurden in den gekennzeichneten Zeitintervallen durchgeführt:

- I) Durchführung einer Sättigungsmessung des ersten Anregungsschritts.
- II) Durchführung einer Sättigungsmessung des zweiten Anregungsschritts.
- III) Aufnahme eines Massenspektrums von $^{174}_{70}\text{Yb}$.

Zusammenfassung der Effizienzmessungen der RILIS

Die Ergebnisse der einzelnen Effizienzmessungen der RILIS sind in Tabelle 6.7 aufgeführt. Im Mittel erhält man aus den drei Messungen für die RILIS eine Effizienz von $\mathcal{E} = 10,0\% \pm 1,5\%$.

Nr.	Probengröße (Atome)	ohne Berücksichtigung des Untergrunds	mit Berücksichtigung des Untergrunds	Mittelwert
RILIS 1	$(3,494 \pm 0,087) \cdot 10^{15}$	8,6 %	8,6 %	10,0 % \pm 1,5 %
RILIS 2	$(3,494 \pm 0,087) \cdot 10^{15}$	10,0 %	10 %	
RILIS 3	$(3,494 \pm 0,087) \cdot 10^{15}$	11,5 %	11,4 %	

Tabelle 6.7.: Zusammenfassung der RILIS Effizienzmessungen.

Es ist noch anzumerken, dass im Rahmen dieser Arbeit zuvor schon einmal Effizienzmessungen der RILIS an Ytterbium durchgeführt wurden, um einen Vergleich mit einem Quadrupol-Massenseparator, der MABU¹, durchführen zu können. Diese Messergebnisse wurden bereits an anderer Stelle publiziert [Roß11], und sind der Vollständigkeit halber im Anhang A aufgeführt.

¹MABU ist das phonetische Akronym zu **M**ainzer **B**eam **U**nit

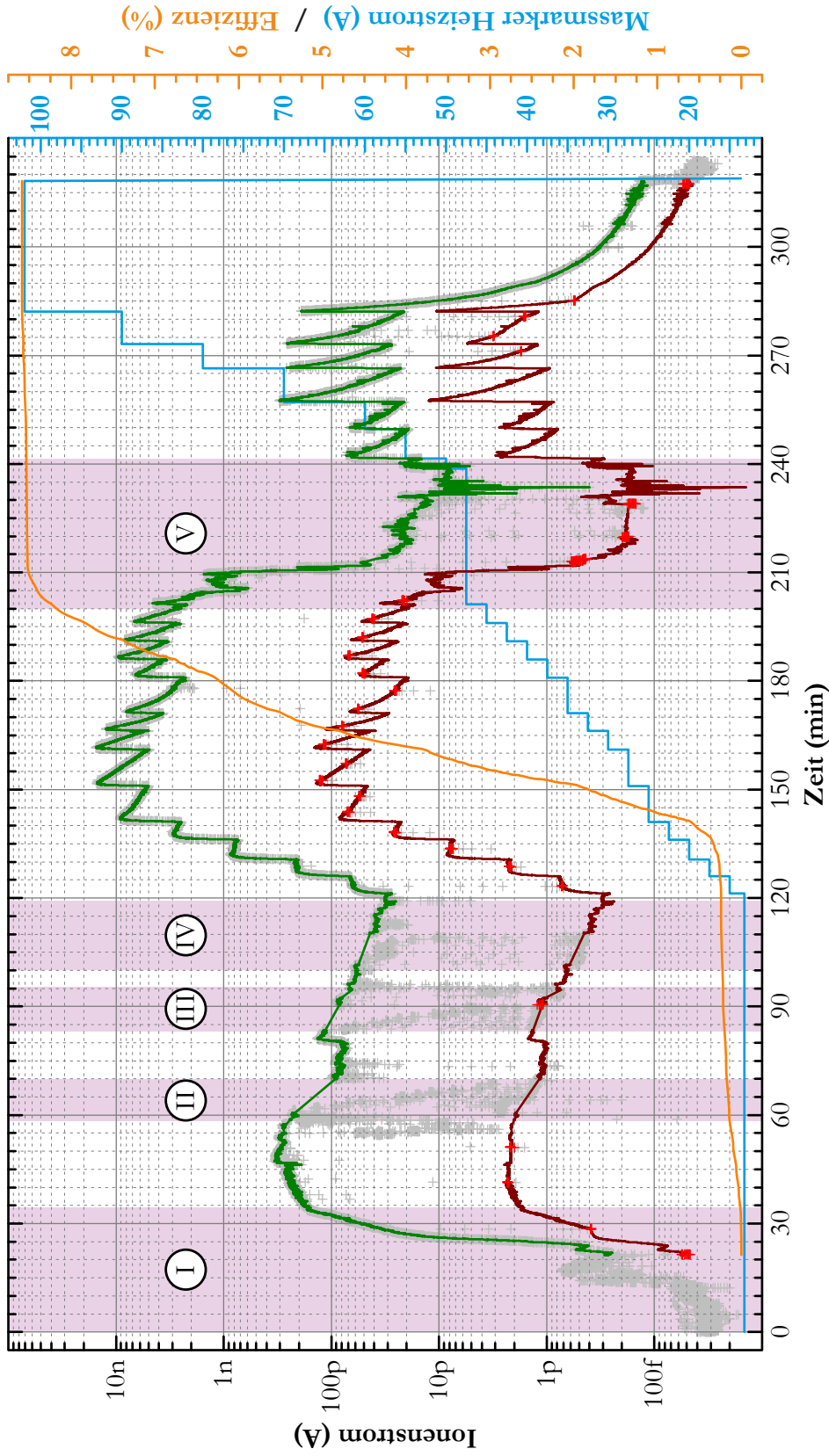


Abbildung 6.8.: Effizienzmessung RILIS 1 von Ytterbium am Isotop ^{174}Yb . Die Rohdaten sind durch graue Kreuze und die Messpunkte zur Untergrundmessung durch rote Kreuze dargestellt. Die rote Kurve beschreibt das berechnete Untergrundsignal, die grüne Kurve das Signal der Effizienzmessung. Die orangefarbene Kurve beschreibt den Verlauf der Effizienzbestimmung, die blaue Kurve den Heizstrom des Mass-Markers. Die violetten Bereiche kennzeichnen besondere Ereignisse, die im Text erläutert werden.

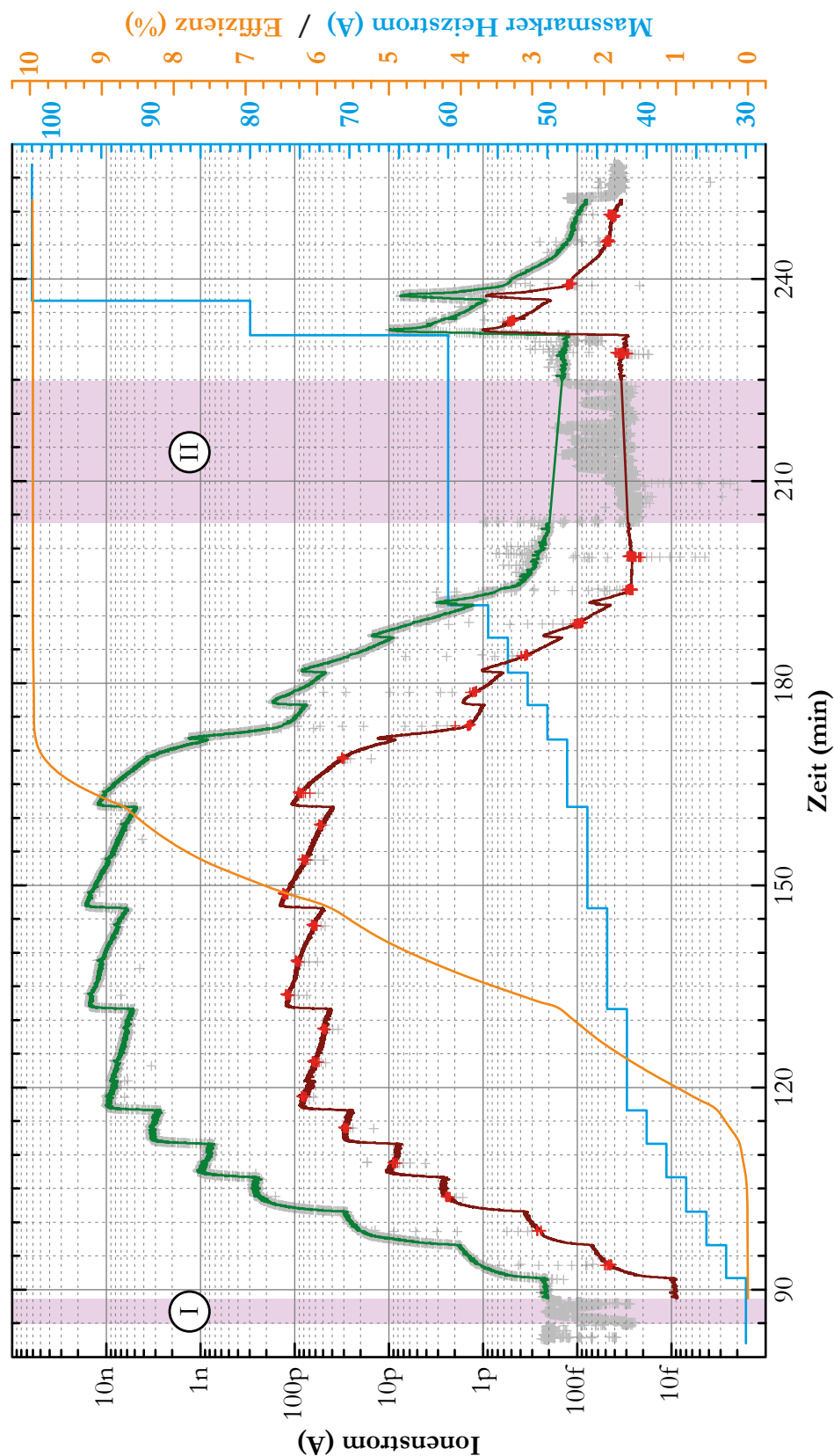


Abbildung 6.9.: Effizienzmessung RLLIS 2 von Ytterbium am Isotop $^{174}_{70}\text{Yb}$. Die Rohdaten sind durch graue Kreuze und die Messpunkte zur Untergrundmessung durch rote Kreuze dargestellt. Die rote Kurve beschreibt das berechnete Untergrundsignal, die grüne Kurve das Signal der Effizienzmessung. Die orangefarbene Kurve beschreibt den Verlauf der Effizienzbestimmung, die blaue Kurve den Heizstrom des Mass-Markers. Die violetten Bereiche kennzeichnen besondere Ereignisse, die im Text erläutert werden.

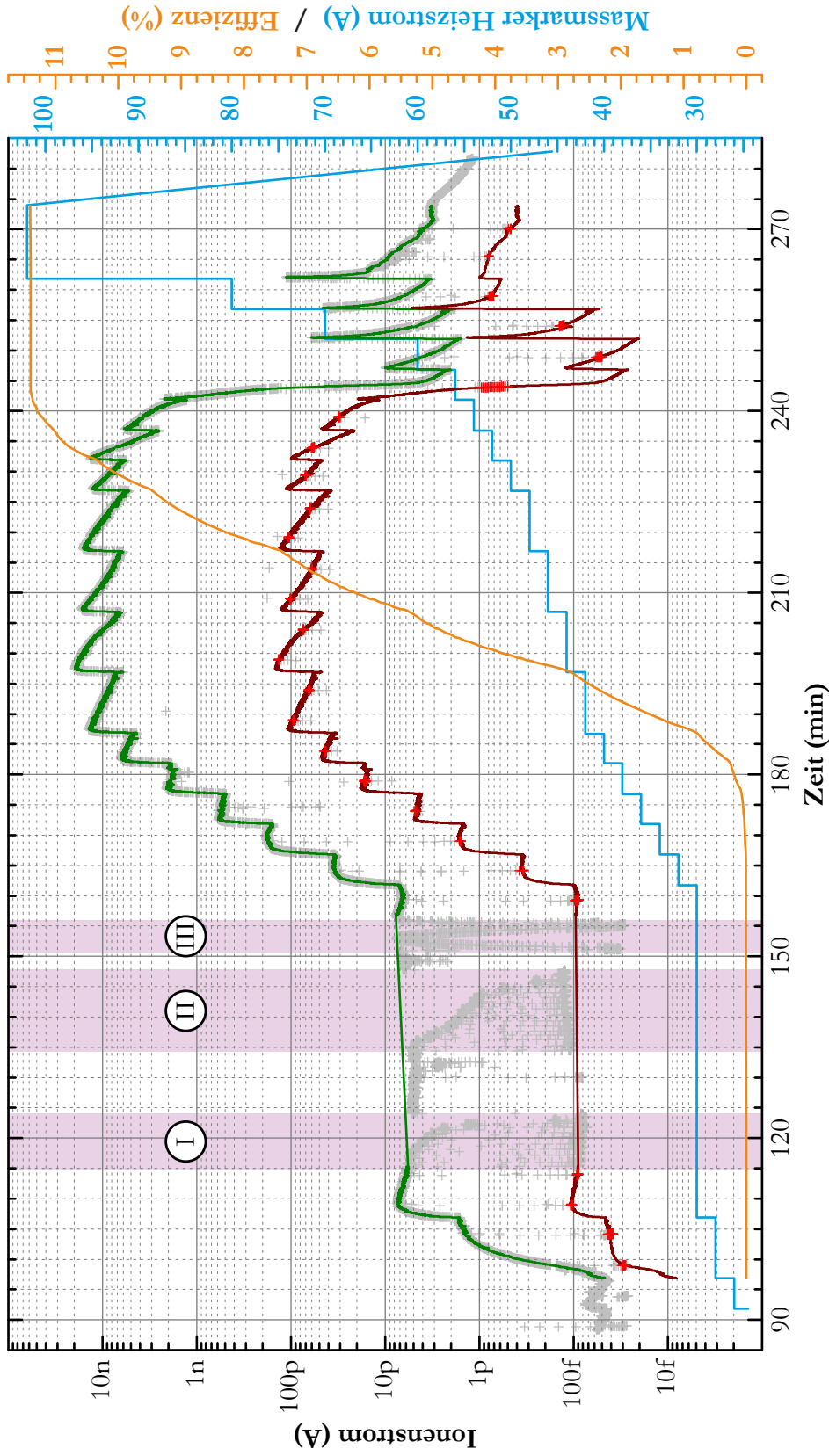


Abbildung 6.10.: Effizienzmessung RILIS 3 von Ytterbium am Isotop ^{174}Yb . Die Rohdaten sind durch graue Kreuze und die Messpunkte zur Untergrundmessung durch rote Kreuze dargestellt. Die rote Kurve beschreibt das berechnete Untergrundsignal, die grüne Kurve das Signal der Effizienzmessung. Die orangefarbene Kurve beschreibt den Verlauf der Effizienzbestimmung, die blaue Kurve den Heizstrom des Mass-Markers. Die violetten Bereiche kennzeichnen besondere Ereignisse, die im Text erläutert werden.

6.2.2. LIST im IG-Mode

Die Effizienzmessungen der LIST wurden dreimal im IG-Mode durchgeführt. Sie sind in den Abbildungen 6.11 bis 6.13 dargestellt. Alle LIST Effizienzen sind anhand des Isotops $^{176}_{70}\text{Yb}$ ermittelt worden. Zusätzlich wurde häufig während des Blockierens der Laserstrahlen in den LIST-Mode gewechselt, um zu überprüfen, wie stabil der LLF während der gesamten Messung bleibt. Die Messpunkte im LIST-Mode sind mit türkisfarbenen bzw. die Untergrundmessung mit magentafarbenen Kreuzen gekennzeichnet. Wegen der logarithmischen Skalierung sind nicht alle magentafarbenen Datenpunkte der LIST-Mode-Untergrundmessung dargestellt.

Während der ersten Effizienzmessung IG 1, Abbildung 6.11, wurde ein Transmissionslimit der Quadrupolstruktur festgestellt. Für die nachfolgenden zwei Effizienzmessungen IG 2 und 3 wurde darauf geachtet, dass das Ionensignal nicht das Transmissionslimit von ≈ 200 pA überschreitet. Da der Ionenstrom bei den Effizienzmessungen RILIS 1, 2 und 3 ein bis zwei Größenordnungen höher war, wurde die Probengröße für zukünftige Effizienzmessungen mit der LIST um eine Größenordnung reduziert, um eine angemessene Messdauer zu erhalten.

Effizienzmessung IG 1

Abbildung 6.11 stellt die erste Effizienzmessung (in Promille) der LIST im IG-Mode dar. Folgende Operationen und Ereignisse wurden während der Effizienzmessung verzeichnet:

- I) Räumliche Optimierung der Laserparameter und Verbesserung des Ionensignals um fast eine Größenordnung.
- II) In diesem Bereich ist das Transmissionslimit erreicht. Es konnte trotz Erhöhung des Heizstromes für den Mass-Marker keine Steigerung des Ionensignals über 200 pA erreicht werden. Obwohl das Ionensignal der resonanten Ionisation nicht weiter anstieg, stieg das Untergrundsignal bei blockierten Laserstrahlen weiter mit den Heizschritten des Mass-Markers an.

Effizienzmessung IG 2

Abbildung 6.12 stellt die zweite Effizienzmessung der LIST im IG-Mode dar. Das Maximale Ionensignal betrug bei dieser Messung 300 pA. Bei dieser Effizienzmessung gab es keine besonderen Ereignisse.

Effizienzmessung IG 3

Abbildung 6.13 stellt die dritte Effizienzmessung der LIST im IG-Mode dar und folgendes Vorkommnis ist während der Effizienzmessung aufgetreten:

- I) Durch einen Defekt der Verdreifachungseinheit stand keine ausreichende Leistung für den ersten Ionisationsschritt zur Verfügung. Da eine Neujustage der Verdreifachungseinheit notwendig war, wurde die Messung durch Abkühlen des Mass-Markers und Atomisators unterbrochen und am folgenden Tag fortgesetzt.

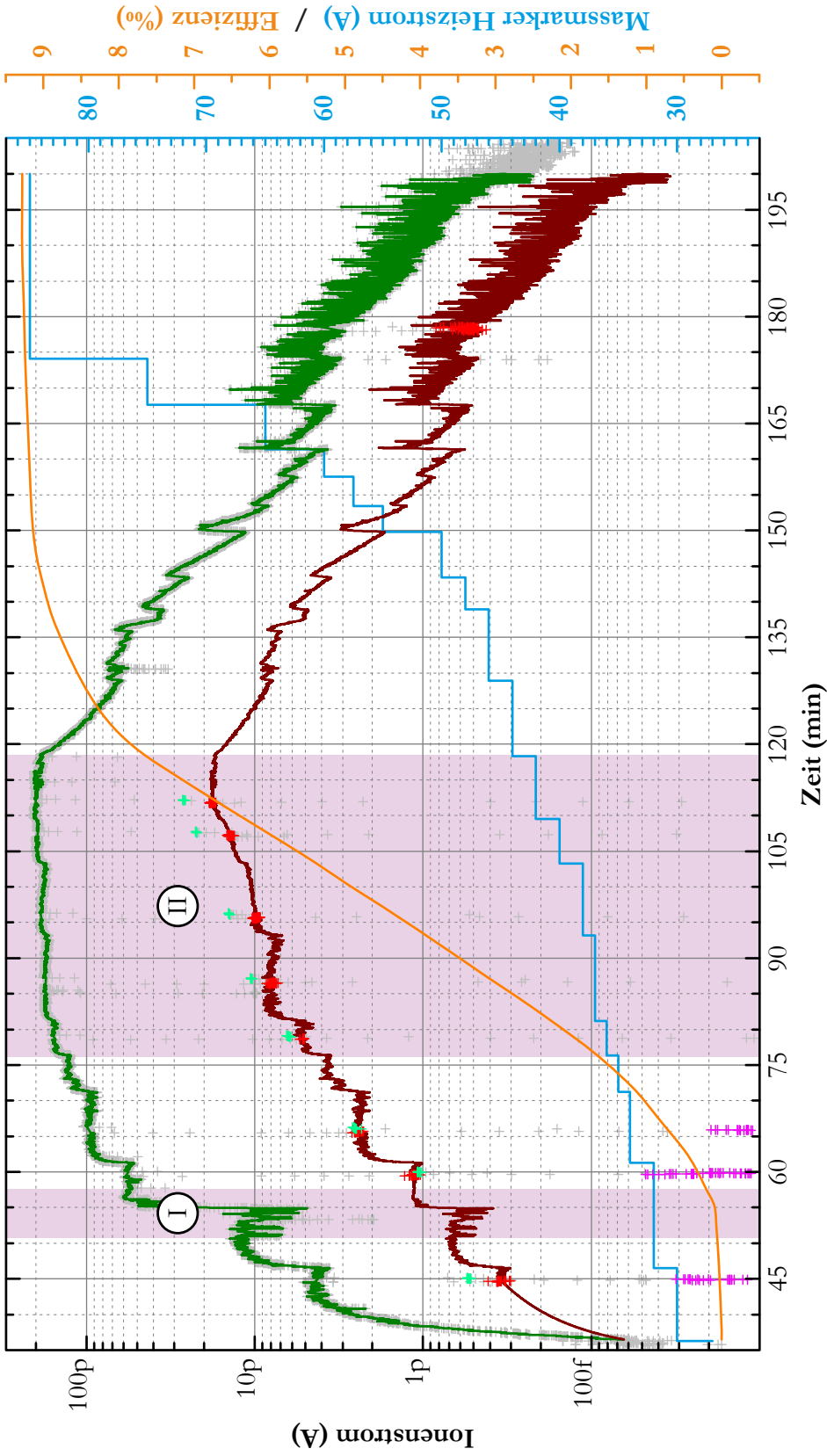


Abbildung 6.11.: Effizienzmessung IG 1 von Ytterbium am Isotop $^{174}_{70}\text{Yb}$. Die Rohdaten sind durch graue Kreuze und die Messpunkte zur Untergrundmessung durch rote Kreuze dargestellt. Die rote Kurve beschreibt das berechnete Untergrundsignal, die grüne Kurve das Signal der Effizienzmessung. Die orangefarbene Kurve beschreibt den Verlauf der Effizienzbestimmung, die blaue Kurve den Heizstrom des Mass-Markers. Türkisfarbene und magentafarbene Kreuze beschreiben Datenpunkte im LIST-Mode. Die violetten Bereiche kennzeichnen besondere Ereignisse, die im Text erläutert werden.

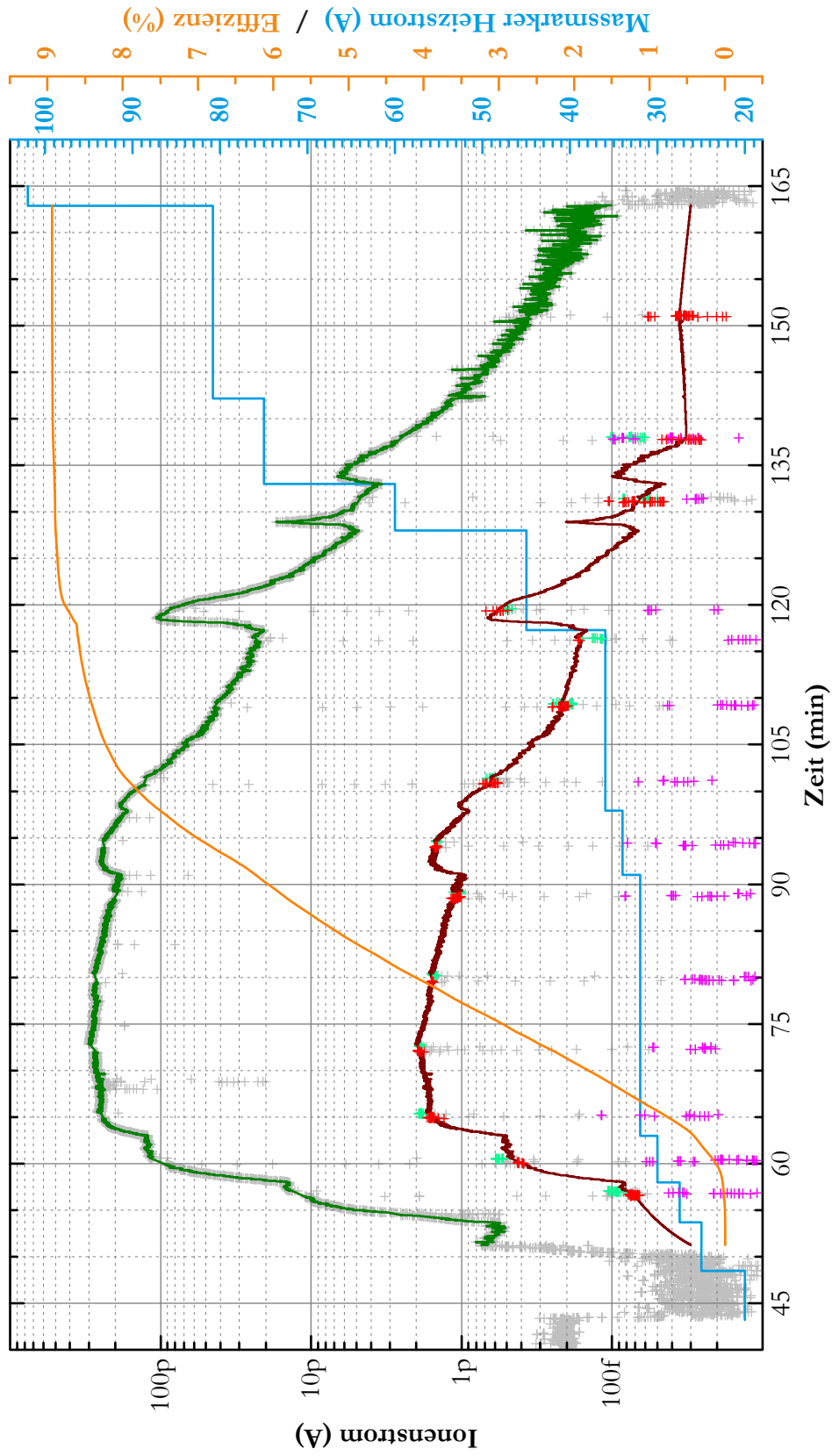


Abbildung 6.12.: Effizienzmessung IG 2 von Ytterbium am Isotop $^{174}_{70}\text{Yb}$. Die Rohdaten sind durch graue Kreuze und die Messpunkte zur Untergrundmessung durch rote Kreuze dargestellt. Die rote Kurve beschreibt das berechnete Untergrundsignal, die grüne Kurve das Signal der Effizienzmessung. Die orangefarbene Kurve beschreibt den Verlauf der Effizienzbestimmung, die blaue Kurve den Heizstrom des Mass-Markers. Türkisfarbene und magentafarbene Kreuze beschreiben Datenpunkte im LIST-Mode.

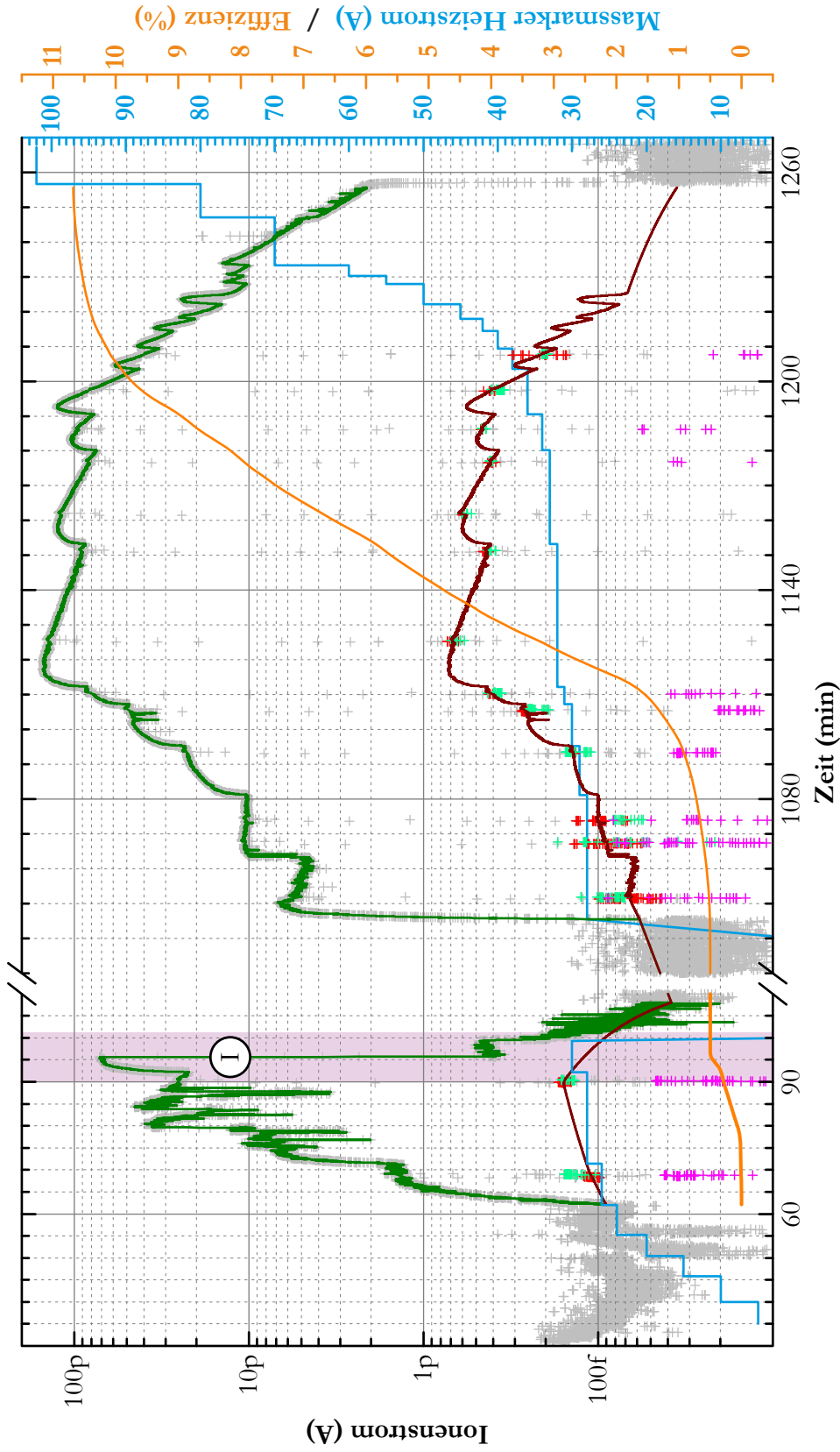


Abbildung 6.13.: Effizienzmessung IG 3 von Ytterbium am Isotop $^{174}_{70}\text{Yb}$. Die Rohdaten sind durch graue Kreuze und die Messpunkte zur Untergrundmessung durch rote Kreuze dargestellt. Die rote Kurve beschreibt das berechnete Untergrundsignal, die grüne Kurve das Signal der Effizienzmessung. Die orangefarbene Kurve beschreibt den Verlauf der Effizienzbestimmung, die blaue Kurve den Heizstrom des Mass-Markers. Türkisfarbene und magentafarbene Kreuze beschreiben Datenpunkte im LIST-Mode. Die violetten Bereiche kennzeichnen besondere Ereignisse, die im Text erläutert werden.

Zusammenfassung der Effizienzmessungen der LIST im IG-Mode

Die Ergebnisse der einzelnen Effizienzmessungen IG 1, 2 und 3 der LIST im IG-Mode sind in Tabelle 6.8 aufgeführt. Die Probengrößen für die Messungen IG 2 und 3 wurden aufgrund des Transmissionslimits der LIST um eine Größenordnung kleiner als bei der Messung IG 1 gewählt. Da bei Messung IG 1 das Transmissionslimit überschritten wurde, erhält man dort eine stark reduzierte Effizienz. Für die Bestimmung der Effizienz im IG-Mode wurde die Messung IG 1 verworfen.

Nr.	Probengröße (Atome)	ohne Berück- sichtigung des Untergrunds	mit Berück- sichtigung des Untergrunds	Mittelwert
IG 1	$(3,494 \pm 0,087) \cdot 10^{15}$	1,0 %	0,9 %	
IG 2	$(3,494 \pm 0,087) \cdot 10^{14}$	9,0 %	8,9 %	9,8 % \pm 1,2 %
IG 3	$(3,494 \pm 0,087) \cdot 10^{14}$	10,8 %	10,7 %	

Tabelle 6.8.: Zusammenfassung der LIST Effizienzmessungen im IG-Mode.

Vergleicht man das gemittelte Ergebnis der Effizienzmessungen der RILIS in Tabelle 6.7 ($\overline{\mathcal{E}}_{\text{RILIS}} = 10,0\% \pm 1,5\%$) mit derjenigen gemittelten Effizienz der LIST im IG-Mode in Tabelle 6.8 ($\overline{\mathcal{E}}_{\text{IG}} = 9,8\% \pm 1,2\%$), so lässt sich erkennen, dass es keine nennenswerten Verluste bei der Ionisationseffizienz zwischen beiden Ionenquellen gibt, solange das Ionensignal nicht das Transmissionslimit der LIST erreicht.

Der mit dem Faraday-Becher gemessene maximale kontinuierliche Ionenstrom liegt bei etwa 200 pA bis 300 pA. [TUS00] gibt ein oberes Limit für die maximale Gesamtladung pro Längeneinheit Q_{max} aller geladenen Teilchen, die gleichzeitig in einem Multipol die Stabilitätsbedingungen erfüllen, an, wobei ϵ_0 die Permittivität des Vakuums, N die Anzahl der Stabpaare und V_{rf} die Amplitude der RF-Spannung sind.

$$Q_{\text{max}} = \frac{1}{2} \pi \epsilon_0 N V_{\text{rf}} \quad (6.1)$$

Für die LIST gilt $N = 2$. Die Verwendung einer typischen RF-Amplitude von $V_{\text{rf}} = 150$ V ergibt eine Gesamtladung pro Längeneinheit von 42 pC/cm . Bei einer Länge der verwendeten LIST von 10 cm erhält man eine maximale Gesamtladung innerhalb der LIST von 420 pC. Unter der Annahme einer Startenergie der Ionen von 2 eV (Kapitel 7.2.1) passieren diese die LIST innerhalb von 70 μs . Daraus folgt ein maximaler transmittierbarer Ionenstrom von $I_{\text{max},2\text{eV}} = 6 \mu\text{A}$. Geht man konservativ abgeschätzt nur von einer thermischen Startenergie (bei $T = 2000$ K) aus, benötigen die Ionen ca. 220 μs , um die LIST zu passieren. Für die maximale Obergrenze sinkt der transmittierbare Ionenstrom auf $I_{\text{max,therm}} = 1,9 \mu\text{A}$. Es muss noch beachtet werden, dass der gemessene Ionenstrom von 200 pA bis 300 pA nur Ionen einer definierten Masse enthält. Alle Ionen, die von dieser Masse abweichen, werden durch den Separationsmagneten herausgefiltert. Da die LIST

im IG-Mode betrieben wurde, müssen auch alle Ionen anderer Massen durch die LIST transmittiert werden, auch wenn diese nicht mit dem Faraday-Becher nachgewiesen werden. Das natürliche Isotopengemisch des Yb enthält 31,83 % $^{174}_{70}\text{Yb}$. Einen besonders starken Beitrag zu den Kontaminationen liefern vor allem Alkalimetalle (Li, Na, K, Rb, Cs) sowie die Erdalkalis (Ca, Sr, Ba), da diese schon bei niedrigeren Temperaturen verdampfen und durch Oberflächenionisation ionisiert werden. Zusätzlich wurde Cäsium über eine Probe in den Mass-Marker gebracht, um die Ionenoptik im Groben schon für den Massebereich $m > 100$ u vorab ohne Laser justieren zu können. Weitere Kontamination liefern Materialien, die zur Probenzubereitung verwendet werden oder aus denen die Quelle gefertigt ist, wie z.B. Titan, Titanoxid, und Tantaloxid. Ein typisches Massenspektrum einer Blindprobe, also ohne Zugabe einer expliziten Probe, ist in Abbildung 6.14 dargestellt.

In Kapitel 7.1.1 wird gezeigt, dass der größte Teil der Ionen, bedingt durch den Laserpuls, mit einer Verteilung von 20 μs zwischen zwei Laserpulsen mit einem zeitlichen Abstand von 140 μs die LIST passieren. Dieses macht einen 7-fachen Strom im Peak aus. Eine weitere Abschätzung gibt:

$$I_{\text{kont., } 174\text{Yb}} = 300 \text{ pA} \quad \text{kontinuierlich für } ^{174}_{70}\text{Yb} \quad (6.2)$$

$$I_{\text{kont., Yb}} = \frac{I_{\text{kont., } 174\text{Yb}}}{31,83\%} \approx 1 \text{ nA} \quad \text{kontinuierlich für alle Yb-Isotope} \quad (6.3)$$

$$I_{\text{Peak, Yb}} = 7 \cdot I_{\text{kont., Yb}} \approx 7 \text{ nA} \quad \text{im Peak für alle Yb-Isotope} \quad (6.4)$$

Ein Ionenstrom $I_{\text{max, } 2\text{eV}}$ von 6 μA kann daher in diesem Fall ohne Überlastung der Kapazität der LIST nach dieser Abschätzung ca. 3 Größenordnungen, ein thermischer Ionenstrom $I_{\text{max, therm}}$ von 1,9 μA ca. das 250-fache an Kontaminationen enthalten. Die niedrige Effizienz der Messung IG 1 gegenüber der Messungen IG 2 und IG 3 in Tabelle 6.8 kann auf Verluste innerhalb der Quadrupolstruktur aufgrund zu hoher Kontamination und daher auf Überschreitung des maximalen Ionenstroms hinweisen.

Da während der Effizienzmessungen zwischendurch auch in den LIST-Mode gewechselt wurde, konnten auch Werte für den LLF gemessen werden. Die Werte für den LLF liegen bei der ersten Effizienzmessung IG 1 zwischen 8 und 54. Aufgrund des erreichten Transmissionslimits und der unterschiedlichen Entwicklung des resonanten Ionensignals und des Untergrundes, kann hier keine quantitative Aussage über den LLF gemacht werden. Für die anderen beiden Effizienzmessungen IG 2 und 3 wurde mehrfach während der Messungen weitgehend konstante Werte für den LLF aufgenommen. Tabelle 6.9 gibt einen Überblick über die gemessenen LLF, wobei nur diejenigen in die Auswertung einfließen, bei denen das Ionensignal räumlich und zeitlich optimiert wurde und das Ionensignal im LIST-Mode deutlich über dem Untergrundrauschen des Faraday Bechers lag. Der Tabelle 6.9 entnimmt man die Mittelwerte des LLF, die während der Messungen IG 2 und 3 aufgenommen wurden. Für die Messung IG 1 konnte keine sinnvolle quantitative Aussage gemacht werden. Der LLF bei den Effizienzmessungen IG 2 und IG 3 ist mit Werten zwischen 163 und 222 deutlich größer als schon bei ISOLDE mit

6. Messungen der Effizienz

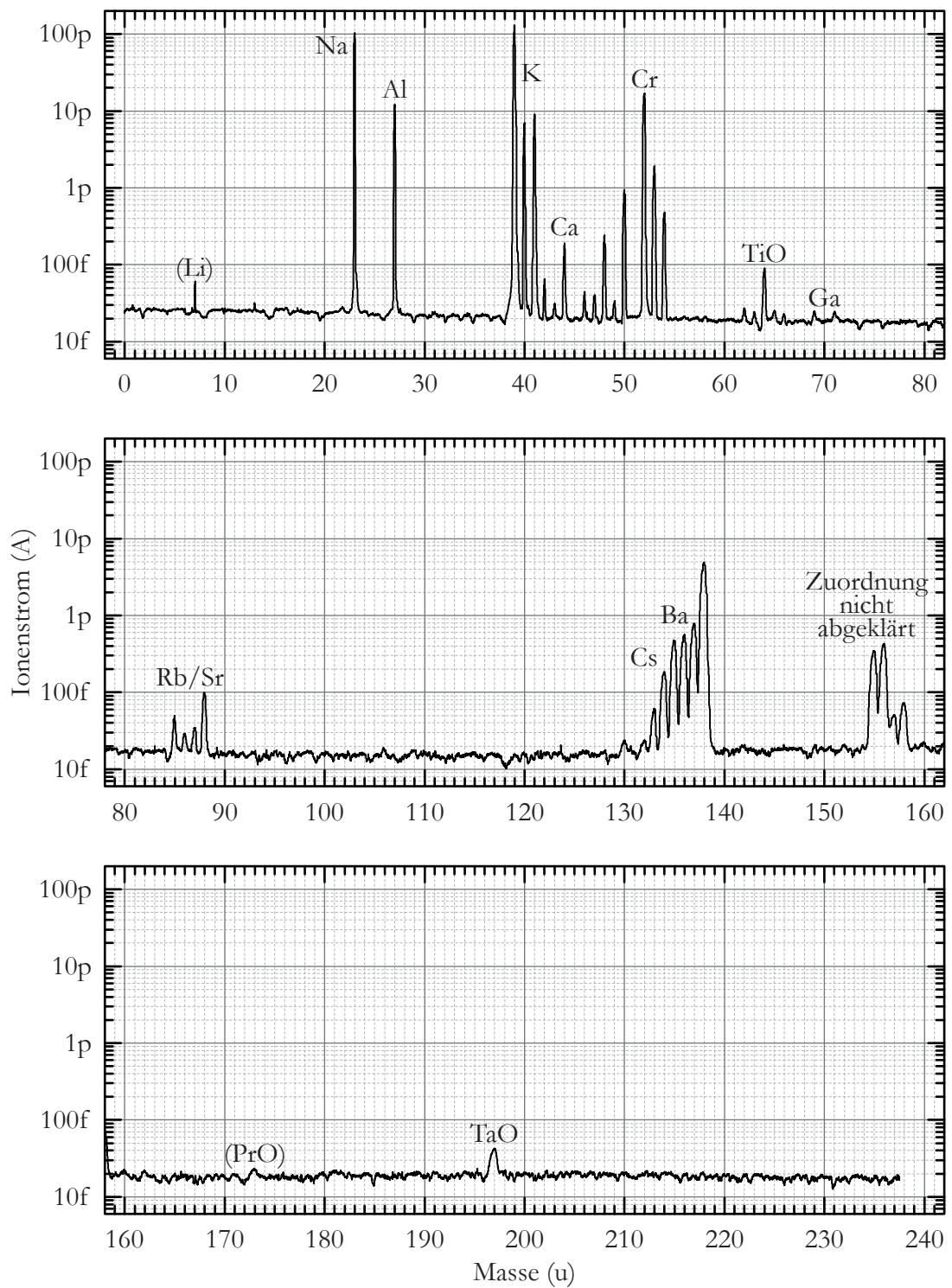


Abbildung 6.14.: Massenspektrum einer Blindprobe von Masse 0 u bis 240 u.

Nr.	min. LLF	max. LLF
IG 1	8	53
IG 2	163	202
IG 3	171	222

Tabelle 6.9.: Zusammenfassung der LLF während der Effizienzmessungen im IG-Mode.

ca. 20 (Kapitel 5.3) erreicht wurde. Die Ursache für den größeren LLF könnte dadurch begründet werden, dass während der Bestimmung der LLF-Werte während der Effizienzmessungen keine Zeit für die entsprechend notwendige Justierung der Laserparameter zur Verfügung stand. Außerdem wurde der Abstand des Atomisators zur LIST um einige Zehntel Millimeter größer gewählt als bei den On-line-Messungen, da die thermisch bedingte Ausdehnung ein Kontakt zwischen dem Hitzeschild und dem Atomisator bzw. dem Repeller verursachte und ein äußerst instabiles Ionensignal folgte.

6.2.3. LIST im LIST-Mode

Die Effizienzmessungen der LIST wurden im LIST-Mode viermal (LIST 1, 2, 3 und 4) durchgeführt. Sie sind in den Abbildungen 6.15 bis 6.18 dargestellt. Ebenso wie im IG-Mode wurde auch im LIST-Mode mehrere Male kurzzeitig zur Bestimmung des LLF in den IG-Mode gewechselt. Die entsprechenden Messdaten im IG-Mode sind mit türkisfarbenen und magentafarbenen Kreuzen gekennzeichnet.

Effizienzmessung LIST 1 und 2

Abbildung 6.15 und 6.16 stellen die erste und zweite Effizienzmessung der LIST im LIST-Mode dar. Die Messergebnisse liegen im Promille- bzw. Zehntel Promillebereich. Bei beiden Effizienzmessungen gab es keine besonderen Ereignisse.

Effizienzmessung LIST 3

Abbildung 6.17 stellt die dritte Effizienzmessung (in Zehntel Promille) der LIST im LIST-Mode dar und folgende Ereignisse sind während der Effizienzmessung aufgetreten:

- I) Es wurde in den IG-Mode umgeschaltet, um ein größeres Ionensignal zur Optimierung zur Verfügung zu haben. Durch eine räumliche Optimierung der Laserparameter konnte das Signal erheblich verbessert werden.
- II) Nachdem das Ionensignal die Größe des Untergrundsignals des Detektors erreicht hatte, wurde im LIST-Mode der Mass-Marker weiter ausgeheizt.

Effizienzmessung LIST 4

Abbildung 6.18 stellt die vierte Effizienzmessung (in Promille) der LIST im LIST-Mode dar. Auch bei dieser Effizienzmessung gab es keine besonderen Ereignisse.

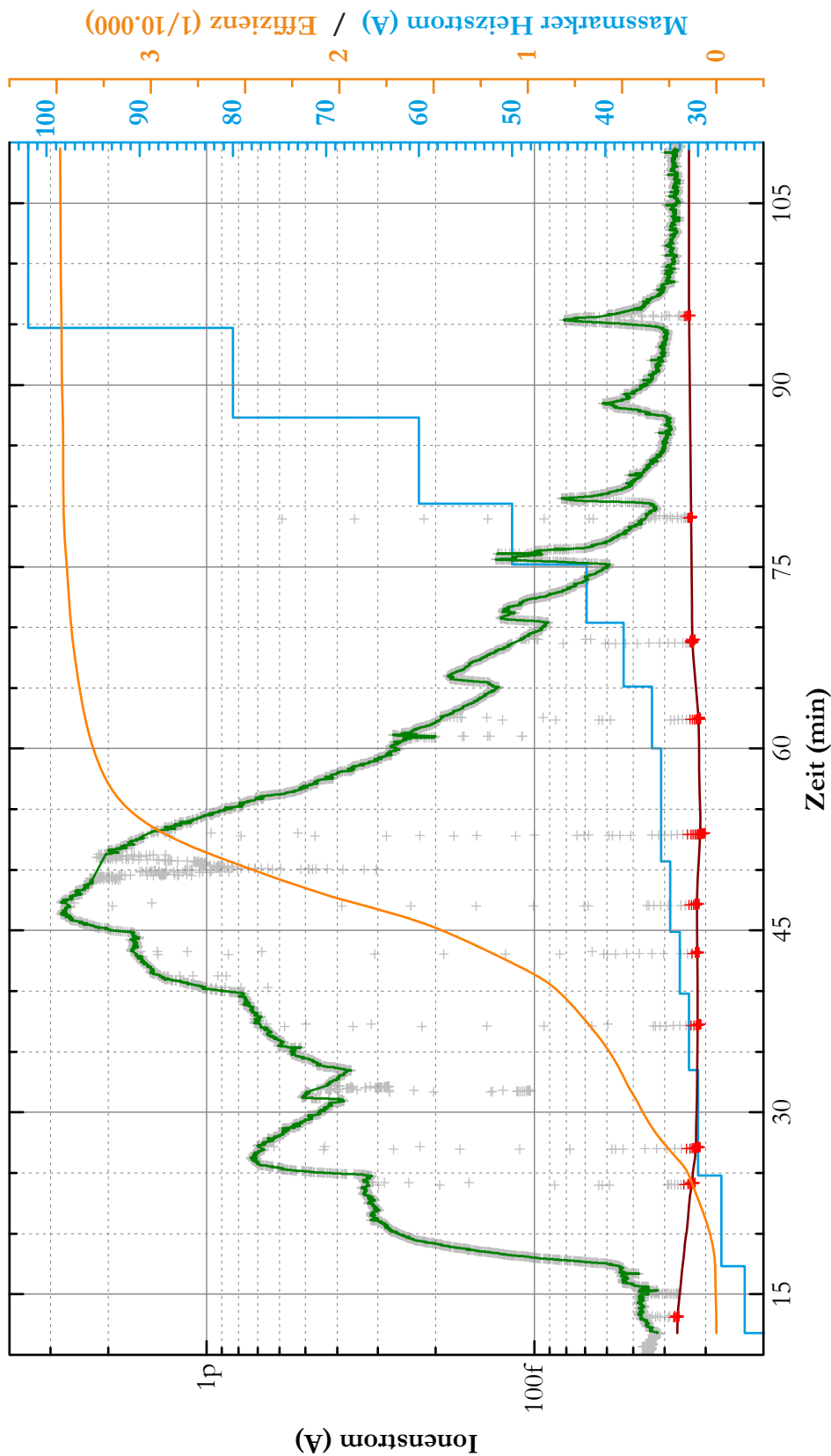


Abbildung 6.15.: Effizienzmessung LIST 1 von Ytterbium am Isotop $^{174}_{70}\text{Yb}$. Die Rohdaten sind durch graue Kreuze und die Messpunkte zur Untergrundmessung durch rote Kreuze dargestellt. Die rote Kurve beschreibt das berechnete Untergrundsignal, die grüne Kurve das Signal der Effizienzmessung. Die orangefarbene Kurve beschreibt den Verlauf der Effizienzbestimmung, die blaue Kurve den Heizstrom des Mass-Markers.

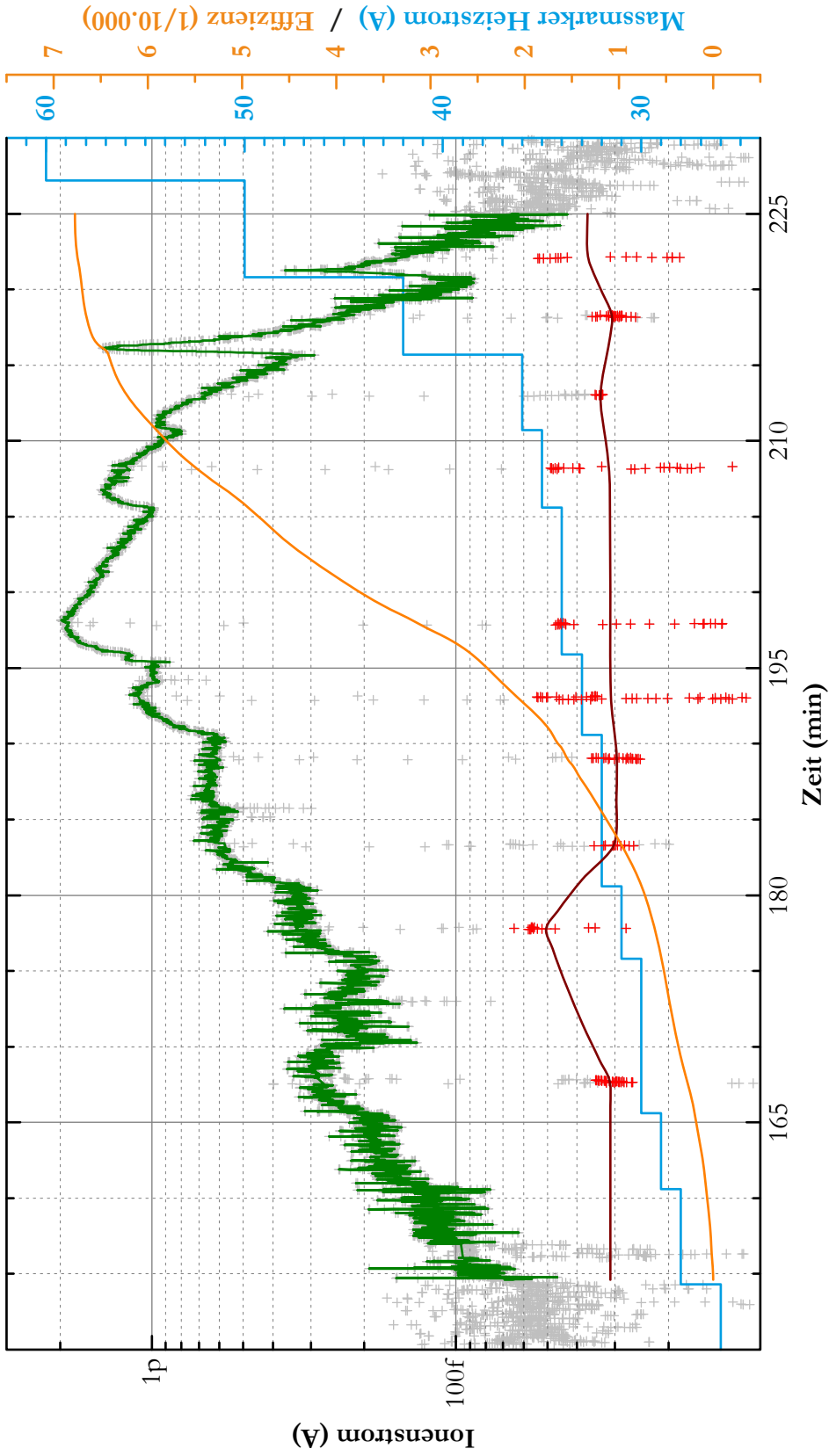


Abbildung 6.16.: Effizienzmessung LIST 2 von Ytterbium am Isotop ^{174}Yb . Die Rohdaten sind durch graue Kreuze und die Messpunkte zur Untergrundmessung durch rote Kreuze dargestellt. Die rote Kurve beschreibt das berechnete Untergrundsignal, die grüne Kurve das Signal der Effizienzmessung. Die orangefarbene Kurve beschreibt den Verlauf der Effizienzbestimmung, die blaue Kurve den Heizstrom des Mass-Markers.

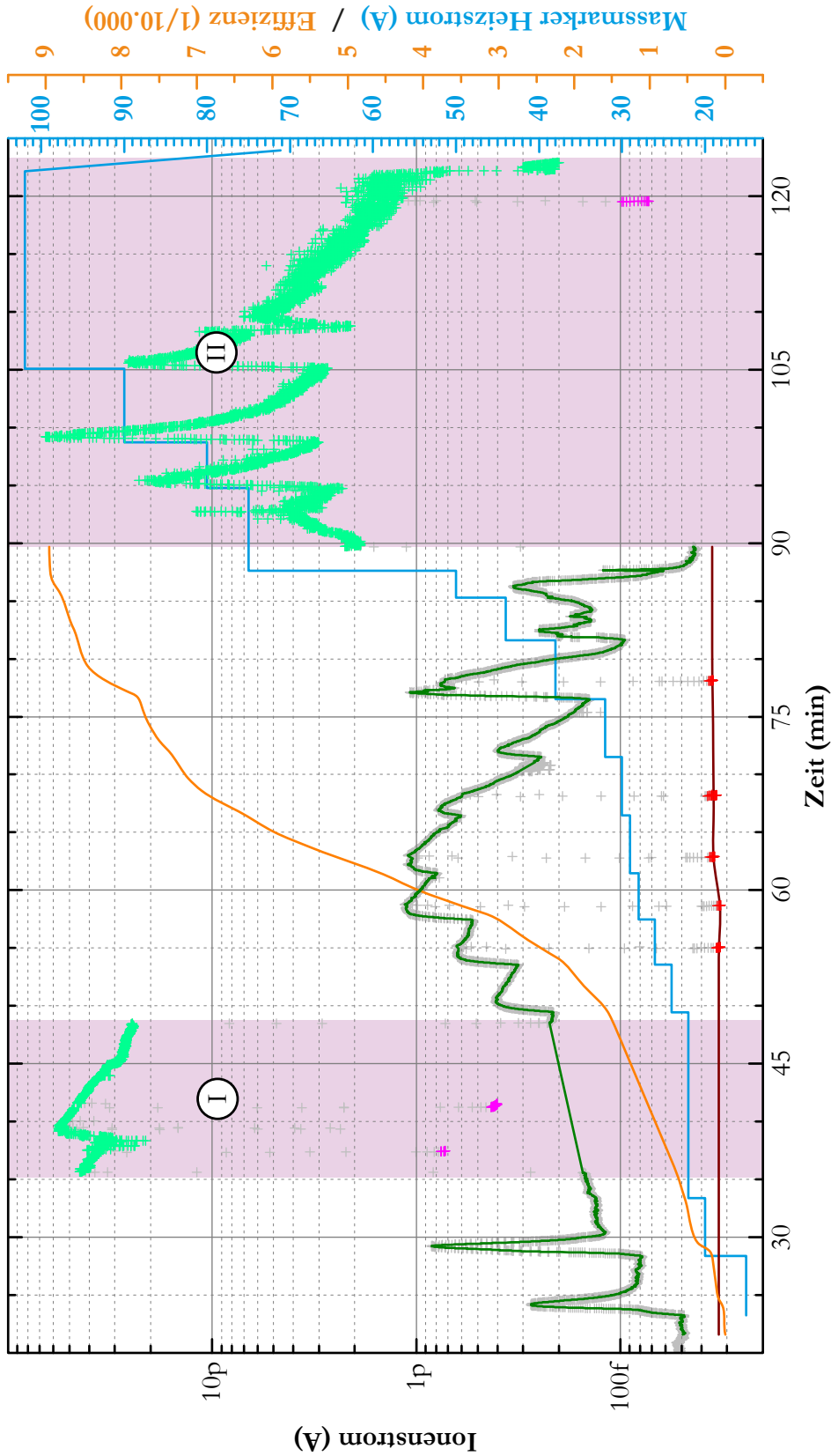


Abbildung 6.17.: Effizienzmessung LIST 3 von Ytterbium am Isotop $^{174}_{70}\text{Yb}$. Die Rohdaten sind durch graue Kreuze und die Messpunkte zur Untergrundmessung durch rote Kreuze dargestellt. Die rote Kurve beschreibt das berechnete Untergrundsignal, die grüne Kurve das Signal der Effizienzmessung. Die orangefarbene Kurve beschreibt den Verlauf der Effizienzbestimmung, die blaue Kurve den Heizstrom des Mass-Markers. Türkisfarbene und magentafarbene Kreuze beschreiben Datenpunkte im IG-Mode. Die violetten Bereiche kennzeichnen besondere Ereignisse, die im Text erläutert werden.

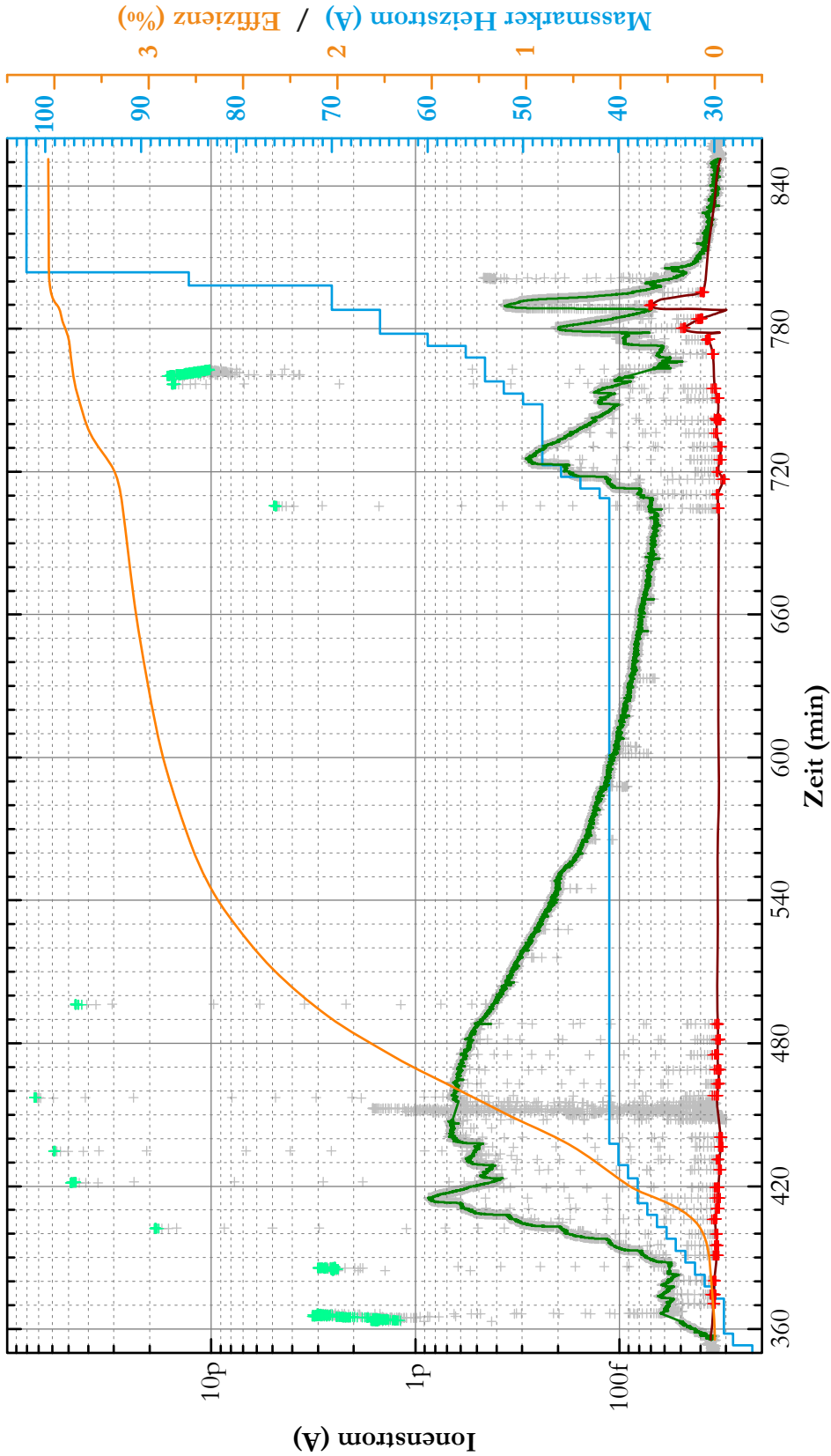


Abbildung 6.18.: Effizienzmessung LIST 4 von Ytterbium am Isotop ^{174}Yb . Die Rohdaten sind durch graue Kreuze und die Messpunkte zur Untergrundmessung durch rote Kreuze dargestellt. Die rote Kurve beschreibt das berechnete Untergrundsignal, die grüne Kurve das Signal der Effizienzmessung. Die orangefarbene Kurve beschreibt den Verlauf der Effizienzbestimmung, die blaue Kurve den Heizstrom des Mass-Markers. Türkisfarbene Kreuze beschreiben Datenpunkte im IG-Mode.

Zusammenfassung der Effizienzmessungen der LIST im LIST-Mode

Die Ergebnisse der einzelnen Effizienzmessungen der LIST im LIST-Mode sind in Tabelle 6.10 aufgeführt.

Nr.	Probengröße (Atome)	ohne Berücksichtigung des Untergrunds	mit Berücksichtigung des Untergrunds	Mittelwert
LIST 1	$(3,494 \pm 0,087) \cdot 10^{13}$	0,38 %	0,35 %	0,21 % \pm 0,16 %
LIST 2	$(1,975 \pm 0,049) \cdot 10^{14}$	0,07 %	0,07 %	
LIST 3	$(6,898 \pm 0,172) \cdot 10^{13}$	0,10 %	0,09 %	
LIST 4	$(6,898 \pm 0,172) \cdot 10^{13}$	0,42 %	0,35 %	

Tabelle 6.10.: Zusammenfassung der LIST Effizienzmessungen im LIST-Mode.

Die Effizienzmessungen im LIST-Mode unterliegen sehr starken Schwankungen. Die Effizienzen der zwei Messungen LIST 1 und 4 liefern beide eine Effizienz von $\mathcal{E}_{\text{LIST } 1, 4} = 0,35 \%$. Die Messungen entstanden durch unterschiedlich große Proben, deren Messzeit entsprechend unterschiedlich lang verlief. Die Messungen LIST 2 und 3 wurden im Verhältnis zu LIST 1 mit größeren Proben durchgeführt, aber die Messzeit dieser drei Messungen ist nahezu gleich. Folglich fallen die Effizienzen der Messungen LIST 2 und 3 mit $\mathcal{E}_{\text{LIST } 2} = 0,07 \%$ und $\mathcal{E}_{\text{LIST } 3} = 0,09 \%$ deutlich schlechter als bei LIST 1 aus.

Vergleicht man nun die Effizienzmessungen der LIST im IG-Mode in Tabelle 6.8 mit denjenigen im LIST-Mode 6.10, so liegen die Effizienzen nur um einen Faktor 50 auseinander. Das ist ein deutlich kleinerer Faktor als der LLF vermuten lässt. Da die Laserstrahlen aber für jeden Betriebsmodus (IG und LIST) räumlich und zeitlich optimiert werden müssten, kann es zu einer Diskrepanz zwischen dem LLF und den tatsächlich gemessenen Effizienzen kommen. Messungen im IG-Mode wurden nur in den letzten beiden Messungen durchgeführt, wobei in der Messung LIST 3 nur am Anfang zur Signaloptimierung und am Ende zum Ausheizen der Messung im IG-Mode gemessen wurde. Die maximalen LLF der Messungen LIST 3 und LIST 4 aus Tabelle 6.11 bewegen sich in der gleichen Größenordnung wie in den Messungen IG 2 und IG 3 aus Tabelle 6.9, während die minimalen LLF um einen Faktor 2 bis 3 niedriger sind. Allerdings wur-

Nr.	min. LLF	max. LLF
LIST 3	50	285
LIST 4	97	222

Tabelle 6.11.: Zusammenfassung der LLF während der Effizienzmessungen im LIST-Mode.

den die minimalen LLF in den Messungen LIST 3 und LIST 4 bei einem ungünstigen Signal-zu-Untergrund-Verhältnis bestimmt.

6.3. Zusammenfassung der Effizienzmessungen

Aus den durchgeführten Effizienzmessungen lassen sich eine Reihe wesentlicher Aspekte und Bedingungen für den vorgesehenen Routineeinsatz der LIST bei ISOLDE ableiten. Beonders positiv hervorzuheben ist, dass durch die Quadrupolstruktur der LIST im IG-Mode eine vergleichbar gute Effizienz wie diejenige der RILIS erzielt wird und mit Effizienzen um 10 % keine Effizienzverluste im Rahmen der Messgenauigkeit ermittelt wurden. Die Effizienz im LIST-Mode ist um einen Faktor 50 geringer als im IG-Mode. Das ist besser, als die ermittelten LLF zunächst vermuten ließen. Bei der Bestimmung des LLF während eines Betriebsmodus (LIST- bzw. IG-Mode) für den jeweils anderen Betriebsmodus wurden die Laserparameter nicht optimiert, um die Effizienzmessung für den vorliegenden Betriebsmodus nicht zu stark zu beeinflussen. Die LIST bietet den Vorteil, dass ohne Quellenumbau sowohl wahlweise im IG-Mode ein mit der RILIS gleichwertig effizienter Ionenstrahl, als auch im LIST-Mode ein hochreiner Ionenstrahl mit stark reduzierter isobarer Kontamination, notwendigerweise mit verminderter Effizienz, produziert werden kann.

Die Ionisationseffizienz mit der RILIS (und der LIST im IG-Mode) für Ytterbium von $\mathcal{E} = 10\%$ kann eventuell durch Optimierung der Parameter des Massenseparators weiter verbessert werden. Dieses lassen die vorhergehenden Effizienzmessungen RILIS A bis F, die im Anhang A zusammengefasst sind, erwarten, in denen eine um den Faktor 2 höhere Effizienz ermittelt wurde. Da an dieser Stelle vorrangig ein Vergleich der Ionenquellen erreicht werden sollte, lag die Priorität weniger in der höchstmöglichen Effizienz für Ytterbium, als darin, die Parameter des Massenseparators möglichst identisch zu belassen, um einen korrekten Vergleich zuzulassen.

Die Durchführung der Effizienzmessungen ist auch im Hinblick auf die Gewährleistung reproduzierbarer Einsatzbedingungen sehr lehrreich. Obwohl versucht wurde, die Bedingungen für jede Effizienzmessung einer Ionenquelle bzw. eines expliziten Betriebsmodus möglichst identisch zu halten, waren Schwankungen der Ergebnisse nicht zu verhindern, wobei die größten relativen Schwankungen bei den Messungen im LIST-Mode festgestellt wurden. Ein großer Einfluss hinsichtlich der Reproduzierbarkeit der Effizienzmessung ist die Probenimplantation in die Ionenquelle. Um die Probe im Mass-Marker zu positionieren, muss der Mass-Marker aus der Quelle ausgebaut werden. Dabei ist eine Manipulation des Atomisators sowohl beim Aus- als auch Einbau unumgänglich. Da es während der Effizienzmessung zu thermisch bedingter Ausdehnung der Materialien der Ionenquelle kommt, sind sowohl Atomisator als auch Mass-Marker nur über eine Steckverbindung befestigt. Durch die Arbeiten bei der Probenimplantation können somit unerwartete Änderungen auftreten. Diese sind in vielen Messungen zu erkennen, speziell wenn gegen Ende der Messung ein besonders hoher Heizstrom durch den Mass-Marker fließt. Dann

6. Messungen der Effizienz

sind im Signal höhere Schwankungen zwischen einzelnen Datenpunkten zu erkennen oder in Extremfällen, wie zum Zeitpunkt $t = 1260$ min in Abbildung 6.13, verschwindet das Ionensignal schlagartig. Weiterhin können bereits bei der Probenzubereitung Pipettierungsfehler auftreten (Kapitel 4.1). Allerdings sind die Pipettierungsfehler deutlich kleiner als die Schwankungen der Effizienzen im LIST-Mode.

7. Messungen zur Selektivität

Die Selektivität beschreibt im allgemeinen die Fähigkeit eines Verfahrens, hinsichtlich einer gewünschten Eigenschaft eine Auswahl zu treffen. Man kann die Definition der Selektivität allerdings unterschiedlich auslegen. Unter einer selektiven Ionenquelle versteht man eine Ionenquelle, die nur gewünschte Atome oder Isotope gezielt ionisiert. Die RILIS wird im Hinblick auf den dominanten Ionisationsprozess der resonanten Laserionisation ebenfalls als selektive Ionenquelle bezeichnet. Da dieser Prozess in der heißen Umgebung des Atomisators stattfindet, können aber auch Ionen durch nicht-selektive Oberflächenionisation entstehen. Ist zudem das Verhältnis der gewünschten Teilchen zu Kontaminationen klein, so kann die absolute Selektivität sehr niedrig ausfallen. Durch den elektrostatischen Repeller der LIST kann dieser Beitrag unterdrückt werden. Folglich sollte die Selektivität wesentlich größer ausfallen, wenn die nicht-selektiven Ionisationsprozesse innerhalb der LIST vermieden werden.

Die Bestimmung der Selektivität ist unter Off-line-Bedingungen nur eingeschränkt möglich. Stabile Isotope können nicht eindeutig identifiziert werden und eine Auftrennung von isobaren Kontaminationen ist daher nicht möglich. Durch Flugzeitmessungen der Ionen soll hier versucht werden, sowohl mit der RILIS als auch mit der LIST Informationen über die Selektivität oder die Startbedingungen der jeweiligen Ionenquelle zu ermitteln. Die vergleichsweise umfangreichen Messungen zur Zeitstruktur der RILIS werden in Kapitel 7.1 diskutiert. Eine Möglichkeit, die Selektivität weiter zu steigern, wird in Kapitel 7.2 vorgestellt. Dazu wurden umfangreiche Simulationsstudien durchgeführt und deren Ergebnisse diskutiert. Eine Beschreibung der notwendigen Modifikationen, sowie erste Messungen werden präsentiert.

7.1. Zeitstrukturanalyse

Die Zeitstruktur der RILIS ist im Wesentlichen verstanden [LCK⁺03]. Jedoch wurden in der Zeitstruktur einige Substrukturen beobachtet, die nicht vollständig erklärt werden können. Diese scheinen im Hinblick auf den Betrieb der LIST wichtige Informationen zu enthalten. Mit Hilfe einer modellbasierten Rechnung soll eine Erklärung für diese Substrukturen entwickelt und mit der durchgeführten Messung verglichen werden.

7.1.1. Durchführung der Zeitstrukturmessung

Die Durchführung der vorbereitenden Zeitstrukturmessung an der RILIS erfolgt wie in Kapitel 4.4 beschrieben. Die Zeitstruktur kann nicht mit dem Faraday Becher ermittelt werden, da dieser das Ionensignal über einen Zeitraum von ca. 300 ms integriert, um

7. Messungen zur Selektivität

einen Ionenstrom zu ermitteln. Der SEV dagegen kann ausschließlich nur sehr kleine Ionenströme nachweisen, die mit dem Faraday Becher nicht ermittelt werden können. Zu große Ionenströme bzw. zu viele detektierte Ereignisse führen zu Beschädigung oder Zerstörung des SEV. Um das Ionensignal adäquat zu reduzieren, wurden mehrere unterschiedliche Maßnahmen ergriffen.

Der Heizstrom des Atomisators wurde bei diesen Messungen von üblicherweise 300 A auf 270 A reduziert. Der Mass-Marker wurde nicht aktiv, sondern nur durch die Wärmestrahlung des Atomisators passiv geheizt. Um eine zusätzliche Reduzierung der nachzuweisenden Ionen zu erhalten, wurde die Öffnung der Schlitzblenden vor dem SEV fast vollständig geschlossen. Durch diese drei Maßnahmen wurde die Anzahl der Ionen, die die Ionenquelle verlassen und den Detektor erreichen, stark reduziert.

Die Zeitstruktur der RILIS wurde zunächst anhand am Element Ytterbium untersucht. Auch wenn Messungen mit Ytterbium bezüglich der Höhe des Ionensignals für den SEV nicht schädlich waren, wurden bei anderen Massen deutlich höhere Zählraten erreicht. Aufgrund der geringen Ionenzahl wurden zur Erfassung der Zeitstruktur die Ereignisse über 90 Sekunden kumuliert. Nach dieser Zeit haben sich im Allgemeinen die laserkorrelierte Zeitstrukturen vom Untergrund statistisch signifikant abgehoben.

Eine typische Zeitstrukturmessung für das Isotop $^{174}_{70}\text{Yb}$ ist in Abbildung 7.1 dargestellt.

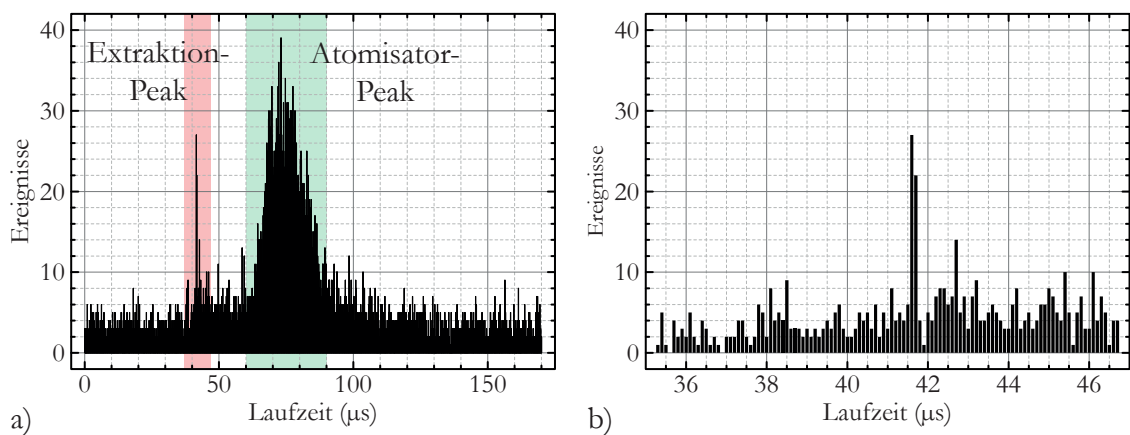


Abbildung 7.1.: Ermittelte Ereignisse der Ionen des Isotops $^{174}_{70}\text{Yb}$ in Abhängigkeit der Laufzeit nach dem Laserpuls, a) im ganzen Messbereich, b) im zeitlichen Ausschnitt zwischen 35 μs und 47 μs

In Abbildung 7.1a) ist die Zeitstruktur für die Dauer von 170 μs zwischen zwei Laserpulsen bei einer Repetitionsrate von 5 kHz dargestellt. Die Laufzeitmessung wurde etwas verkürzt als die Laserpulpause ausgelegt, damit sichergestellt ist, dass jeder Laserpuls auch eine Zeitmessung startet.

In der Zeitstruktur erkennt man einen von den Laserpulsen unabhängigen Untergrund von im Mittel 4 Ereignissen und diesem Untergrund überlagert die schon bekannte Doppelstruktur der Laserionen.

Der erste sehr scharfe Peak, der sog. Extraktionspeak, befindet sich zwischen 35 μs und

50 μs und ist in Abbildung 7.1a) durch den rot gekennzeichneten Zeitbereich markiert. Der Extraktionspeak beinhaltet die Ionen, die nahe des Atomisatortendes ionisiert wurden, sich somit schon im elektrischen Extraktionsfeld des Extraktors befinden und direkt in Richtung Detektor beschleunigt werden. Betrachtet man den Extraktionspeak in Abbildung 7.1b) in zeitlich stark vergrößerter Auflösung, so erkennt man seine Breite von nur 200 ns. Damit liegt die Auflösung der gemessenen Laufzeit im Bereich der Zeitaufösung der Multichannel-Karte.

Der zweite Peak, der sog. Atomisatorpeak, liegt zwischen 60 μs und 95 μs und ist in der Abbildung 7.1a) durch den grün gekennzeichneten Zeitbereich markiert. Der Atomisatorpeak beinhaltet diejenigen Ionen, die innerhalb des Atomisators ionisiert werden, sich erst thermisch in Richtung des Atomisatortendes bewegen müssen und in Richtung des Detektors beschleunigt werden, sobald sie das Extraktionsfeld erreichen. Daher werden diese Ionen erst später nachgewiesen.

Abbildung 7.2 zeigt einen Vergleich der Zeitstruktur für die Masse $m = 180\text{ u}$, bei der im Massenspektrum kein Massenpeak zu verzeichnen ist, in schwarz dargestellt, mit der Zeitstruktur des $^{174}_{70}\text{Yb}$ aus Abbildung 7.1. Zu Vergleichszwecken ist die ermittelte Zeitstruktur für das $^{174}_{70}\text{Yb}$ in grau dargestellt. Dennoch ist weiterhin ein schmaler Extraktionspeak bei der Masse $m = 180\text{ u}$ vorhanden, der in der zeitlich vergrößerten Auflösung in Abbildung 7.2b) sogar um 0,6 μs geringfügig früher erscheint, als bei der Messung für $^{174}_{70}\text{Yb}$.

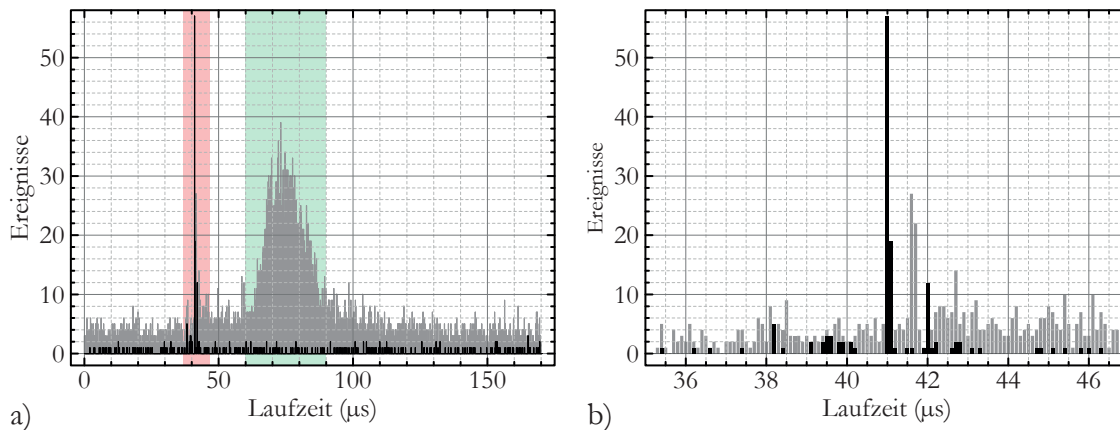


Abbildung 7.2.: In schwarz sind die ermittelten Ereignisse der Ionen mit der Masse $m = 180\text{ u}$ in Abhängigkeit der Laufzeit nach dem Laserpuls, a) im ganzen Messbereich, b) im zeitlichen Ausschnitt zwischen 35 μs und 47 μs , im Vergleich zur Masse des Isotops $^{174}_{70}\text{Yb}$ (grau).

Diese unerwartete Feststellung war Anlass für eine ausführliche Untersuchung der Zeitstruktur bei verschiedenen Massen. Dafür wurde für den Massebereich von 140 u bis 220 u in 0,5 u-Schritten die Zeitstruktur gemessen. In Abbildung 7.3 ist hierzu ein Ausschnitt der Laufzeit der Ionen für den Zeitbereich 35 μs bis 47 μs dargestellt, wobei die normierte

7. Messungen zur Selektivität

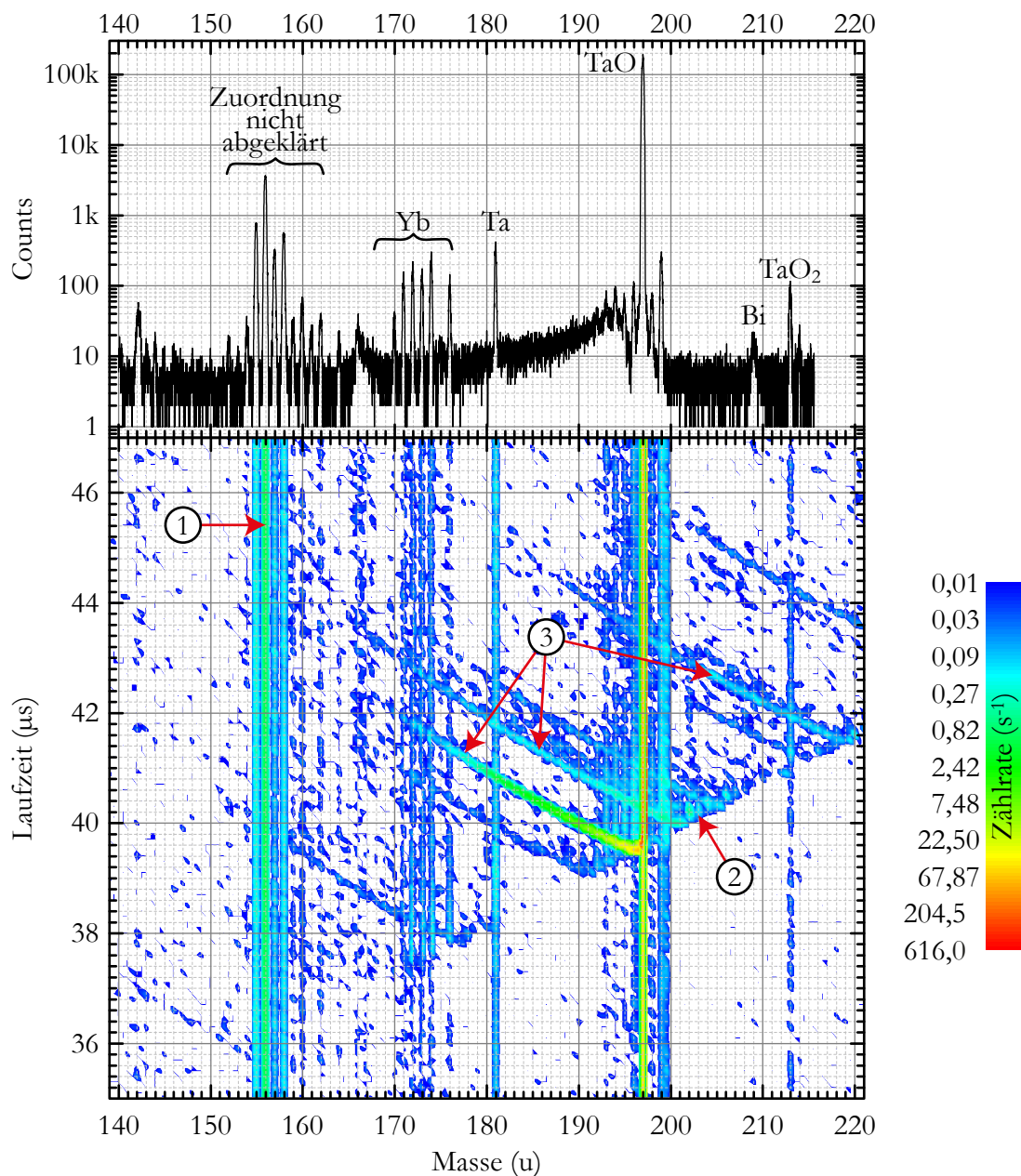


Abbildung 7.3.: Oben: Massenspektrum im Bereich der Massen $m = 140 \dots 205$ u, aufgenommen mit dem SEV in Verbindung mit der Zeitstrukturmessung.

Unten: Übersicht aller Zeitstrukturen als farbliche Darstellung der Ereignisse der Ionen in Abhängigkeit der Masse und der Laufzeit im Ausschnitt zwischen $35 \mu\text{s}$ und $47 \mu\text{s}$. Es bezeichnen 1) laserpulsunabhängig registrierte Ionen, 2) laufzeitabhängig registrierte Ionen unterschiedlicher Masse, 3) laufzeitabhängige registrierte Ionen konstanter Masse. Weitere Erläuterungen in folgenden Kapiteln.

Anzahl der aufgezeichneten Ionen für eine bestimmte Laufzeit- und Massenabhängigkeit farblich codiert dargestellt ist. Man erkennt drei unterschiedliche Strukturen.

1. Bei einigen Massen ist ein zeitlich kontinuierliches Signal vorhanden, das keine laserabhängige Zeitstruktur aufweist. Diese Atome oder Moleküle wurden durch zeitlich kontinuierliche Prozesse, wie Oberflächenionisation oder Elektronenstoßionisation, ionisiert, Beispiele sind etwa $m = 155 \dots 158, 181, 197, 199, 213$ u.
2. Eine spezielle *Grenzlinie* verläuft im Diagramm von ($m = 173$ u, $t = 37,2 \mu\text{s}$) schräg nach oben bis zu ($m = 220$ u, $t = 41,6 \mu\text{s}$).
3. Von dieser Grenzlinie aus gehen von allen stark vertretenen Massen leicht gekrümmte Datenkurven hin zu leichteren Massen und zu längeren Laufzeiten.

Die drei Strukturen sollen durch die nachfolgende Modellbetrachtung erklärt werden. Sie werden im Folgenden als Zeitstruktur 1, 2 bzw. 3 bezeichnet.

7.1.2. Modellbeschreibung zur Analyse der Zeitstruktur

Grundlage der Berechnung der Zeitstruktur ist die Laufzeit der Ionen in Abhängigkeit ihrer Masse und ihrer Energiezufuhr. Die zugeführte Energie erfolgt durch die zeitlich konstanten elektrischen Potentiale zwischen dem Atomisator (30 kV), der Extraktionselektrode (18,2 kV) und dem Erdpotential (0 V), die die Ionen beschleunigen. Im Bereich dieser Komponenten wurde der Potentialverlauf auf der Symmetrieachse aus geometrischen Abmessungen des Atomisators, der ionenoptischen Elemente und des Rezipienten und die Definition der zugehörigen Spannungen als Simulation¹ berechnet. Hierbei wurde auch das Einzellinsenpotential aufgenommen, da das Erdpotential erst nach Passieren dieser Komponente erreicht wird. Der Potentialverlauf ist in Abbildung 7.4 dargestellt. Für die nachfolgende Flugstrecke bis zum Detektor (longitudinale Position $s = 5,025$ m) wurde ein konstantes Potential von 0 V angenommen.

Im Einzelnen liegen der theoretischen Berechnung der Zeitstruktur folgende modellmäßigen Annahmen zugrunde:

- Die Komponenten des Strahlführungssystems sind exakt axial justiert.
- Die dazugehörigen elektrischen Felder sind rotationssymmetrisch.
- Die elektrostatischen Felder zwischen Atomisator, Extraktionslinse, Einzellinse und Erdpotential werden durch die Simulation exakt beschrieben.
- Innerhalb des Magneten wird das Feld B als konstant und außerhalb als Null angenommen.
- Es existieren keine elektrischen und magnetischen Streufelder.

¹Zur Simulation wurde das Programm *Comsol Multiphysics* verwendet

7. Messungen zur Selektivität

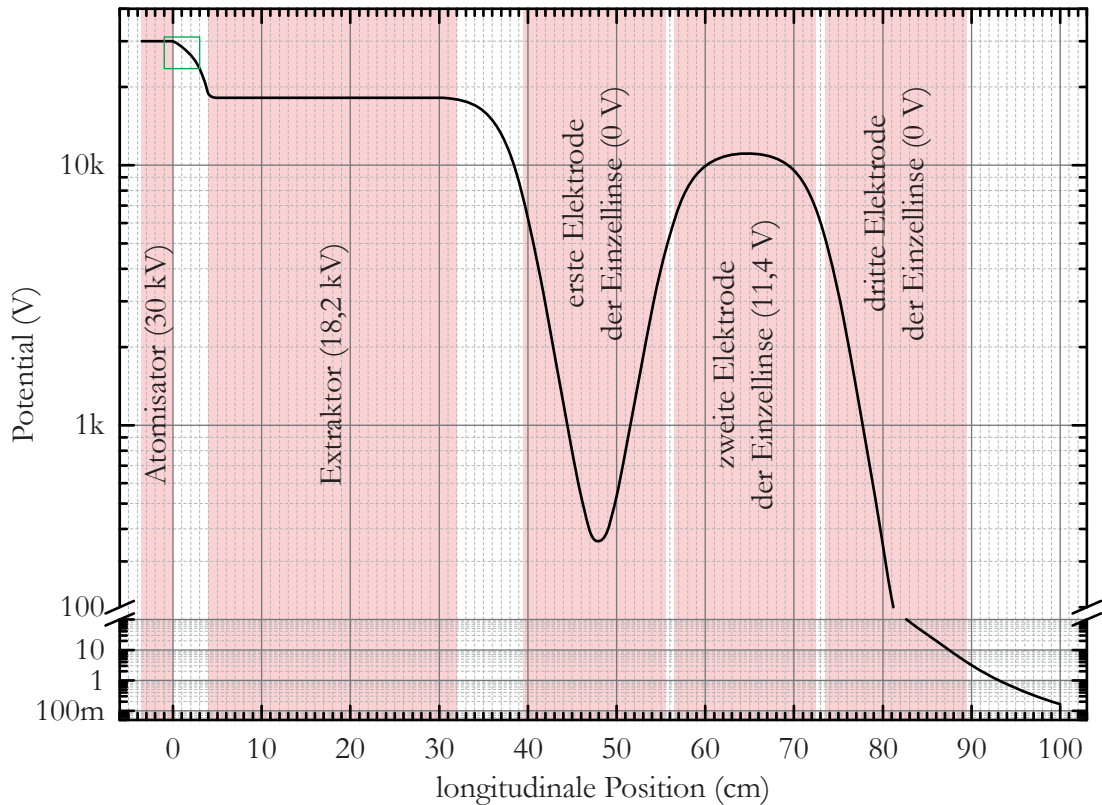


Abbildung 7.4.: Potentialverlauf auf der Symmetrieachse in Abhängigkeit zur Entfernung zum Atomisator. Die roten Flächen beschreiben die gekennzeichneten Elektroden und ihre Spannungen. Der links oben mit dem grünen Kasten gekennzeichnete Bereich ist in Abbildung 7.6 vergrößert dargestellt.

- Die Atome oder Ionen propagieren auf der Strahlachse mit $r = 0$.
- Die Anfangsgeschwindigkeiten der Atome und Ionen haben keine radiale Komponenten.
- Der Laserstrahl verläuft genau auf der Strahlachse im Bereich des Ionisationsgebietes.
- Es treten keine relativistischen Effekte auf.

Anhand des Potentialverlaufs wird die Laufzeit in Abhängigkeit von der Masse m , der Startposition s_0 und der Startgeschwindigkeit v_0 in Schritten von Δs mit Hilfe der Gleichungen (7.1) bis (7.3) aus der klassischen Mechanik berechnet. Die Berechnung betrifft dabei immer einfach geladene Teilchen.

$$\Delta t(s) = \frac{\sqrt{2 a(s) \Delta s + v^2(s)} - v(s)}{a(s)} \quad (7.1)$$

$$v(s) = \sqrt{\frac{2 e U(s)}{m}} + v_0 \quad (7.2)$$

$$a(s) = -\frac{e}{m} \frac{\Delta U(s)}{\Delta s} \quad (7.3)$$

$\Delta t(s)$ beschreibt die benötigte Zeit für jeweils einen inkrementellen Schritt Δs an der Position s . Zur Berechnung werden die lokale Geschwindigkeit $v(s)$ und die Beschleunigung $a(s)$ benötigt. In die lokale Geschwindigkeit fließt die Potentialdifferenz $U(s)$ zwischen s_0 und s und die Anfangsgeschwindigkeit v_0 ein. Für die lokale Beschleunigung wird die Potentialdifferenz $\Delta U(s)$ für den jeweiligen Schritt Δs an der Stelle s benötigt. Die Summe aller inkrementellen Zeiten Δt der Teilstrecken Δs ergibt die Gesamtlaufzeit t der Ionen.

7.1.3. Analyse der Zeitstruktur 1

Die laserpulsunabhängigen Ionen stammen aus dem Atomisator durch Oberflächenionisation und werden erwartungsgemäß zeitlich kontinuierlich registriert. Die Ionisation erfolgt innerhalb der vollen Länge des Atomisators. Sie werden durch das gesamte Potential beschleunigt.

7.1.4. Analyse der Zeitstruktur 2

Zur Analyse der Zeitstruktur 2 wurden anhand der modellmäßigen Annahmen die Laufzeiten für verschiedene Massen berechnet. Abbildung 7.5 zeigt diese Laufzeiten für drei unterschiedliche Startbedingungen: Startpositionen $s_0 = 0$ mm mit einer Startgeschwindigkeit Null, sowie $s_0 = 0$ mm bzw. $s_0 = -3$ mm mit einer thermischen Startgeschwindigkeit bei einer Temperatur von $T = 2000$ K, die nach Gleichung 7.4 berechnet wurde.

$$v_0 = \sqrt{\frac{3 k_b T}{m}} \quad (7.4)$$

Die rot unterlegte Fläche gibt den Massenbereich an, der experimentell untersucht wurde. Die lineare Approximation des Kurvenabschnitts in diesem Massenbereich stimmt mit der Steigung der Kurve der Grenzlinie der experimentellen Daten in Abbildung 7.3 überein. Führt man einen zeitlichen Offset von $8,1 \mu\text{s}$ ein, stimmt die berechnete Kurve mit den Daten im Rahmen des Modells sehr gut überein, Abbildung 7.7. Dieser zeitliche Offset kann auf die Verwendung eines Pulsgebers mit nicht spezifizierter Verzögerung zur Synchronisierung der Laserpulse mit dem Start der Zeitstrukturmessung zurückgeführt werden. Obwohl man der Abbildung 7.5 entnimmt, dass die Startposition der Ionen zwar eine geringfügig größere Steigung der Grenzlinie zur Folge hat, wird für die weitere Analyse eine Startposition $s_0 = 0$ mm gewählt und eine thermische Startgeschwindigkeit angenommen.

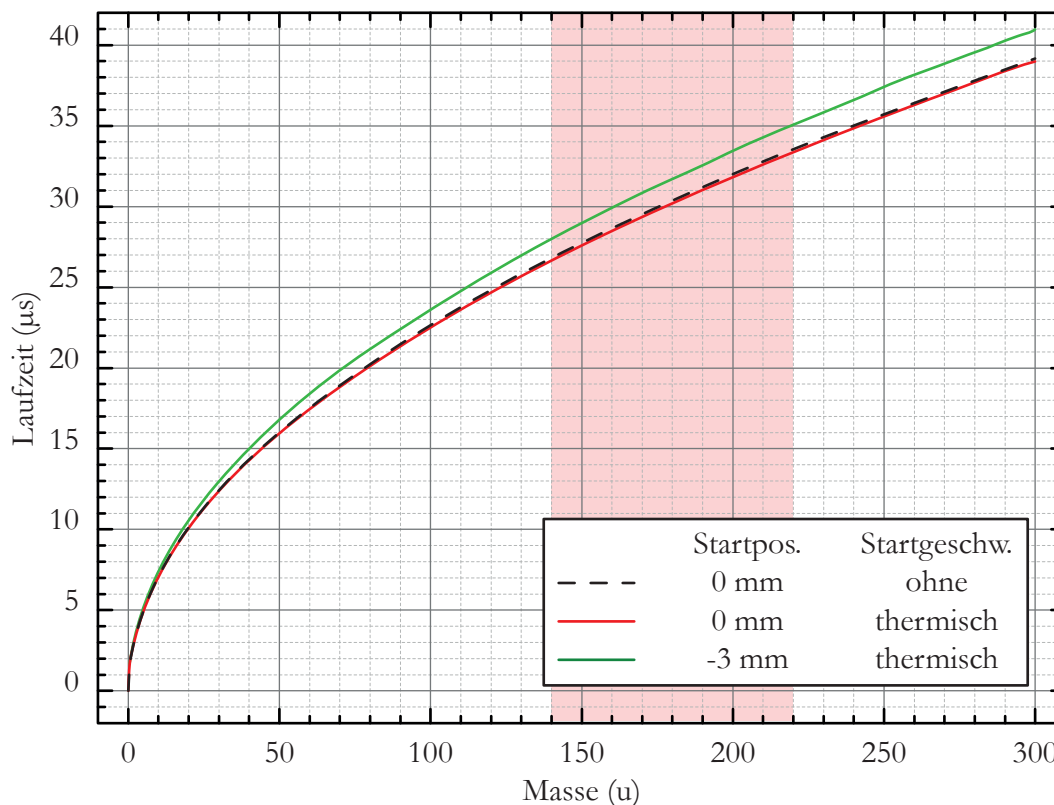


Abbildung 7.5.: Numerische Laufzeitberechnung der Ionen in Abhängigkeit der Masse anhand des berechneten Potentialverlaufs der Symmetrieachse. Der zu betrachtende Massenbereich, der experimentell untersucht wurde, befindet sich in der rot markierten Fläche.

7.1.5. Analyse der Zeitstruktur 3

In Abbildung 7.3 erkennt man, dass die Zeitstruktur 3 für alle stark vertretenen Massen mit Laufzeiten oberhalb der Grenzlinie auftritt. Daher ist anzunehmen, dass registrierte Ereignisse dieser schräg verlaufenden Kurven ebenfalls durch Teilchen der jeweiligen Massen verursacht werden. Eigentlich sollten diese Teilchen auf den “inkorrekten Massen” durch den Separationsmagneten herausgefiltert werden. Die filternden Eigenschaften des Magneten sind entsprechend der Lorentzkraft aber sowohl von der Masse als auch von der Geschwindigkeit der Teilchen bzw. von der zugeführten Energie abhängig. Teilchen mit gegebener Masse aber kleineren Energien, die also an verschiedenen Positionen im Extraktionsfeld zwischen Atomisator und Extraktorelektrode ionisiert wurden, werden demzufolge weniger abgelenkt und werden bei kleinerem Magnetfeld, d.h. bei kleineren Massen im Diagramm registriert. Aus dem Verlauf dieser Kurven im Masse-Laufzeit-Diagramm kann also auf die Energieverteilung und damit bei bekanntem Potentialverlauf des Beschleunigungsfeldes auf den Ionisationsort geschlossen werden. Die Ionen der Zeitstruktur 3 werden, beginnend mit der Zeitstruktur 2 auf der Seite kleinerer Massen, aufgrund der Energieabnahme mit zunehmender Laufzeit registriert. Die

quantitative Analyse der Zeitstruktur 3 anhand dieses Modells erfordert also die genaue Kenntnis des Startpotentials, somit auch des Potentialverlaufs zwischen Atomisator und Extraktor in Abhängigkeit der axialen Position. Dazu wird der berechnete Potentialverlauf aus Abbildung 7.4 verwendet. Das Potential im Bereich der Startpositionen ist in Abbildung 7.6 dargestellt. Wird ein Ion mit schwererer Masse $m_2 > m_1$ nachgewiesen, obwohl das Magnetfeld B für den Nachweis der leichteren Masse m_1 eingestellt ist, so kann daraus dessen Startpotential U_2 über das Massenverhältnis m_1/m_2 bestimmt werden.

$$U_2 = \frac{m_1}{m_2} U_{\max} \quad \text{mit} \quad U_{\max} = 30 \text{ kV} \quad (7.5)$$

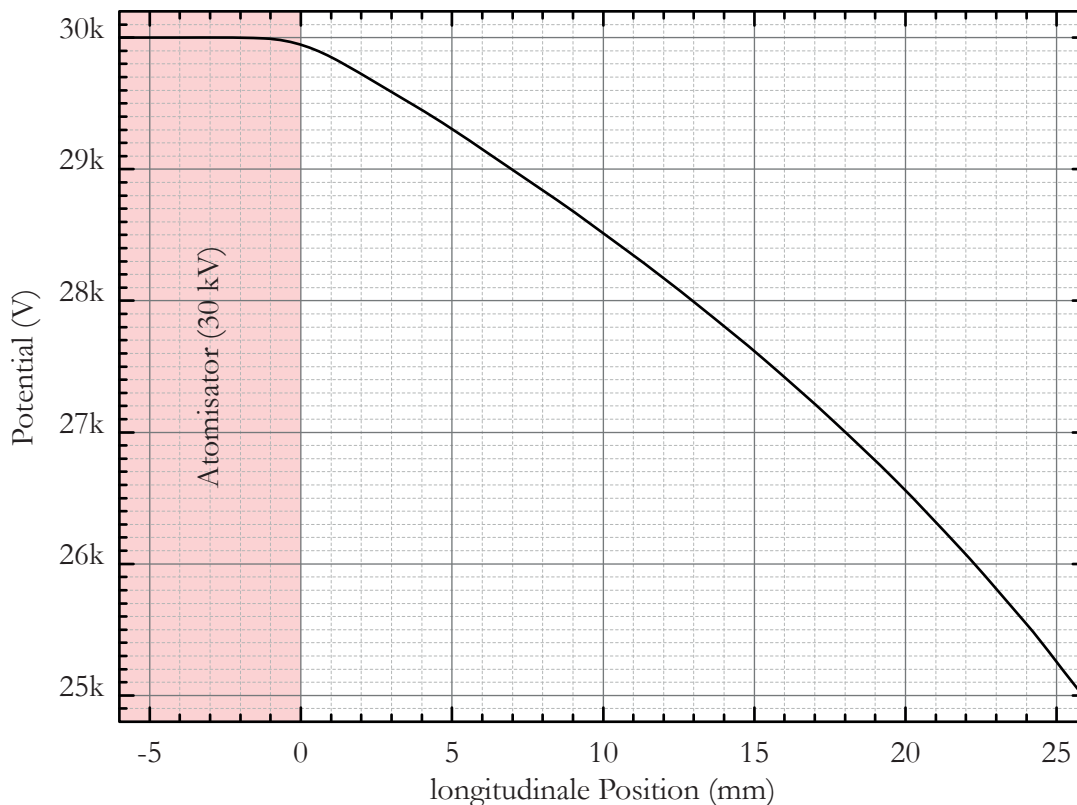


Abbildung 7.6.: Ausschnitt aus Abbildung 7.4 des Potentialverlaufs auf der Symmetrieachse in Abhängigkeit zur Entfernung zum Atomisator im Bereich der Startpositionen der Ionen zur Berechnung der Zeitstruktur 3. Die rote Fläche beschreibt den Bereich des Atomisators und dessen Spannung.

Berechnet man nun in Abhängigkeit der Masse m_1 und mit dem vorgegebenen zeitlichen Offset von $8,1 \mu\text{s}$ die Laufzeit für Ionen mit einer Masse m_2 und einer Startposition s_0 , die dem notwendigen Startpotential U_2 entspricht, um den Separationsmagneten zu passieren, so erhält man eine gute Übereinstimmung zu den experimentellen Daten der Zeitstruktur 3. Zum Vergleich der Messungen aus Abbildung 7.3 mit den Berechnungen

7. Messungen zur Selektivität

wurden charakteristische Datenpunkte der Zeitstruktur ausgewählt und in Abbildung 7.7 durch Kreuze dargestellt. Die schwarzen Kreuze und die schwarze Kurve, die Grenzlinie, stellen die reguläre massenabhängige Laufzeit der Zeitstruktur 2 dar. Die farbigen Kreuze und Kurven repräsentieren die Zeitstruktur 3. Die verschiedenen Massen m_2 sind durch unterschiedliche Farben gekennzeichnet. Man erkennt, dass das Modell die experimentell erhaltene Zeitstruktur gut beschreibt. Geringfügige Abweichungen der Berechnungen sind durch eine etwas flachere Steigung der Kurven zu den experimentellen Daten zu erkennen. Dieses kann auf eine systematische Diskrepanz des Modells zur Realität hinweisen.

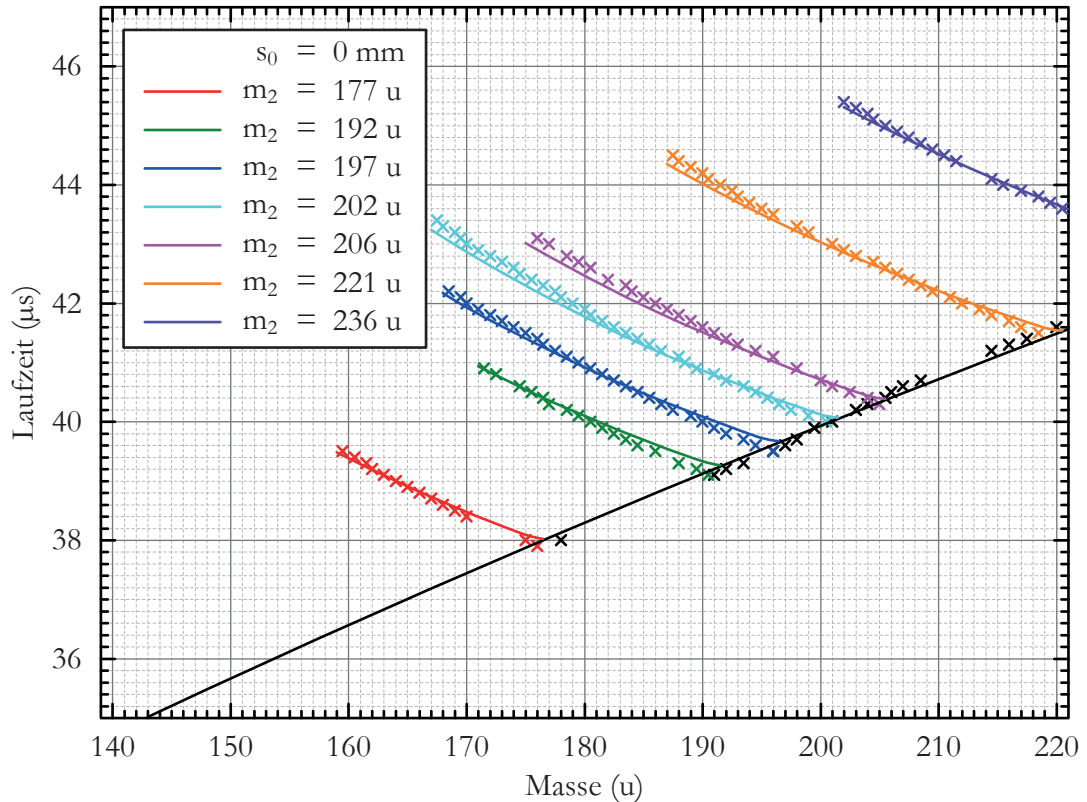


Abbildung 7.7.: Laufzeiten aufgetragen in Abhängigkeit der Masse. Charakteristische experimentelle Datenpunkte der Zeitstruktur 2 und 3 aus Abbildung 7.3 sind durch Kreuze und die Ergebnisse der Laufzeitberechnungen auf Basis des Modells durch farblich entsprechende Kurven gekennzeichnet.

Aus dem Startpotential wurde die jeweilige Startposition der Ionen berechnet und der Zählrate aus der Zeitstruktur 3 zugeordnet. Man erhält einen funktionalen Zusammenhang der Zählrate in Abhängigkeit der Startposition s_0 . Teilchen, die den Atomisator verlassen, haben in Bezug auf die Strahlachse divergente Flugrichtungen. Somit nimmt die Teilchenzahldichte mit dem reziproken quadratischen Abstand der Startposition s_0

vom Atomisator ab. Die Berechnung für diesen Zusammenhang wurde für die Masse $m_2 = 197 \text{ u}$ aus der Zeitstruktur 3 durchgeführt und ist in Abbildung 7.8 dargestellt.

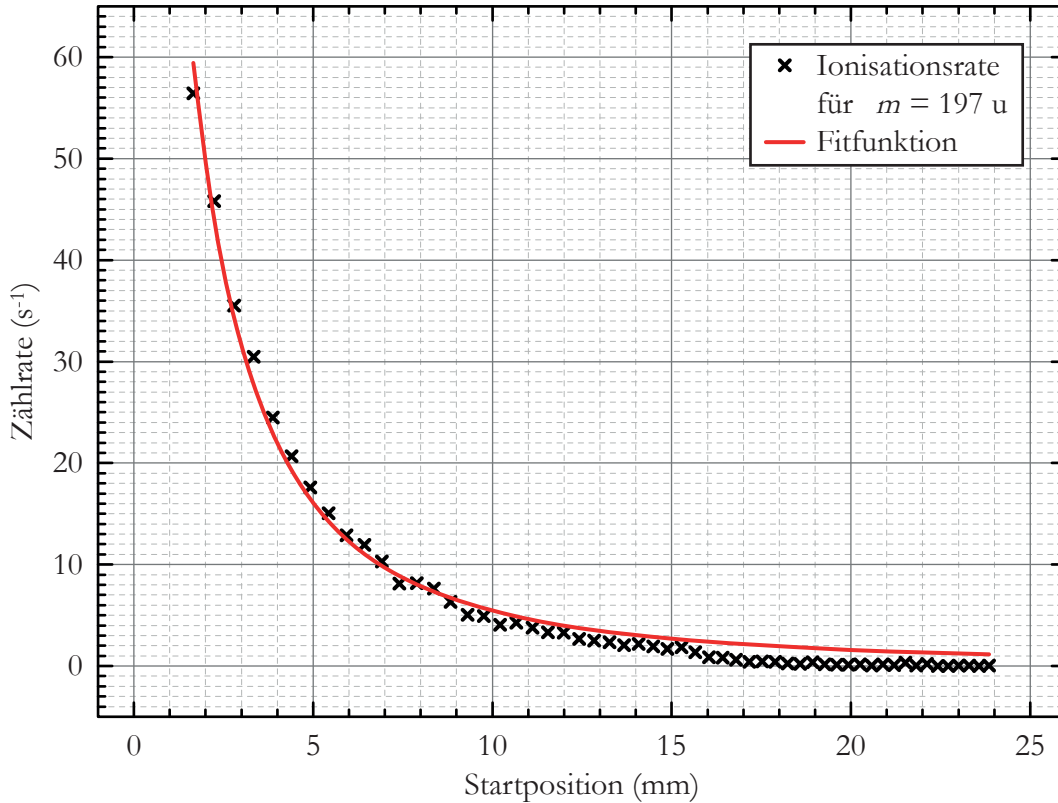


Abbildung 7.8.: Zählrate $I(s_0)$ der ionisierten Teilchen der Masse $m = 197 \text{ u}$ in Abhängigkeit der Startposition s_0 nach dem Atomisator.

Die Abnahme der Ionisationsrate wird durch die Funktion $I(s_0)$ beschrieben.

$$I(s_0) = \frac{\alpha}{(s_0 - \beta)^2} \quad (7.6)$$

Die Parameter α und β sind die zu bestimmenden Fitparameter. Der Fit ergab für $\alpha = (7,8 \pm 0,4) 10^2 \text{ mm}^2/\text{s}$ und für $\beta = (-2,0 \pm 0,1) \text{ mm}$. Geringfügige systematische Abweichungen der experimentellen Daten von der Fit-Funktion ab einer Startposition $s_0 > 10 \text{ mm}$ weisen auf mögliche, nicht durch das Modell beschriebene Verluste hin. Eine Interpretation des Fitparameters $\beta \approx -2 \text{ mm}$ und ein möglicher Zusammenhang mit der Steigung der Zeitstruktur 2 sollte in weiterführenden Arbeiten untersucht werden.

7.1.6. Interpretation der Analysen für die LIST

Zwischen der Repeller-Elektrode und dem Atomisator besteht ein Abstand von 2 mm, da sich dort ein Hitzeschild befindet und ein Freiraum zur thermischen Ausdehnung notwendig ist. In dieser Geometrie erzeugt die Repeller-Elektrode auf der Strahlachse ein

7. Messungen zur Selektivität

Potentialmaximum bei der Position $s = 4$ mm. Atome, die vor diesem Maximum ionisiert werden, können nicht die Quadrupolstruktur erreichen. Für die Benutzung der LIST sind die ermittelten Startpositionen der Ionen der Zeitstruktur 3 für die Effizienz im LIST-Mode von wesentlicher Bedeutung. Aus den experimentellen Daten der Abbildung 7.3 wurden nach dem vorliegenden Modell die maximalen Startpositionen s_0 verschiedener Massen m_2 berechnet und in Tabelle 7.1 zusammengefasst.

Masse (u)	$m_2 =$	177	192	197	202	206	221	236
max. Startposition (mm)	$s_0 =$	18	19	23	26	24	24	23

Tabelle 7.1.: Berechnete maximale Startpositionen s_0 verschiedener Massen, für die in Abbildung 7.3 noch Ereignisse registriert wurden.

Die Tabelle zeigt, dass bei Verwendung der LIST die maximalen Startpositionen der registrierten Ionen deutlich hinter diesem Potentialmaximum liegen, wobei jedoch die Ionisationsrate vor dem Potentialmaximum am höchsten ist. Die im Kapitel 6 beschriebenen Verluste der Ionisationseffizienz, die mit dem LLF zusammenhängen, können damit erklärt werden. Um eine quantitative Aussage zu erhalten, sollte das Modell in einer weiterführenden Arbeit besser an die Realität angepasst und auch über den gesamten Laserionisationsbereich seitlich der zentralen Achse ausgedehnt werden. Zusätzlich müssen noch weitere Messungen durchgeführt werden, bei denen die Startposition auch für andere Betriebsparameter variiert werden sollten, die einem regulären Betrieb entsprechen.

Bei den betrachteten schweren Massen der Zeitstruktur 3 handelt es sich um Kontaminationen, die durch die anregenden Laserstrahlen nichtresonant ionisiert werden, die potentiell auch im Betrieb der LIST vorhanden sind. Dieses zeigt, dass ein Laseranregungsschema so gewählt werden muss, dass die Wahrscheinlichkeit einer nichtresonanten Laseranregung für eventuell vorhandene Kontaminationen minimiert wird. Da für die vorliegenden Messungen aus den in Kapitel 7.1.1 aufgeführten physikalischen Gründen der Mass-Marker und somit die Probe nicht aktiv geheizt wurde, kann aus den Ergebnissen kein Rückschluss über das Verhältnis der Anzahl der Atome der Kontamination zur Anzahl der zu messenden Atome der Probe gezogen werden.

7.2. Massenselektiver Betrieb

Bei dem im Jahr 2012 durchgeführten On-line-Betrieb wurde während der Messung des $^{217}_{84}\text{Po}$ unter anderem auch $^{216}_{84}\text{Po}$ detektiert, obwohl der Massenseparator auf die Masse 217 u eingestellt war. Da die Energien der nachgewiesenen α -Teilchen, die durch den radioaktiven Zerfall der Polonium-Isotope und deren Tochternukliden entstehen, sehr unterschiedlich sind, spielte die Kontamination für dieses Experiment keine Rolle. Dennoch kann es bei anderen Experimenten zu Beeinträchtigungen kommen. Wenn die Auflösung der Massenseparation durch den Separationsmagneten nicht ausreicht, könnte prinzipiell durch die Verwendung der LIST im massenselektiven Mode eines Paul'schen Quadru-

polmassenfilters eine Verbesserung der Auflösung erreicht werden. Dazu muss, wie in Kapitel 2.3 beschrieben, zusätzlich eine Gleichspannung U der RF-Wechselspannung V überlagert werden. Die Geometrie der bisher eingesetzten und verwendeten LIST ist hinsichtlich der Länge von 10 cm (bzw. im On-line-Betrieb mit 9 cm) und des Verhältnisses des Radius der Quadrupolstäbe von $R = 5$ mm zum Abstand der Quadrupolstäbe zur Symmetrieachse $r_0 = 7,5$ mm mit $R/r_0 = 0,67$ nicht optimal für die Massenselektion geeignet. Nach [LWY71] gilt für das optimale Verhältnis $R/r_0 = 1,14511$. Daher wurden Simulationsstudien durchgeführt, die die Massenselektion der LIST überprüfen soll. In den Simulationen wird die Stabilität der Ionen-Trajektorien in der LIST in Abhängigkeit unterschiedlicher Startparameter der Ionen am Atomisator und in Abhängigkeit der elektrischen Potentiale der LIST untersucht. Zum Einsatz sollten Änderungen des mechanischen Aufbaus minimal gehalten werden, um eine problemlose Realisierung eines massenselektiven Betriebs der LIST on-line bei ISOLDE zu ermöglichen.

7.2.1. Simulationsstudie der massenselektiven LIST

Für die Berechnung einer Simulation² der Ionen-Trajektorien in der LIST werden das Ende des Atomisators, der Hitzeschild, die LIST, der Anfang des Extraktors und die Innenwände des Rezipienten in hinreichend kleine Volumen, sog. Grid Units, der Einheit μm^3 unterteilt und die superpositionierten Potentiale aller Elektroden für jedes Volumen berechnet. Aus Performanzgründen wurden die elektrischen Potentiale des Systems tatsächlich nur für einen Quadranten berechnet und das Ergebnis durch Spiegelung auf die anderen 3 Quadranten übertragen. Die von dem Simulationsprogramm aus Speichergründen maximal mögliche Auflösung beträgt $4 \mu\text{m}$. Diese Auflösung erwies sich für die durchgeführte Simulation als hinreichend genau, sofern die Ionen nicht zu nahe an die Wand des Atomisators kommen, da dort das elektrische Feld wegen des geringen Innendurchmessers des Atomisators von nur 2,5 mm nicht korrekt wiedergegeben wird. Abbildung 7.9a) zeigt einen Ausschnitt der in Grid Units eingeteilten Geometrie ohne die Innenwand des Rezipienten. Abbildung 7.9b) zeigt die in Grid Units eingeteilte Öffnung des Atomisators aus der Frontperspektive.

Für die Durchführung der Simulation müssen die Startparameter der Ionen definiert werden. Nullpunkt der axialen Skala ist die Austrittsöffnung des Atomisators. Im IG-Mode starten die Ionen an einer axialen Position von -0,5 mm mit einem Öffnungswinkel von 20° und mit einer stochastischen radialen Verteilung bis zu einem Radius von 1 mm, um den Querschnitt der Laserstrahlen auszunutzen. Andererseits dürfen die Ionen aufgrund der geringen Anzahl der Grid Units der Wand des Atomisators mit Durchmesser von 2,5 mm nicht zu nahe kommen. Im LIST-Mode wurden mehrere Startpositionen der Ionen hinter dem Repeller angenommen. Dabei starten die Ionen mit einer stochastischen radialen Verteilung bis zu einem Radius von 1,25 mm. Das entspricht zum einen der Öffnung des Atomisators, zum anderen auch dem maximalen angenommenen Durch-

²Es wurden die 32-Bit Versionen SIMION 8.0.7 und 8.0.8 verwendet, die einen Arbeitsspeicher von max. 2 GB adressieren können.

7. Messungen zur Selektivität

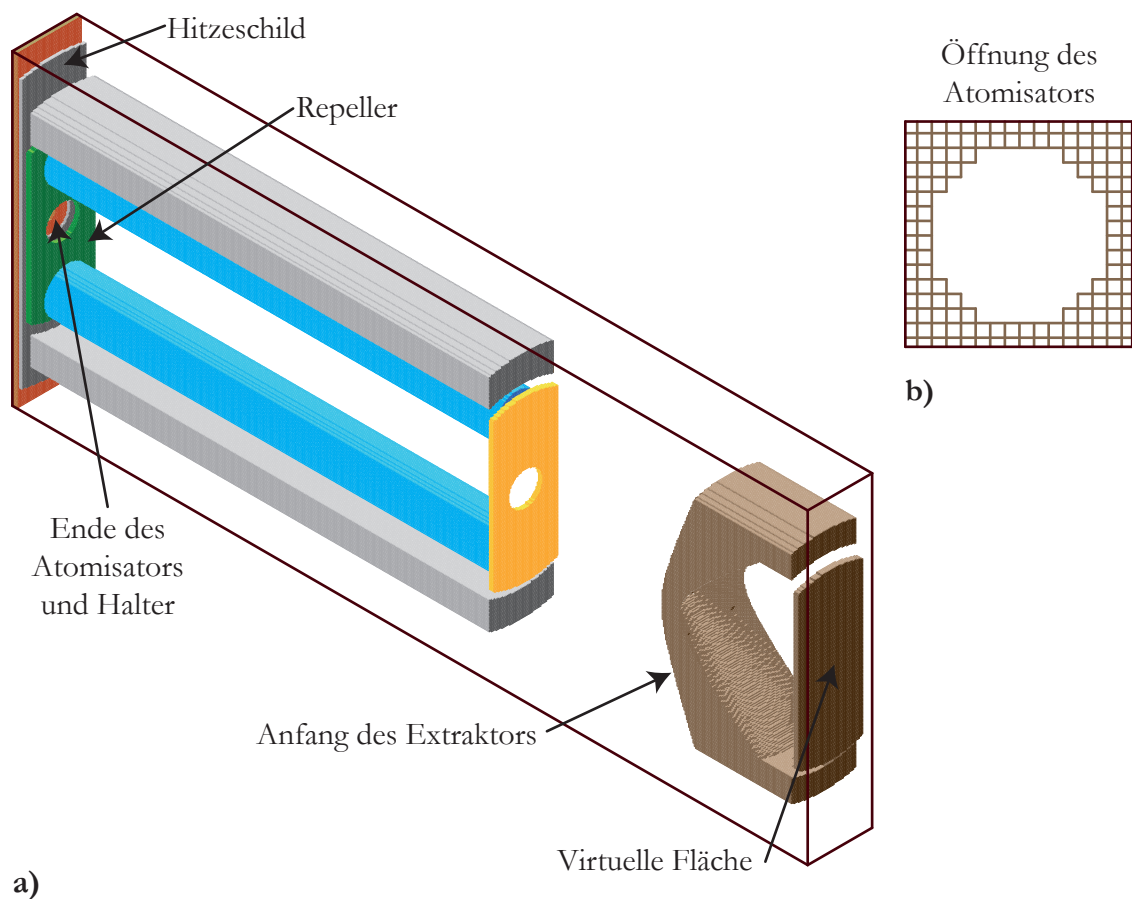


Abbildung 7.9.: a) Darstellung des Ausschnitts der LIST mit der Öffnung des Atomisators und Extraktors in der Länge, in der die Berechnung durchgeführt wurde, b) Darstellung der Auflösung an der Öffnung des Atomisators in der Frontalansicht.

messer der überlappenden Laserstrahlen. Der maximale Öffnungswinkel zwischen der Symmetrieachse und der Startrichtung der Ionen beträgt 32° an der Position $z = 3 \text{ mm}$ am Ende des Repellers. Er wird aus der Flugrichtung eines neutralen Atoms vom Rand der Atomisatoröffnung bis zum gegenüberliegenden Rand an der Startposition, wie in Abbildung 7.10 dargestellt, berechnet. Die Startenergie der Ionen wird als konstant mit 2 eV angenommen, was dem Spannungsabfall von ca. 2 V des resistiv geheizten Atomisators entspricht. Im Modell in Abbildung 7.9a) ist im Inneren des Extraktors eine virtuelle Fläche definiert. Ionen, die diese virtuelle Fläche erreichen, werden als experimentell erfasst angenommen. Die Startparameter sind schematisch in Abbildung 7.10 dargestellt. Es wurden hieraus Öffnungswinkel für unterschiedliche Startpositionen berechnet. Es wurden verifizierende Messungen mit einem 10 cm langen Off-line-Prototyp-LIST durchgeführt. Daher wurden die Simulationen auch mit einem Modell dieser Länge berechnet.

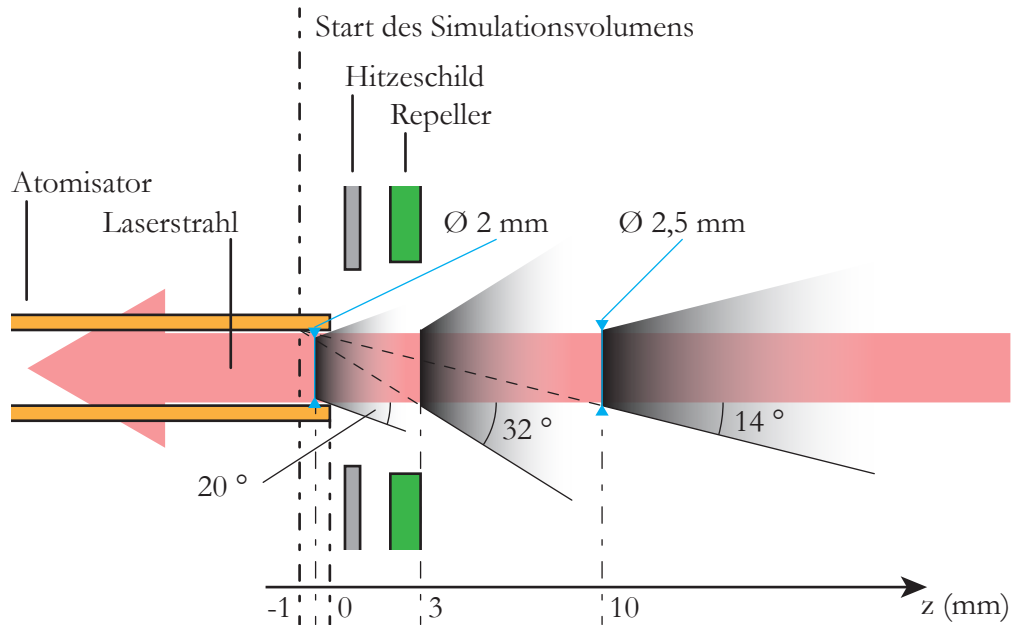


Abbildung 7.10.: Startparameter für die Simulationsberechnungen

Austrittsöffnung des Atomisators	$z = 0$ mm
Start des Simulationsvolumens	$z = -1$ mm
Start der Ionen im IG-Mode	$z = -0,5$ mm
Start der Ionen im LIST-Mode	$z = 3$ mm / $z = 10$ mm

Das Simulationsprogramm muss mit einem Skript erweitert werden, so dass neben statischen Feldern in der Berechnung auch zeitlich variierende Potentiale für die LIST simuliert werden können. Die Zeitschritte müssen dabei wesentlich kleiner gewählt werden als die Periodendauer der variierenden Potentiale, damit eine korrekte Flugbahn des Ions ermittelt wird. Im Simulationsprogramm werden die Zeitschritte je nach Geschwindigkeit und Beschleunigung der Teilchen automatisch festgelegt. Mit den oben beschriebenen Startparametern betragen die Zeitschritte im Mittel $\bar{t} = 5$ ns, wobei bei einer Frequenz von $f = 1,2$ MHz bzw. einer Periodendauer von $T = 830$ ns mehr als 160 Simulationsschritte vorliegen. Ein Eingreifen bezüglich der Simulationsschritte durch das Skript ist nicht notwendig.

Innerhalb der LIST müssen die Ionen genügend Oszillationen durchführen, damit eine nennenswerte Massenselektion erfolgt. Dazu wurde zunächst die Potentialverteilung betrachtet, um die kinetische Energie innerhalb der LIST abzuschätzen. Der bisherige Standardbetrieb sieht eine statische Spannung der Repeller-Elektrode vor, während alle anderen Bauteile der LIST, genau wie der Atomisator, die Referenzspannung³ 0 V besitzen. Abbildungen 7.11 und 7.12 zeigen ausgewählte Potentiallinien innerhalb der LIST,

³Es muss beachtet werden, dass im Laborsystem die Ionenquelle zur Beschleunigung der positiven Ionen auf einem Potential von 30 kV liegt.

7. Messungen zur Selektivität

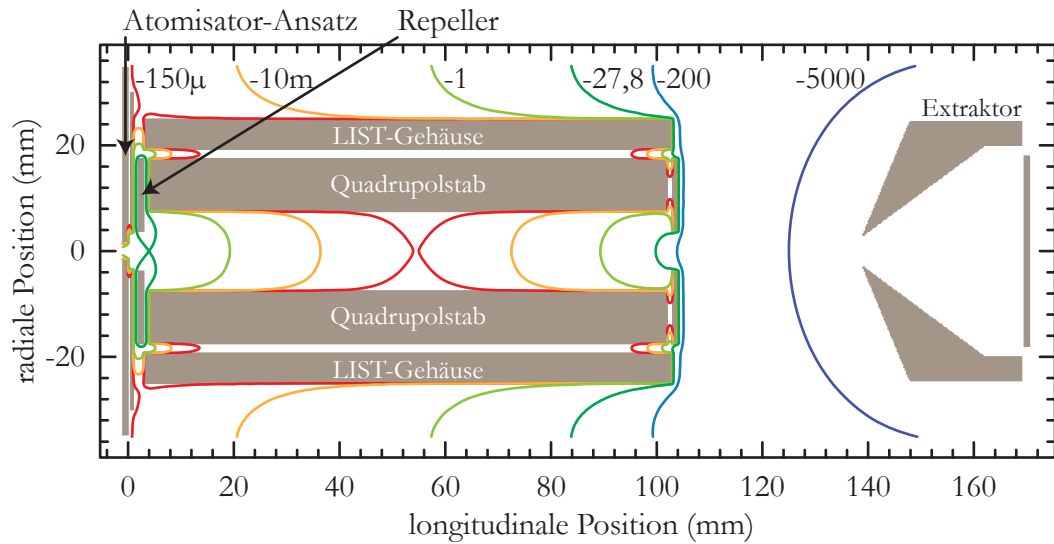


Abbildung 7.11.: Potentiallinien in Volt (-150μ , $-10m$, -1 , $-27,8$, -200 , -5000) für den IG-Mode.

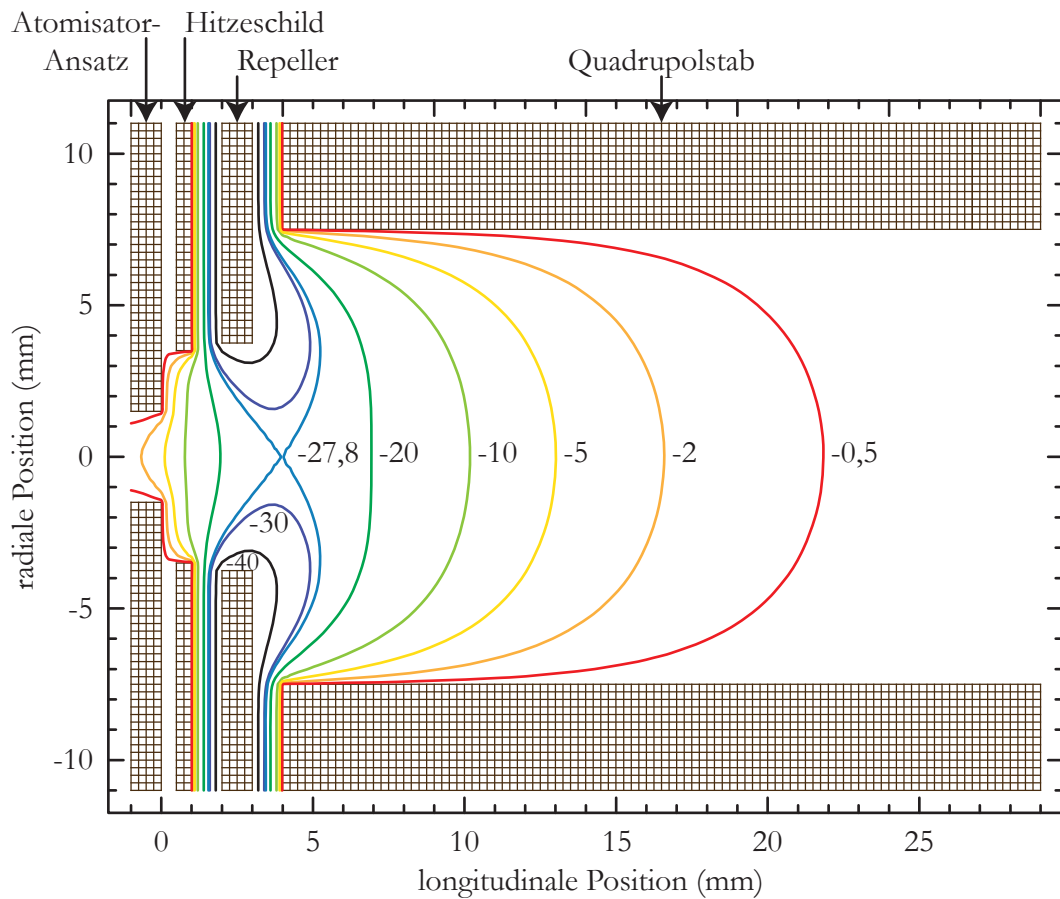


Abbildung 7.12.: Potentiallinien in Volt ($-0,5$, -2 , -5 , -10 , -20 , $-27,8$, -30 , -40) für den IG-Mode vergrößert im Bereich des Repellers.

die genau wie in Abbildung 5.5 zeigen, dass der Großteil des LIST-Volumens längs der Symmetrieachse als quasi feldfrei betrachtet werden kann. Das bedeutet, dass Ionen im IG-Mode die kinetische Startenergie besitzen und im LIST-Mode je nach Ionisationsposition und Repellerspannung nur geringfügig im Bereich weniger Volt beschleunigt werden.

Abbildung 7.13 zeigt die Simulation von Ionentrajektorien der Masse $m = 39 \text{ u}$ im IG-Mode. In einem reinen Wechselfeld $V = 50 \text{ V}$ ohne Gleichspannungsanteil $U = 0 \text{ V}$ ist die Stabilitätsbedingung erfüllt. Das Ion durchläuft die grüne Trajektorie, wobei die in Kapitel 2.3 beschriebenen Mikro- und Makrobewegungen erkennbar sind. Zwischen $z = 0 \text{ mm}$ und $z = 20 \text{ mm}$ wird das Ion durch den resultierenden Potentialverlauf der negativen Spannung des Repellers kurz beschleunigt und nachfolgend wieder abgebremst. Ab $z = 90 \text{ mm}$ wird das Ion durch den Felddurchgriff der Extraktionsspannung beschleunigt und durch die Ausgangselektrode aus der LIST herausgezogen und dabei auf die Achse fokussiert. Wird zusätzlich ein quadrupolarer Gleichspannungspotential von beispielsweise $U = 2,3 \text{ V}$ an die Quadrupolstäbe angelegt, so ist die Stabilitätsbedingung nicht mehr erfüllt. Das Ion durchläuft dann die rote Trajektorie und trifft auf einen Quadrupolstab.

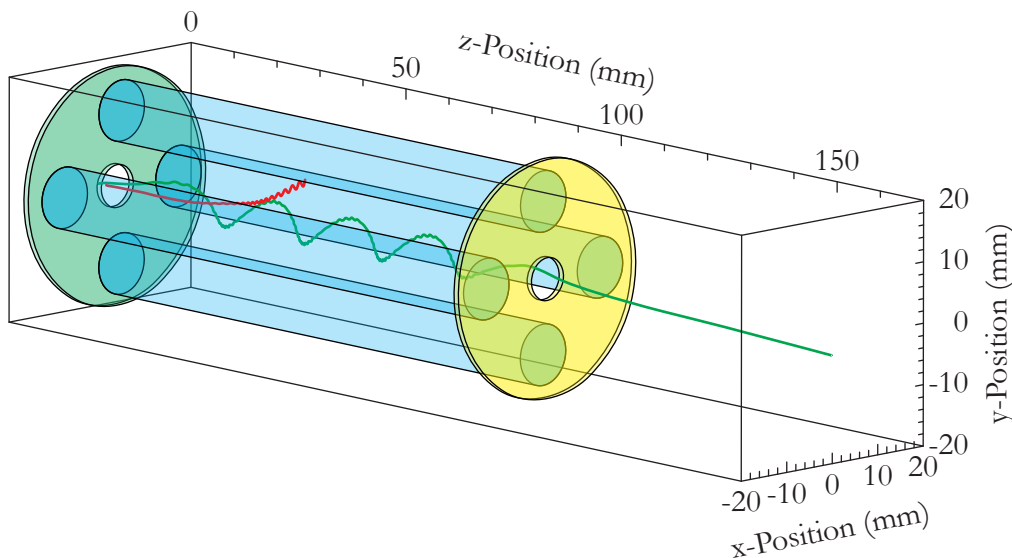


Abbildung 7.13.: Trajektorien zweier Ionen der Masse $m = 39 \text{ u}$ mit $U = 0 \text{ V}$, d.h. im Stabilitätsbereich (grüne Trajektorie), und mit $U = 2,3 \text{ V}$, d.h. außerhalb des Stabilitätsbereichs (rote Trajektorie).

Eine Massenselektion ist möglich, wenn die Spitze des Stabilitätsdreiecks ($q_u = 0,706$ und $a_u = 0,237$) mit der entsprechenden RF-Spannung V und Gleichspannung U angenähert wird. Für die Parameter der LIST wurden diese entsprechenden Spannungen für unterschiedliche Massen berechnet. Resultate sind in Tabelle 7.2 aufgeführt. Der massenselektive Betrieb kann aufgrund der limitierten RF-Amplitude von 500 V nur bis zu einer Masse $m = 85 \text{ u}$ realisiert werden. Er konnte damit nicht an den Ytterbium-

7. Messungen zur Selektivität

Isotope:	$^{24}_{12}\text{Mg}$	$^{39}_{11}\text{K}$	$^{41}_{11}\text{K}$	$^{172}_{70}\text{Yb}$	$^{173}_{70}\text{Yb}$	$^{174}_{70}\text{Yb}$	$^{217}_{84}\text{Po}$	$m = 85 \text{ u}$
V in (V)	141,4	229,8	241,6	1 013,5	1 019,3	1 025,2	1 278,6	500,8
U in (V)	23,7	38,6	40,6	170,1	171,1	172,8	214,6	84,1

Tabelle 7.2.: RF-Spannung V und Gleichspannungen U verschiedener Isotope, für die Parameter der Dreieckspitze $q_u = 0,706$ und $a_u = 0,237$. Die wegen der aktuell auf $V = 500 \text{ V}$ begrenzten RF-Amplitude erreichbare maximale Masse beträgt $m = 85 \text{ u}$.

Isotopen ($^{168}_{70}\text{Yb}$ bis $^{176}_{70}\text{Yb}$) demonstriert werden, die ansonsten vorrangig für Off-line-Messungen am RISIKO-Massenseparator verwendet wurden. Zur Überprüfung der Eigenschaften wurde der massenselektive Betrieb der LIST an dem Alkalimetall Kalium im IG-Mode ($U_{\text{rep}} = -50 \text{ V}$) simuliert und durchgeführt. Kalium mit seinen zwei Isotopen $^{39}_{19}\text{K}$ und $^{41}_{19}\text{K}$ sowie seiner leichten Ionisierbarkeit ist für einen Test der Massenselektivität besonders geeignet. Um die Struktur des Stabilitätsbereichs darzustellen, wurden die Spannungen der RF-Amplitude V und der Gleichspannungen U verändert. Für jeden Satz dieser Spannungen wurde dabei immer die gleiche Anzahl von Ionen mit zufällig leicht variierenden Startparametern hinsichtlich radialer Position und Richtungswinkel simuliert.

7.2.2. Simulationsergebnisse

Für einen Vergleich der Ergebnisse der Simulation mit den experimentellen Daten wurden die in Kapitel 7.2.1 beschriebenen Elektrodenpotentiale und die Startenergie der Ionen variiert. Variationen der Startposition, des Startwinkels und des Repellerpotentials, die für den generellen Betrieb der LIST von Bedeutung sind, werden in Kap. 8 beschrieben.

Variation der Elektrodenpotentiale

Zunächst wurde im IG-Mode für die longitudinale Startposition $z = -0,5 \text{ mm}$ und die Masse $m = 39 \text{ u}$ der Einfluss der Potentiale der Repeller-Elektrode, des LIST-Gehäuses und der Ausgangselektrode auf die Transmission durch die LIST bestimmt. Die RF-Spannung V wurde bei diesen Simulationen schrittweise um 2 V und die Gleichspannung U um $0,3 \text{ V}$ erhöht, wobei die Berechnungen jeweils mit 100 Ionen durchgeführt wurden. Abbildung 7.14 zeigt die resultierten Stabilitätsbereiche sowie die jeweilig erzielte Transmission für die vorgewählten Potentialkonfigurationen der Repeller-Elektrode U_{rep} , des LIST-Gehäuses U_{case} und die Ausgangselektrode U_{exit} .

Abbildung 7.14a) zeigt den Stabilitätsbereich ohne den Einfluss statischer Potentiale. In Abbildung 7.14b) hat die Repeller-Elektrode ein Potential von $U_{\text{rep}} = -50 \text{ V}$ und entspricht dem bisher definierten IG-Mode, wobei im stabilen Bereich ein starker Verlust in der Transmission der Ionen zu verzeichnen ist. Eine Analyse der Trajektorien zeigt, dass

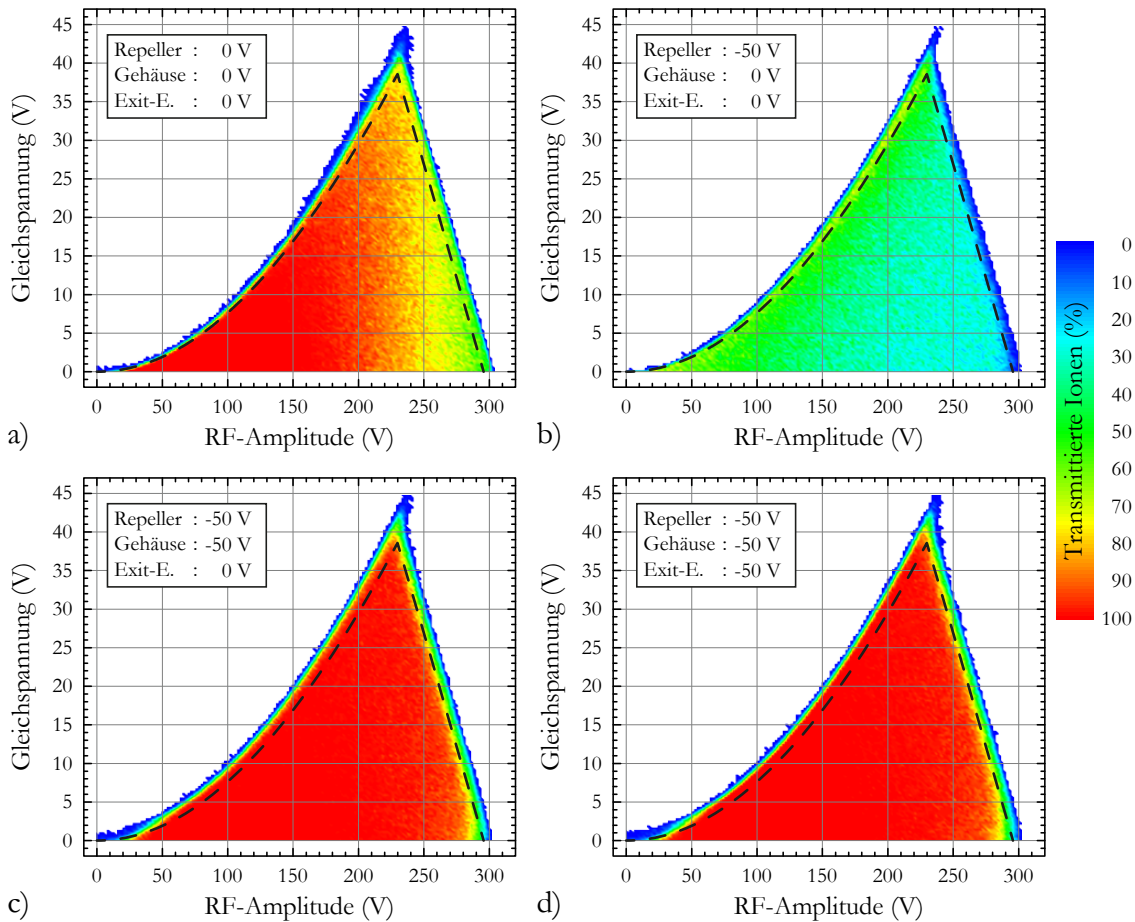


Abbildung 7.14.: Simulationen der Stabilitätsbereiche bei unterschiedlichen Spannungs-kombinationen der Repeller-Elektrode, des LIST-Gehäuses und der Ausgangselektrode.

- alle Elektroden auf 0 V,
- nur die Repeller-Elektrode auf -50 V,
- die Repeller-Elektrode und das LIST-Gehäuse auf -50 V,
- alle Elektroden auf -50 V.

Die gestrichelten Kurven beschreiben die berechnete Kontur des Stabilitätsbereichs nach der in Kapitel 2.3 beschriebenen Theorie für die Masse $m = 39$ u.

viele Ionen aufgrund des Feldeingriffs der Repeller-Elektrode in den Atomisator schon auf abgesenktem Potential starten und trotz einer Startenergie von 2 eV nicht mehr in der Lage sind, das Repellerpotential zu überwinden. Setzt man das LIST-Gehäuse ebenfalls auf -50 V, so erhält man den Stabilitätsbereich, wie in Abbildung 7.14c) dargestellt. In diesem Fall wird das Potential des Zentrums der LIST auf etwa -1,2 V abgesenkt, so dass wieder nahezu alle Ionen die LIST passieren können. Die Ausgangselektrode hat aufgrund des starken Feldeingriffs der Extraktionselektrode in das Ende des LIST-Volumens

7. Messungen zur Selektivität

keinen Einfluss auf die Transmission durch die LIST. Daher sind die Simulationsergebnisse von Abbildung 7.14c) und d) weitgehend identisch. In allen vier Ansichten, wie auch in nachfolgenden Abbildungen von simulierten Stabilitätsbereichen, werden durch die gestrichelten Kurven die nach der in Kapitel 2.3 beschriebenen Theorie berechneten Ränder der Stabilitätsbereiche dargestellt.

Variation der Startenergie

Die Simulationen in Abbildung 7.15 zeigen, dass die Ionen die Potentialsenke des Repellerpotentials U_{rep} wegen ihrer zu geringen Startenergie nicht verlassen können. Bei diesen Simulationen sind die Randbedingungen die gleichen wie in Abbildung 7.14b), wobei jedoch die Startenergie der Ionen von 2 eV auf 3 eV bzw. 4 eV erhöht wurde. Abbildung 7.15b) zeigt, dass mit einer Startenergie von 4 eV nahezu alle Ionen durch die LIST transmittiert werden.

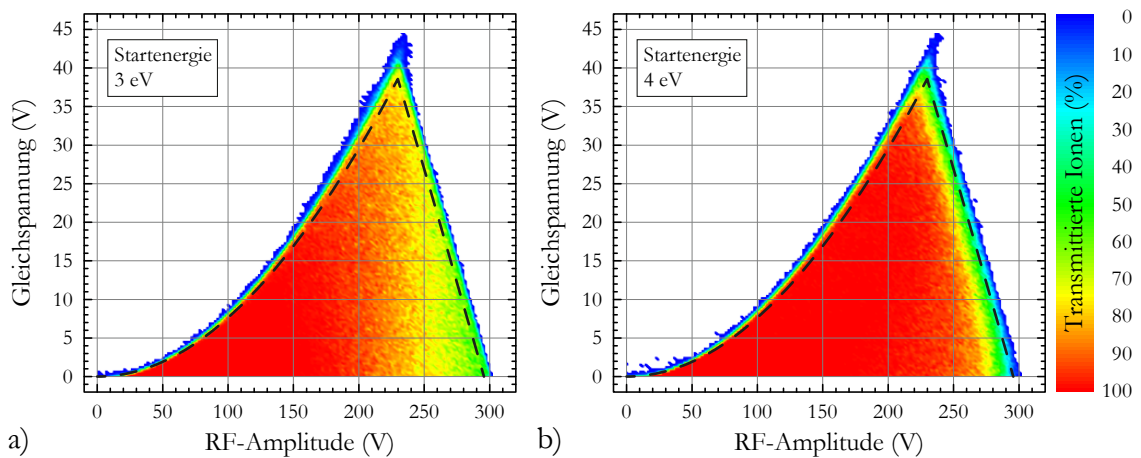


Abbildung 7.15.: Simulationen der Stabilitätsbereiche mit unterschiedlichen Startenergien der Ionen im IG-Mode. Die Startenergie der Ionen beträgt in a) 3 eV und in b) 4 eV. Beide Simulationen entsprechen bis auf die geänderte Startenergie der Situation in Abbildung 7.14b). Die gestrichelten Kurven beschreiben die berechnete Kontur des Stabilitätsbereichs nach der in Kapitel 2.3 beschriebenen Theorie für die Masse $m = 39$ u.

In einer weiteren Simulation wurde überprüft, ob die angenommenen Startenergien der Ionen plausibel sind. Die Abhängigkeit der Anzahl der transmittierten Ionen kann mit dem Feldeingriff des Potentials der Repeller-Elektrode in den Atomisator erklärt werden. Um den Einfluss des Feldeingriffs zu berücksichtigen, musste das Simulationsvolumen einen größeren Teil des Atomisators umfassen. Daher wurde das Simulationsmodell dahingehend modifiziert, dass das Simulationsvolumen um 4 mm verlängert wurde. Somit starten die Ionen nach bisheriger Definition des Simulationsmodells an der Position $z = -4,5$ mm mit der Startenergie von 2 eV. Die Simulation entspricht bis auf die vorherige Startposition bei $z = -0,5$ mm der Situation in Abbildung 7.14b). Man entnimmt aus Abbildung 7.16, dass etwa 80 % aller Ionen im kompletten Stabilitätsbereich durch

die LIST transmittiert werden. Während der Simulation ließ sich beobachten, dass fast alle anderen Ionen aufgrund des zu groß angenommenen Öffnungswinkels im Bezug auf die Startposition mit der Wand des Atomisators kollidieren. Da diese Simulationsannahmen eine eher ungünstige Abschätzung darstellen, kann angenommen werden, dass die Transmission durch die LIST wesentlich höher ist, als diese Simulation vorhersagt.

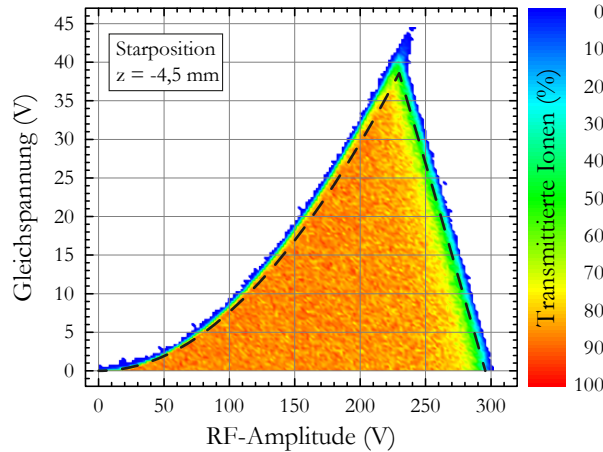


Abbildung 7.16.: Simulation des Stabilitätsbereiches im IG-Mode, wobei die Ionen an der Position $z = -4,5$ mm starten. Die Simulation entspricht bis auf die geänderte Startposition der Situation in Abbildung 7.14b).

7.2.3. Experimentelle Umsetzung

Nachdem der massenselektive Betrieb der LIST anhand von Simulationen gezeigt wurde, wurden Überlegungen zu notwendigen Modifikationen des experimentellen Aufbaus im Hinblick auf eine problemlose Umsetzung bei ISOLDE angestellt. Eine wesentliche Komponente zum Betrieb der LIST bei ISOLDE ist die in Kapitel 3.2.2 beschriebene Transducerbox. Zum massenselektiven Betrieb muss eine Modifikation des Schaltkreises erfolgen, damit eine Überlagerung der Gleichspannung U zum RF-Signal V erfolgen kann. Dazu wurde die in Abbildung 3.14 dargestellte Schaltung erweitert. Diese Erweiterungen sind in Abbildung 7.17 mit den rot gezeichneten Blöcken gekennzeichnet. Die Entkopplung des Schwingkreises der Transducerbox von der Gleichspannung U erfolgt durch die $1\ \mu\text{F}$ Kapazitäten direkt an den Ausgängen der Transducerbox. Eine vollständige Entkopplung der Gleichspannungsnetzteile von dem RF-Signal V müsste korrekterweise zusätzlich durch eine Spule erfolgen. Eine Berechnung⁴ ergab allerdings eine notwendige Induktivität von $L = 30\ \text{mH}$. Spulen dieser Induktivität für Spannungen bis $500\ \text{V}$ wären zu groß und massiv, um sie nahe der Target-Einheit in den Schaltkreis zu integrieren. Eine Alternative für die Modifikation ist die Verwendung von hochohmigen Widerständen in der Größenordnung von $10\ \text{M}\Omega$ anstelle der Spule. Diese bewirken in der Berechnung nur geringe Verluste $< 1\%$ des RF-Signals. Da im Idealfall aus der

⁴Es wurde das Programm EAGLE von CadSoft Computer GmbH verwendet.

7. Messungen zur Selektivität

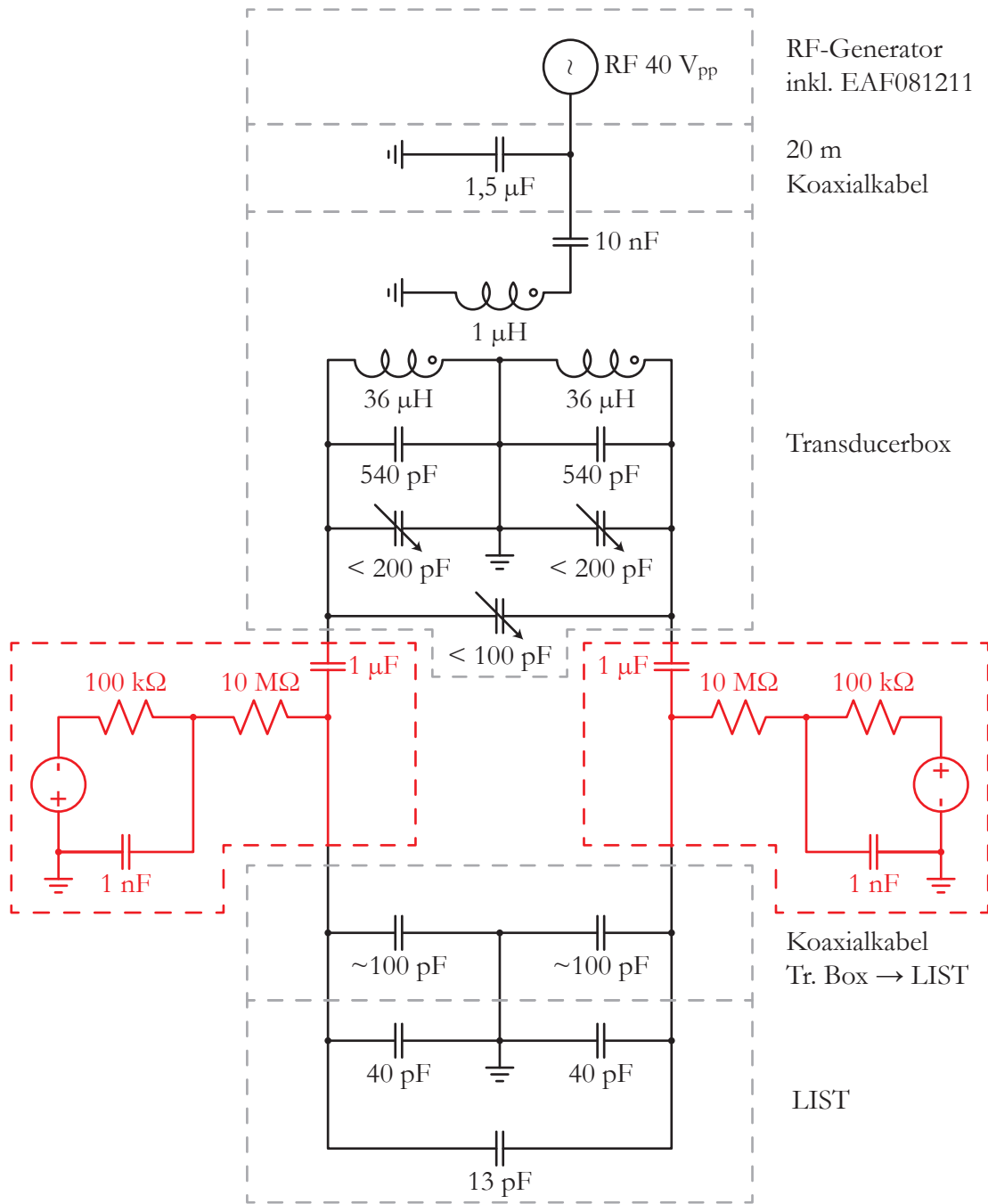


Abbildung 7.17.: Erweiterter Schaltkreis aus Abbildung 3.14 zum massenselektiven Betrieb der LIST. Notwendige Erweiterungen sind in rot dargestellt. Nähere Details sind im Text beschrieben.

Gleichspannungsquelle kein Strom entnommen wird, sondern nur eine statische Aufladung der Quadrupolstäbe auf das Potential U erfolgen soll, ist die Entkopplung über Widerstände statt Spulen zulässig. Die in Abbildung 7.17 rot dargestellten Komponenten wurden mit Ausnahme der Gleichspannungsnetzteile aus hochspannungstauglichen Bauteilen als separate Module konfiguriert, so dass diese im Fall eines massenselektiven Betriebs an die Transducerbox angeschlossen werden können. Ein massenselektiver Betrieb konnte auf diese Weise durchgeführt werden.

7.2.4. Experimentelle Ergebnisse

Der massenselektive Betrieb der LIST wurde im IG-Mode mit dem Element Kalium experimentell nachgewiesen. Kalium besitzt zwei stabile Isotope $^{39}_{19}\text{K}$ und $^{41}_{19}\text{K}$ mit einem Isotopenverhältnis von 93,26 % zu 6,73 %. Zunächst wurde der Stabilitätsbereich für das Isotop $^{39}_{19}\text{K}$ aufgenommen, indem der Magnet für die Masse $m = 39$ u fest eingestellt und der Ionenstrom als Funktion der Potentiale V und U im Bereich des theoretisch berechneten Stabilitätsdiagramms gemessen wurde. Da die Auflösung und die Reproduzierbarkeit der mit einem analogen Steuersignal einstellbaren Spannungen ungenau waren, musste das anliegende Potential durch eine nachträgliche Spannungskalibrierung rekonstruiert werden. Die Ergebnisse dieser Messung sind in Abbildung 7.18 dargestellt. Man erkennt eine gute Übereinstimmung der experimentellen Daten mit der theoretisch berechneten Kontur des Stabilitätsbereichs. Auf der linken Seite außerhalb des Stabilitätsbereichs lassen die blauen Flächen einen leichten Signalanstieg erkennen.

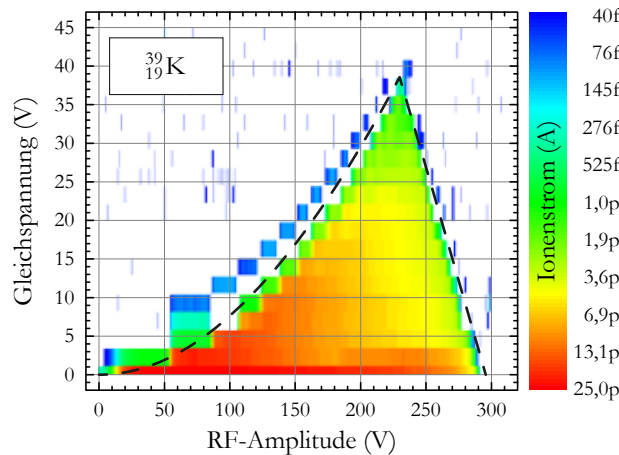


Abbildung 7.18.: Experimentelle Bestimmung des Stabilitätsbereichs für das Isotop $^{39}_{19}\text{K}$. Die gestrichelte Kurve stellt die theoretisch berechnete Grenze des Stabilitätsbereichs dar.

Um einen massenselektiven Betrieb mit der LIST durchführen zu können, müssen die Spitzen der einzelnen Stabilitätsdreiecke einer jeden Masse entsprechend gut aufgelöst sein. Zum Nachweis der Auflösung wurde für beide Kaliumisotope der entsprechende Ausschnitt des Stabilitätsbereichs gemessen und die Ergebnisse untereinander sowie mit

7. Messungen zur Selektivität

der Theorie verglichen. Abbildung 7.19a) zeigt die Messung für $^{39}_{19}\text{K}$ und 7.19b) diejenige für $^{41}_{19}\text{K}$. Beide Messungen zeigen, dass die Spitzen der Stabilitätsbereiche deutlich gegeneinander aufgelöst sind, so dass geeignete Potentiale für V und U gewählt werden können, um explizit eine Masse auszuwählen.

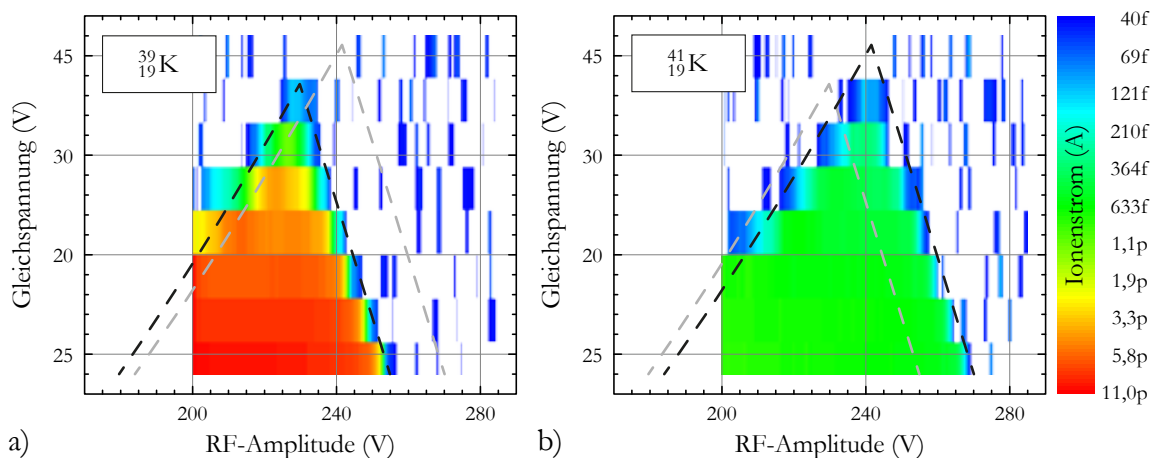


Abbildung 7.19.: Experimentelle Bestimmung der Spitzen des Stabilitätsbereichs für das Isotop a) $^{39}_{19}\text{K}$ und b) $^{41}_{19}\text{K}$. Die schwarze gestrichelte Kurve stellt die theoretisch berechnete Grenze des Stabilitätsbereichs des entsprechenden Isotops dar. Die graue gestrichelte Kurve stellt die theoretisch berechnete Grenze des Stabilitätsbereichs des entsprechend jeweils anderen Isotops dar.

Zur Demonstration des massenselektiven Betriebs der LIST wurden drei Parametersätze für V und U fest gewählt und für jeden Parametersatz Massenspektren mittels des Separationsmagneten aufgenommen. Die LIST wurde einerseits im IG-Mode bei $U = 0\text{ V}$ und andererseits massenselektiv für die Massen $m = 39\text{ u}$ und $m = 41\text{ u}$ betrieben. Die Ergebnisse der Messungen sind in Abbildung 7.20 dargestellt. Im IG-Mode sind im Massenspektrum beide Kalium-Isotope mit dem korrekten natürlichen Isotopenverhältnis zu erkennen, während im massenselektiven Betrieb das Isotop der ausgewählten Masse dominiert und das jeweilig andere Isotop auf das Niveau des Untergrundrauschens des Detektors unterdrückt wird. Die für die Messungen verwendeten Parametersätze für V und U stimmen mit den gemessenen Dreiecksspitzen der Stabilitätsbereiche aus Abbildung 7.19 überein, sie sind in Tabelle 7.3 zusammengefasst. Der massenselektive Betrieb der LIST ist mit zusätzlichen Verlusten im Ionenstrom verbunden. Im massenselektiven Betrieb für die Masse $m = 39\text{ u}$ sind Verluste von etwa einem Faktor 28 zum IG-Mode zu verzeichnen während im massenselektiven Betrieb für die Masse $m = 41\text{ u}$ nur ein Faktor 7 verzeichnet wird. Dieser große Unterschied in den Verlusten spricht für noch nicht optimal gewählte Parameter V und U . Diese Messungen müssen daher mit geeigneten, reproduzierbar einstellbaren Netzgeräten für die RF-Spannung V und für die Gleichspannung U wiederholt werden, demonstrieren aber bereits die neuen Möglichkeiten.

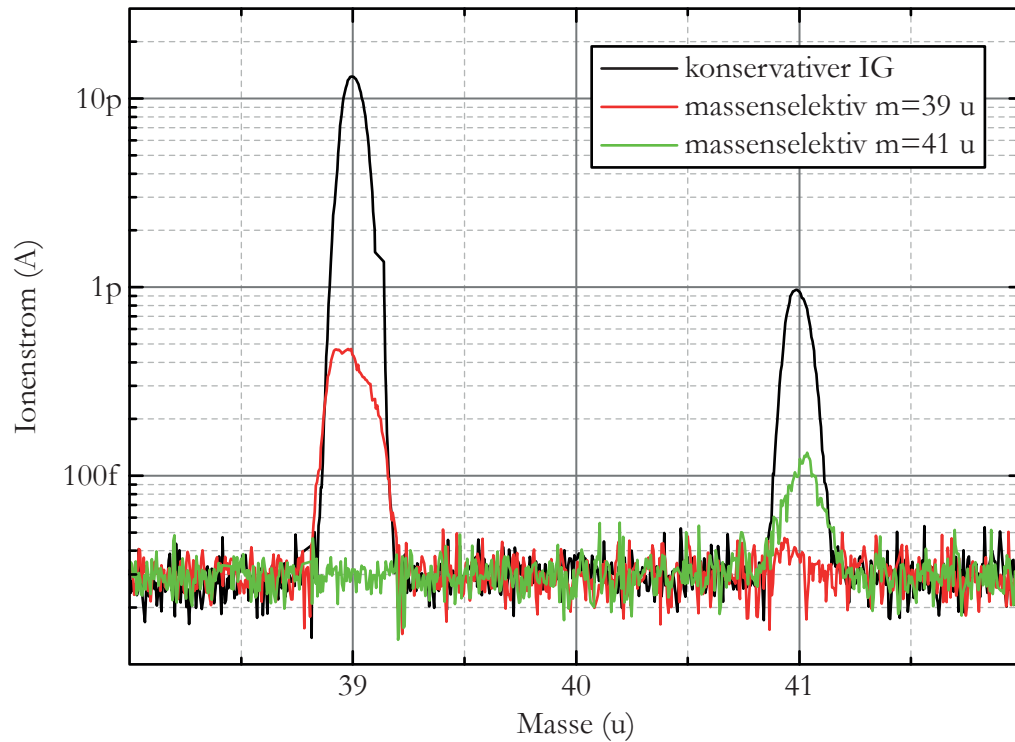


Abbildung 7.20.: Massenspektrum im IG-Mode (schwarz), im massenselektiven Betrieb für die Massen $m = 39$ u (rot) und $m = 41$ u (grün).

Betriebsmodus	V in Volt	U in Volt
IG-Mode	77	0
Massenselektiv bei $m = 39$ u	227	37
Massenselektiv bei $m = 41$ u	240	37

Tabelle 7.3.: Betriebsparameter für V und U der Messungen aus Abbildung 7.20 im IG-Mode und im massenselektiven Betrieb für die Massen $m = 39$ u und $m = 41$ u.

8. Simulationsstudie zum Ioneneintritt in die Quadrupolstruktur

Die Durchführung der Simulationsstudie zum massenselektiven Betrieb legte nahe, auch die Abhängigkeit des Eintritts der Ionen aus dem Atomisator in die Quadrupolstruktur von unterschiedlichen Parametern zu untersuchen. Als signifikante Größen wurden die Startposition, der Startwinkel und das Repellerpotential variiert.

Variation der Startpositionen

Die bisherigen Simulationen zeigen, dass die Startparameter durchaus wesentlichen Einfluss auf die Trajektorien der Ionen haben. Da besonders in der Nähe des Repellers die Startenergie der Ionen von Relevanz ist, wird in der folgenden Simulation die Transmission durch die LIST für unterschiedliche Startpositionen und Potentiale des Repellers untersucht. Diese Simulation bezieht sich je nach Repellerpotential sowohl auf den IG-Mode als auch auf den LIST-Mode.

Der axiale Startpunkt der Ionen variiert von $z = -4,5$ mm bis $z = +3,5$ mm in Schritten von $0,25$ mm und das Potential des Repellers zwischen $U_{\text{rep}} = -10$ V bis $U_{\text{rep}} = +10$ V in Schritten von 1 V. Jede Kombination der axialen Startposition mit dem Potential des Repellers wird für 10 stochastisch ausgewählte, radiale Startpositionen zwischen $r = 0$ mm und $r = 0,75$ mm berechnet. Damit keine Ionen an der Wand des Atomisators verloren gehen, wie in der in Abbildung 7.16 dargestellten Simulation, wird die Startrichtung so gewählt, dass sich alle Ionen parallel zur Achse des Atomisators bewegen. Die Startenergie bleibt für jede einzelne Simulation konstant. Die Abbildungen 8.1a) bis c) zeigen die Anzahl transmittierter Ionen je nach Startposition und Potential des Repellers für unterschiedliche Startenergien E_0 . Projiziert man die Anzahl der transmittierten Ionen auf die Achse des Potentials des Repellers, so wie in Abbildung 8.1d) dargestellt, erkennt man annähernd den Verlauf eines experimentellen Repellerscans im Bereich des Potentials des Repellers von $U_{\text{rep}} = 0$ V, so wie er beispielsweise in Abbildung 4.2 dargestellt ist. Anzumerken ist, dass die Breite des Spannungsbereichs der maximalen Transmission mit der Startenergie der Teilchen korreliert.

Variation der Startwinkel

In einer abschließenden Simulation soll die Abhängigkeit der transversalen Komponente der Anfangsgeschwindigkeit untersucht werden. Erlaubt man den Teilchen, den Atomisator nur in einem definierten Winkel zur Symmetrieachse an der Startposition $z = 0,5$ mm

8. Simulationsstudie zum Ioneneintritt in die Quadrupolstruktur

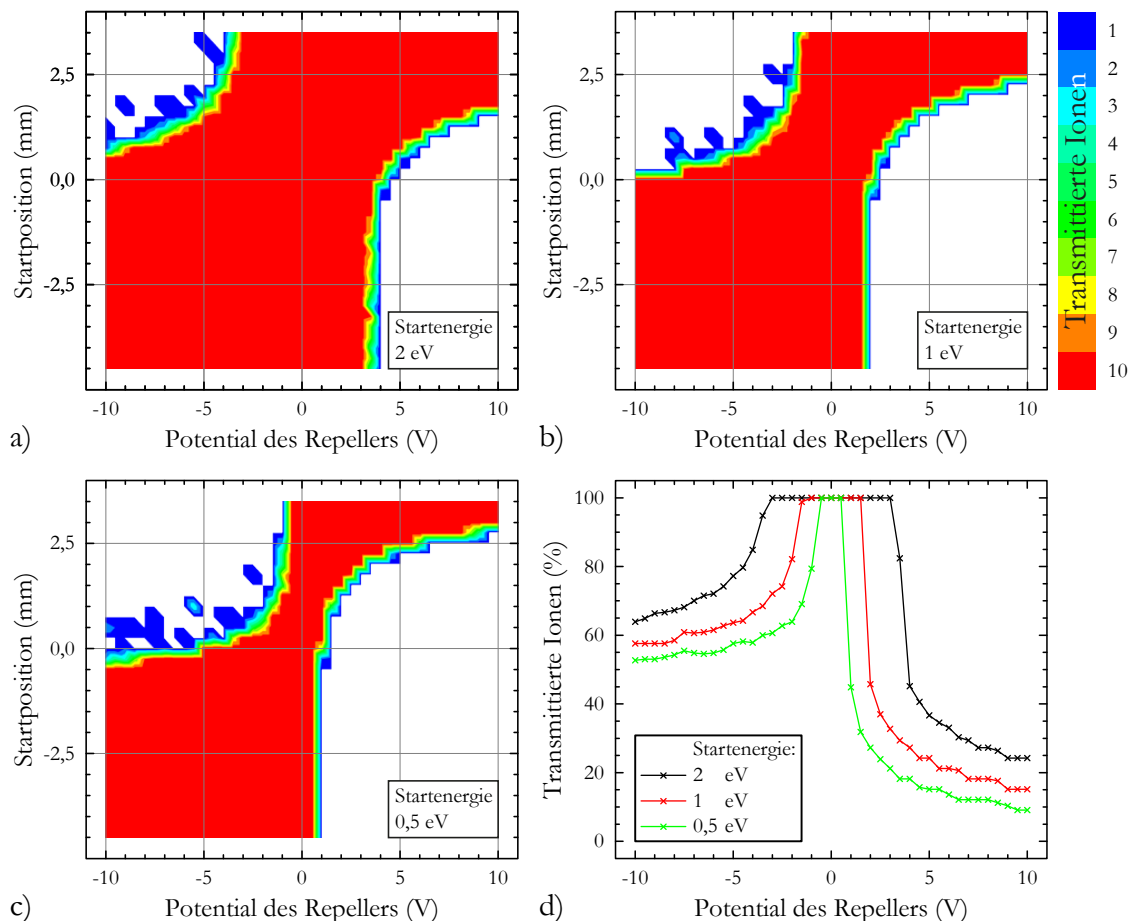


Abbildung 8.1.: Simulationen transmittierter Ionen in Abhängigkeit des Potentials des Repellers U_{rep} und der Startposition z für feste Startenergien bei a) 2 eV, b) 1 eV und c) 0,5 eV. Anteil der transmittierten Ionen, unabhängig von ihrer Startposition, sind in d) dargestellt.

zu verlassen, so kann die Winkelabhängigkeit in Bezug auf die Transmission der LIST explizit abgeleitet werden. Abbildung 8.2 zeigt diese in Abhängigkeit des Potentials des Repellers U_{rep} für Ionen, die den Atomisator in ausgewählten Winkeln verlassen haben. Während bei kleinen Winkeln bis knapp über 10° die Transmission einer Stufenfunktion ähnelt, erkennt man ab einem Winkel von 30° ein Minimum im Bereich des Potentials des Repellers von ca. $U_{\text{rep}} = -10 \text{ V}$ bis $U_{\text{rep}} = 0 \text{ V}$. Im Repellerscan der experimentellen Messung in Abbildung 4.2 ist ebenfalls bei dem gleichen Potential des Repellers ein Minimum zu erkennen.

Während die in Abbildung 8.1 dargestellte Simulation mit Ionen mit einer Startrichtung parallel zur Symmetrieachse berechnet wurde, wird nun die Simulation auf eine homogene Winkelverteilung erweitert. Aus Performanzgründen wurde für die Winkelverteilung je nach Startposition z ein Maximalwinkel so definiert, dass diejenigen Ionen,

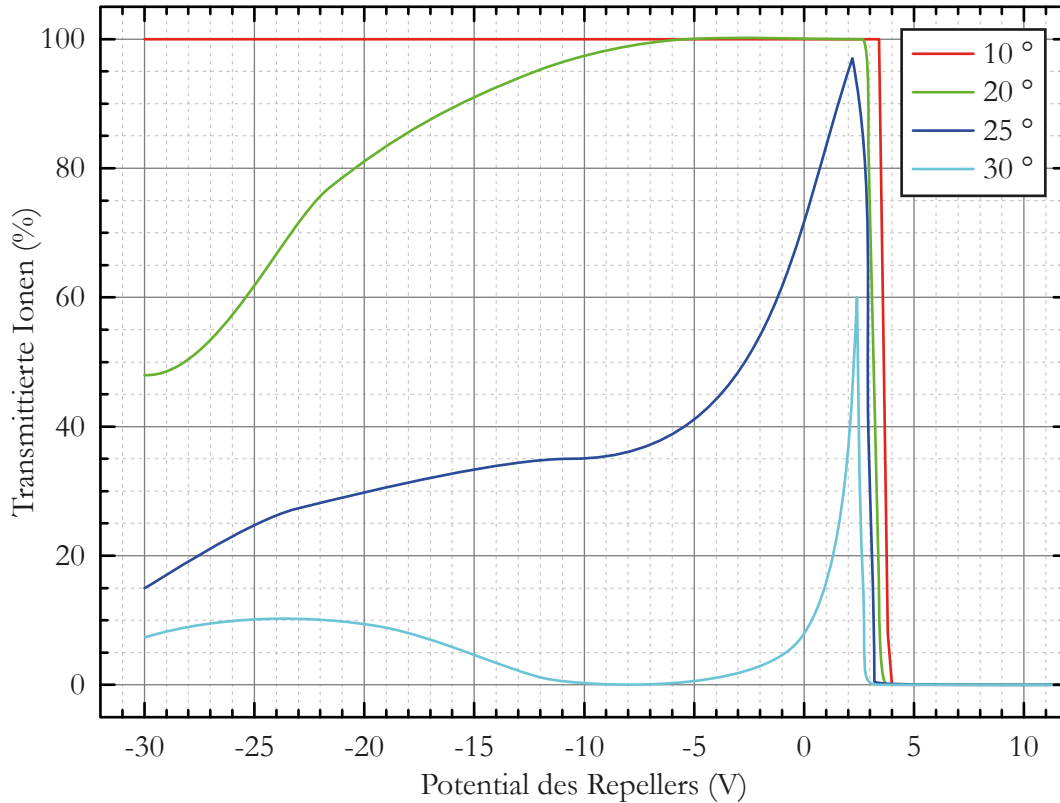


Abbildung 8.2.: Simulationen der Anzahl transmittierter Ionen mit unterschiedlichen Startwinkeln zur Symmetrieachse. Die Winkel werden hierbei als konstante Parameter verwendet.

die innerhalb des Atomisators starten, diesen ohne Wandstöße verlassen können und dass diejenigen Ionen, die außerhalb des Atomisators starten, diesen durch eine geradlinige Flugbahn verlassen. Geht man auch von einer homogenen Teilchenzahldichte pro Grad Öffnungswinkel aus, ist die Anzahl der simulierten Ionen an der Startposition z proportional zum maximalen Öffnungswinkel. Um eine ausreichende Statistik zu erhalten, wurden immer 10 Ionen pro Grad des Öffnungswinkels gestartet. Die zufällige Verteilung bezüglich der Winkel erfolgte durch das Simulationsprogramm automatisch. Für diese Berechnung wird der Simulationsraum bezüglich des Bereichs der Startpositionen auf $z = -35 \text{ mm}$ bis $z = +18 \text{ mm}$ erweitert. Das umfasst die gesamte Länge des Atomisators und eine Strecke von 18 mm vor dem Atomisator, was als mögliche Ionisationsorte aus der Zeitstruktur aus der Zeitstrukturanalyse in Kapitel 7.1.6 ermittelt wurde. Abbildung 8.3a) zeigt links die simulierte Teilchenzahldichte und rechts die Anzahl der transmittierten Ionen dieser Simulation.

Um realistischere Annahmen machen zu können, wird noch eine Teilchenzahldichteverteilung $\rho(z)$ angenommen, die innerhalb des Atomisators als konstant und außerhalb des Atomisators dem Verlauf einer reziproken r^2 -Funktion entspricht, so wie es der Messung

8. Simulationsstudie zum Ioneneintritt in die Quadrupolstruktur

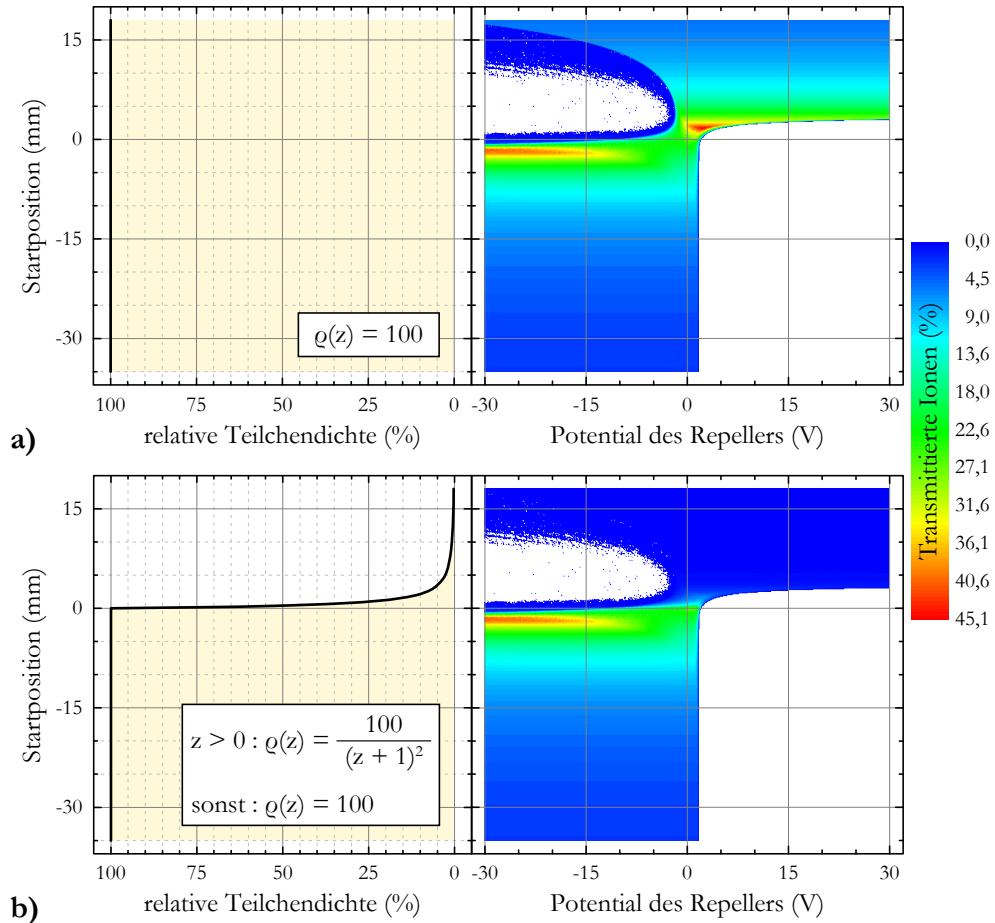


Abbildung 8.3.: a) Homogene Teilchenzahldichteverteilung und daraus folgende Simulation der Anzahl transmittierter Ionen in Abhängigkeit des Potentials des Repellers U_{rep} und der Startposition z .
b) Modifizierte Teilchenzahldichteverteilung startender Ionen in Abhängigkeit der Startposition z und entsprechend neu berechnete Anzahl transmittierter Ionen in Abhängigkeit des Potentials des Repellers U_{rep} und der Startposition z .

in Abbildung 7.8 bestimmt wurde. Die Verteilung innerhalb des Atomisators kann damit begründet werden, dass Teilchen, die innerhalb des Atomisators starten, mit einer Wand kollidieren und den Atomisator nicht verlassen, nicht für die Berechnung der Transmission verloren sind. Diese Ionen können erneut innerhalb des Atomisators starten, wobei die erneuten Startpositionen im Atomisator dabei als homogen verteilt angenommen werden. Bei Startpositionen außerhalb des Atomisators reduziert sich die Teilchenzahldichteverteilung $\rho(z)$ gemäß der experimentellen Daten quadratisch zu z . Die beschriebene Teilchenzahldichteverteilung ist links in Abbildung 8.3b) und die Anzahl der transmittierten Ionen unter Beachtung dieser Teilchenzahldichteverteilung rechts dargestellt. Die daraus resultierende Projektion auf die Achse des Potentials des Repellers ist in Abbil-

Abbildung 8.4 in schwarz dargestellt. Zum Vergleich ist ebenfalls in dieser Abbildung der entsprechende Kurvenausschnitt der experimentellen Messung der Laserionisation aus Abbildung 4.2 in rot dargestellt.

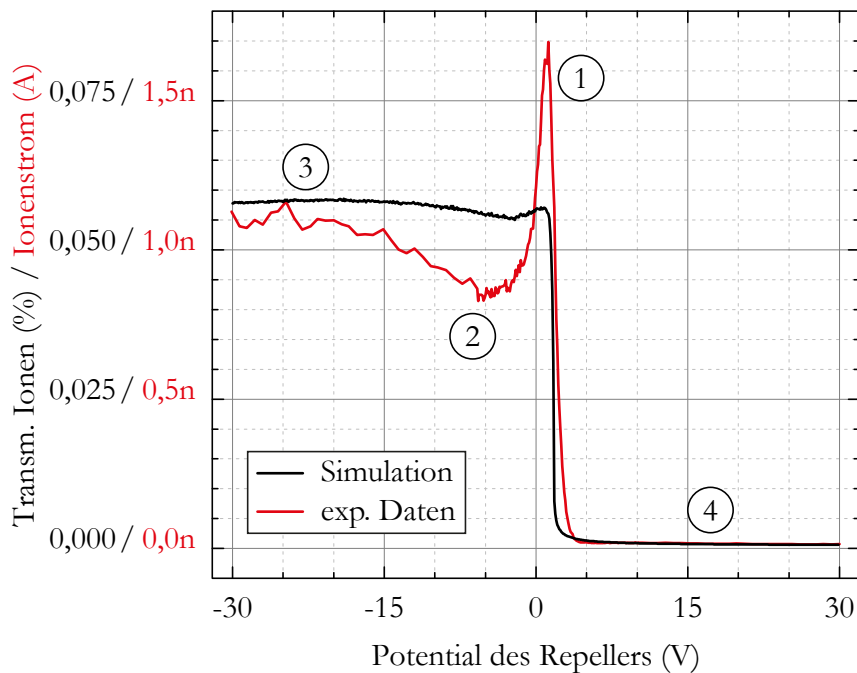


Abbildung 8.4.: Vergleich der Projektion der Simulation aus Abbildung 8.3b) auf die Achse des Potentials des Repellers U_{rep} (schwarz) mit experimentellen Daten eines Repellerscans (rot). Mit Zahlen markiert sind besondere Merkmale des Repellerscans. Nähere Erläuterungen im Text.

Es können vier Merkmale hervorgehoben werden, die auf eine qualitative, aber nicht quantitative Übereinstimmungen zwischen der Simulation und dem Experiment hinweisen:

1. Die Signalspitze bei $U_{\text{rep}} = 0\text{ V}$ ist bei beiden Kurven deutlich erkennbar. Beide erreichen im leicht positiven Spannungsbereich ihren maximalen Wert. Allerdings ist die Signalspitze bei den experimentellen Daten wesentlich stärker ausgeprägt als bei der Simulation. Offensichtlich ist im Experiment die Anzahl der Ionen, die den Atomisator unter einem größeren Winkel zur Symmetrieachse verlassen, größer als angenommen. Abbildung 8.2 zeigt, dass für solche Ionen im Bereich kleiner positiver Spannungen für U_{rep} weniger Verluste vorhanden sind, als bei negativen Spannungen. Als Ursachen könnten unter anderem eine schlechte Justierung des Atomisators oder auch ein thermisches Verziehen des Atomisators in Frage kommen, so dass dieser nicht mehr auf der Symmetrieachse liegt. Weiter ist die rechte abfallende Flanke ungefähr an der gleichen Spannung $U_{\text{rep}} \approx 2\text{ V}$ zu finden.
2. Es existiert ein Minimum bei kleinen negativen Potentialen. Das Minimum ist ebenfalls bei den experimentellen Daten stärker ausgeprägt als bei der Simulation.

8. Simulationsstudie zum Ioneneintritt in die Quadrupolstruktur

Ein Grund für die Abweichungen liegen höchstwahrscheinlich auch in der Winkelverteilung, es könnten die gleichen Ursachen wie bei Merkmal 1 vorliegen.

3. Es bildet sich ein Plateau mit einem flachen, sehr weitläufigen Maximum aus. Das Maximum bei beiden Strukturen liegt zwischen $U_{\text{rep}} = -20 \text{ V}$ und $U_{\text{rep}} = -30 \text{ V}$. Im Fall der experimentellen Daten ist dieser Sachverhalt besser in Abbildung 4.2 zu erkennen.
4. Für positive Potentiale des Repellers erhält man ein niedriges Plateau mit schwach ausgeprägter negativer Steigung. In der Simulation dominiert der quadratische Kehrwert. Einen erheblichen Einfluss der Simulation auf die Abweichungen zu den experimentellen Daten hat offensichtlich die Teilchenzahldichteverteilung $\rho(z)$ und in zweiter Linie die Winkelverteilung.

9. Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen der Aufgabenstellung dieser Arbeit sollte die in Mainz entwickelte Laserionenquellenfalle LIST an der On-line-Isotopenseparatoreinrichtung ISOLDE am CERN implementiert und die Schlüsselparameter der Effizienz und Selektivität im realen Betrieb ermittelt werden.

Für den On-line-Betrieb der LIST wurde der bisher entwickelte Prototyp so angepasst, dass dieser in einer on-line-fähigen Quelleneinheit mit einem Target einbaut werden konnte. Dazu gehörte auch die in Kapitel 3.2.2 beschriebene Anpassung der Elektronik an die bei ISOLDE vorhandene elektrische Infrastruktur. Da die LIST in zwei On-line-Quelleneinheiten mit unterschiedlichen Kernreaktionstargets zur Erzeugung der Radionuklide verwendet wurde, wurden zwei identische LIST-Einheiten erstellt. Für jede dieser Einheiten wurde die Funktionsfähigkeit der LIST und der Transducerbox vor jedem On-line-Einsatz sowohl in Mainz, als auch mit dem entsprechenden Target am Off-line-Testseparator von ISOLDE unter Beisein des dortigen Personals demonstriert. Schlussendlich wurden, wie in Kapitel 5 beschrieben, beide On-line-Einheiten an Messungen von kurzlebigen Nukliden der Elemente Magnesium und Polonium mit ausgezeichneter Unterdrückung von Kontaminationen bei ISOLDE erfolgreich eingesetzt. Durch den erfolgten Know-How-Transfer kann bei ISOLDE die LIST zukünftig eigenständig hergestellt und genutzt werden.

Während des On-line-Einsatzes der LIST bei ISOLDE mit Polonium wurde die Unterdrückung vieler verschiedener Isotope, die eine Kontamination darstellen, überprüft. Es wurde festgestellt, dass einerseits einige Isotope nicht wie andere um mehrere Größenordnungen unterdrückt wurden. Andererseits wurden auch erstmals bei ISOLDE mit der LIST Isotope mit einer Halbwertszeit $t_{1/2} < 1 \mu\text{s}$ nachgewiesen. Bisherige Diskussionen und Überlegungen lassen vermuten, dass beide Effekte die selbe Ursache haben können. Es wird angenommen, dass sich neutrale Mutternuklide sowohl bezüglich der Kontaminationen als auch bezüglich der kurzlebigen Radionuklide auf den Quadrupolstäben ansammeln, hinter der elektrostatischen Barriere des Repellers zerfallen und in einem noch nicht geklärten Prozess ionisiert werden. Um diese Annahme zu überprüfen, wurde ein weiterer Prototyp der LIST, die Narrow-Rod-LIST, entwickelt. Die Quadrupolstäbe besitzen einen Durchmesser von nur noch einem statt zehn Millimeter. Mit der Narrow-Rod-LIST sollte unter diesen Annahmen eine deutliche Verbesserung der Unterdrückung bzw. ein reduzierter Nachweis der kurzlebigen Radionuklide erfolgen. Dieser Prototyp wurde am RISIKO Massenseparator off-line getestet. Es konnten sowohl Ionen im IG- und im LIST-Mode produziert werden, aber aufgrund der Reduzierung des Durchmessers der Quadrupolstäbe wird eine höhere RF-Amplitude benötigt. Der Betrieb der Narrow-

9. Zusammenfassung und Ausblick

Rod-LIST ist für einen Einsatz bei ISOLDE noch nicht zuverlässig genug, um sie dort on-line testen zu können. Weitere Off-line-Tests sind daher notwendig, um eine einwandfreie Funktion der Narrow-Rod-LIST zu zeigen.

Messungen zur Validierung der Ionisationseffizienz der LIST im direkten Vergleich zur bereits etablierten RILIS wurden durchgeführt und ausgewertet. Es konnte reproduzierbar nachgewiesen werden, dass die Effizienz der RILIS und der LIST im IG-Mode unter möglichst gleichen Bedingungen im Rahmen der Messgenauigkeit gleich groß ist. Die Ionisationseffizienz im LIST-Mode ist gegenüber dem IG-Mode der LIST um bis zu einem Faktor 50 reduziert. Die LIST bietet in Anbetracht der in Kapitel 5 beschriebenen Unterdrückungsfaktoren $LSF \geq 1000$ für Kontaminationen für viele Experimente an sehr kurzlebigen Nukliden bei ISOLDE eine ideale Ionenquelle, mit dem Vorteil großer Unterdrückung gegenüber der RILIS.

Die Selektivität wurde unter Off-line-Bedingungen anhand von Repeller-Scans ermittelt. Maßgeblich entscheidend für die Bestimmung der Selektivität waren die ermittelten Unterdrückungsfaktoren LSF der Kontaminationen. Entsprechend kann eine mögliche Steigerung der Selektivität durch Ausschluss falscher Massen innerhalb der LIST erreicht werden. Dazu wurde in Kapitel 7.2 eine detaillierte Simulationsstudie des massenselektiven Betriebs der LIST durchgeführt. Aufgrund der positiven Ergebnisse dieser Simulationsstudie wurde der massenselektive Betrieb, wie in Kapitel 7.2.3 beschrieben, testweise realisiert, wozu geringe Modifikationen nötig waren. Eine erfolgreiche Selektion einzelner Massen vor Verlassen der Ionenquelle wurde in Kapitel 7.2.4 anhand der Kalium-Isotope gezeigt.

Darüber hinaus wurden Laufzeitmessungen der Ionen während des On-line-Betriebs mit der LIST aufgenommen. Diese zeigten unerwartete Strukturen. Aufgrund der limitierten Messdauer während der On-line-Messungen wurden die Zeitstrukturmessungen am Mainzer RISIKO Massenseparator mit der RILIS wiederholt und in Kapitel 7.1.1 zunächst näher untersucht. Diese recht komplexe Zeitstruktur konnte mit Hilfe eines Rechenmodells analysiert und erklärt werden. Allein aus der Zeitstruktur der RILIS konnte man zusätzliche qualitative Rückschlüsse bezüglich der Selektivität für die LIST ziehen, da trotz Massenseparation mit dem Separationsmagneten Kontaminationen mit falscher Masse nachgewiesen wurden. Weiter lieferte die Analyse der Zeitstruktur wichtige Informationen zur Größe des Bereichs, in dem innerhalb der LIST Ionen im LIST-Mode erzeugt werden können.

Die Selektivität ist bisher nur durch die Bestimmung des LSF mit dem Repellerscan und durch Massenspektren qualitativ erfolgt. Die Bestimmung der absoluten Selektivität ist wesentlich aufwendiger und muss on-line erfolgen, da nur radioaktive Isotope durch ihre Zerfallsprozesse und -energien identifiziert werden können. Aus Zeitgründen konnten on-line bei ISOLDE bisher keine exakten Werte für die Selektivität bestimmt werden. Hierzu müssen weitere Messungen durchgeführt werden, um die Selektivität der LIST numerisch zu bestimmen.

Für den massenselektive Betrieb zur möglichen Verbesserung der Selektivität besteht noch Optimierungsbedarf in der Ansteuerung der Amplitude des RF-Potentials und der Gleichspannung. Üblicherweise muss beim Betrieb der LIST ohne Gleichspannung die RF-Spannung nicht wesentlich variiert werden, aber im Falle der Bestimmung des Stabilitätsdiagramms wurde bemerkt, dass das RF-Potential nicht eindeutig reproduzierbar eingestellt werden kann. Die Leistung des Verstärkers, der das RF-Signal für die Transformation in der Transducerbox verstärkt, reduziert sich im statischen Betrieb innerhalb von 1 bis 2 Minuten geringfügig. Daher musste für die Massenspektren das RF-Potential nachträglich korrigiert werden. Unter Verfügbarkeit geeigneterer Gleichspannungsnetzteile kann noch eine Verbesserung der Auflösung des Stabilitätsbereichs und eine genauere Wahl der Gleichspannungsparameter bestimmt werden.

Weiter wurde bei der Validierung der Effizienzmessungen mit der LIST ein Sättigungsverhalten bezüglich der Transmission der Ionen durch die LIST festgestellt. Damit die Effizienzmessungen nicht beeinflusst werden, wurde mit einem verringerten Ionenstrom gemessen. Um zukünftig Probleme mit der LIST zu vermeiden, sollte das Sättigungsverhalten durch zukünftige Arbeiten untersucht und verstanden werden. Weitere Entwicklungsmöglichkeiten der LIST werden sich aus den Erfahrungen im praktischen Einsatz bei ISOLDE ergeben.

A. Weitere RILIS Effizienzmessungen

Die sechs in Tabelle A.1 zusammengefassten Messergebnisse weisen im Vergleich zu den Messungen aus Kapitel 6.2.1 eine höhere Effizienz auf, die möglicherweise durch eine größere Öffnung der Repeller-Elektrode des Faraday-Bechers oder mit weiter geöffneten Schlitzten erreicht wurde. Die Effizienzen dieser Messungen wurden auch um den Faktor $1/1,7$ korrigiert, da der dort beschriebene Defekt anzunehmen ist. Die Graphen sind in den Abbildungen A.1 bis A.6 dargestellt. Die Effizienzmessungen unterliegen wesentlich größeren Schwankungen, da mit unterschiedlichen Probengrößen, Heizschritten des Mass-Markers und Positionierungen der Probe im Mass-Marker experimentiert wurde. Des Weiteren wurden diese Messungen bei einem höheren Heizstrom des Atomisators mit 300 A durchgeführt als bei den Messungen in Kapitel 6.2.1 mit 280 A.

Nr.	Probengröße (Atome)	ohne Berücksichtigung des Untergrunds	mit Berücksichtigung des Untergrunds	Mittelwert
RILIS A	$(1,747 \pm 0,044) \cdot 10^{15}$	24,7 %	24,3 %	17 % \pm 5 %
RILIS B	$(1,747 \pm 0,044) \cdot 10^{15}$	16,3 %	16,0 %	
RILIS C	$(1,747 \pm 0,044) \cdot 10^{15}$	11,6 %	11,4 %	
RILIS D	$(1,747 \pm 0,044) \cdot 10^{15}$	12,2 %	11,9 %	
RILIS E	$(1,747 \pm 0,044) \cdot 10^{15}$	21,9 %	21,6 %	
RILIS F	$(1,747 \pm 0,044) \cdot 10^{16}$	16,0 %	15,7 %	

Tabelle A.1.: Zusammenfassung vorhergehender RILIS Effizienzmessungen nach einer Korrektur um den Faktor $1/1,7$ aufgrund der fehlenden Gegenspannung des Faraday Bechers.

A. Weitere RILIS Effizienzmessungen

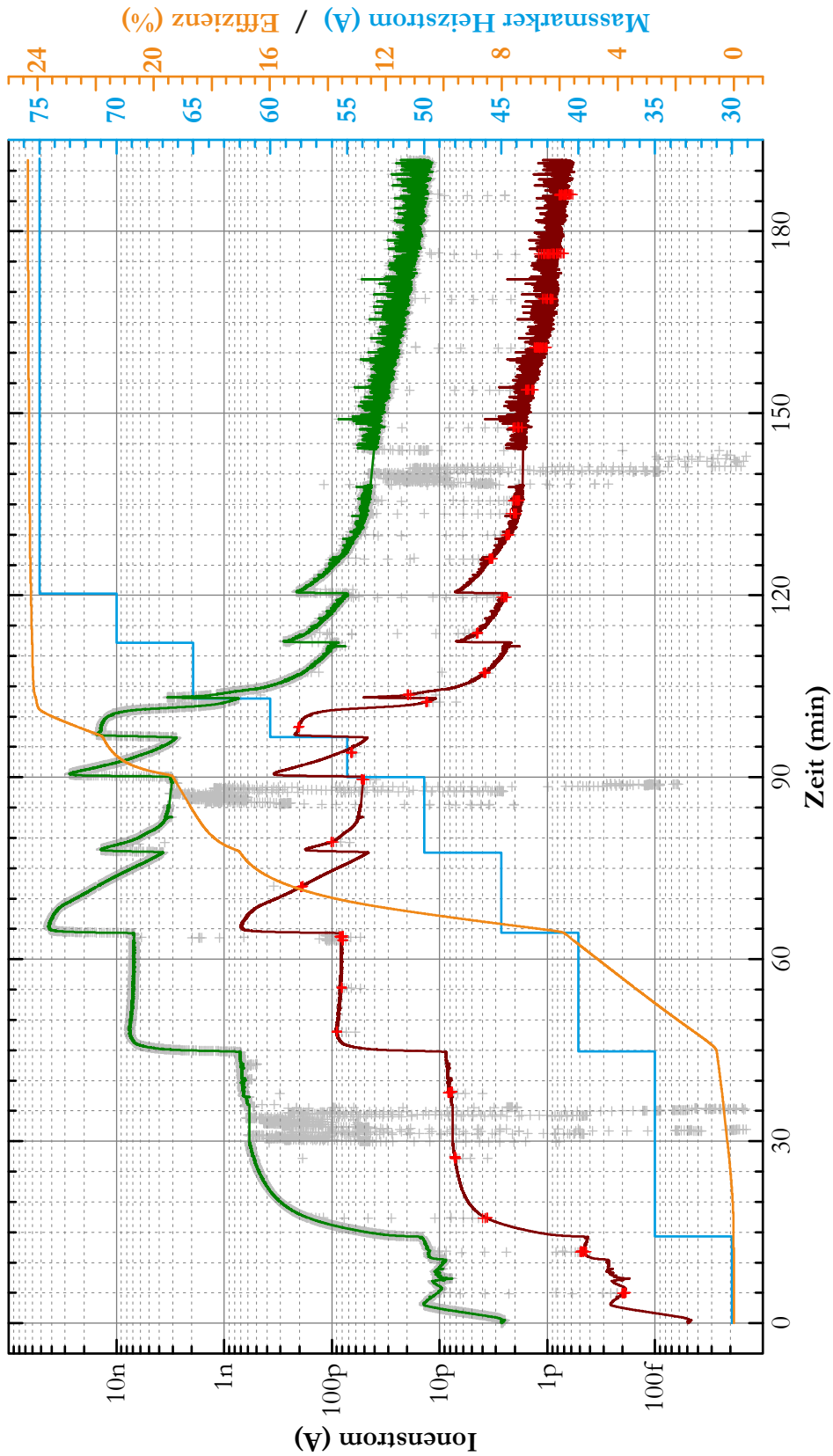


Abbildung A.1.: Effizienzmessung von Ytterbium an dem Isotop $^{174}_{70}\text{Yb}$. Die Rohdaten sind durch graue Kreuze und Messpunkte zur Untergrundmessungen durch rote Kreuze dargestellt. Die rote Linie beschreibt das berechnete Untergrundsignal und die grüne Linie das Signal der Effizienzmessung. Die blaue Linie beschreibt den Heizstrom des Mass-Markers und die orangene Linie den Verlauf der Effizienzbestimmung. Die violetten Bereiche kennzeichnen besondere Vorkommnisse, die im Text erläutert werden.

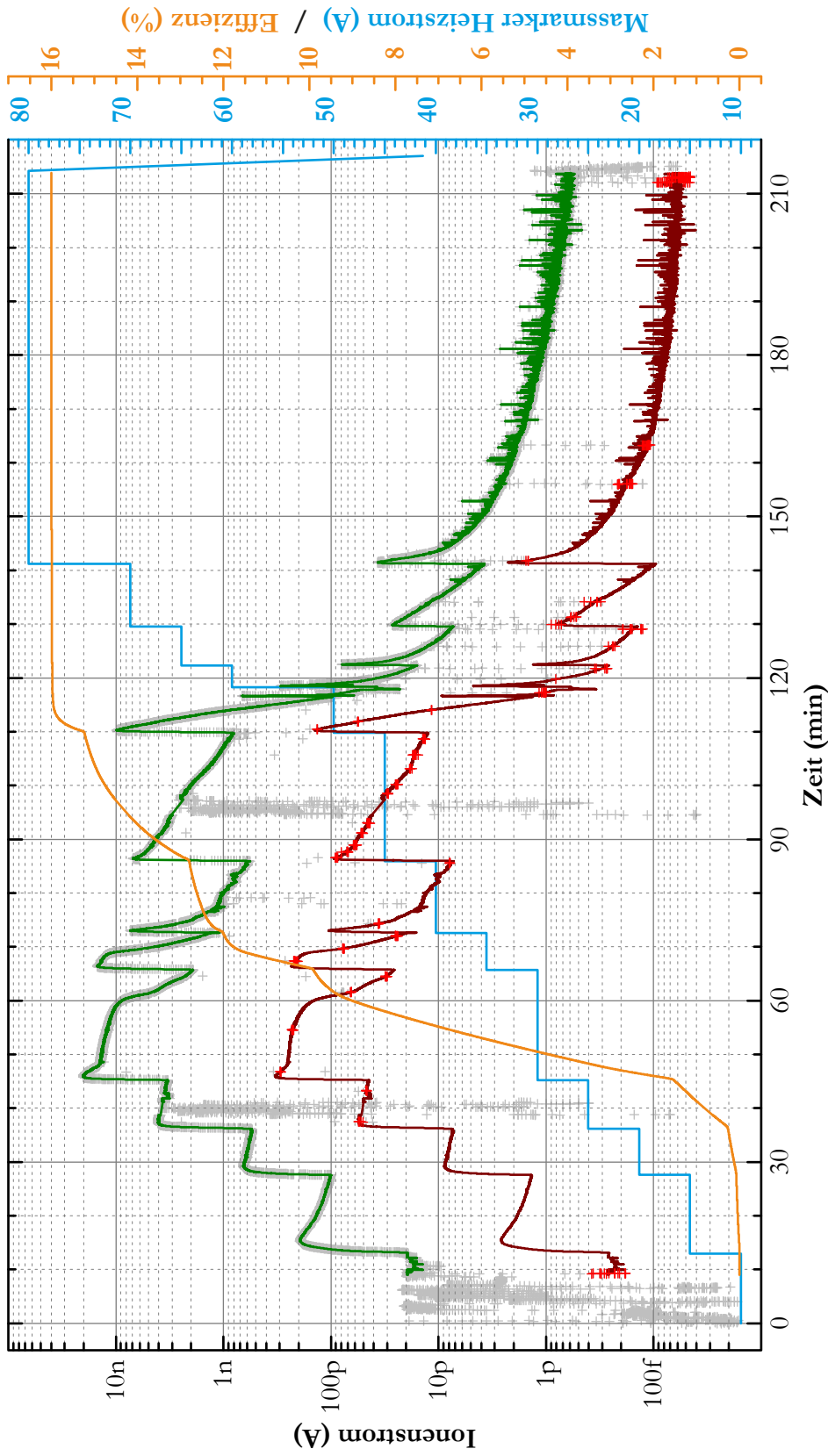


Abbildung A.2.: Effizienzmessung von Ytterbium an dem Isotop $^{174}_{70}\text{Yb}$. Die Rohdaten sind durch graue Kreuze und Messpunkte zur Untergrundmessungen durch rote Kreuze dargestellt. Die rote Linie beschreibt das berechnete Untergrundsignal und die grüne Linie das Signal der Effizienzmessung. Die blaue Linie beschreibt den Heizstrom des Mass-Markers und die orangene Linie den Verlauf der Effizienzbestimmung. Die violetten Bereiche kennzeichnen besondere Vorkommnisse, die im Text erläutert werden.

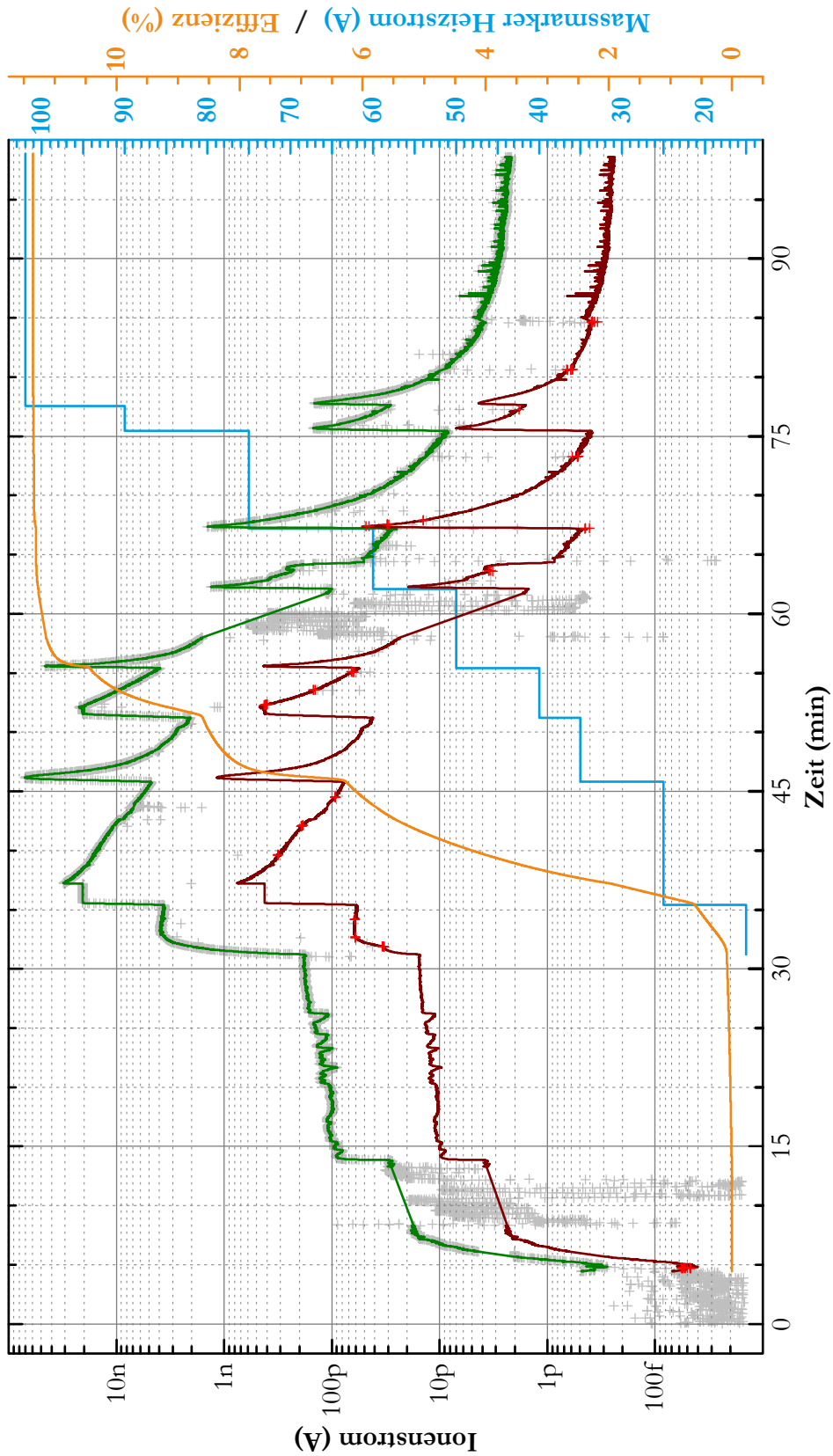


Abbildung A.3.: Effizienzmessung von Ytterbium an dem Isotop $^{174}_{70}\text{Yb}$. Die Rohdaten sind durch graue Kreuze und Messpunkte zur Untergrundmessungen durch rote Kreuze dargestellt. Die rote Linie beschreibt das berechnete Untergrundsignal und die grüne Linie das Signal der Effizienzmessung. Die blaue Linie beschreibt den Heizstrom des Mass-Markers und die orangene Linie den Verlauf der Effizienzbestimmung. Die violetten Bereiche kennzeichnen besondere Vorkommnisse, die im Text erläutert werden.

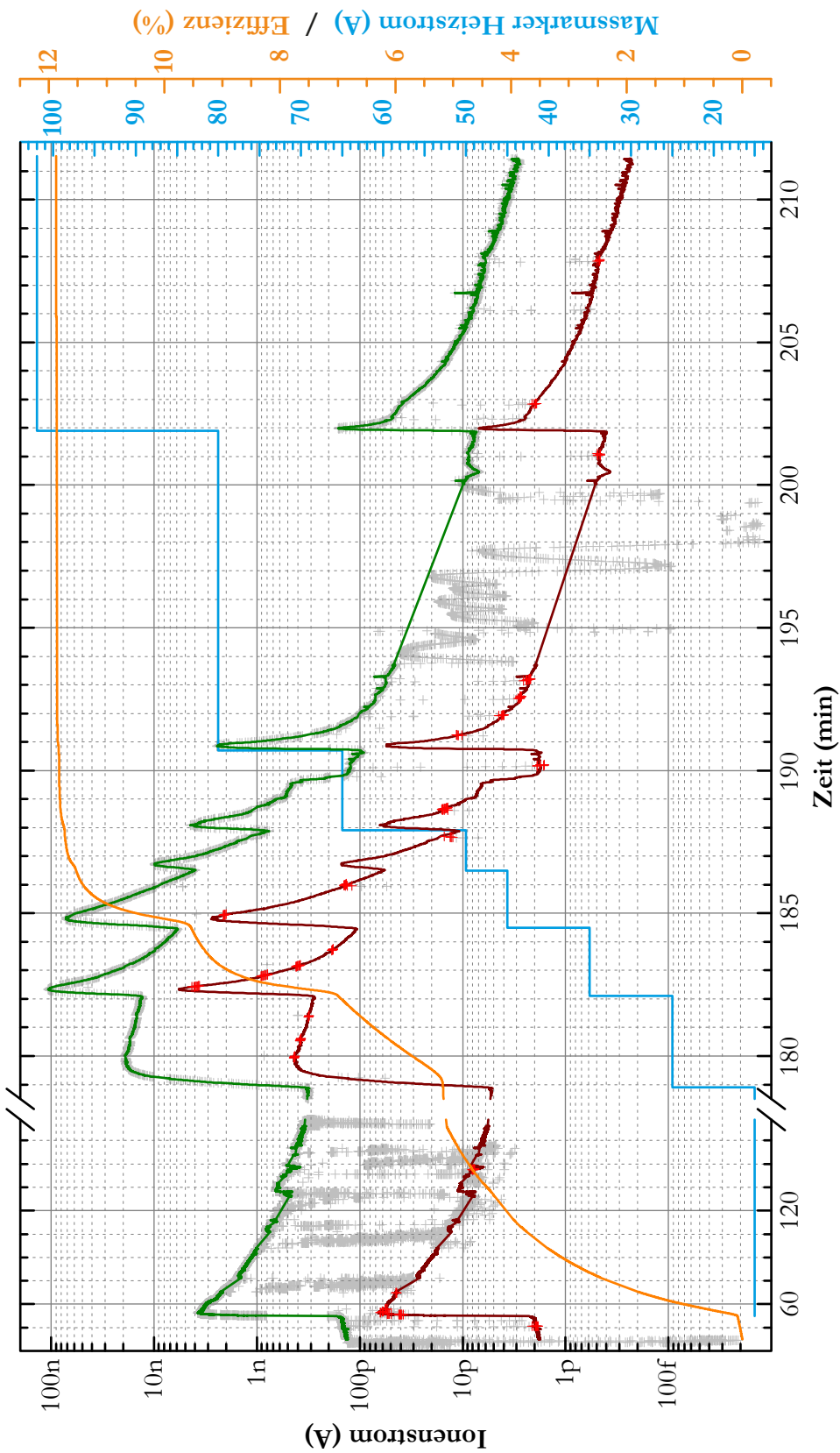


Abbildung A.4.: Effizienzmessung von Ytterbium an dem Isotop $^{174}_{70}\text{Yb}$. Die Rohdaten sind durch graue Kreuze und Messpunkte zur Untergrundmessungen durch rote Kreuze dargestellt. Die rote Linie beschreibt das berechnete Untergrundsignal und die grüne Linie das Signal der Effizienzmessung. Die blaue Linie beschreibt den Heizstrom des Mass-Markers und die orangene Linie den Verlauf der Effizienzbestimmung. Die violetten Bereiche kennzeichnen besondere Vorkommnisse, die im Text erläutert werden.

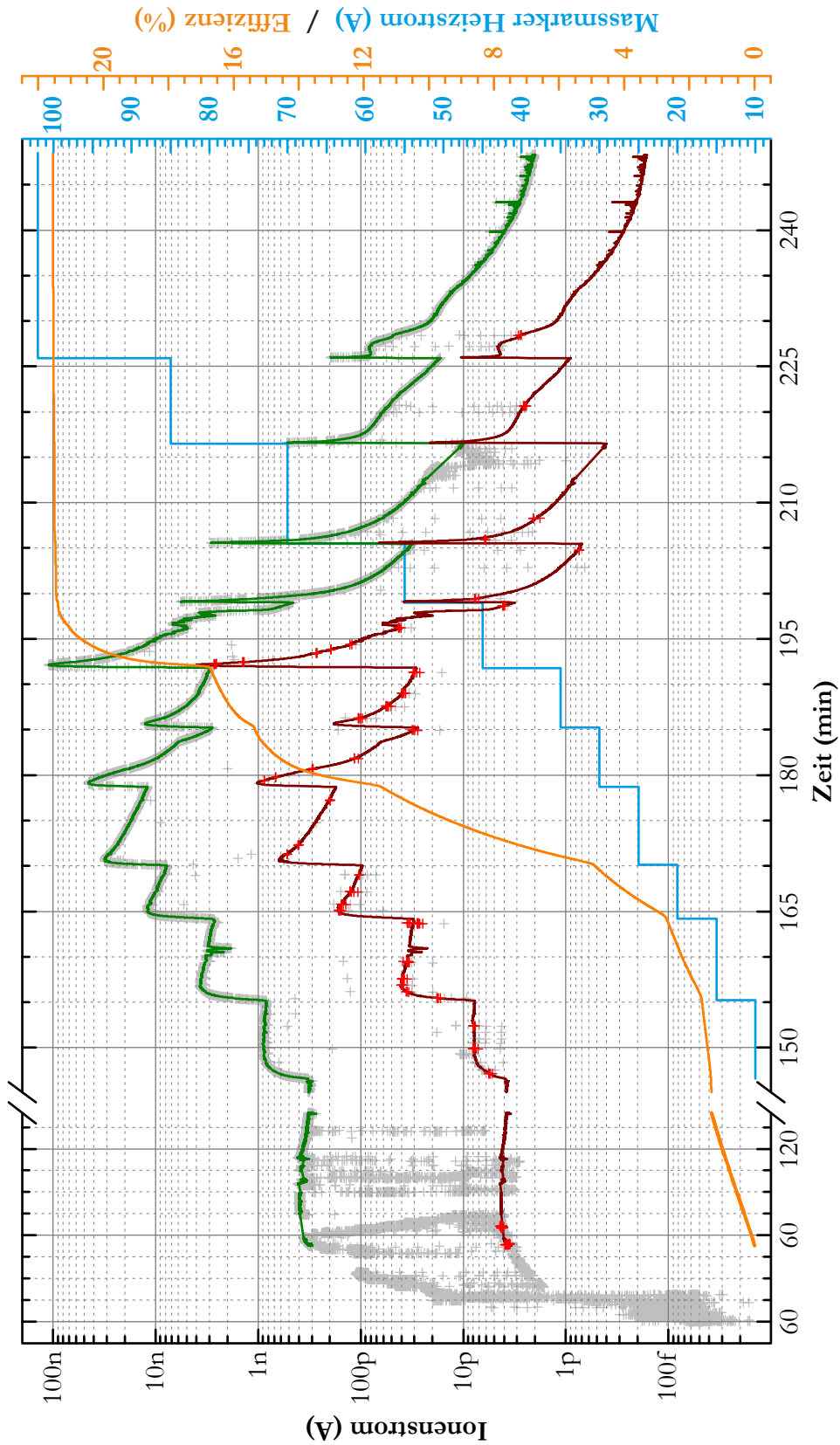


Abbildung A.5.: Effizienzmessung von Ytterbium an dem Isotop $^{174}_{70}\text{Yb}$. Die Rohdaten sind durch graue Kreuze und Messpunkte zur Untergrundmessungen durch rote Kreuze dargestellt. Die rote Linie beschreibt das berechnete Untergrundsignal und die grüne Linie das Signal der Effizienzmessung. Die blaue Linie beschreibt den Heizstrom des Mass-Markers und die orangene Linie den Verlauf der Effizienzbestimmung. Die violetten Bereiche kennzeichnen besondere Vorkommnisse, die im Text erläutert werden.

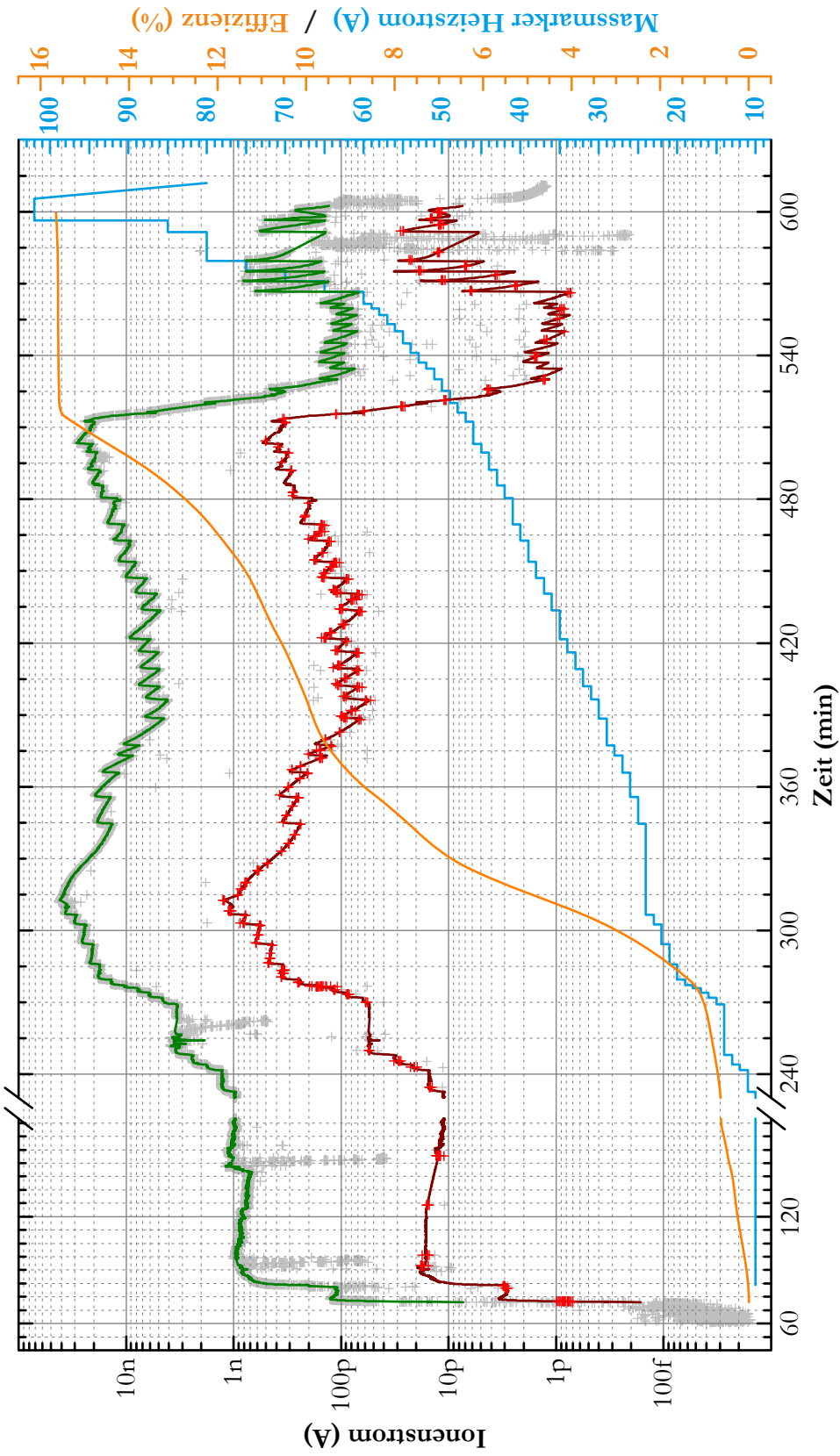


Abbildung A.6.: Effizienzmessung von Ytterbium an dem Isotop $^{174}_{70}\text{Yb}$. Die Rohdaten sind durch graue Kreuze und Messpunkte zur Untergrundmessungen durch rote Kreuze dargestellt. Die rote Linie beschreibt das berechnete Untergrundsignal und die grüne Linie das Signal der Effizienzmessung. Die blaue Linie beschreibt den Heizstrom des Mass-Markers und die orangene Linie den Verlauf der Effizienzbestimmung. Die violetten Bereiche kennzeichnen besondere Vorkommnisse, die im Text erläutert werden.

B. Datenübersicht

In der Tabelle B.1 sind für alle Abbildungen die Dateien aufgelistet, die durch eine automatische Datenaufnahme oder Simulation die Rohdaten beinhalten, und/oder die Dateien, in denen Rohdaten verarbeitet oder nachbearbeitet und Graphen erstellt wurden, sowie theoretische Berechnungen ausgeführt sind.

Abbildung	Rohdaten	Verarbeitung / Berechnungen
2.14 - 2.15	\Messungen\RISIKO\LIST\Simulationen und Rechnungen\ - - - - -	stabilitätsbereiche.nb
4.2	\Messungen\T + LIST@CERN\LIST@ISOLDE-201102.offline_run\ electronics_scansLIST_2011-02-08.18-16-47.txt electronics_scansLIST_2011-02-08.18-22-05.txt	Repellerscans.opj
5.4	\Messungen\T + LIST@CERN\LIST@ISOLDE-201105.online_run\timestructure\ ScanHistoTrace00004.xls ScanHistoTrace00000.xls ScanHistoTrace00009.xls	all_timestructures.opj
5.8	\Messungen\T + LIST@CERN\LIST@ISOLDE-201209.online_run\repellerscans\20120909\ - - - - -	Repeller&RFscans.opj
6.1	\Messungen\RISIKO\RISIKO 2014\Yb Effizienzmessungen\ Laserscan20120620_210647.rsk	laserscan_gitter.opj
6.3	massscan20140203_192315.rsk massscan20140203_185500.rsk	Massenscans.opj
6.4	massscan20140303_215319.rsk massscan20140303_222546.rsk	Massenscans.opj
6.6	\Messungen\RISIKO\RISIKO 2014\Yb Effizienzmessungen\Peakverlauf Ho\ massscan20140922_133145.rsk massscan20140922_134040.rsk massscan20140922_134858.rsk massscan20140922_135721.rsk massscan20140922_140804.rsk massscan20140922_141735.rsk massscan20140922_142735.rsk	nachbarmasseneinfluss.opj

B. Datenübersicht

Abbildung	Rohdaten	Verarbeitung / Berechnungen
6.7	\Messungen\RISIKO\RISIKO 2014\Yb Effizienzmessungen\ - - - - -	
		saettigungsmessung.qti saettigungsmessung2.qti
6.8 - 6.10	efficiency20140123.104805.rsk efficiency20140124.160827.rsk efficiency20140130.230815.rsk	background_effizienz_rilis.xlsx efficiencies_RILIS.opj
6.11 - 6.13	efficiency20140316.110851.rsk efficiency20140317.090400.rsk efficiency20140317.151449.rsk	background_effizienz_list.xlsx efficiencies_LIST.opj
6.14	\Messungen\RISIKO\RISIKO 2012 - 2013\2012-07\ massscan20120528.194506.rsk	
		breiter massenscan.opj
6.15 - 6.18	\Messungen\RISIKO\RISIKO 2014\Yb Effizienzmessungen\ efficiency20140319.151509.rsk efficiency20140320.100426.rsk efficiency20140321.093832.rsk efficiency20140322.111212.rsk	
		background_effizienz_list.xlsx efficiencies_LIST.opj
7.1 - 7.2	\Messungen\RISIKO\RISIKO 2012 - 2013\2013-06_06_07_Timestructure\ 20130808.122618_B440948.174.245.asc 20130808.201251_B448474.180.245.asc	
		20130809_time_vs_mass_WIDE_RANGE.opj
7.3	\Messungen\RISIKO\RISIKO 2012 - 2013\2013-06_06_07_Timestructure\ massscan20130808.061106.rsk massscan20130808.100604.rsk 20130808.122618_B440948.174.245.asc ... (insgesamt 214 Dateien) 20130809.025805_B496825.221.205.asc	
		20130808_massscan.opj 20130809_time_vs_mass_WIDE_RANGE.opj
7.4 + 7.6	\Messungen\RISIKO\LIST\Simulationen und Rechnungen\ - - - - -	
		potential_risiko.mph
7.5 + 7.7 + 7.8	- - - - -	
	\Messungen\RISIKO\RISIKO 2012 - 2013\2013-06_06_07_Timestructure\ - - - - -	
		20130809_time_vs_mass_WIDE_RANGE.opj
7.9 + 7.11 - 7.16	\Messungen\RISIKO\LIST\Simulationen und Rechnungen\ - - - - -	
		LIST processed and extractor.gem LIST processed and extractor longLINE.lua LIST processed and extractor longLINE*.lua LIST processed and extractor longLINE.iob stab3eck_simulation_vs_theorie.opj

Abbildung	Rohdaten	Verarbeitung / Berechnungen
7.18	\Messungen\RISIKO\RISIKO2014\Yb LIST\massenselektiver betrieb\ Stabilitätsdreieck_scan.20140417.200105.rsk	stab3eck_simulation_vs.theorie.opj
7.19	Stabilitätsdreieck_scan.20140415.160000.rsk Stabilitätsdreieck_scan.20140415.164640.rsk	stab3eck_simulation_vs.theorie.opj
7.20	massscan20140418.095113.rsk massscan20140418.103332.rsk massscan20140418.091524.rsk	stab3eck_simulation_vs.theorie.opj
A.1 - A.6	\Messungen\RISIKO\RISIKO 2012 - 2013\2012-01 Effizienzmessung Yb\ efficiency20120118.171817.rsk efficiency20120123.140458.rsk efficiency20120131.100019.rsk efficiency20120202.161212.rsk efficiency20120203.144946.rsk efficiency20120209.095532.rsk	background.effizienz.rilis.alt.xlsx efficiencies_RILIS.alt.opj

Tabelle B.1.: Zusammenstellung der Messdateien

Literaturverzeichnis

- [ABF75] ARMSTRONG, Lloyd ; BEERS, Brian L. ; FENEUILLE, Serge: Resonant multi-photon ionization via the Fano autoionization formalism. In: *Phys. Rev. A* 12 (1975), Nov, 1903–1910. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.12.1903>
- [BC91] BUTCHER, Paul N. ; COTTER, David: *The Elements of Nonlinear Optics*. Cambridge University Press, 1991. – ISBN 9780521424240
- [BGK⁺03] BLAUM, Klaus ; GEPPERT, Christopher ; KLUGE, Hans-Jürgen ; MUKHERJEE, M. ; SCHWARZ, S. ; WENDT, Klaus: A novel scheme for a highly selective laser ion source. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 204 (2003), Nr. 0, 331 - 335. [http://dx.doi.org/10.1016/S0168-583X\(02\)01942-0](http://dx.doi.org/10.1016/S0168-583X(02)01942-0). – ISSN 0168–583X. – 14th International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Techniques Related to their Applications
- [Bio14] BIOHIT PLC.: *Proline Instruction Manual*. 400204.04. Laipatie 1, 00880 Helsinki, Finland, 2014
- [Boy03] BOYD, R.W.: *Nonlinear Optics*. Elsevier Science, 2003. – ISBN 9780080479750
- [Coc14] COCOLIOS, Thomas E.: *Study of polonium isotopes ground state properties by simultaneous atomic- and nuclear-spectroscopy*. Website, 2014. – Online verfügbar unter <http://cds.cern.ch/record/1642843/files/INTC-P-222-ADD-2.pdf?version=1>; Stand: Juli 2014
- [Dem07] DEMTRÖDER, Wolfgang: *Laserspektroskopie : Grundlagen und Techniken*. 5., erw. u. neubearb. Aufl. Springer Berlin Heidelberg, 2007. – ISBN 978–3–540–33792–8
- [Dem10] DEMTRÖDER, Wolfgang: *Experimentalphysik 3 : Atome, Moleküle und Festkörper*. 4. Aufl. Springer Berlin Heidelberg, 2010. – ISBN 978–3–642–03910–2
- [Dre68] DRESSER, M. J.: The Saha-Langmuir Equation and its Application. In: *Journal of Applied Physics* 39 (1968), Nr. 1, 338-339. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1655755>

- [FBF⁺12] FEDOSSEEV, V. N. ; BERG, L.-E. ; FEDOROV, D. V. ; FINK, D. ; LAUNILA, O. J. ; LOSITO, R. ; MARSH, B. A. ; ROSSEL, R. E. ; ROTHE, S. ; SELIVERSTOV, M. D. ; SJÖDIN, A. M. ; WENDT, K. D. A.: Upgrade of the resonance ionization laser ion source at ISOLDE on-line isotope separation facility: New lasers and new ion beamsa). In: *Review of Scientific Instruments* 83 (2012), Nr. 2. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3662206>
- [FCA⁺15] FINK, D.A. ; COCOLIOS, T.E. ; ANDREYEV, A.N. ; ANTALIC, S. ; BARZAKH, A.E. ; BASTIN, B. ; FEDOROV, D.V. ; FEDOSSEEV, V.N. ; FLANAGAN, K.T. ; GHYS, L. ; GOTTBORG, A. ; HUYSE, M. ; IMAI, N. ; KRON, T. ; LECESNE, N. ; LYNCH, K.M. ; MARSH, B.A. ; PAUWELS, D. ; RAPISARDA, E. ; RICHTER, S.D. ; ROSSEL, R.E. ; ROTHE, S. ; SELIVERSTOV, M.D. ; SJÖDIN, A.M. ; VAN BEVEREN, C. ; VAN DUPPEN, P. ; WENDT, K.D.A.: In-Source Laser Spectroscopy with the Laser Ion Source and Trap: First Direct Study of the Ground-State Properties of ^{217,219}Po. In: *Phys. Rev. X* 5 (2015), Feb, 011018. [10.1103/PhysRevX.5.011018](https://doi.org/10.1103/PhysRevX.5.011018)
- [Fin14] FINK, Daniel: *Improving the Selectivity of the ISOLDE Resonance Ionization Laser Ion Source and In-Source Laser Spectroscopy of Polonium*, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, Diss., 2014
- [Fra13] FRANZMANN, Michael: *Resonanzionisations-Massenspektrometrie an Aktiniden mit der Mainzer Atomstrahlquelle MABU*, Institut für Physik, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Diplomarbeit, 2013
- [Gil10] GILES, Tim: *The new Fast TapeStation at Isolde*. ISOLDE Workshop and Users meeting 2010. <http://indico.cern.ch/event/107080/session/6/contribution/27>. Version: 2010
- [GLL⁺09] GOTTWALD, T. ; LASSEN, J. ; LIU, Y. ; MATTOLAT, C. ; RAEDER, S. ; WENDT, K.: Laser Resonance Ionization Spectroscopy of the Lanthanides Tb, Dy and Ho as Homologues to Actinides and Super Heavy Elements. In: *AIP Conference Proceedings* 1104 (2009), Nr. 1, 138-143. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3115590>
- [Hig14] HIGH FINESSE: *HighFinesse, Wavelength meter Produkt Broschüre*. Website: pdf, 2014. – Online verfügbar unter http://www.highfinesse.com/Brochure/LowRes/HighFinesse_Product_Brochure.pdf; Stand: Dezember 2014
- [ISO14a] ISOLDE: *RILIS Elements Database*. Website, 2014. – Online verfügbar unter <https://riliselements.web.cern.ch/riliselements/>; Stand: Juli 2014
- [ISO14b] ISOLDE: *Targets and Separators*. Website, 2014. – Online verfügbar unter <http://isolde.web.cern.ch/targets-and-separators>; Stand: April 2014

- [KAB⁺96] KUDRYAVTSEV, Yuri ; ANDRZEJEWSKI, Józef ; BIJNENS, Nathalie ; FRANCHOO, Serge ; GENTENS, Johnny ; HUUSE, Mark ; PIECHACZEK, Andreas ; SZERYPO, Jurek ; REUSEN, Ils ; VAN DUPPEN, Piet ; VAN DEN BERGH, Paul ; VERMEEREN, Ludo ; WAUTERS, Jan ; WÖHR, Andreas: Beams of short lived nuclei produced by selective laser ionization in a gas cell. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 114 (1996), Nr. 3–4, 350 - 365. [http://dx.doi.org/10.1016/0168-583X\(96\)00194-2](http://dx.doi.org/10.1016/0168-583X(96)00194-2). – ISSN 0168–583X
- [Kar01] KARCHER, Ruth: *Lexikon der Chemie*. <http://www.spektrum.de/lexikon/chemie/ytterbium/10043>. Version: 2001
- [Kro13] KRON, Tobias: *Linewidth Control in High-Repetition Rate Titanium-Sapphire Lasers*. 2013
- [LBLP07] LAVOIE, J.P. ; BRICAULT, P. ; LASSEN, J. ; PEARSON, M.R.: Segmented linear radiofrequency quadrupole/laser ion source project at TRIUMF. In: *Hyperfine Interactions* 174 (2007), Nr. 1-3, 33-39. <http://dx.doi.org/10.1007/s10751-007-9561-0>. – ISSN 0304–3843
- [LCD⁺97] LETTRY, J. ; CATHERALL, R. ; DRUMM, P. ; DUPPEN, P. V. ; EVENSEN, A.H.M. ; FOCKER, G.J. ; JOKINEN, A. ; JONSSON, O.C. ; KUGLER, E. ; RAVN, H.: Pulse shape of the {ISOLDE} radioactive ion beams. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 126 (1997), Nr. 1–4, 130 - 134. [http://dx.doi.org/10.1016/S0168-583X\(96\)01025-7](http://dx.doi.org/10.1016/S0168-583X(96)01025-7). – ISSN 0168–583X. – International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Techniques Related to Their Applications
- [LCK⁺03] LETTRY, J. ; CATHERALL, R. ; KÖSTER, U. ; GEORG, U. ; JONSSON, O. ; MARZARI, S. ; FEDOSSEEV, V.: Alkali suppression within laser ion-source cavities and time structure of the laser ionized ion-bunches. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 204 (2003), Nr. 0, 363 - 367. [http://dx.doi.org/10.1016/S0168-583X\(02\)01967-5](http://dx.doi.org/10.1016/S0168-583X(02)01967-5). – ISSN 0168–583X. – 14th International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and Techniques Related to their Applications
- [Lie08] LIEBL, Helmut: *Applied Charged Particle Optics*. Springer Verlag, 2008. – ISBN 978–3–540–71925–0
- [LK25] LANGMUIR, Irving ; KINGDON, K. H.: Thermionic Effects Caused by Vapours of Alkali Metals. In: *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 107 (1925), Nr. 741, 61–79. <http://dx.doi.org/10.1098/rspa.1925.0005>. – ISSN 0950–1207

- [LWY71] LEE-WHITING, G.E. ; YAMAZAKI, L.: Semi-analytical calculations for circular quadrupoles. In: *Nuclear Instruments and Methods* 94 (1971), Nr. 2, 319 - 332. [http://dx.doi.org/10.1016/0029-554X\(71\)90587-8](http://dx.doi.org/10.1016/0029-554X(71)90587-8)
- [McL47] MCLACHLAN, N.W.: *Theory and Applications of Mathieu Functions*. Clarendon Press, Oxford, 1947
- [Mes05] MESCHÉDE, Dieter: *Optik, Licht und Laser*. Teubner B.G. GmbH, 2005 <http://www.springer.com/us/book/9783835101432>. – ISBN 3519132486
- [Mit01] MITTLER, Kay: *Dynamik vibronischer Festkörperlaser großer spektraler Bandbreite*, Universität Potsdam, Diss., 2001
- [MKS+10] MOORE, I.D. ; KESSLER, T. ; SONODA, T. ; KUDRYAVSTEV, Y. ; PERÄJÄRVI, K. ; POPOV, A. ; WENDT, K.D.A. ; ÄYSTÖ, J.: A study of on-line gas cell processes at IGISOL. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 268 (2010), Nr. 6, 657 - 670. <http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2009.12.001>. – ISSN 0168-583X
- [MS54] MEIXNER, Josef ; SCHÄFKE, Friedrich W.: *Grundlehren Mathematische Wissenschaften*. Bd. 71: *Mathieusche Funktionen und Sphäroidfunktionen mit Anwendung auf physikalische und technische Probleme*. Springer, 1954
- [MYI+92] MORITA, K. ; YOSHIDA, A. ; INAMURA, T.T. ; KOIZUMI, M. ; NOMURA, T. ; FUJIOKA, M. ; SHINOZUKA, T. ; MIYATAKE, H. ; SUEKI, K. ; KUDO, H. ; NAGAI, Y. ; TORIYAMA, T. ; YOSHIMURA, K. ; HATSUKAWA, Y.: RIKEN isotope separator on-line GARIS/IGISOL. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 70 (1992), Nr. 1-4, 220 - 225. [http://dx.doi.org/10.1016/0168-583X\(92\)95935-K](http://dx.doi.org/10.1016/0168-583X(92)95935-K). – ISSN 0168-583X
- [Nat14] NATIONAL INSTITUTE OF STANDARDS AND TECHNOLOGY: *NIST Atomic Spectra Database Levels*. Website, 2014. – Online verfügbar unter http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/levels_form.html; Stand: Oktober 2014;
- [Nuc14] NUCLEONICA DATABASE, EUROPEAN ATOMIC ENERGY COMMUNITY: *Nucleonica Database*. Website, 2014. – Online verfügbar für registrierte Benutzer unter <http://www.nucleonica.net/Application/NuclideExplorerForm.aspx>; Stand: Oktober 2014;
- [Oly14] OLYMPUS MICROSCOPY RESOURCE CENTER: *Ti:Sapphire Mode-Locked Lasers*. Website, 2014. – Online verfügbar unter <http://www.olympusmicro.com/primer/java/lasers/tsunami/>; Stand: Juli 2014

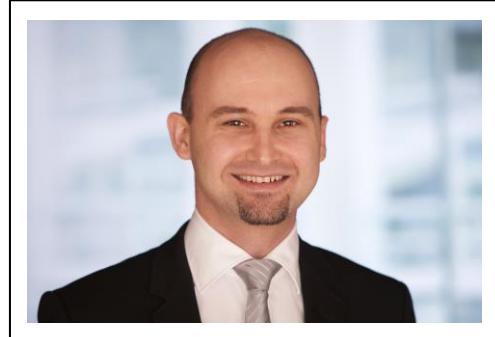
- [Pie54] PIERCE, John R.: *Theory and Design of Electron Beams*. Van Nostrand Company, 1954 (The Bell Telephone Laboratories Series)
- [PR55] PAUL, Wolfgang ; RAETHER, M.: Das elektrische Massenfilter. In: *Zeitschrift für Physik* 140 (1955), Nr. 3, S. 262–273
- [PS53] PAUL, Wolfgang ; STEINWEDEL, Helmut: Ein neues Massenspektrometer ohne Magnetfeld. In: *Zeitschrift für Naturforschung* 8 A (1953), Nr. 7, S. 448–450
- [Rae14] RAEDER, Sebastian: *Wavelength Overview*. Email-Korrespondenz, 01. Juli 2014
- [RHS⁺12] RAEDER, Sebastian ; HAKIMI, Amin ; STÖBENER, Nils ; TRAUTMANN, Norbert ; WENDT, Klaus: Detection of plutonium isotopes at lowest quantities using in-source resonance ionization mass spectrometry. In: *Analytical and Bioanalytical Chemistry* 404 (2012), Nr. 8, 2163–2172. <http://dx.doi.org/10.1007/s00216-012-6238-6>
- [Ric14] RICHTER, Sven: LIST Construction Manual. In: *CERN Technical Note* (2014)
- [RLC⁺13] RAJABALI, M.M. ; LYNCH, K.M. ; COCOLIOS, T.E. ; BILLOWES, J. ; BISSELL, M.L. ; DE SCHEPPER, S. ; DEWOLF, K. ; FLANAGAN, K.T. ; LE BLANC, F. ; MARSH, B.A. ; MASON, P.J.R. ; MATEA, I. ; NEYENS, G. ; PAPUGA, J. ; PROCTER, T.J. ; ROTHE, S. ; SIMPSON, G.S. ; SMITH, A.J. ; STROKE, H.H. ; VERNEY, D. ; WALKER, P.M. ; WENDT, K. ; WOOD, R.T.: A dedicated decay-spectroscopy station for the collinear resonance ionization experiment at ISOLDE. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 707 (2013), Nr. 0, 35 - 39. <http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2012.12.090>. – ISSN 0168–9002
- [Roß11] ROSSNAGEL, Johannes: *Aufbau einer Atomstrahl-Massenspektrometer-Apparatur zur resonanten Laserionisation*, Institut für Physik, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Diplomarbeit, 2011
- [Rot12] ROTHE, Sebastian: *An all-solid state laser system for the laser ion source RILIS and in-source laser spectroscopy of astatine at ISOLDE/CERN*, Institut für Physik, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Diss., 2012
- [Sah21] SAHA, Megh N.: Versuch einer Theorie der physikalischen Erscheinungen bei hohen Temperaturen mit Anwendungen auf die Astrophysik. In: *Zeitschrift für Physik* 6 (1921), Nr. 1, 40–55. <http://dx.doi.org/10.1007/BF01327962>
- [Sch10] SCHWELLNUS, Fabio: *Entwicklung von Ionenquellen zur Optimierung von Selektivität und Effizienz bei der resonanten Laserionisation*, Institut für Physik, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Diss., 2010

- [SFK⁺92] SCHEERER, F. ; FEDOSEYEV, V. N. ; KLUGE, H.-J. ; MISHIN, V. I. ; LETHOKOV, V. S. ; RAVN, H. L. ; SHIRAKABE, Y. ; SUNDELL, S. ; TENGBLAD, O.: A chemically selective laser ion source for on-line mass separation. In: *Review of Scientific Instruments* 63 (1992), Nr. 4, 2831-2833. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1142820>
- [TUS00] TOLMACHEV, Aleksey V. ; UDSETH, Harold R. ; SMITH, Richard D.: Charge Capacity Limitations of Radio Frequency Ion Guides in Their Use for Improved Ion Accumulation and Trapping in Mass Spectrometry. In: *Analytical Chemistry* 72 (2000), Nr. 5, 970-978. <http://dx.doi.org/10.1021/ac990729u>
- [Web99] WEBER, Marvin: *Handbook of laser wavelengths*. CRC Press, 1999. – ISBN 0849335086
- [Wie06] WIES, Katja: *Entwicklung des Laserionenquellen- und fallenprojekts LIST für Ultrapurendetektion und Grundlagenforschung*, Institut für Physik, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Diss., 2006
- [Zim90] ZIMMER, Klaus: *Konzeption, Aufbau und Test der Ionenoptik des RISIKO-Massenseparators*, Institut für Physik, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Diplomarbeit, 1990

LEBENS LAUF

PERSÖNLICHE DATEN

Name	Detlef Sven Michael Richter
Geburtsdatum	11. Mai 1983
Geburtsort	Wiesbaden
Staatsangehörigkeit	Deutsch
Familienstand	Verheiratet
Anschrift	Lahnstr. 28A 65195 Wiesbaden



BILDUNGSGANG

10/2010 – 02/2015	Promotionsstudium der Physik, Universität Mainz, Thema: „Implementierung der Laserionenquellenfalle LIST bei ISOLDE und Validierung der Spezifikationen Effizienz und Selektivität“ Promotion voraussichtlich 2015
09/2003 – 04/2010	Diplomstudium der Physik, Universität Mainz, Gesamtnote 1,7 Thema: „Eine Quecksilberdampfzelle zur Lyman- α -Erzeugung in einem Überhöhungsresonator“
07/2002 – 04/2003	Zivildienstleistender , Arbeiter-Samariter-Bund Wiesbaden: Ausbildung zum Rettungshelfer, Dienst im Rettungswagen und im Medizinischen Transport-Management
08/1993 – 06/2002	Leibniz-Gymnasium , Wiesbaden, Abitur einschließlich Latinum, Leistungskurse: Mathematik und Physik, Gesamtnote: 2,5
08/1989 – 06/1993	Geschwister-Scholl-Grundschule , Wiesbaden

WISSENSCHAFTLICHE TÄTIGKEITEN / LEHRTÄTIGKEITEN

03/2008 – 04/2008	Wissenschaftliche Hilfskraft , Universität Mainz, Studiengang Physik: Verifikation einer Hochpräzisionsspannungsquelle zur Bestimmung des magnetischen Moments des Protons und Planung eines thermisch isolierenden Gehäuses für diese Spannungsquelle
10/2010 – 07/2014	Wissenschaftliche Hilfskraft , Universität Mainz, Studiengang Physik: Betreuung von Studierenden im Rahmen der Promotion bei physikalischen Praktika im Hauptstudium und bei Bachelor-Abschlussarbeiten
09/2006 – 08/2010	Wissenschaftliche Hilfskraft , Universität Mainz, Studiengang Physik: Betreuung von Studierenden bei physikalischen Praktika im Grund- und Hauptstudium

TEILNAHME AN TAGUNGEN

- 03/2011 – 03/2013 **Tagung**, DPG-Frühjahrestagungen
- 05/2013 **Konferenz**, Application of Lasers and Storage Devices in Atomic Nuclei Research 2013, Poznan, Polen
- 02/2013 **Workshop**, LA³NET: Laser Based Particle Sources, Genf, Schweiz
- 06/2012 **Konferenz**, International Conference on Laser Probing 2012, Paris, Frankreich
- 05/2011 **Konferenz**, Advances in Radioactive Isotope Science 2011, Leven, Belgien

PUBLIKATIONEN

- 02/2015 **Physical Review**, In-Source Laser Spectroscopy with the Laser Ion Source and Trap: First Direct Study of the Ground-State Properties of ^{217,219}Po
- 07/2014 **CERN Technical Note**, LIST Construction Manual
- 12/2013 **Nuclear Instruments**, First application of the Laser Ion Source and Trap (LIST) for on-line experiments at ISOLDE

AUßERUNIVERSITÄRE TÄTIGKEITEN

- 03/2004 – 10/2010 **Werkstudent**, Smiths Detection, Entwicklungsabteilung, Wiesbaden: Implementierung von Unit-Tests für Softwaremodule, Datenbankerstellung zur Testmittelverwaltung, Hard- & Software Prototyp-Tests, Bildauswertung von Gepäckprüfanlagen und Ganzkörperscannern
- 08/2008 – 06/2009 **Lehrkraft**, Lobeschule, Wiesbaden: Durchführung des Physikunterrichts für medizinisch-technische Assistenten

SPRACHKENNTNISSE

Deutsch (Muttersprache)

Englisch (fließend in Wort und Schrift mit technischem/physikalischem Fachvokabular)

INTERESSEN / HOBBYS

Interessen: Physik, Informatik, zukunftsweisende Technologien

Hobbys: Fernreisen, Fahrradfahren, Motorradfahren, Inlineskaten



Wiesbaden, den 04.05.2015